(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0097096
(43) 공개일자 2025년06월30일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
B01D 53/88 (2006.01)
(52) CPC특허분류
B01D 53/88 (2013.01)
B01D 2255/40 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2023-0188002
(22) 출원일자 2023년12월21일
심사청구일자 2023년12월21일

(71) 출원인
울산과학기술원
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
(72) 발명자
백종범
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
루난 관
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
김승현
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
(74) 대리인
특허법인(유한)아이시스

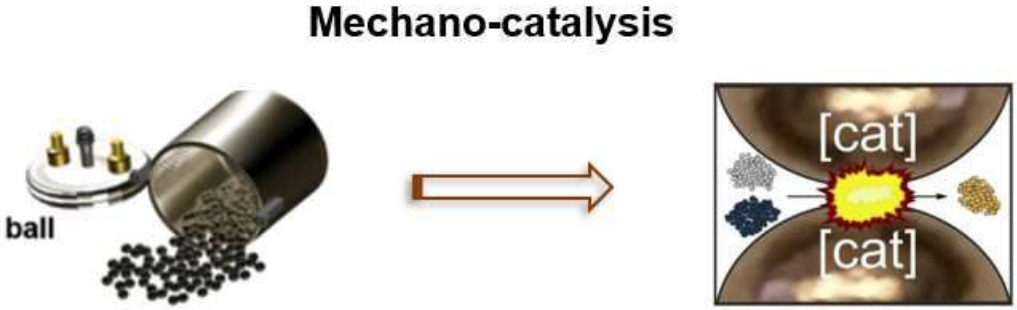
전체 청구항 수 : 총 8 항

(54) 발명의 명칭 **기계화학적 이산화탄소 전환방법**

(57) 요 약

본 발명에 따르면, 복수 개의 철 볼들이 포함된, 회전 가능한 반응 용기를 준비하는 단계(S100); 반응 용기에 금속 산화물로 구성되는 반응 촉매를 투입하는 단계(S200); 이산화탄소와 수소를 반응 용기에 투입하는 단계(S300); 및 이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되도록 하기 위해 반응 용기를 회전시키는 단계(S400);를 포함하는, 기계화학적 이산화탄소 전환방법이 제공된다.

대 표 도 - 도1



(52) CPC특허분류
B01D 2256/245 (2013.01)
B01D 2257/108 (2013.01)
B01D 2257/504 (2013.01)
Y02C 20/40 (2020.08)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1711189701
과제번호	2014R1A3A2069102
부처명	과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명	한국연구재단
연구사업명	개인기초연구(과기정통부)
연구과제명	차원조절 유기구조체 연구단
기 여 율	1/1
과제수행기관명	울산과학기술원
연구기간	2023.03.01 ~ 2023.11.30

명 세 서

청구범위

청구항 1

복수 개의 철 볼들이 포함된, 회전 가능한 반응 용기를 준비하는 단계(S100);

반응 용기에 금속 산화물로 구성되는 반응 촉매를 투입하는 단계(S200);

이산화탄소와 수소를 반응 용기에 투입하는 단계(S300); 및

이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되도록 하기 위해 반응 용기를 회전시키는 단계(S400);를 포함하는,

기계화학적 이산화탄소 전환방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

이산화탄소와 수소를 반응 용기에 투입하는 단계(S300)에서,

반응 용기 내의 이산화탄소의 압력은 1 내지 3 bar인 것인,

기계화학적 이산화탄소 전환방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

이산화탄소와 수소를 반응 용기에 투입하는 단계(S300)에서,

수소의 압력은 7 내지 10 bar인 것인,

기계화학적 이산화탄소 전환방법.

청구항 4

제1항에 있어서,

반응 용기를 회전시키는 단계(S400)에서,

반응 용기의 회전 속도는 500 내지 600 rmp인 것인,

기계화학적 이산화탄소 전환방법.

청구항 5

복수 개의 철 볼(iron ball)들, 이산화탄소, 및 수소를 수용하는 회전 가능한 반응 용기; 및

반응 용기에 투입되는 금속 산화물로 구성되는 반응 촉매;를 포함하고,

반응 용기가 회전하면, 이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되는,

기계화학적 이산화탄소 전환장치.

청구항 6

제5항에 있어서,

반응 용기 내에 수용되는 이산화탄소의 압력은 1 내지 3 bar인 것인,

기계화학적 이산화탄소 전환장치.

