



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2019년02월15일  
 (11) 등록번호 10-1948699  
 (24) 등록일자 2019년02월11일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
*C01B 32/16* (2017.01) *B01J 19/26* (2006.01)  
 (52) CPC특허분류  
*C01B 32/16* (2017.08)  
*B01J 19/26* (2013.01)  
 (21) 출원번호 10-2017-0019586  
 (22) 출원일자 2017년02월13일  
 심사청구일자 2017년02월13일  
 (65) 공개번호 10-2018-0093458  
 (43) 공개일자 2018년08월22일  
 (56) 선행기술조사문헌  
 JP2012046841 A  
 JP2016017005 A  
 KR1020160090225 A  
 KR1020100108599 A\*  
 \*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자  
 숭실대학교산학협력단  
 서울특별시 동작구 상도로 369 (상도동)  
 (72) 발명자  
 정영진  
 서울특별시 용산구 이촌로 303, 22동 906호 (이촌동, 현대아파트)  
 송현준  
 서울특별시 광진구 군자로4길 26 (화양동)  
 (74) 대리인  
 특허법인엠에이피에스

전체 청구항 수 : 총 5 항

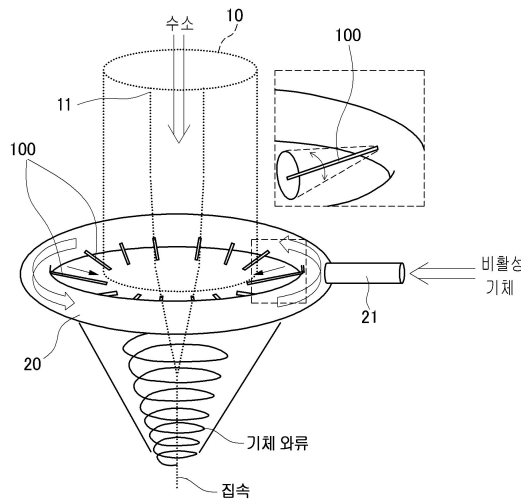
심사관 : 장기완

(54) 발명의 명칭 탄소나노튜브 집합체 제조 장치

**(57) 요약**

탄소나노튜브 집합체 제조 장치는 내측으로 탄소나노튜브 합성 공간을 제공하는 합성로; 및 합성로 하단에 배치되어 복수의 노즐을 통하여 비활성 기체를 분사하여 합성로에서 배출되는 탄소나노튜브를 집속하는 기체공급부를 포함하되, 복수의 노즐은 합성로에서 배출되는 탄소나노튜브를 둘러싸도록 기체공급부의 원호를 따라 배치되며, 개별적으로 조절 가능하다.

**대표도** - 도1



(52) CPC특허분류

B01J 2219/00049 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 10052838

부처명 산업통상자원부

연구관리전문기관 한국산업기술평가관리원

연구사업명 산업기술혁신사업 계획서[산업핵심기술개발사업]

연구과제명 1 Step 합성 · 방사법에 의한 CNT 연속섬유 제조기술 개발

기 여 율 1/1

주관기관 숭실대학교 산학협력단

연구기간 2016.06.01 ~ 2017.05.31

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

탄소나노튜브 집합체 제조 장치에 있어서,

내측으로 탄소나노튜브 합성 공간을 제공하는 합성로; 및

상기 합성로 하단에 배치되어 복수의 노즐을 통하여 비활성 기체를 분사하여 상기 합성로에서 배출되는 탄소나노튜브를 집속하는 기체공급부;를 포함하되,

상기 복수의 노즐은 상기 합성로에서 배출되는 탄소나노튜브를 둘러싸도록 상기 기체공급부의 원호를 따라 배치되며, 개별적으로 조절 가능한 것이며,

상기 노즐은 상기 기체공급부의 중심을 향하여 상측, 하측, 좌측, 우측 중 어느 하나의 방향으로 예각을 갖도록 조절 가능한 것이고,

상기 기체공급부와 결합되는 평면에 대하여 예각을 갖도록 시계방향 또는 반시계 방향으로 기울어지도록 배치된 것이며,

상기 노즐의 직경을 조절하여, 상기 비활성 기체의 공급 속도의 조절이 가능한 것인 탄소나노튜브 집합체 제조 장치.

#### 청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 기체공급부는 상기 합성로의 중심으로부터 소정의 거리 이격되고, 상기 중심과 동심원의 관계를 갖도록 위치하며, 관형 부재를 원형으로 형성한 것인 탄소나노튜브 집합체 제조 장치.

#### 청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 노즐은 상기 기체공급부에 일단이 고정되고, 상기 기체공급부의 중심을 향하여 타단이 연장되게 형성되는 것인 탄소나노튜브 집합체 제조 장치.

