

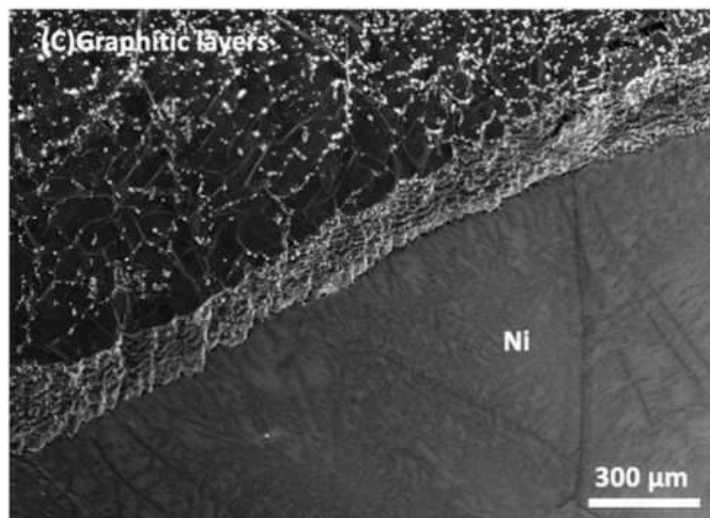
**(19) 대한민국특허청(KR)**
(12) 공개특허공보(A)**(11) 공개번호** 10-2024-0176780
(43) 공개일자 2024년12월24일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
B01D 59/42 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
B01D 59/42 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2024-0070968
- (22) 출원일자 2024년05월30일
심사청구일자 2024년05월30일
- (30) 우선권주장
1020230077600 2023년06월16일 대한민국(KR)
- (71) 출원인
기초과학연구원
대전광역시 유성구 엑스포로 55(도룡동)
울산과학기술원
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
- (72) 발명자
로드니 루 오프
대전광역시 유성구 엑스포로 55 (도룡동)
성원경
대전광역시 유성구 엑스포로 55 (도룡동)
- (74) 대리인
특허법인 플러스

전체 청구항 수 : 총 8 항

(54) 발명의 명칭 **일렉트로마이크레이션을 이용한 탄소 동위원소 분리방법****(57) 요약**

본 발명은 탄소 동위원소 분리 장치 및 이를 이용한 탄소 동위원소 분리 방법에 관한 것이다. 구체적으로, 일 양태에 따른 탄소 동위원소 분리 장치는 자성금속으로 이루어진 것으로, 중심부에 탄소 혼합물을 저장하는 포켓부; 양 말단에 전극 연결부; 및 상기 포켓부와 전극 연결부 사이에 흑연 석출부;를 포함하는 것으로 일렉트로마이크레이션을 통해 탄소 동위원소를 효율적으로 분리 및 농축할 수 있다.

대표도 - 도6

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1711196021
과제번호	IBS-R019-D1-2023-a00
부처명	과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명	기초과학연구원
연구사업명	캠퍼스연구단 연구사업
연구과제명	새로운 탄소동소체의 디자인, 합성 및 특성분석 (11/11)
과제수행기관명	기초과학연구원
연구기간	2023.01.01 ~ 2023.12.31

명세서

청구범위

청구항 1

중심부에 탄소 혼합물을 저장하는 포켓부; 양 말단에 전극 연결부; 및 상기 포켓부와 전극 연결부 사이에 흑연 석출부;를 포함하는 탄소 동위원소 분리 장치로서,

상기 탄소 동위원소 분리 장치는 자성금속으로 이루어진 것인, 탄소 동위원소 분리 장치.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 자성금속은 니켈 또는 코발트인, 탄소 동위원소 분리 장치.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 탄소 동위원소 분리 장치는 전극 연결부에 연결된 줄 가열(joule heating) 장치를 더 포함하는 것인, 탄소 동위원소 분리 장치.

청구항 4

제1항에 따른 탄소 동위원소 분리 장치의 전극 연결부를 줄 가열 장치의전극에 연결하는 단계; 상기 탄소 동위원소 분리 장치의 포켓부에 ^{12}C 및 ^{13}C 를 포함하는 탄소 혼합물을 투입하고 줄 가열하여 탄소 혼합물을 용해하는 단계; 및 일렉트로마이그레이션(electromigration)을 통해 흑연을 석출하는 단계;를 포함하는, 탄소 동위원소 분리 방법.

