



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2016-0037030
(43) 공개일자 2016년04월05일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
B01J 20/04 (2006.01) B01D 53/02 (2006.01)
B01D 53/62 (2006.01) B01J 20/30 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2014-0129580
(22) 출원일자 2014년09월26일
심사청구일자 2014년09월26일

(71) 출원인
고려대학교 산학협력단
서울특별시 성북구 안암로 145, 고려대학교 (안암동5가)
(72) 발명자
이기봉
서울특별시 성북구 북악산로 844, 110동 1203호 (돈암동, 브라운스톤 돈암 아파트)
이찬현
서울특별시 동대문구 정릉천동로 36, 107동 1503호 (용두동, 래미안허브리츠아파트)
(74) 대리인
이처영, 장제환

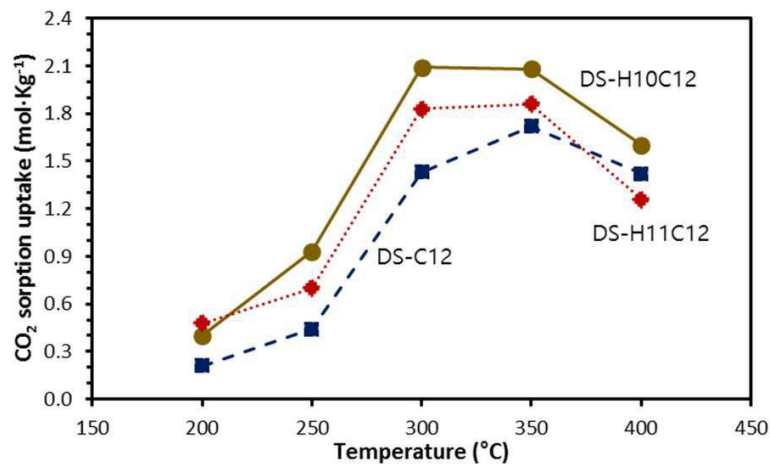
전체 청구항 수 : 총 9 항

(54) 발명의 명칭 복염 기반 흡착제의 제조방법 및 상기 흡착제를 이용한 이산화탄소의 흡착방법

(57) 요약

본 발명에 의한 알칼리토금속 및 알칼리금속의 복염(double salt) 기반 흡착제를 제조하는 방법은 i) 알칼리금속 탄산염 또는 (ii) 알칼리금속 탄산염과 알칼리금속 수산화염을 이용하여 pH를 조절함으로써 이산화탄소 흡착 성능이 향상되고, 고온 이산화탄소 흡착제로 이용 가능한 복염 기반 흡착제를 제조할 수 있다.

대표도 - 도4



이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 201120102004A

부처명 한국전력연구원

연구관리전문기관 한국에너지기술평가원

연구사업명 에너지자원융합원천기술개발

발 연구과제명 차세대 석탄발전용 연소전 CO2 포집 핵심기술 개발(세부1) 연소전 CO2 포집용 핵심소재 개

기 여 율 1/1

주관기관 고려대학교 산학협력단

연구기간 2011.10.01 ~ 2015.09.30

명세서

청구범위

청구항 1

알칼리토금속 질산염 수용액에 알칼리금속 탄산염 수용액을 첨가하여 복염(double salt) 기반 흡착제를 합성하는 방법에 있어서, i) 알칼리금속 탄산염 또는 (ii) 알칼리금속 탄산염과 알칼리금속 수산화염을 이용하여 pH를 조절하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 합성방법.

청구항 2

제1항에 있어서, pH 조절에 있어서 pH 조절 영역을 두 개 이상의 구역으로 나누고 각 영역에 알칼리금속 탄산염 또는 알칼리금속 수산화염을 적용하거나, 알칼리금속 탄산염만을 적용하는 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 합성방법.

청구항 3

제1항에 있어서, 에이징, 필터링, 건조 및 활성화 단계를 추가로 포함하는 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 합성방법.

청구항 4

제1항에 있어서, 상기 알칼리토금속은 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 스트론튬(Sr) 및 바륨(Ba)으로 구성된 군에서 선택되는 하나 이상인 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 합성방법.

청구항 5

제1항에 있어서, 상기 알칼리금속은 리튬(Li), 나트륨(Na), 칼륨(K), 루비듐(Rb) 및 세슘(Cs)으로 구성된 군에서 선택되는 하나 이상인 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 합성방법.

청구항 6

제1항에 있어서, 상기 알칼리금속 탄산염은 탄산칼륨(K_2CO_3)이고, 상기 알칼리토금속 질산염은 질산마그네슘 수화물($Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$)이고, 알칼리금속 수산화염은 수산화칼슘(KOH)인 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 합성방법.

청구항 7

제1항에 있어서, 고온 이산화탄소 흡착제용인 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 합성방법.

청구항 8

제1항 내지 제7항 중 어느 한 항의 방법에 의해 제조된 복염 기반 흡착제를 이산화탄소 함유 가스와 접촉시키는 것을 특징으로 하는 이산화탄소의 흡착방법.