청구항 7

제5항에 있어서,

반응 용기 내에 수용되는 수소의 압력은 7 내지 10 bar인 것인,

기계화학적 이산화탄소 전환장치.

청구항 8

제5항에 있어서,

반응 용기를 회전시키는 단계에서,

이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되도록 하기 위해 반응 용기의 회전 속도는 500 내지 600 rmp인 것인,

기계화학적 이산화탄소 전환장치.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 탄소 포집, 활용 및 저장(CCUS: Carbon capture, utilization, and storage) 기술에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 2016년 11월, 파리 기후 협정이 공식적으로 발효되면서 "탄소 중립"에 대한 관심도가 급속하게 올라갔다. 현재까지 120개 이상의 국가와 지역이 배출량을 크게 줄이기 위한 약속을 하고, 탄소 중립의 실현을 위한 일정을 명확히 설정하였다. 유럽 연합을 대표로 하는 선진국은 71년, 미국은 43년(2020년 탈퇴 후 2021년 복귀), 일본은 37년, 중국은 30년의 시간을 갖고 탄소 중립을 달성할 것을 발표하였으며, 대한민국은 2050년까지 탄소 중립을 달성할 것을 선언하였다.

[0003] "탄소 중립" 목표를 정해진 일정에 달성하기 위해, 관련 국가 및 지역 기관은 저탄소 기술 개발을 촉진하기 위한 다양한 지원 정책을 적극적으로 추진하고 있다. 특히, 탄소 포집, 활용 및 저장(Carbon capture, utilization, and storage, CCUS) 기술과 산업의 발전을 장려하기 위해 다양한 정책을 지속적으로 도입하고 CO2 포집, 수송, 활용 및 저장의 이론, 핵심 기술 및 관련 전략에 대한 체계적인 시스템을 구축하고 있고, 이를 통해 기술 혁신의 속도를 촉진하고 있는 실정이다.

[0004] 현재, 전 세계 CCUS 시장은 여전히 산업 시연 단계에 있으며, 프로젝트 규모는 상대적으로 작아 비용이 높은 문제가 있다. 그러나 기술 개발을 장려하는 다양한 정책들로 인해 에너지 부문 투자 기관, 개인 투자자 등 다양한 자본력이 CCUS 산업에 투입될 것으로 예상되며, 이는 핵심 기술의 연구 및 개발 속도를 향상시키고 산업 전반의 활력을 높이는 데 도움이 될 것이다.

[0005] 종래, 산업화된 CCUS는 주로 열화학 반응을 기반으로 하지만, 이는 이산화탄소의 안정한 C=O 이중결합으로 인해 고온(300-600° C)에서 반응이 진행되어 많은 에너지 소비와 생산 비용을 유발하는 문제점이 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0006] (특허문헌 0001) 대한민국특허청 공개특허공보 제10-2019-0099951호(2019.08.28. 공개)

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 본 발명의 하나의 목적은 기존의 고온 열화학 촉매 기술에 비해 낮은 온도에서 진행될 수 있는 기계화학적 이산화탄소 전환방법을 제공하는 것이다.

[0008] 본 발명의 다른 하나의 목적은 일반적으로 사용되고 있는 메카노화학(mechano-chemical) 장비를 사용할 수 있는

이산화탄소 전환방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0009] 본 발명의 일 양태에 따르면, 복수 개의 철 볼들이 포함된, 회전 가능한 반응 용기를 준비하는 단계(S100); 반응 용기에 금속 산화물로 구성되는 반응 촉매를 투입하는 단계(S200); 이산화탄소와 수소를 반응 용기에 투입하는 단계(S300); 및 이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되도록 하기 위해 반응 용기를 회전시키는 단계(S400);를 포함하는, 기계화학적 이산화탄소 전환방법이 제공된다.

[0010] 본 발명의 다른 양태에 따르면, 복수 개의 철 볼(iron ball)들, 이산화탄소, 및 수소를 수용하는 회전 가능한 반응 용기; 및 반응 용기에 투입되는 금속 산화물로 구성되는 반응 촉매;를 포함하고, 반응 용기가 회전하면, 이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되는, 기계화학적 이산화탄소 전환장치가 제공된다.