청구항 5

제4항에 있어서,

상기 석출된 흑연의 ^{12}C 함량은 탄소 혼합물의 ^{12}C 함량 대비 16at% 이상인, 탄소 동위원소 분리 방법.

청구항 6

제4항에 있어서,

상기 줄 가열에 의해 포켓부에서 양 말단 방향으로 감소하는 온도 구배를 형성하는 것인, 탄소 동위원소 분리 방법.

청구항 7

제6항에 있어서,

상기 포켓부의 온도는 1300 °C 내지 1400 °C이며, 흑연 석출부의 온도는 800 °C 내지 1,200 °C인, 탄소 동위원소 분리 방법.

청구항 8

제4항에 있어서,

상기 일렉트로마이그레이션은 20 내지 60 시간 동안 수행되는 것인, 탄소 동위원소 분리 방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 일렉트로마이그레이션을 이용한 탄소 동위원소 분리 및 농축방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 동위원소 분리기술은 원자량이 다른 동일한 원소로 구성된 동위원소 혼합물에서 특정 동위원소를 분리하는 기술이다.

[0003] 한편, 탄소는 자연 성분비가 98.89%인 탄소-12(^{12}C)와 1.1%인 탄소-13(^{13}C) 두 종류의 안정 동위원소가 있으며, 각 동위원소는 다양한 산업 분야에서 매우 유용한 재료이기 때문에 동위원소 분리 및 농축 대상으로 매우 중요한 원소 중 하나이다. 그러나, 현재 탄소 동위원소 분리를 위해 사용되는 기술은 고가의 장비와 전문 기술을 요구하거나, 환경 및 인체에 유해한 재료가 사용되고, 분리 효율이 낮은 단점이 존재한다.

선행기술문헌

특허문헌

[0004] (특허문헌 0001) 대한민국 공개특허공보 제10-2020-0062947 A(2020.06.04.)

발명의 내용

해결하려는 과제

[0005] 본 발명의 일 양태는 탄소 동위원소를 효율적으로 분리 및 농축할 수 있는 분리 장치 및 이를 이용한 탄소 동위원소 분리 방법을 제공한다.

과제의 해결 수단

[0006] 본 발명의 일 양태는, 중심부에 탄소 혼합물을 저장하는 포켓부; 양 말단에 전극 연결부; 및 상기 포켓부와 전극 연결부 사이에 흑연 석출부;를 포함하는 탄소 동위원소 분리 장치로서, 상기 탄소 동위원소 분리 장치는 자성금속으로 이루어진 것인 탄소 동위원소 분리 장치를 제공한다.

[0007] 상기 자성금속은 니켈 또는 코발트일 수 있다.

[0008] 상기 탄소 동위원소 분리 장치는 전극 연결부에 연결된 줄 가열(joule heating) 장치를 더 포함하는 것일 수 있다.

[0009] 본 발명의 또 다른 양태는 상기 탄소 동위원소 분리 장치의 전극 연결부를 줄 가열 장치의 전극에 연결하는 단계; 상기 탄소 동위원소 분리 장치의 포켓부에 ^{12}C 및 ^{13}C 를 포함하는 탄소 혼합물을 투입하고 줄 가열하여 탄소 혼합물을 용해하는 단계; 및 일렉트로마이그레이션(electromigration)을 통해 흑연을 석출하는 단계;를 포함하는, 탄소 동위원소 분리 방법을 제공한다.

[0010] 상기 석출된 흑연의 ^{12}C 함량은 탄소 혼합물의 ^{12}C 함량 대비 16at% 이상일 수 있다.

[0011] 상기 줄 가열에 의해 포켓부에서 양 말단 방향으로 감소하는 온도 구배를 형성하는 것일 수 있다.

[0012] 상기 포켓부의 온도는 1300 °C 내지 1400 °C이며, 흑연 석출부의 온도는 800 °C 내지 1,200 °C일 수 있다.

[0013] 상기 일렉트로마이그레이션은 20 내지 60 시간 동안 수행되는 것일 수 있다.

발명의 효과

[0014] 본 발명의 일렉트로마이그레이션(electromigration)을 이용한 탄소 동위원소 분리 방법에 따르면 잘 정렬된 흑연을 생산함과 동시에, 경제적이고 친환경적으로 탄소 동위원소를 분리 및 농축할 수 있다. 구체적으로, 일 양태에 따른 탄소 동위원소 분리 방법은 인체 및 환경에 유해한 재료가 사용되지 않아 친환경적이고, 또한, 공정 이 단순하며 에너지 효율이 높은 장점이 있어서 실제 산업 현장에 적용하기 유리할 것으로 기대된다.