#### 청구항 4

삭제

#### 청구항 5

삭제

#### 청구항 6

삭제

#### 청구항 7

제 1 항에 있어서,

상기 탄소나노튜브 집합체의 제조를 위한 합성 원료를 공급하는 원료 공급부를 더 포함하는 것인 탄소나노튜브 집합체 제조 장치.

#### 청구항 8

제 1 항에 있어서,

상기 기체공급부의 일측에 설치되어 상기 비활성 기체를 주입하는 기체 주입부를 더 포함하는 것인 탄소나노튜브 집합체 제조 장치.

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 발명은 탄소나노튜브 집합체 제조 장치에 관한 것이다.

**배경 기술**

[0002] 일반적으로, 합성로에서 합성된 탄소나노튜브 집합체는 습식 또는 건식 공정을 통하여 집속되며, 집속된 탄소나노튜브 집합체는 섬유 형상을 가지게 된다. 습식 공정은 합성된 탄소나노튜브 집합체가 합성로 하단부에 설치된 물, 에탄올 등의 용매가 담긴 욕조를 통과하면서 집속되는 방법이다. 이송가스로 사용된 수소 기체로 인한 폭발을 방지하기 위해서는 욕조를 밀폐해야 하며, 밀폐된 욕조에 담긴 수소를 처리하기 위하여 수소포집장치를 설치하여 사용한다. 수소포집장치를 사용할 경우 작업자는 탄소나노튜브 섬유의 질사와 같은 문제가 발생하였을 때 신속한 대처가 어렵다는 문제가 있다.

[0003] 한편, 비활성 기체를 이용한 건식 공정의 경우에는 개방된 환경에서 작업이 이루어지므로 필요한 경우 언제든지 설비에 작업자가 접근하는 것이 가능하여 효율적인 생산이 가능하다. 즉, 건식공정을 통하여 탄소나노튜브 집합체를 집속하는 기술은 탄소나노튜브 집합체 제조 공정을 단순화 할 수 있어서 안정적이면서 균제도가 우수한 탄소나노튜브 집합체를 생산할 수 있다. 더불어, 생산 공정에서 별도의 수소 포집장치를 필요로 하지 않아 작업 용이성과 공정의 유연성을 크게 향상시킬 수 있다.

[0004] 또한, 합성된 탄소나노튜브 집합체를 집속된 상태에서 권취를 하게되면 절단현상이 줄어들어 연속공정에 매우 유리하다. 그러나, 탄소나노튜브 집합체를 생산하는 공정에 따라 합성된 탄소나노튜브 집합체는 매우 약하기 때문에 연속적으로 권취하는 것에 어려움이 있다. 따라서, 이러한 문제점을 해결하기 위한 방안이 모색될 필요가 있다.

[0005] 이와 관련하여, 선행기술 한국등록특허 제 10-2016-0064103호(발명의 명칭: 가스실링 방식을 이용한 합성장치)는 질소 가스를 통해 외기를 차단하는 방법으로 기존의 수소 포집장치를 대체한 합성장치에 대하여 개시하고 있다.

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

[0006] 본 발명의 일부 실시예는 상술한 문제점을 해결하기 위하여 창출된 것으로, 건식 공정으로 탄소나노튜브 집합체 제조 공정의 안정을 향상시키며 또한 품질이 우수한 탄소나노튜브 집합체를 제조하는 탄소나노튜브 집합체 제조 장치를 제공 한다.

[0007] 다만, 본 실시예가 이루고자 하는 기술적 과제는 상기된 바와 같은 기술적 과제들로 한정되지 않으며, 또 다른 기술적 과제들이 더 존재할 수 있다.

**과제의 해결 수단**

[0008] 상술한 기술적 과제를 달성하기 위한 기술적 수단으로서, 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소나노튜브 집합체 제조 장치는 내측으로 탄소나노튜브 합성 공간을 제공하는 합성로; 및 합성로 하단에 배치되어 복수의 노즐을 통하여 비활성 기체를 분사하여 합성로에서 배출되는 탄소나노튜브를 집속하는 기체공급부;를 포함하되, 복수의 노즐은 합성로에서 배출되는 탄소나노튜브를 둘러싸도록 기체공급부의 원호를 따라 배치되며, 개별적으로 조절 가능하다.

**발명의 효과**

[0009] 본 발명에 의한 경우, 비활성 기체를 사용해 와류를 형성하고, 이를 이용하여 탄소나노튜브 집합체에 꼬임을 부여해서 집속함으로써, 집속된 탄소나노튜브 집합체의 강력과 균제도를 향상시킬 수 있다.

[0010] 더불어, 비활성 기체는 외기를 차단할 뿐 아니라, 합성에 사용된 수소를 회석함으로써 안정성이 크게 향상되며,

개방된 환경에서 생산이 가능하므로 합성설비에 작업자가 직접적으로 접근하여, 절사와 같은 문제 상황에 신속하게 대응할 수 있다.