발명의 효과

[0011] 본 발명에서 제안한 기계화학적 CO2 환원 기술은 기존 고온 열화학 촉매 기술에 비해 낮은 온도(80° C 이하)에서 진행될 수 있어 에너지 소비가 적고 CCUS 시장을 더욱 확장시킬 수 있는 장점을 가지고 있다.

[0012] 또한, 본 발명으로 고순도 메탄 제품을 얻을 수 있으며, 이는 재생에너지를 저장하는 유망한 방법으로 간주되며, 여러 탄소 제품 중에서도 가장 큰 에너지 밀도인 55.5 GJ/톤을 갖고 있다. 천연가스의 주 성분인 메탄은 산업 인프라에서 연료로 직접 운반 및 활용될 수 있다. 이러한 이유로 본 발명은 막대한 생산 가치를 가지고 있다.

[0013] 동시에, 본 발명에서 사용하는 메카노화학(mechano-chemical) 장비는 일반적이고 인기 있는 산업 장비로, 기계화학적 이산화탄소 환원 기술의 산업화를 위한 인프라를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0014] 도 1은 본 발명의 일 양태에 따른 기계화학적 이산화탄소 전환장치를 보여주는 도면이다.

도 2는 본 발명의 다른 양태에 따른 기계화학적 이산화탄소 전환방법을 설명하는 도면이다.

도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 이산화탄소 전환방법을 실험한 결과로서, 이산화탄소의 전환율을 나타낸다.

도 4는 본 발명의 일 실시예에 따른 이산화탄소 전환방법을 실험한 결과로서, 메탄의 농도를 나타낸다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0015] 이상의 목적들, 다른 목적들, 특징들 및 이점들은 첨부된 도면과 관련된 이하의 바람직한 실시예들을 통해서 쉽게 이해될 것이다. 그러나 여기서 설명되는 실시예들에 한정되지 않고 다른 형태로 구체화될 수도 있다. 오히려, 여기서 소개되는 실시예들은 개시된 내용이 철저하고 완전해질 수 있도록 그리고 통상의 기술자에게 기술적 사상이 충분히 전달될 수 있도록 하기 위해 제공되는 것이다.

[0016] 각 도면을 설명하면서 유사한 참조부호를 유사한 구성요소에 대해 사용하였다. 첨부된 도면에 있어서, 구조물들의 치수는 본 발명의 명확성을 위하여 실제보다 확대하여 도시한 것이다. 제1, 제2 등의 용어는 다양한 구성요소들을 설명하는데 사용될 수 있지만, 상기 구성요소들은 상기 용어들에 의해 한정되어서는 안 된다. 상기 용어들은 하나의 구성요소를 다른 구성요소로부터 구별하는 목적으로만 사용된다. 예를 들어, 본 발명의 권리 범위를 벗어나지 않으면서 제1 구성요소는 제2 구성요소로 명명될 수 있고, 유사하게 제2 구성요소도 제1 구성요소로 명명될 수 있다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다.

[0017] 본 명세서에서, "포함하다" 또는 "가지다" 등의 용어는 명세서 상에 기재된 특징, 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다. 또한, 층, 막, 영역, 판 등의 부분이 다른 부분 "상에" 있다고 할 경우, 이는 다른 부분 "바로 위에" 있는 경우뿐만 아니라 그 중간에 또 다른 부분이 있는 경우도 포함한다. 반대로 층, 막, 영역, 판 등의 부분이 다른 부분 "하부에" 있다고 할 경우, 이는 다른 부분 "바로 아래에" 있는 경우뿐만 아니라 그 중간에 또 다른 부분이 있는 경우도 포함한다.

[0018] 달리 명시되지 않는 한, 본 명세서에서 사용된 성분, 반응 조건, 폴리머 조성물 및 배합물의 양을 표현하는 모

든 숫자, 값 및/또는 표현은, 이러한 숫자들이 본질적으로 다른 것들 중에서 이러한 값을 얻는 데 발생하는 측정의 다양한 불확실성이 반영된 근사치들이므로, 모든 경우 "약"이라는 용어에 의해 수식되는 것으로 이해되어야 한다. 또한, 본 기재에서 수치범위가 개시되는 경우, 이러한 범위는 연속적이며, 달리 지적되지 않는 한 이러한 범 위의 최소값으로부터 최대값이 포함된 상기 최대값까지의 모든 값을 포함한다. 더 나아가, 이러한 범위가 정수를 지칭하는 경우, 달리 지적되지 않는 한 최소값으로부터 최대값이 포함된 상기 최대값까지를 포함하는 모든 정수가 포함된다.