청구항 9

제8항에 있어서, 200℃ 내지 800℃의 온도에서 수행되는 것을 특징으로 하는 이산화탄소의 흡착방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 복염 기반 흡착제의 제조방법 및 상기 흡착제를 이용한 이산화탄소의 흡착방법에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 알칼리토금속 및 알칼리금속의 복염(double salt) 기반 흡착제를 제조하는 방법에 있어서, 알칼리금속염을 이용하여 pH를 조절함으로써 이산화탄소 흡착 성능이 향상된복염 기반 흡착제의 제조방법 및 상기 흡착제를 이용한 이산화탄소의 흡착방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 온실가스 발생량 증가에 의한 지구온난화가 가속화되면서 전 세계적으로 각종 자연재해가 발생하고 있으며, 이에 따라 대표적인 온실 가스인 이산화탄소를 저감하기 위한 기술 개발이 활발하게 이루어지고 있다.

[0003] 그 중에서 고온 이산화탄소흡착제로의 응용에 있어서 복염(double salt) 계열 흡착제는 비교적 최근에 발견되어 연구가 활발히 진행되고 있는 소재로서, 아직까지 그 특성에 관하여 상세하게 규명되어 있지는 않다.

[0004] 기존의복염(double salt)계열흡착제의 연구는 2001년 미국등록특허 US 6,280,503호에 제시된 방법을 이용하여 합성하고, 제조된 복염 흡착제의 특성을 분석하는 데에 중점을 두고 있으나, 명백하게 규명되지 않고 있는 실정이다.

[0005] 이에, 본 발명자들은 상기 문제점을 해결하기 위하여 예의 노력한 결과, 복염 흡착제를 제조하는 방법에서 반응물인 i) 알칼리금속 탄산염 또는 (ii) 알칼리금속 탄산염과 알칼리금속 수산화염으로 pH 조절하는 단계를 추가하여 복염 흡착제를 제조하는 경우에 복염 기반 흡착제의 흡착 성능이 향상됨과 동시에 고온 이산화탄소 흡착제로도 사용할 수 있음을 확인하고, 본 발명을 완성하게 되었다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 본 발명의 목적은 이산화탄소 흡착 성능이 향상된 복염 기반 흡착제의 제조방법을 제공하는데 있다.

[0007] 본 발명의 다른 목적은 고온에서 이산화탄소를 포집할 수 있는 이산화탄소 흡착 성능이 탁월한 상기 흡착제를 이용한 이산화탄소의 흡착방법을 제공하는데 있다.

과제의 해결 수단

[0008] 상기 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은 알칼리토금속 질산염 수용액에 알칼리금속을 첨가하여 복염(double salt) 기반 흡착제를 제조하는 방법에 있어서, i) 알칼리금속 탄산염 또는 (ii) 알칼리금속 탄산염과 알칼리금속 수산화염을 이용하여 pH를 조절하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 제조방법을 제공한다.

[0009] 본 발명은 또한, 상기 방법에 의해 제조된 복염 기반 흡착제를 이산화탄소 함유 가스와 접촉시키는 것을 특징으로 하는 이산화탄소의 흡착방법을 제공한다.

발명의 효과

[0010] 본 발명에 따른 복염 기반 흡착제의 제조방법은 pH조절을 통하여 제조된 복염 흡착제의 이산화탄소흡착 성능을 향상시키며 고온 이산화탄소 흡착제로의 적용이 가능한 효과가 있다.

도면의 간단한 설명

[0011] 도 1은 본 발명의 복염 기반 흡착제의 합성 방법 및 종래의 복염 기반 흡착제의 합성 방법을 간략하게 도식화한 모식도이다.

도 2는 본 발명의 실시예 1-3에 따른 K-Mg 복염 흡착제의 이산화탄소 분위기에서의 온도에 따른 중량%의 변화를 나타낸 그래프이다.

도 3은 본 발명의 실시예 4 및 5에 따른 알칼리수산화염을 통해 합성된 K-Mg 복염 흡착제의 이산화탄소 분위기에서의 온도에 따른 중량%의 변화를 나타낸 그래프이다.

도 4는 본 발명의 실시예 3, 7 및 8에 따른 K-Mg 복염 흡착제의 온도 별 이산화탄소 흡착성능을 나타낸 그래프이다.

도 5는 본 발명의 실시예 3, 7 및 8에 따른 K-Mg 복염 흡착제의 시간에 따른 이산화탄소 흡착성능(흡착속도)을 나타낸 그래프이다.

도 6은 본 발명의 실시예 1-3에 따라 제조된 K-Mg 복염 흡착제의 X-선 회절법 분석 결과를 나타낸 그래프이다.

도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 K-Mg 복염 흡착제의 성분 비교를 하기 위해 제시된 Na-Mg 복염 흡착제의 X-선 회절법 분석 결과 그래프이다(Lee et al., ChemEng J., 258, 367-373(2014)).