**도면의 간단한 설명**

- [0011] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소나노튜브 집합체 제조 장치의 구성도이다.
- 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따른 기체공급부의 단면도이다.
- 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소나노튜브 집합체의 집속과 종래의 건식집속장치를 비교하여 설명하기 위한 도면이다.
- 도 4는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 탄소나노튜브 집합체의 비활성 기체 투입량에 따라 변화하는 직경을 나타낸 도면이다.
- 도 5는 본 발명의 일 실시예에 따른 노즐 방향의 설정에 따른 비활성 기체의 진행방향을 설명하기 위한 도면이다.
- 도 6은 도5의 직선형의 비활성 기체 진행 방향과 나선형의 비활성 기체 진행 방향에 따라 제조된 탄소나노튜브 집합체를 나타낸 도면이다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0012] 아래에서는 첨부한 도면을 참조하여 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 본 발명의 실시예를 상세히 설명한다. 그러나 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되지 않는다. 그리고 도면에서 본 발명을 명확하게 설명하기 위해서 설명과 관계없는 부분은 생략하였으며, 명세서 전체를 통하여 유사한 부분에 대해서는 유사한 도면 부호를 붙였다.
- [0013] 명세서 전체에서, 어떤 부분이 다른 부분과 "연결"되어 있다고 할 때, 이는 "직접적으로 연결"되어 있는 경우뿐 아니라, 그 중간에 다른 소자를 사이에 두고 "전기적으로 연결"되어 있는 경우도 포함한다. 또한 어떤 부분이 어떤 구성요소를 "포함"한다고 할 때, 이는 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성요소를 더 포함할 수 있는 것을 의미하며, 하나 또는 그 이상의 다른 특징이나 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.
- [0014] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소나노튜브 집합체 제조 장치의 구성도이고, 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따른 기체공급부의 단면도이고, 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소나노튜브 집합체의 집속과 종래의 건식집속장치를 비교하여 설명하기 위한 도면이고, 도 4는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 탄소나노튜브 집합체의 비활성 기체 투입량에 따라 변화하는 직경을 나타낸 도면이고, 도 5는 본 발명의 일 실시예에 따른 노즐 방향의 설정에 따른 비활성 기체의 진행방향을 설명하기 위한 도면이고, 도 6은 도5의 직선형의 비활성 기체 진행 방향과 나선형의 비활성 기체 진행 방향에 따라 제조된 탄소나노튜브 집합체를 나타낸 도면이다.
- [0015] 도 1을 참조하면, 본 발명의 탄소나노튜브 집합체 제조 장치는 내측으로 탄소나노튜브 합성 공간을 제공하는 합성로(10) 및 합성로(10) 하단에 배치되어 복수의 노즐(100)을 통하여 비활성 기체를 분사하며 합성로(10)에서 배출되는 탄소나노튜브를 집속하는 기체공급부(20)를 포함한다.
- [0016] 합성로(10)는 내부에 탄소나노튜브 섬유의 합성이 이루어지는 공간을 제공한다. 예를 들면, 합성로(10)는 원기둥의 형상을 가질 수 있지만 그 형태와 크기는 사용자의 필요에 따라 다양하게 설정될 수 있다.
- [0017] 복수의 노즐(100)은 합성로(10)에서 배출되는 탄소나노튜브를 둘러싸도록 기체공급부(20)의 원호를 따라 배치되며, 개별적으로 조절 가능할 수 있다. 이때, 복수의 노즐(100)을 통하여 분사되는 비활성 기체에는 와류가 형성될 수 있다. 즉, 이러한 와류가 형성된 비활성 기체에 의해 꼬임이 부여된 탄소나노튜브 집합체가 제조될 수 있다. 이로 인해, 본 발명의 탄소나노튜브 집합체 제조 장치에 의해 제조된 탄소나노튜브 집합체는 강력과 균제도가 향상될 수 있다. 더불어, 비활성 기체는 외기를 차단할 뿐 아니라, 합성에 사용된 수소를 희석함으로써 안정성이 크게 향상될 수 있다.
- [0018] 구체적으로, 도 1 및 2를 참조하면, 기체공급부(20)는 합성로(10)의 중심으로부터 소정의 거리 이격되고, 중심과 동심원의 관계를 갖도록 위치하며, 관형 부재를 원형으로 형성한 것일 수 있다. 또한, 기체공급부(20)는 일측에 설치되어 비활성 기체를 주입하는 기체 주입부(21)를 포함할 수 있다. 일 예로, 비활성 기체는 질소일 수

있으나 이에 한정되는 것은 아니다.