[0019] 본 명세서에 있어서, 범위가 변수에 대해 기재되는 경우, 상기 변수는 상기 범위의 기재된 종료점들을 포함하는 기재된 범위 내의 모든 값들을 포함하는 것으로 이해될 것이다. 예를 들면, "5 내지 10"의 범위는 5, 6, 7, 8, 9, 및 10의 값들뿐만 아니라 6 내지 10, 7 내지 10, 6 내지 9, 7 내지 9 등의 임의의 하위 범위를 포함하고, 5.5, 6.5, 7.5, 5.5 내지 8.5 및 6.5 내지 9 등과 같은 기재된 범위의 범주에 타당한 정수들 사이의 임의의 값도 포함하는 것으로 이해될 것이다. 또한 예를 들면, "10% 내지 30%"의 범위는 10%, 11%, 12%, 13% 등의 값들과 30%까지를 포함하는 모든 정수들뿐만 아니라 10% 내지 15%, 12% 내지 18%, 20% 내지 30% 등의 임의의 하위 범위를 포함하고, 10.5%, 15.5%, 25.5% 등과 같이 기재된 범위의 범주 내의 타당한 정수들 사이의 임의의 값도 포함하는 것으로 이해될 것이다.

[0021] 본 발명에서 이산화탄소 전환장치는 이산화탄소의 화학적 전환 방법 중 하나인 이산화탄소 메탄화 반응에 사용될 수 있다. 이산화탄소 메탄화 반응은 하기의 화학식 1에 나타낸 바와 같이 이산화탄소를 메탄화하고, 이를 통하여 수득되는 메탄을 에너지원으로 직접 사용하거나 액체 탄화수소의 합성용으로 활용하는 것이다.

[0023] 화학식 1

[0024] $CO_2 + 4H_2 \rightarrow CH_4 + 2H_2O$

[0026] 본 발명에 따른 기계화학식 이산화탄소 전환에 사용되는 메카노화학(mechano-chemical) 장비는 기본적으로 정지상태의 외부 용기(B), 회전 가능한 내부 용기(A), 상기 내부 용기 내에 정지상태로 설치된 스크레이퍼(C) 및 아머(D)를 포함하며, 상기 내부 용기(A) 내에 투입된 모입자와 자입자가 아머(D)를 통과 할 때 기계적-화학적으로 복합화되고, 이를 dry particle coating process 또는 mechano-chemical process이라 부른다.

[0028] 상기 메카노화학 장비는 상업적으로 입수 가능한 호소카와 마이크론사(HOSOKAWA MICRON CORPORATION)의 메카노퓨전 시스템 AMS(Mechanofusion System AMS)을 이용할 수 있으며, 본 발명의 범위를 이로 제한하는 것은 아니다.

[0030] 도 1은 본 발명의 일 양태에 따른 기계화학적 이산화탄소 전환장치를 보여주는 도면이다.

[0032] 도 1을 참조하면, 본 발명의 일 실시예에 따른 이산화탄소 전환장치는 복수 개의 철 볼(iron ball)들, 이산화탄소, 및 수소를 수용하는 회전 가능한 반응 용기; 및 반응 용기에 투입되는 금속 산화물로 구성되는 반응 촉매; 를 포함할 수 있다.

[0033] 일 구현예에서, 복수 개의 철 볼들은 900개의 철 볼들일 수 있고, 각각의 철 볼은 0.5g의 무게를 가질 수 있다.

[0034] 일 구현예에서, 반응 촉매를 구성하는 금속 산화물은 2 이상의 금속 산화물의 혼합물일 수 있다.

[0035] 일 구현예에서, 반응 용기 내에 수용되는 이산화탄소의 압력은 1 내지 3 bar일 수 있다.

[0036] 일 구현예에서, 반응 용기 내에 수용되는 수소의 압력은 7 내지 10 bar일 수 있다.

[0037] 일 구현예에서, 이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되도록 하기 위해 반응 용기의 회전 속도는 500 내지 600 rmp일 수 있다.