도 8은 본 발명의 실시예 3, 7 및 8에 따른 K-Mg 복염 흡착제의 합성 과정에서 사용한 수산화칼륨과 탄산칼륨의 양을 비교하여 도시한 도면이다.

도 9는 본 발명의 실시예 7 및 8에 따라 제조된 K-Mg 복염 흡착제의 X-선 회절법 분석 결과를 나타낸 그래프이다.

도 10은 본 발명의 실시예 4 및 6에 따른 K-Mg 복염 흡착제의 온도 별 이산화탄소 흡착성능을 나타낸 그래프이다.

도 11은 본 발명의 실시예 4 및 5에 따라 제조된 K-Mg 복염 흡착제의 X-선 회절법 분석 결과를 나타낸 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0012] 다른 식으로 정의되지 않는 한, 본 명세서에서 사용된 모든 기술적 및 과학적 용어들은 본 발명이 속하는 기술 분야에서 숙련된 전문가에 의해서 통상적으로 이해되는 것과 동일한 의미를 갖는다. 일반적으로, 본 명세서에서 사용된 명명법은 본 기술 분야에서 잘 알려져 있고 통상적으로 사용되는 것이다.

[0013] 본 발명에서는 반응물의 주입, 분산 및 안정화 과정을 거치는 기존의 복염 흡착제의 합성방법과 달리 반응물인 알칼리토금속 질산염 수용액에 알칼리탄산염 용액을 주입하면서 pH를 조절하는 단계를 추가할 경우에 복염 기반 흡착제의 흡착 성능이 향상됨과 동시에 고온 이산화탄소 흡착제로도 사용할 수 있음을 확인하고자 하였다.

[0014] 본 발명에서는 알칼리토금속 질산염 수용액에 알칼리탄산염 용액을 주입하거나, 알칼리탄산염 기반 반응물의 일부를 알칼리수산화염으로 대체하여 주입하면서 pH를 조절하고, 이후 반응물을 잘 분산시킨 이후 안정화과정을 통해 복염 기반 흡착제 분체를 수득하는 합성 과정을 수행하였다. 수득된 흡착제는 고온에서 활성화 과정을 거쳐 최종 제작되었다. 그 결과 합성된 복염 기반 흡착제를 고온에서 이산화탄소 흡착제로 적용할 수 있으며, 이

산화탄소 흡착 성능이 향상되는 것을 확인할 수 있었다.