- [0019] 노즐(100)은 기체공급부(20)에 일단이 고정되고, 기체공급부의 중심을 향하여 타단이 연장되게 형성될 수 있다. 노즐(100)은 비활성 기체의 공급 속도를 조절할 수 있다. 일 예로, 탄소나노튜브 집합체의 직경이 감소하도록 비활성 기체의 공급 속도를 증가할 경우, 탄소나노튜브 집합체 사이의 접촉 면적이 증가하고, 이로 인해, 탄소나노튜브 사이의 하중전달 효과가 좋아져, 탄소나노튜브 집합체의 전기적인 접촉저항은 감소시키고, 기계적인 물성은 증가시킬 수 있다.
- [0020] 노즐(100)은 기체공급부(20)의 중심을 향하여 상측, 하측, 좌측, 우측 중 어느 하나의 방향으로 예각을 갖도록 조절 가능할 수 있다. 일 예로, 도 1에 도시된 바와 같이, 노즐(100)의 타단은 0°~90°의 각도를 갖도록 상측 및 하측으로 조절되고, 0°~90°의 각도를 갖도록 좌측 및 우측으로 조절될 수 있다.
- [0021] 또한, 노즐(100)은 기체공급부(20)와 결합되는 평면에 대하여 예각을 갖도록 시계방향 또는 반시계 방향으로 기울어지도록 배치될 수 있다. 예시적으로 도2에 도시된 바와 같이, 복수의 노즐(100)이 반시계 방향으로 균일하게 소정의 각도 만큼 기체공급부(20)의 벽체와 예각을 갖도록 기울어지게 배치될 경우, 각 노즐(100)을 통하여 분사되는 비활성 기체는 와류를 형성하게 된다. 이로 인해, 합성로(10)에서 배출되는 탄소나노튜브는 비활성 기체의 와류에 의해 꼬임이 부여된 탄소나노튜브 집합체로 집속될 수 있다.
- [0022] 본 발명의 탄소나노튜브 집합체 제조 장치는 탄소나노튜브 집합체의 제조를 위한 합성 원료를 공급하는 원료 공급부(11)를 더 포함할 수 있다. 원료 공급부(11)는 합성로(10)에 의해 표면이 둘러싸인 형태로 형성되어 합성 원료가 공급되며, 합성로(10)는 원료 공급부(11) 내의 합성 원료를 분해 및 재조립하여 탄소나노튜브를 합성한다. 이때, 합성 원료는 아세톤(Acetone), 페로세인(Ferrocene), 싸이오펜(Thiophene) 등으로 구성되며, 이는 일 실시예에 해당하는 것이며, 본 발명은 이에 한정되는 것이 아니다.
- [0023] 이하, 본 발명의 이해를 돕기 위하여 실시예를 들어 상세하게 설명하고자 한다. 다만 하기의 실시예는 본 발명의 내용을 예시하는 것일 뿐 본 발명의 범위가 하기 실시예에 한정되는 것은 아니다. 본 발명의 실시예는 당업계에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 발명을 보다 완전하게 설명하기 위해 제공되는 것이다.
- [0024] 도 3의 (a)는 비활성 기체를 단순히 건식집속장치의 좁고 기다란 구멍(slit)(A)을 통해 투입한 것을 나타낸 것이고, 도 3의 (b)는 노즐이 설치된 본 발명의 탄소나노튜브 집합체 제조 장치에 비활성 기체를 투입한 것을 나타낸 것이다. 합성 용액은 아세톤(Acetone) 98 wt%, 페로세인(Ferrocene) 0.4 wt%, 싸이오펜(Thiophene) 1.6 wt%의 조성으로 사용했으며, 이송가스(H<sub>2</sub>)는 1000 sccm의 속도로 주입하였고, 합성온도는 1200℃로 설정하였다.
- [0025] 도 3의 (a)는 하단에 구멍(A)은 좁고 기다란 모양(slit)으로 구비된 종래의 건식집속장치이며, 이러한 구성에 따르면 기체가 하방으로만 분사되어서 탄소나노튜브가 집속되지 않음을 확인할 수 있다. 또한, 도3의 (b)는 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소나노튜브 집속체 제조 장치이며, 노즐을 통하여 분사된 비활성 기체에 의해 탄소나노튜브 집합체에 꼬임이 부여되며 집속되는 것을 확인할 수 있다.
- [0026] 즉, 건식집속장치에 단순히 구멍만 뚫린 경우 외기의 유입에 의한 수소 가스 폭발현상은 방지할 수 있으나, 탄소나노튜브 집합체를 집속시킬 수 없다. 또한, 구멍(A)을 통해 투입된 비활성 기체가 수직방향으로 퍼지면서 외기의 유입을 차단할 수 있으나 탄소나노튜브 번들을 집속시킬만한 힘이 탄소나노튜브 집합체에 가해지지 않는다. 반면, 노즐이 설치된 건식집속장치의 경우 노즐을 통과하면서 같은 양의 비활성 기체가 공급되어도 더 빠른 속도로 비활성 기체가 투입되며, 탄소나노튜브 집합체는 와류에 의해서 토크가 가해져서 꼬임이 가해지게 된다.
- [0027] 도 4는 비활성 기체의 공급량을 달리하면서 탄소나노튜브 집합체에 꼬임을 부여하고, 이의 직경을 측정하는 것을 나타낸 것이다. 탄소나노튜브 섬유의 권취속도는 10 m/min로 동일하게 유지하고, 기체의 공급 속도는 1500 sccm부터 4000 sccm까지 늘려나갔다. 기체의 투입량이 증가하면 탄소나노튜브 집합체의 직경이 감소하는 경향을 보였는데 이는 비활성 기체의 투입량이 증가하면서 탄소나노튜브 집합체에 가해지는 토크가 더 커지기 때문이다. 따라서, 탄소나노튜브 집합체의 직경이 더 감소하면 탄소나노튜브 사이의 접촉이 더 좋아진다. 즉, 집속력이 증가하면 탄소나노튜브 사이의 접촉 면적이 증가하고, 이는 탄소나노튜브 사이의 하중전달 효과가 좋아져, 전기적인 접촉저항은 낮아지고 기계적인 물성은 좋아지게 한다.
- [0028] 도 5의 (a)는 비활성 기체 노즐의 방향을 합성로 하단부 중심부 방향으로 설정한 경우를 나타낸 것이고, 도 5의 (b)는 비활성 기체의 노즐 방향을 나선형으로 설정한 경우를 나타낸 것이다. 이로 인해, 탄소나노튜브 집합체의 특성을 비교할 수 있다. 즉, 비활성 기체의 공급방향에 따라 합성로 하단부에서의 비활성 기체 기류의 진행