도면의 간단한 설명

- [0015] 도 1은 일 실시예에 따른 탄소 동위원소 분리 장치 사진이다.
- 도 2는 일 실시예에 따른 줄 가열 장치에 연결된 탄소 동위원소 분리 장치의 사진이다.
- 도 3은 일 실시예에 따른 일렉트로마이그레이션 수행 후 탄소 동위원소 분리 장치의 사진이다.
- 도 4는 도 3에 표시된 a 내지 e 영역에 대한 온도 구배 그래프이다.
- 도 5는 도 3에 표시된 a 내지 e 영역에 대한 라만 스펙트럼이다.
- 도 6은 일 실시예에 따른 일렉트로마이그레이션 수행 후 주사 전자 현미경으로 관찰한 석출된 흑연 영역과 자성 금속(니켈) 영역의 경계 이미지이다.
- 도 7은 탄소 혼합물 소스의 ^{13}C 함량(at%)과 실시예 1 내지 10에서 일렉트로마이그레이션 수행 후 흑연 석출부에 대한 ^{13}C 함량을 도시한 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0016] 본 명세서에서 달리 정의되지 않는 한, 모든 기술적 용어 및 과학적 용어는 본 발명이 속하는 당업자에 의해 일반적으로 이해되는 의미와 동일한 의미를 갖는다. 본 명세서에서 설명에 사용되는 용어는 단지 특정 구체예를 효과적으로 기술하기 위함이고 본 발명을 제한하는 것으로 의도되지 않는다.
- [0017] 본 명세서에서 사용되는 단수 형태는 문맥에서 특별한 지시가 없는 한 복수 형태도 포함하는 것으로 의도할 수 있다.
- [0018] 본 명세서 전체에서 어떤 구성요소를 "포함한다", "구비한다", "함유한다", 또는 "가진다"는 것은 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성요소를 더 포함할 수 있다는 것을 의미하며, 추가로 열거되어 있지 않은 요소, 재료 또는 공정을 배제하지 않는다.
- [0019] 본 명세서에서 사용되는 수치 범위는 하한치와 상한치와 그 범위 내에서의 모든 값, 정의되는 범위의 형태와 폭에서 논리적으로 유도되는 증분, 이중 한정된 모든 값 및 서로 다른 형태로 한정된 수치 범위의 상한 및 하한의 모든 가능한 조합을 포함한다. 본 명세서에서 특별한 정의가 없는 한 실험 오차 또는 값의 반올림으로 인해 발생할 가능성이 있는 수치범위 외의 값 역시 정의된 수치범위에 포함된다.
- [0020] 본 명세서에서 특별한 정의가 없는 한, "약"은 명시된 값의 30%, 25%, 20%, 15%, 10% 또는 5% 이내의 값으로 고려될 수 있다.
- [0021] 본 명세서에서, "줄 가열(joule heating)"은 도체에 전류가 흐름으로 인해 열이 발생하는 과정을 의미한다.
- [0022] 본 명세서에서, "일렉트로마이그레이션(electromigration)"은 금속에 전류를 인가하였을 때 금속에서 원자가 전류를 따라 이동하는 현상을 의미한다.
- [0023] 본 발명의 일 양태는 일렉트로마이그레이션을 이용하여 탄소 동위원소를 분리 및 농축할 수 있는 장치, 및 이를 이용한 탄소 동위원소 분리 방법을 제공한다.
- [0024] 일 양태에 따른 탄소 동위원소 분리 장치(도 1)는 자성금속으로 이루어진 것으로서, 중심부에 탄소 혼합물을 저장하는 포켓부; 양 말단에 전극 연결부; 및 상기 포켓부와 전극 연결부 사이에 흑연 석출부;를 포함하는 것일 수 있다.
- [0025] 상기 자성금속은 탄소에 대한 용해도가 높은 자성금속이라면 제한없이 사용할 수 있으며, 비 한정적인 일 예로, 니켈 또는 코발트일 수 있다.
- [0026] 일 양태에 따른 상기 탄소 동위원소 분리 장치는 전극 연결부에 연결된 줄 가열(joule heating) 장치를 더 포함하는 것일 수 있다(도 2).
- [0027] 본 발명의 또 다른 양태는 상술한 탄소 동위원소 분리 장치를 이용하는 탄소 동위원소 분리 방법을 제공한다.
- [0028] 일 양태에 따른 탄소 동위원소 분리 방법은, 상술한 탄소 동위원소 분리장치의 전극 연결부를 줄 가열 장치의 전극에 연결하는 단계; 상기 탄소 동위원소 분리 장치의 포켓부에 ^{12}C 및 ^{13}C 를 포함하는 탄소 혼합물을 투입하고 줄 가열하여 탄소 혼합물을 용해하는 단계; 및 일렉트로마이그레이션(electromigration)을 통해 흑연을 석출