- [0015] 따라서, 본 발명은 일 관점에서, 알칼리토금속 질산염 수용액에 알칼리금속 탄산염 수용액을 첨가하여 복염(double salt) 기반 흡착제를 제조하는 방법에 있어서, i) 알칼리금속 탄산염 또는 ii) 알칼리금속 탄산염과 알칼리금속 수산화염을 이용하여 pH를 조절하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 복염 기반 흡착제의 제조 방법에 관한 것이다.
- [0016] 도 1에 나타낸 바와 같이, 수용액에 알칼리금속 탄산염 및 알칼리토금속 질산염과 같은 반응물을 주입하고 분산시킨 후에 반응물들이 새로운 흡착제의 구조를 형성한 이후 생성된 침전물을 여과를 통해 분리한 뒤 고온에서 건조시키고 안정화 과정을 거치는 기존의 복염 흡착제의 합성방법과 달리 본 발명에서는 알칼리토금속 질산염 수용액에 알칼리탄산염 용액 또는 알칼리탄산염과 알칼리수산화염을 동시에 주입하면서 pH를 조절하는 단계를 추가한다. 이후 반응물을 잘 분산시킨 이후 안정화 과정을 통해 흡착제 분체를 얻는다.
- [0017] 종래의 복염(double salt)계열 흡착제를 제조하는 방법은 수용액 상에서 두 종류의 반응물을 혼합하는 침전법(precipitated method)을 이용해 합성하기 때문에 별도의 pH 조절 과정이 생략된다. 즉, 일정 비율의 수용액에 알칼리금속 탄산염과 알칼리토금속 질산염을 고정적으로 주입하고 침전을 통해 분체를 형성한다. 그러나 본 발명에서는 알칼리토금속 질산염 수용액에 서로 다른 양의 알칼리금속 탄산염으로 이루어진 적정 용액을 주입하여 합성 pH를 조절함으로써 복염 계열 흡착제를 합성한다. 또한 pH 조절 과정 중 알칼리금속 탄산염기반 반응물의 일부를 알칼리수산화염으로 대체할 수 있다. 알칼리금속 탄산염을 이용하게 되면비교적 많은 양의 알칼리금속 탄산염이 소모되는데, 알칼리금속 수산화염을 일부 대체함으로써 상대적으로 적은 양으로 pH를 급격히 조절할 수 있다. 즉, 합성 과정 중 포함되는 반응물의 양을 조절할 수 있다. 또한, 최종적으로 새롭게 제시된 합성 방법에 의하여 합성된 복염계열 흡착제를 이용하여 이산화탄소 흡착 성능을 증진시킬 수 있다.
- [0018] 본 발명의 pH 조절에 있어서 pH 조절 영역을 두 개 이상의 구역으로 나누고 각 영역에 알칼리금속 탄산염 또는 알칼리금속 수산화염을 적용하거나, 알칼리금속 탄산염만을 적용할 수 있다. 즉, 본 발명에 있어서, pH 10~11까지는 알칼리금속 수산화염을 이용하여 pH를 조절하고, 그 이후 pH 11~12까지는 알칼리금속 탄산염을 이용하여 pH를 조절할 수 있다. 바람직하게는 pH 10~11까지는 알칼리금속 수산화염을 이용하여 pH를 조절하고, 그 이후 pH 12까지는 알칼리금속 탄산염을 이용하여 pH를 조절할 수 있다. 또한 pH 10~12까지 알칼리금속 탄산염만을 이용하여 pH를 조절할 수 있다.
- [0019] 본 발명의 복염 기반 흡착제의 제조방법에 있어서, 에이징, 필터링, 건조 및 활성화 단계를 추가로 포함할 수 있다.
- [0020] 상기 알칼리토금속은 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 스트론튬(Sr) 및 바륨(Ba)으로 구성된 군에서 선택되는 하나 이상일 수 있으며, 바람직하게는 마그네슘, 칼슘 또는 바륨을 사용하고, 더욱 바람직하게는 마그네슘을 사용한다.
- [0021] 상기 알칼리금속은 리튬(Li), 나트륨(Na), 칼륨(K), 루비듐(Rb) 및 세슘(Cs)으로 구성된 군에서 선택되는 하나 이상일 수 있으며, 바람직하게는 나트륨 또는 칼륨을 사용하고, 더욱 바람직하게는 칼륨을 사용한다.
- [0022] 본 발명에 의한 복염 기반 흡착제의 일례로는 K-Mg, Na-Ca, Na-Ba, Na-Mg 복염 기반 흡착제를 제조할 수 있다.
- [0023] 상기 알칼리금속 탄산염은 탄산칼륨(K_2CO_3)이고, 상기 알칼리토금속 질산염은 질산마그네슘 수화물($Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$)일 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0024] 본 발명의 복염 기반 흡착제의 제조방법에 의하여 제조된 고온 이산화탄소 흡착제용으로 사용할 수 있다. 본 발명의 일 실시예의 형태로서 K-Mg의 경우에는 본 발명의 복염 기반 흡착제의 이산화탄소 흡착능은 0.21mol/kg 내지 2.09mol/kg일 수 있으며, Na-Mg의 경우에는 3.5 mol/kg 이상의 흡착능이 예상되는 바와 같이, 포함된 알칼리금속 또는 알칼리토금속의 종류에 따라 이산화탄소 흡착능은 크게 변할 수 있다.
- [0025] 본 발명은 다른 관점에서 상기 방법에 의해 제조된 복염 기반 흡착제를 이산화탄소 함유 가스와 접촉시키는 이

산화탄소의 흡착방법에 관한 것이다.

[0026] 상기 이산화탄소의 흡착방법은 200℃ 내지 800℃ 의 온도에서 수행될 수 있으며, 바람직하게는 300℃ 내지 500℃, 더욱 바람직하게는 300℃ 내지 350℃의 온도에서 수행될 수 있다.

[0027] 이하, 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 상세히 설명하고자 한다. 이들 실시예는 오로지 본 발명을 예시하기 위한 것으로, 본 발명의 범위가 이들 실시예에 의해 제한되지 않는 것은 당업계에서 통상의 지식을 가진 자에게 있어서 자명할 것이다.

[0028] [실시예]

[0029] 실시예 1~3: 복염 기반 흡착제의 제조

[0030] 알칼리금속 탄산염으로는 탄산칼륨(K₂CO₃)를 이용하였고, 알칼리토금속 질산염으로는 질산마그네슘 수화물 (Mg(NO₃)₂ · H₂O)를 이용하였다. 탄산칼륨 수용액과 질산마그네슘 수화물 수용액을 준비하였다. 질산마그네슘 수화물 수용액에 탄산칼륨 수용액을 소량 첨가하면서 pH를 10, 11 및 12로 조절하고 교반한 후에 에이징, 필터링 및 건조시켜 K-Mg 복염 흡착제를 제조하였다. 제조된 K-Mg 복염 흡착제를 X-선 회절법(X-ray diffraction (XRD) analysis)을 이용하여 확인하였다(도 6). 본 발명의 실시예에 의하여 합성한 K-Mg 복염 흡착제는 기존 합성방법을 통해 제조된 Na-Mg 복염 흡착제(도 7)와 유사하게 K₂CO₃, KNO₃ 및 MgO로 이루어져 있음을 확인하였다. K₂CO₃를 이용하여 pH를 적정할 때는 낮은 pH에서는 주로 KNO₃가 형성됨을 확인하였다.