방향이 달라졌으며, 이에 따른 탄소나노튜브 집합체의 특성이 다르게 나타났다. 도 5의 (a)에 도시된 바와 같이, 노즐을 노즐이 결합되는 기체 공급부(20)의 평면에 대하여 수직인 방향, 즉 기체 공급부(20)의 중심방향으로 배치하여 비활성 기체를 공급하였을 때에는 탄소나노튜브 집합체들이 일부 집속은 되었지만 꼬임은 부여되지 않았다. 반면, 도 5의 (b)에 도시된 바와 같이, 노즐을 노즐이 결합되는 기체 공급부(20)의 평면에 대하여 예각을 갖도록 배치하면, 즉 노즐이 기체 공급부(20)의 중심에 대하여 시계 방향 또는 반시계 방향으로 소정의 각도만큼 기울어지도록 배치하면, 비활성 기체를 공급하였을 때에 비활성 기체의 기류가 나선형으로 형성되어 탄소나노튜브 집합체에 꼬임이 부여되어 집속되었다.

[0029] 도 6의 (a)는 도 5의 (a)에 도시된 직선형의 비활성 기체 기류에 의해 집속된 탄소나노튜브 집합체를 나타낸 것이며, 탄소나노튜브 집합체의 균제도가 불균형한 것을 나타낸다. 반면, 도 6의 (b)는 도 5의 (b)에 도시된 나선형의 비활성 기체 기류에 의해 집속된 탄소나노튜브 집합체를 나타낸 것이며, 탄소나노튜브 집합체에 꼬임이 가해져서 탄소나노튜브 집합체의 균제도가 안정적인 것을 나타낸다.

[0030] 전술한 본 발명의 설명은 예시를 위한 것이며, 본 발명이 속하는 기술분야의 통상의 지식을 가진 자는 본 발명의 기술적 사상이나 필수적인 특징을 변경하지 않고서 다른 구체적인 형태로 쉽게 변형이 가능하다는 것을 이해할 수 있을 것이다. 그러므로 이상에서 기술한 실시예들은 모든 면에서 예시적인 것이며 한정적이 아닌 것으로 이해해야만 한다. 예를 들어, 단일형으로 설명되어 있는 각 구성 요소는 분산되어 실시될 수도 있으며, 마찬가지로 분산된 것으로 설명되어 있는 구성 요소들도 결합된 형태로 실시될 수 있다.