하는 단계;를 포함하는 것일 수 있다.

- [0029] 상기 석출된 흑연의 ^{12}C 함량은 탄소 혼합물의 ^{12}C 함량 대비 1 at% 이상, 2 at% 이상, 5 at% 이상, 또는 10 at% 이상, 또는 16 at% 이상, 또는 95 at% 이하, 또는 92 at% 이하, 또는 90 at% 이하일 수 있다. 즉, 일 양태에 따른 탄소 동위원소 분리 방법에 따르면, 일렉트로마이그레이션에 의해 상대적으로 더 가벼운 동위원소인 ^{12}C 가 금속을 통해 더 빨리 확산되고 탄소 혼합물 소스 대비 농축된 함량으로 석출될 수 있음을 알 수 있으며, 상기 분리 방법의 반복적인 수행을 통해 순수한 ^{13}C 와 ^{12}C 를 분리할 수 있을 것으로 기대된다.
- [0030] 일 양태에 따른 탄소 동위원소 분리 방법에 따르면, 상기 줄 가열에 의해 포켓부에서 양 말단 방향으로 감소하는 온도 구배(temperature gradient)를 형성하는 것일 수 있고, 상기 흑연 석출부는 일렉트로마이그레이션을 통해 이동하던 탄소 원자가 감소하는 온도 구배에 의해 석출되는 구간을 의미할 수 있다.
- [0031] 이때, 직류 전류를 이용한 줄 가열을 수행할 경우 포켓부를 기준으로 음극 방향의 흑연 석출부에서만 흑연이 석출될 수 있고, 교류 전류를 이용할 경우 포켓부를 기준으로 양쪽 흑연 석출부 모두 흑연이 석출될 수 있다.
- [0032] 상기 일렉트로마이그레이션 수행 시 포켓부의 온도는 탄소가 용해될 수 있는 온도 범위일 수 있고, 예를 들어, 1,300 °C 내지 1,400 °C, 또는 1,300 °C 내지 1,350 °C일 수 있으며, 흑연 석출부의 온도는 800 °C 내지 1,200 °C, 또는 900 °C 내지 1,200 °C, 또는 900 °C 내지 1,100 °C일 수 있다.
- [0033] 상기 일렉트로마이그레이션은 20 내지 60 시간, 또는 30 내지 60 시간, 또는 40 내지 60시간 동안 수행되는 것일 수 있으며, 아르곤 분위기 하에서 수행되는 것일 수 있다.
- [0034] 이하, 실시예를 통하여 상술한 구현예를 보다 상세하게 설명한다. 다만 하기의 실시예는 단지 설명의 목적을 위한 것이며 권리범위를 제한하는 것은 아니다.
- [0035] 실시예의 물성은 다음과 같이 측정하였다.
- [0036] 1. 주사 전자 현미경(Scanning Electron Microscope, SEM)
- [0037] 주사 전자 현미경(FEI Verios 460)으로 10kV 전자 가속 전압과 0.8nA 빔 전류 조건에서 흑연 석출 영역을 특성화하였다.
- [0038] 2. 라만 스펙트럼
- [0039] 공초점 라만 현미경(Horiba LabRAM HR Evolution)을 이용하여, 532nm 레이저 소스, x100 대물렌즈, 10%(~3mW) 레이저 출력, 1회 축적, 0.5초의 획득 시간으로 매핑 모드에서 수행하였으며, OriginPro 소프트웨어로 분석하여 결과 스펙트럼을 도시하였다.
- [0040] **[실시예 1]**
- [0041] 순도 99.9 wt%의 니켈 금속 벌크(Shaanxi Super Metal Materials Co. Limited)를 탄소 동위원소 분리 장치 형태로 가공하였다(도 1). 상기 니켈로 이루어진 탄소 동위원소 분리 장치를 아르곤:수소=1:3 분위기 하에서 어닐링 한 후, 양 말단을 줄 가열장치의 전극 홀더에 연결하였다(도 2).
- [0042] 이후, ^{12}C 탄소 분말(Alfa Aesar)과 ^{13}C 탄소 분말(Cambridge Isotope Laboratories Inc.)을 10/90 중량비로 혼합한 탄소 혼합물 소스를 볼 밀링한 후, 탄소 동위원소 분리 장치의 포켓부에 투입하였다. 이후 아르곤 분위기 하에서 직류 전류를 인가하여 줄가열을 실시하였으며 포켓부 온도를 1350 °C로 설정한 상태에서 50시간 동안 일렉트로마이그레이션(electromigration)을 수행하였다(도 3). 온도는 퍼니스(Furnace)의 측면 창을 통해 포켓부의 하단 영역에 초점을 맞춘 고온계로 모니터링 하였다.
- [0043] 일렉트로마이그레이션을 수행한 후의 탄소 동위원소 분리 장치의 사진을 도 3에 도시하였고, 상기 도 3에 표시된 a 내지 e 영역에 대한 온도 구배 그래프 및 라만 스펙트럼을 각각 도 4 및 도 5에 도시하였으며, c 영역의 주사 전자 현미경 측정 결과를 도 6에 도시하였다.
- [0044] 도 4를 참조하면 포켓부를 기준으로 양 말단 방향으로 온도가 감소하는 온도 구배가 형성되는 것을 알 수 있고, 도 5를 참조하면, c~d 영역에만 흑연의 라만 스펙트럼 피크인 G 및 2D 피크가 관찰되는 것을 확인할 수 있다. 즉, 포켓부를 기준으로 음극 방향에 해당하는 온도 감소 영역(c~d)에서만 흑연이 석출되는 것을 확인하였으며, 일렉트로마이그레이션에 의해 탄소가 확산되며, 온도가 감소하는 영역에서 흑연이 석출되는 것을 알 수 있다.