[0031] 실시예 4~5: 복염 기반 흡착제의 제조

[0032] 실시예 1에서 알칼리금속염으로 수산화칼륨(KOH)만을 사용하여 pH 11, 12로 조절한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일하게 실시하였다. 제조된 K-Mg 복염 흡착제를 X-선 회절법(X-ray diffraction (XRD) analysis)을 이용하여 확인하였다(도 11). K₂CO₃를 모두 KOH로 대체하여 합성한 K-Mg 복염 흡착제의 XRD 분석 결과 안정화 이후에 MgO와 KNO₃의 구조만 가지고 있음을 확인하였다.

[0033] 실시예 6~8: 복염 기반 흡착제의 제조

[0034] 실시예 1에서 알칼리금속염으로 탄산칼륨(K₂CO₃)과 수산화칼륨(KOH)을 같이 사용한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일하게 실시하였다.

[0035] pH 조절을 위해 두 적정용액(알칼리금속 탄산염 및 알칼리금속 수산화염)을 함께 이용하였다. 합성된 K-Mg 복염 흡착제는 DS-H##C##로 나타내었다. 예를 들어, DS-H10C12는 흡착제 합성 pH조건을 맞추기 위해 pH10까지 수산화염(H)을 이용하고, pH12까지 탄산염(C)을 이용했음을 의미하고(실시예7), DS-H11C12는 흡착제 합성 pH조건을 맞추기 위해 pH11까지 수산화염(H)을 이용하고, pH12까지 탄산염(C)을 이용했음을 의미한다(실시예8).

[0036] 제조된 K-Mg 복염 흡착제를 X-선 회절법(X-ray diffraction (XRD) analysis)을 이용하여 확인하였다(도 9). 본 발명의 실시예7 및 8에 의하여 합성한 K-Mg 복염 흡착제도 실시예 1-3에서와 같이 K₂CO₃, KNO₃ 및 MgO로 이루어져 있음을 확인하였다. 반응물에 포함된 K 원소는 K₂CO₃ 또는 KNO₃로 존재할 수 있는데, DS-H10C12의 경우 DS-H11C12보다 K₂CO₃의 양이 KNO₃보다 상대적으로 많음을 확인하였다.

[0037] 실시예의 K-Mg 복염흡착제의 합성방법에서 이용된 반응물인 알칼리금속염의 사용량과 합성 흡착제에 포함된 알칼리금속(K)/알칼리토금속(Mg)의 몰 비율은 하기 표 1과 같다.

표 1

[0038]

| Sample | 합성 pH | 반응물 | | 금속 K/Mg |
|--------|-------|------------|--|-----------------|
| | | 2M KOH(ml) | 2M K ₂ CO ₃ (ml) | 몰비 ^b |

| | | | | | |
|-------|-----------|----|----|------------------|------|
| 실시예 1 | DS-C10 | 10 | - | 18.5 | 0.59 |
| 실시예 2 | DS-C11 | 11 | - | 37 | 2.40 |
| 실시예 3 | DS-C12 | 12 | - | 260 ^a | 8.05 |
| 실시예 4 | DS-H11 | 11 | 33 | - | - |
| 실시예 5 | DS-H12 | 12 | 35 | - | - |
| 실시예 6 | DS-H10C11 | 11 | 2 | 32 | - |
| 실시예 7 | DS-H10C12 | 12 | 28 | 175 | 2.40 |
| 실시예 8 | DS-H11C12 | 12 | 51 | 60 | 1.41 |

[0039] a: final pH was 11.80

[0040] b: calculated from ICP-AES results

표 2

[0041]

| Sample | MgO | K ₂ CO ₃ | KNO ₃ |
|-----------|-----|--------------------------------|------------------|
| DS-C10 | 1 | 0.07 | 0.45 |
| DS-C11 | 1 | 0.67 | 1.06 |
| DS-C12 | 1 | 3.04 | 1.97 |
| DS-H10C12 | 1 | 1.11 | 0.20 |
| DS-H11C12 | 1 | 0.52 | 0.37 |

[0042] 표 2는 기존 ICP-AES분석을 통해 계산된 K/Mg 몰수비와 EA(elemental analysis) 분석을 통해 추가로 분석된 결과를 결합해 흡착제에 포함된 성분들의 몰 수 비를 나타낸 것이다.

[0043] DS-C11의 흡착능과 DS-H10C12의 흡착능을 비교할 때 크게 증진되었지만 K/Mg의 몰수는 동일하였다. 이는 K/Mg 비율보다 구성 성분의 비율이 크게 작용한다는 것을 의미하며, pH 조절을 통해 합성할 경우 생성된 구성성분의 비율을 조절할 수 있다는 것을 확인할 수 있다.