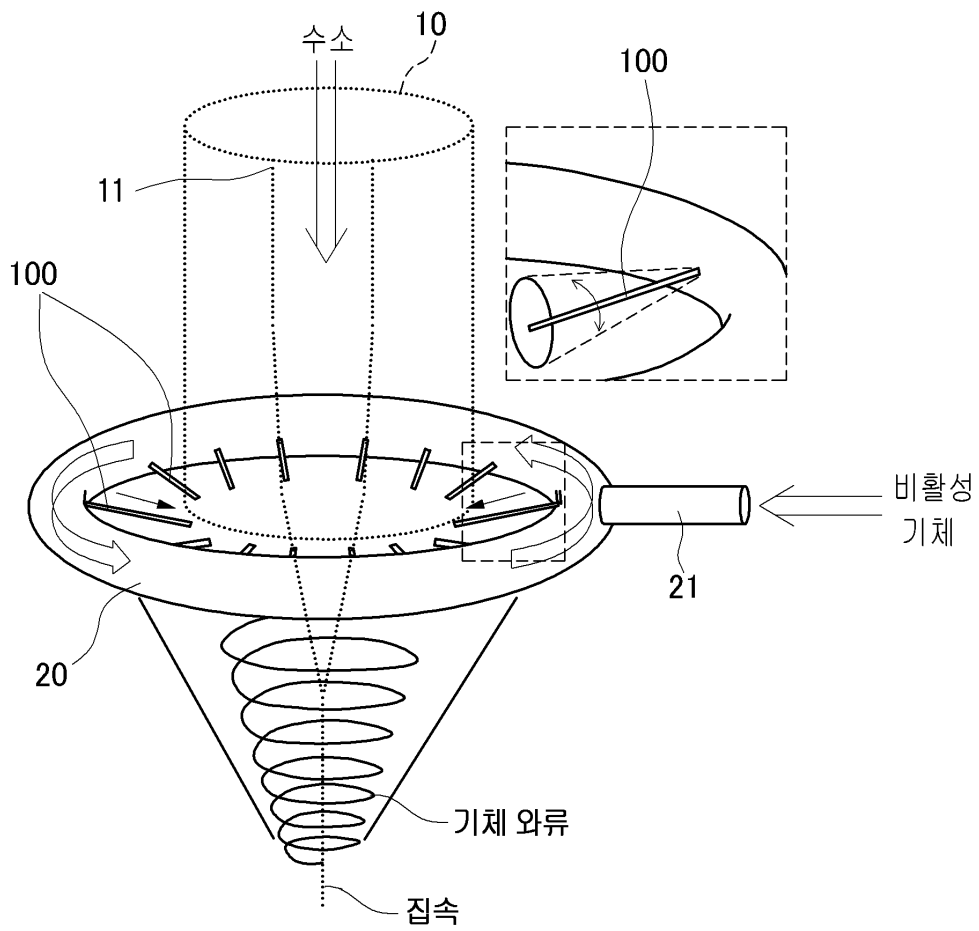
[0031] 본 발명의 범위는 상기 상세한 설명보다는 후술하는 특허청구범위에 의하여 나타내어지며, 특허청구범위의 의미 및 범위 그리고 그 균등 개념으로부터 도출되는 모든 변경 또는 변형된 형태가 본 발명의 범위에 포함되는 것으로 해석되어야 한다.

### 부호의 설명

- |        |            |            |
|--------|------------|------------|
| [0032] | 10: 합성로    | 20: 기체공급부  |
|        | 11: 원료 공급부 | 21: 기체 주입부 |
|        | 100: 노즐    |            |