[0039] 도 2는 본 발명의 다른 양태에 따른 기계화학적 이산화탄소 전환방법을 설명하는 도면이다.

[0040] 도 2를 참조하면, 본 발명의 일 실시예에 따른 이산화탄소 전환방법은 복수 개의 철 볼들이 포함된, 회전 가능한 반응 용기를 준비하는 단계(S100); 반응 용기에 금속 산화물로 구성되는 반응 촉매를 투입하는 단계(S200); 이산화탄소와 수소를 반응 용기에 투입하는 단계(S300); 및 이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되도록 하기 위해 반응 용기를 회전시키는 단계(S400);를 포함할 수 있다.

[0041] 일 구현예에서, 복수 개의 철 볼들은 900개의 철 볼들일 수 있고, 각각의 철 볼은 0.5g의 무게를 가질 수 있다.

[0042] 일 구현예에서, 반응 촉매를 구성하는 금속 산화물은 2 이상의 금속 산화물의 혼합물일 수 있다.

[0043] 일 구현예에서, 이산화탄소와 수소를 반응 용기에 투입하는 단계(S300)에서, 반응 용기 내의 이산화탄소의 압력은 1 내지 3 bar일 수 있다.

[0044] 일 구현예에서, 이산화탄소와 수소를 반응 용기에 투입하는 단계(S300)에서, 수소의 압력은 7 내지 10 bar일 수 있다.

[0045] 일 구현예에서, 반응 용기를 회전시키는 단계(S400)에서, 반응 용기의 회전 속도는 500 내지 600 rmp일 수 있다.

[0047] 이하, 실시예를 참조하여 본 발명에 대해 보다 구체적으로 설명한다. 하기 실시예는 본 발명의 이해를 돕기 위한 예시에 불과하며, 본 발명의 범위가 이에 한정되는 것은 아니다.

[0049] **실시예 : 기계화학적 이산화탄소 전환**

[0050] 반응용기 내에 반응 촉매로서 Ni/ZrO2를 투입하고, 500g의 철 볼(iron ball)들을 준비하여 반응용기에 넣었다.

[0051] 일 구현예에서, 반응 용기 내에서 수소의 압력을 7.5 bar, CO2의 압력을 2 bar로 설정하였다.

[0052] 반응 용기를 550 rpm의 속도로 회전시키면서 이산화탄소와 수소가 메탄으로 전환되도록 반응시켰다.

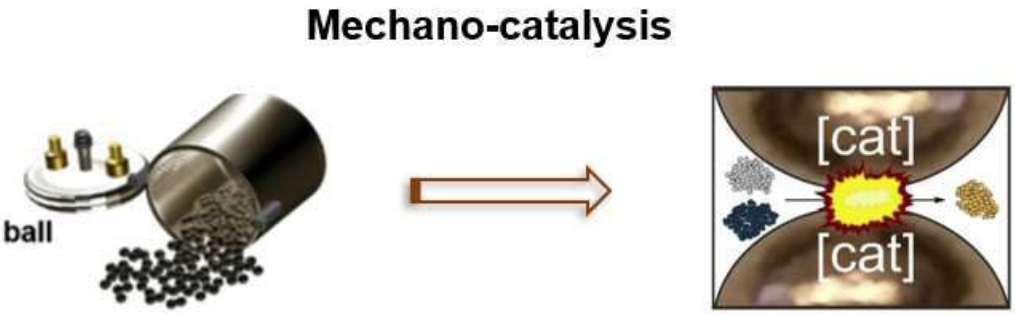
[0054] 그 다음, 반응 결과를 도 2와 도 3에 나타내었다.

[0056] 도 3 및 도 4는 본 발명의 일 실시예에 따른 이산화탄소 전환방법을 실험한 결과로서, 도 3은 이산화탄소의 전환율을 나타내고, 도 4는 메탄의 농도를 나타낸다.