[0045] [실시예 2 내지 5]

[0046] 탄소 혼합물 소스의 동위원소 비율($^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$)을 10/90에서 30/70, 50/50, 70/30, 90/10 중량비로 변경한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 실시하였다.

[0047] [실시예 6]

[0048] 탄소 동위원소 분리 장치의 재료로 니켈 금속 대신 순도 99.95wt%의 코발트 금속 벌크(Shaanxi Super Metal Materials Co. Limited)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 실시하였다.

[0049] [실시예 7 내지 10]

[0050] 탄소 혼합물 소스의 동위원소 비율($^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$)을 10/90에서 30/70, 50/50, 70/30, 90/10 중량비로 변경한 것을 제외하고는 상기 실시예 6과 동일하게 실시하였다.

[0051] 상기 실시예에서 사용된 10/90, 30/70, 50/50, 70/30, 90/10 중량비의 $^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$ 탄소 혼합물 소스에 대한 IRMS(Isotope Ratio Mass Spectrometry)를 측정하여 ^{13}C 함량(at%)을 계산한 결과를 하기 표 1에 나타내었다. 또한, 상기 실시예 1 내지 10에서 일렉트로마이그레이션 수행 후 흑연 석출부에 대한 라만 스펙트럼 결과를 통해 ^{13}C 함량(at%)을 계산(*Nano Lett.* 2009, 9, 12, 4268-4272)하고 탄소 혼합물 소스의 ^{13}C 함량(at%)과 비교하여 도 7에 도시하였다.

표 1

[0052]

탄소 혼합물 소스 ($^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$)	IRMS	
	^{12}C (at%)	^{13}C (at%)
10/90	10.70	89.30
30/70	32.83	67.17
50/50	50.95	49.05
70/30	71.80	28.20
90/10	90.20	9.80