[0044] 표 1에 나타낸 바와 같이, 합성 pH가 높아짐에 따라 필요한 탄산칼륨의 양이 점차 증가하였다. 이는 산업적 응용 시 비경제적이므로 개선이 필요하다. 따라서 보다 적은 양으로 쉽게 pH를 상승시킬 수 있는 알칼리금속 수산화염을 이용하여 합성을 진행하였다. KOH를 이용해 적정함으로써 K-Mg 복염 흡착제를 합성할 경우, 합성시 필요한 반응물의 양을 줄일 수 있었다(도 8). ICP-AES 분석을 통해 측정된 결과 K/Mg의 비율은 KOH를 이용해 합성할 경우 감소하는 것으로 나타났다.

[0045] 비교예 1

[0046] Xiao *et al.*, *Int. J. Greenhouse Gas Control* 5, 634-639(2011)에 기술된 대로 수행하여 K-Mg 복염 흡착제를 제조하였다.

[0047] [시험예]

[0048] 시험예 1: 복염 기반 흡착제의 이산화탄소 분위기에서의 온도에 따른 중량의 변화

[0049] 실시예 1 내지 3의 K-Mg 복염 기반 흡착제의 온도별 중량%의 변화를 TGA(thermogravimetric analyzer)를 이용해 측정하였으며, 상압(~1atm)의 이산화탄소 분위기에서 무게 변화를 관찰하여, 도 2에 나타내었다.

[0050] 이는 알칼리금속 탄산염을 이용해 pH가 조절된 K-Mg 복염 흡착제는 합성 pH가 높아질수록 중고온(300-500℃)에서 이산화탄소에 대한 친화도가 높은 것으로 나타나며, 친화도를 갖는 온도 범위 또한 점차 넓어지는 것으로 나타났다. 특히 DS-C12(실시예 3)는 매우 우수한 CO₂ 친화도를 가지는데, 이는 보다 많은 양의 K₂CO₃가 흡착제에 포

함되어 나타나는 현상으로 판단되며, 합성 pH가 증가할수록 합성에 필요한 K₂CO₃의 양이 크게 증가함으로써 비경제적이라고 할 수 있다.

[0051] 도 3은 알칼리수산화염을 통해 합성된 K-Mg 복염 흡착제의 이산화탄소 분위기에서의 온도에 따른 중량%의변화를 도시한 그래프이다. 도 3에 나타낸 바와 같이, 알칼리금속 수산화염으로 알칼리금속 탄산염을 완전히 대체하여 pH 조절에 이용할 경우(실시에 4 및 5), 동일한 온도범위에서 이산화탄소에 대한 친화도가 급격히 사라지는 것을 볼 수 있다.

[0052] 시험예 2: 복염 기반 흡착제의 온도 별 이산화탄소 흡착 성능 분석

[0053] 표 3 및 도 4는 실시예 3, 7 및 8에 의해 pH12에서 합성된 K-Mg 복염 흡착제의 온도에 따른 이산화탄소 흡착 성능을 나타낸 것이다. 도 4에 나타낸 바와 같이, 복염 흡착제는 온도에 따라 화산(volcano)형태의 흡착 성능을 가지며, 300 ~ 350℃에서 최고의 성능을 가지는 것으로 나타났다. 특히 탄산염으로 적정했을 때 보다 낮은 pH 영역까지 수산화염을 이용해 적정한 이후 탄산염을 이용해 적정했을 경우 이산화탄소 흡착능이 증진된 것으로 확인되었다. 300℃에서 DS-H10C12(실시에7)는 2.09mol/kg의 흡착능을 가지며, 이는 오직 탄산염을 이용해 합성된 DS-C12(실시에 3)의 흡착능 1.43mol/kg에 비해 약 45% 증진된 것이다. 또한 기존 문헌에 나타난 동일 온도에서 측정된 K-Mg 복염 흡착제(비교예 1)의 이산화탄소 흡착 성능인 0.27mol/kg보다 성능이 현격하게 향상된 것을 확인하였다. 도 5에 나타낸 바와 같이, KOH가 일부 포함된 K-Mg 복염 흡착제는 K₂CO₃를 이용하여 합성하는 것보다 높은 흡착능을 가지며 흡착속도도 보다 빠른 것으로 나타났다.

[0054] 도 10에 나타낸 바와 같이, pH 11에서 합성된 K-Mg 복염 흡착제로서, DS-C11(실시에 2)의 경우에는 300℃에서 측정된 이산화탄소 흡착능은 0.58mol/kg이고, DS-H10C11(실시에 6)의 경우에는 1.39mol/kg으로 측정되었다. 특히 DS-H10C11 흡착제는 350℃에서 최대 1.72mol/kg의 높은 흡착능을 가지는 것으로 확인되었다.

[0055] 또한, 표 2에 나타낸 바와 같이, 실시예 4 및 5의 DS-H11과 DS-H12 흡착제의 CO₂ 흡착능을 측정된 결과, 그 값이 매우 작은 것으로 나타났다. 측정된 흡착능은 MgO 고유의 흡착능으로부터 비롯된 것으로 판단된다.