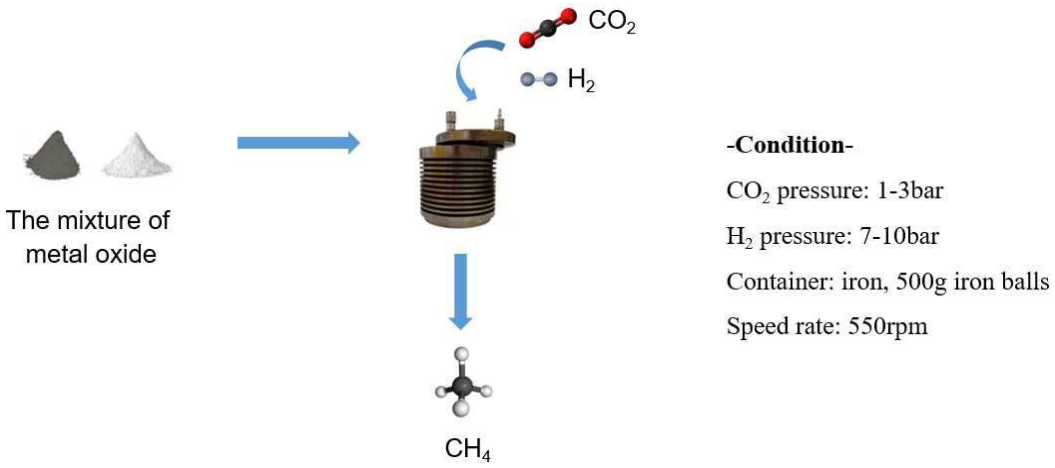
[0058] 도 3 및 도 4를 참조하면, 본 발명의 일 실시예에 따른 이산화탄소 전환방법을 이용하여 이산화탄소 전환율이 99.5%까지 얻을 수 있으며, 메탄 농도는 99.1%까지 얻을 수 있었다.

도면

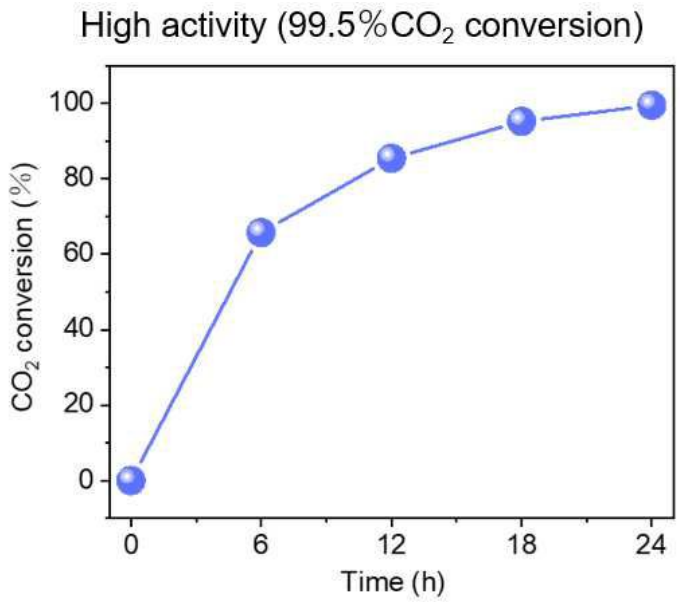
도면1



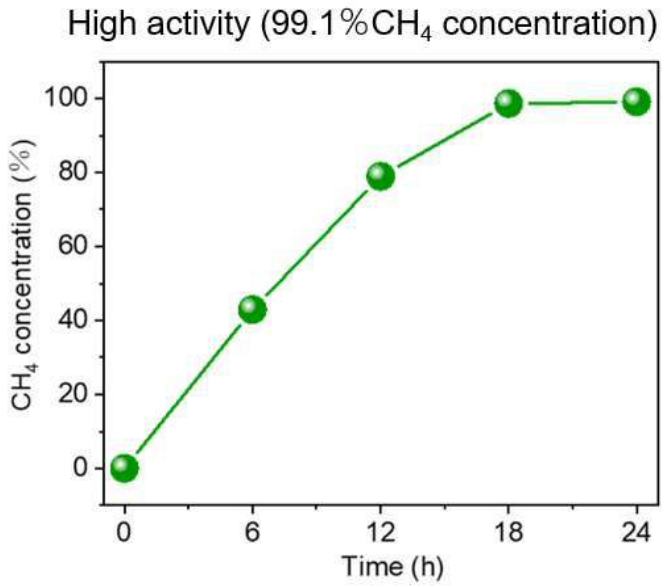
도면2



도면3



도면4


High activity (99.1%CH4 concentration)
CH4 concentration (%)
100
80
60
40
20
0
0
6
12
18
24
Time (h)