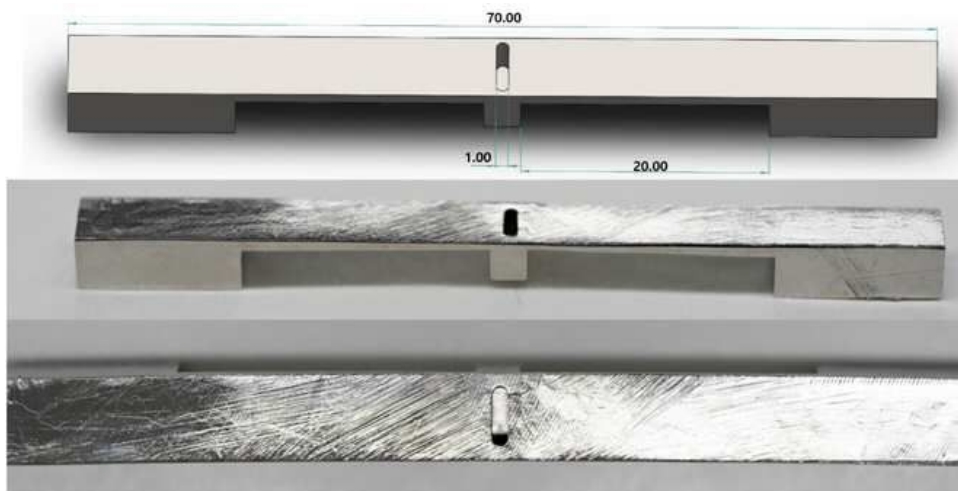
[0053] 도 7을 참조하면, 일렉트로마이그레이션을 통해 석출된 흑연에 포함된 ^{13}C 함량은 초기 탄소 혼합물 소스 대비 감소하는 것을 알 수 있다. 즉, 일렉트로마이그레이션에 의해 상대적으로 더 가벼운 동위원소인 ^{12}C 가 금속을 통해 더 빨리 확산되고 탄소 혼합물 소스 대비 농축된 함량으로 석출될 수 있음을 확인하였으며, 본 실험을 반복적인 수행을 통해 순수한 ^{13}C 와 ^{12}C 를 분리할 수 있을 것으로 기대된다.

[0054] 이상과 같이 본 발명에서는 한정된 실시예에 의해 설명되었으나 이는 본 발명의 보다 전반적인 이해를 돕기 위해서 제공된 것일 뿐, 본 발명은 상기의 실시예에 한정되는 것은 아니며, 본 발명이 속하는 분야에서 통상의 지식을 가진 자라면 이러한 기재로부터 다양한 수정 및 변형이 가능하다.

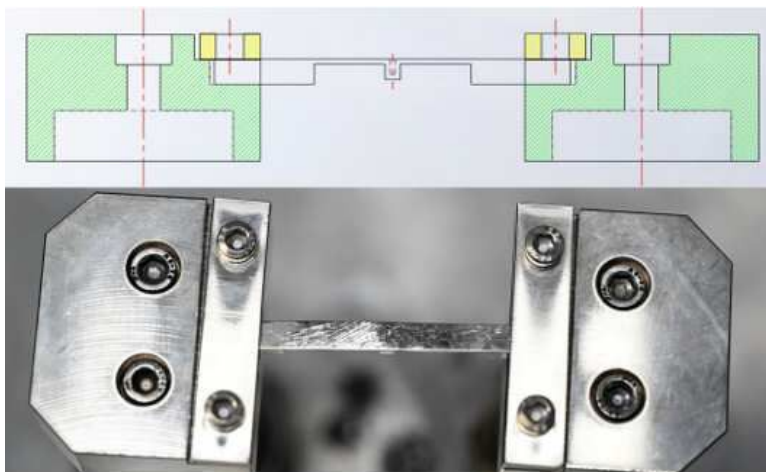
[0055] 따라서, 본 발명의 사상은 설명된 실시예에 국한되어 정해져서는 아니되며, 후술하는 특허청구범위뿐 아니라 이 특허청구범위와 균등하거나 등가적 변형이 있는 모든 것들은 본 발명 사상의 범주에 속한다고 할 것이다.