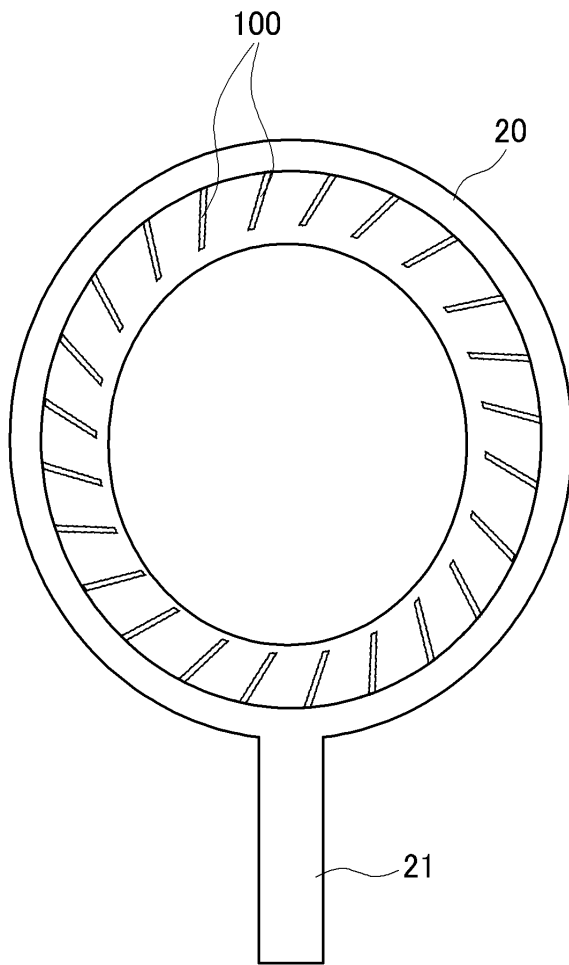
도면

도면1

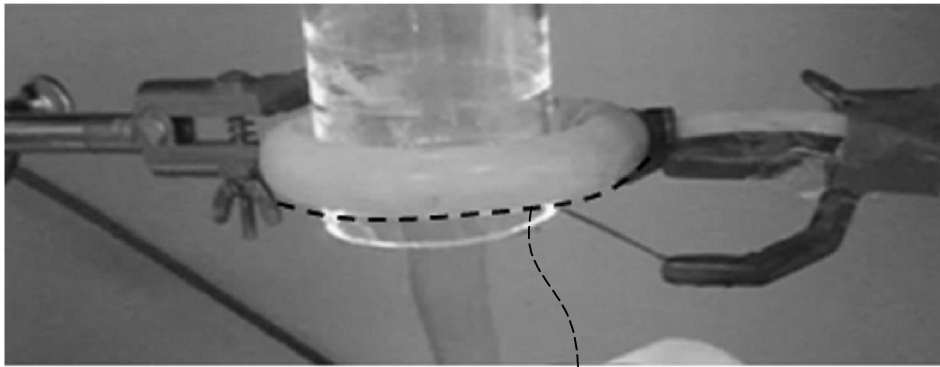




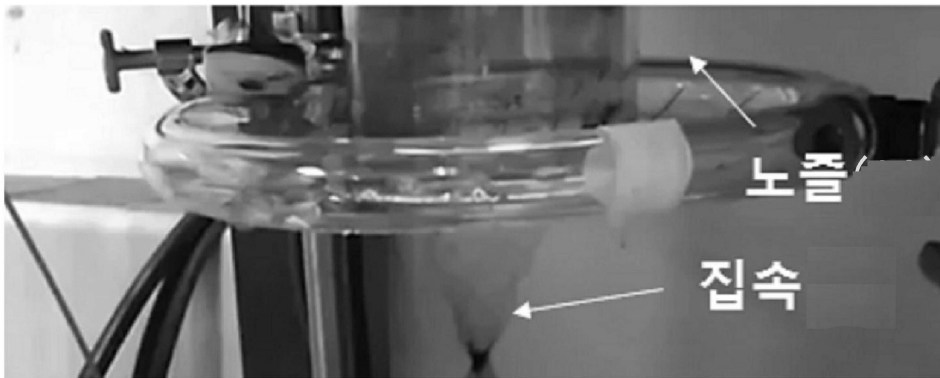
도면2



도면3

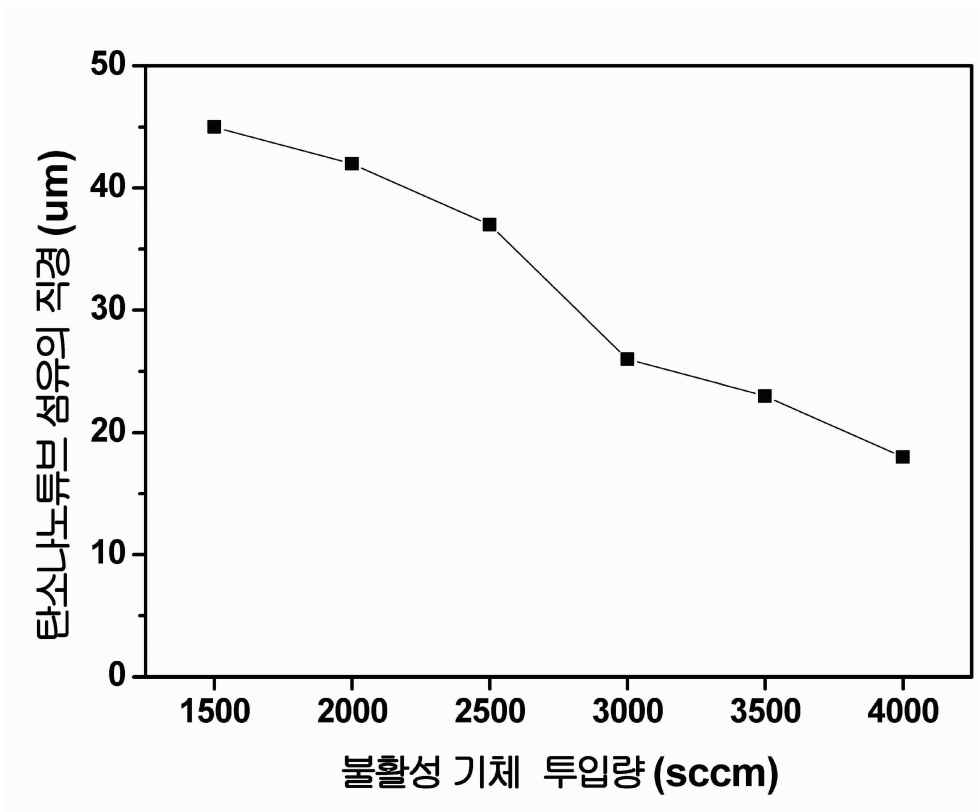