표 3

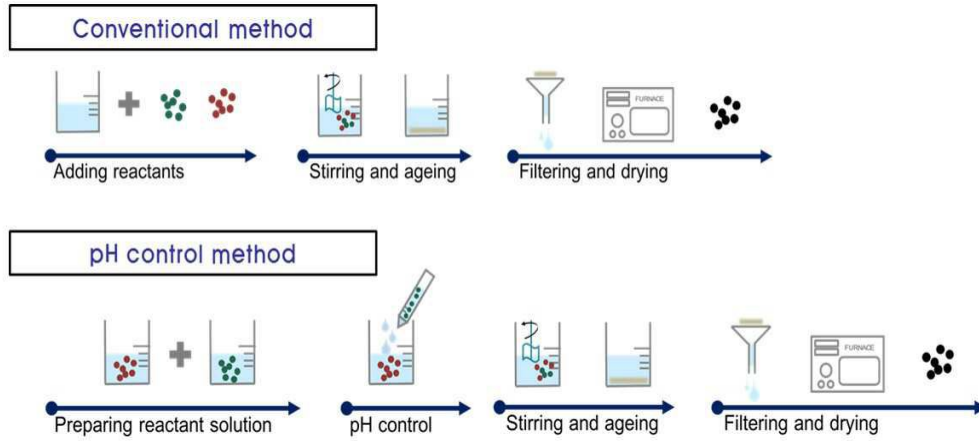
[0056]

| CO ₂ uptake (mol/kg) | DS-C12 (실시에 3) | DS-H11 (실시에 4) | DS-H12 (실시에 5) | DS-H10C12 (실시에 7) | DS-H11C12 (실시에 8) |
|---------------------------------|----------------|----------------|----------------|-------------------|-------------------|
| 200℃ | 0.21 | 0.01 | 0.03 | 0.40 | 0.48 |
| 250℃ | 0.44 | 0.40 | 0.18 | 0.93 | 0.70 |
| 300℃ | 1.43 | 0.17 | 0.12 | 2.09 | 1.83 |
| 350℃ | 1.72 | ~0 | ~0 | 2.08 | 1.86 |
| 400℃ | 1.42 | ~0 | ~0 | 1.26 | 1.26 |

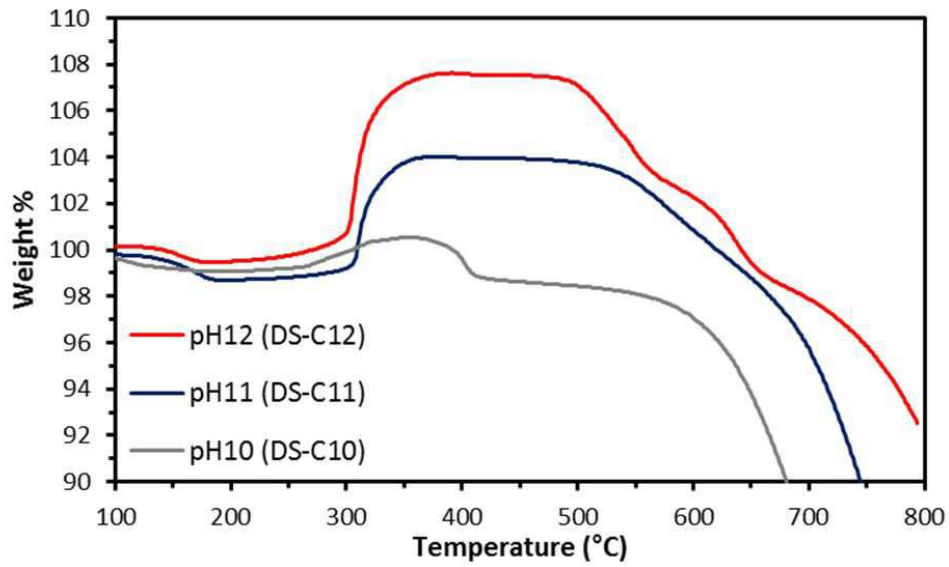
[0057] 이상으로 본 발명 내용의 특정한 부분을 상세히 기술하였는바, 당업계의 통상의 지식을 가진 자에게 있어서 이러한 구체적 기술은 단지 바람직한 실시양태 일뿐이며, 이에 의해 본 발명의 범위가 제한되는 것이 아닌 점은 명백할 것이다. 따라서, 본 발명의 실질적인 범위는 청구항들과 그것들의 등가물에 의하여 정의된다고 할 것이다.