도면

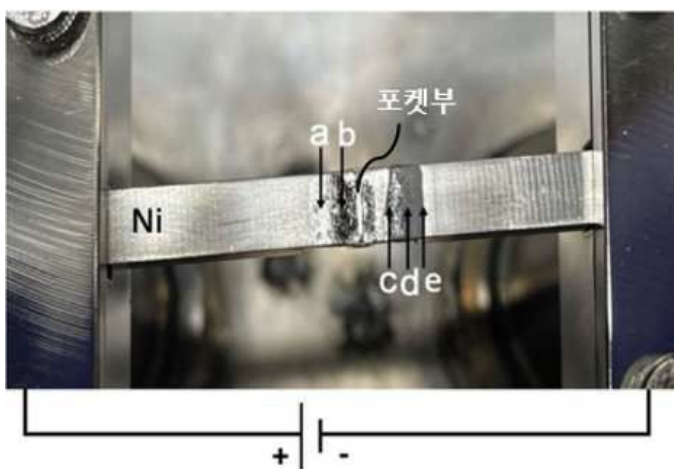
도면1



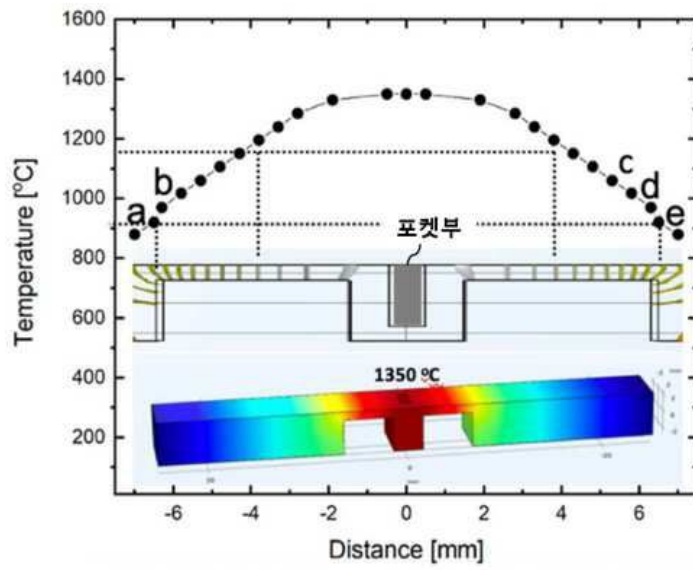
도면2



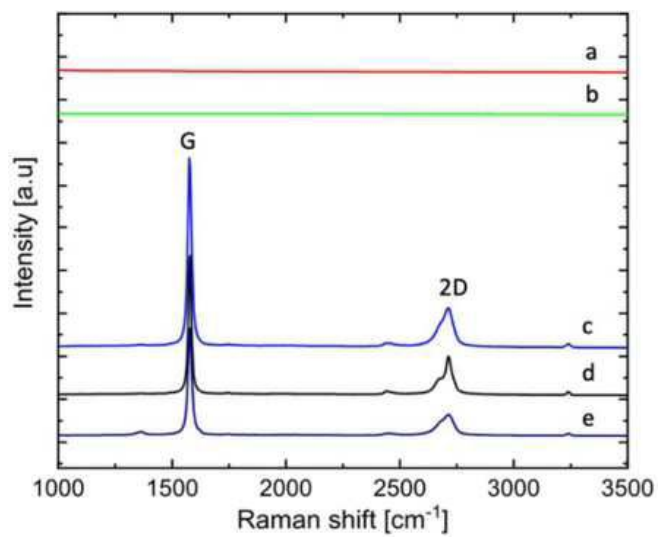
도면3



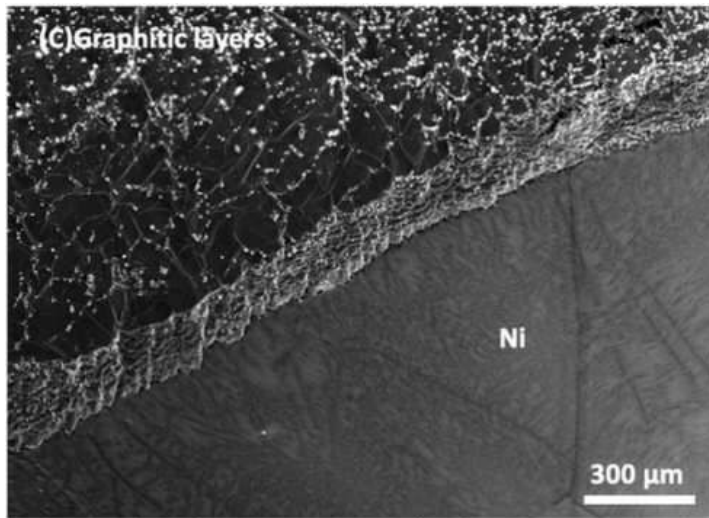
도면4



도면5



도면6



도면7