(a) A

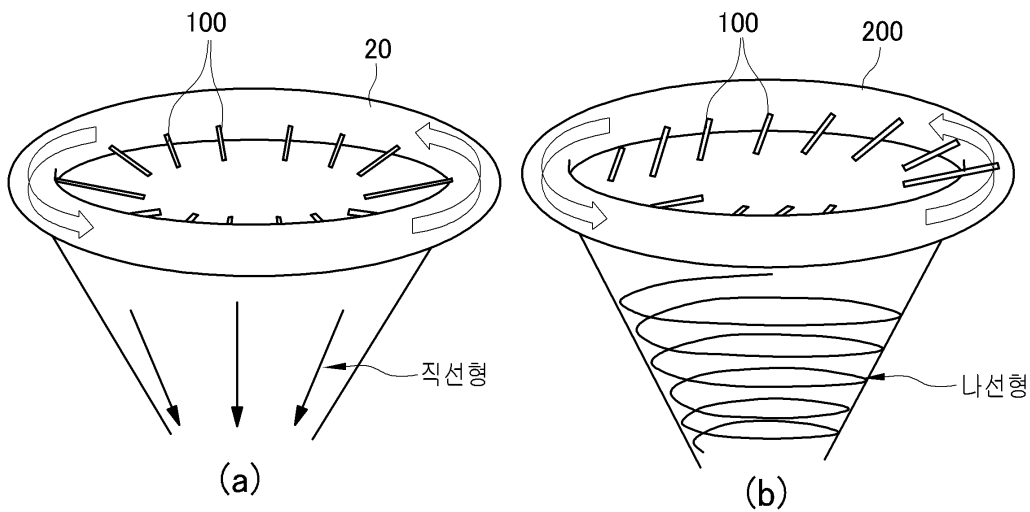


(b)

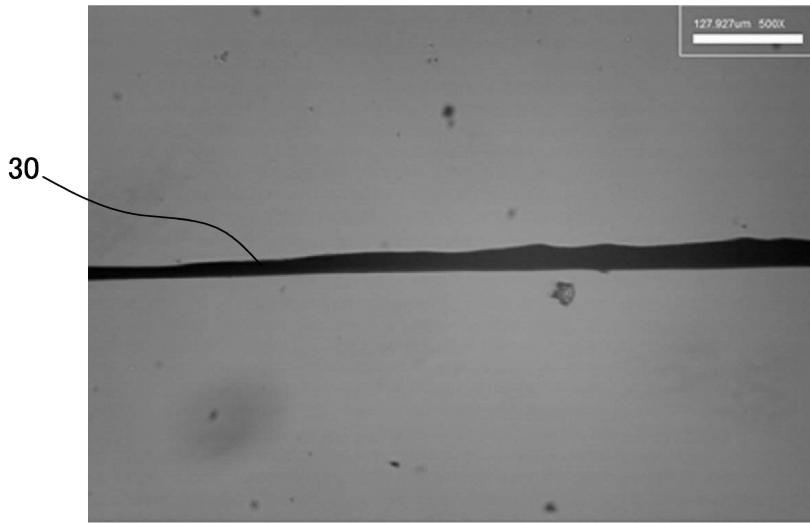
도면4



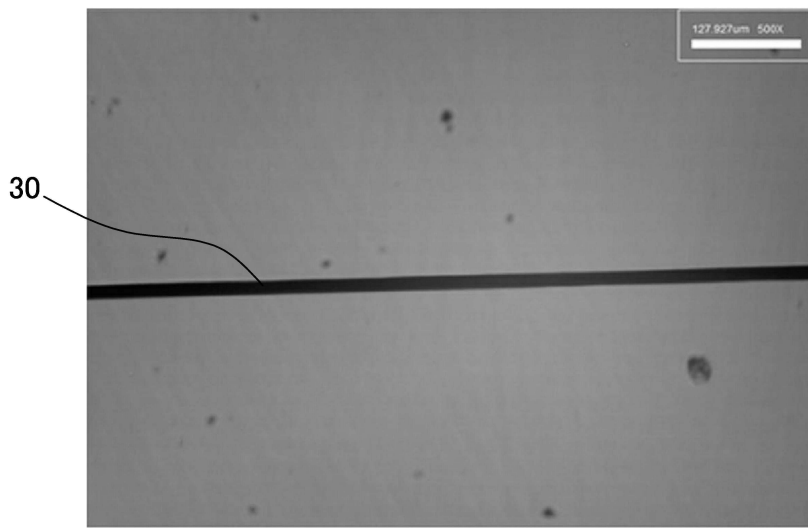
도면5



도면6



(a)



(b)