도면

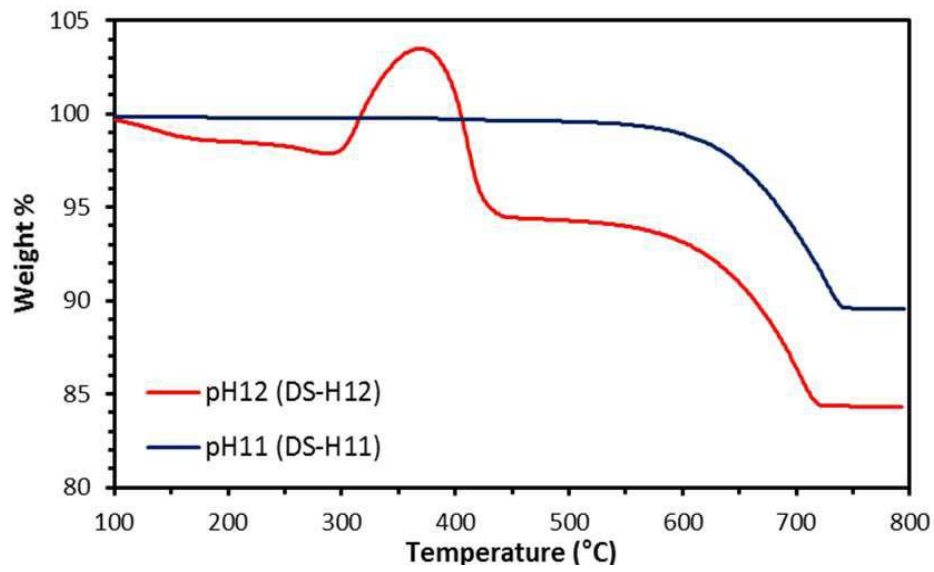
도면1



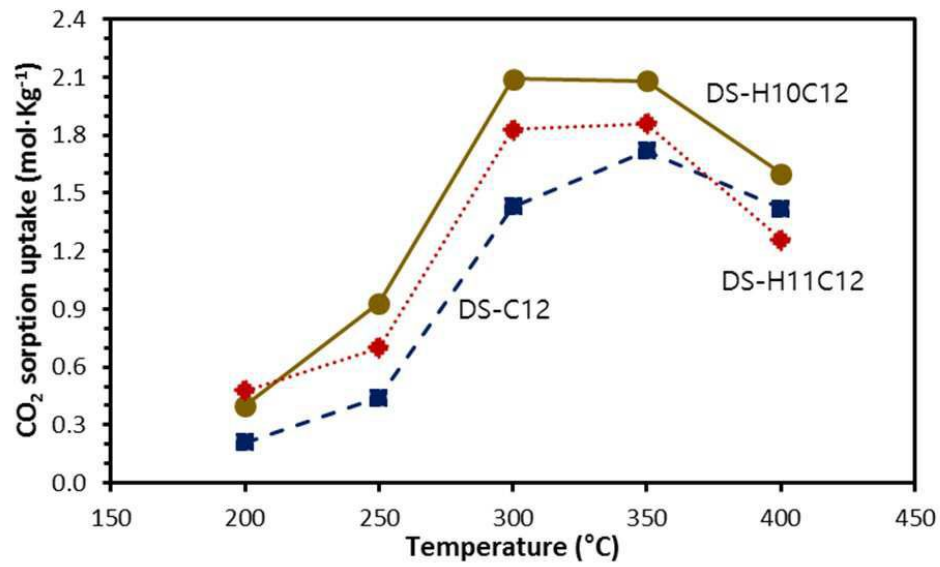
도면2



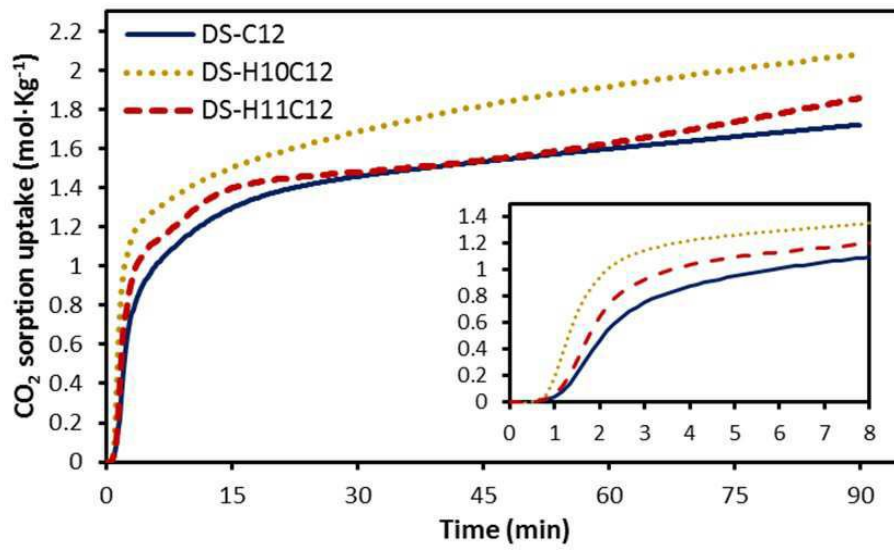
도면3



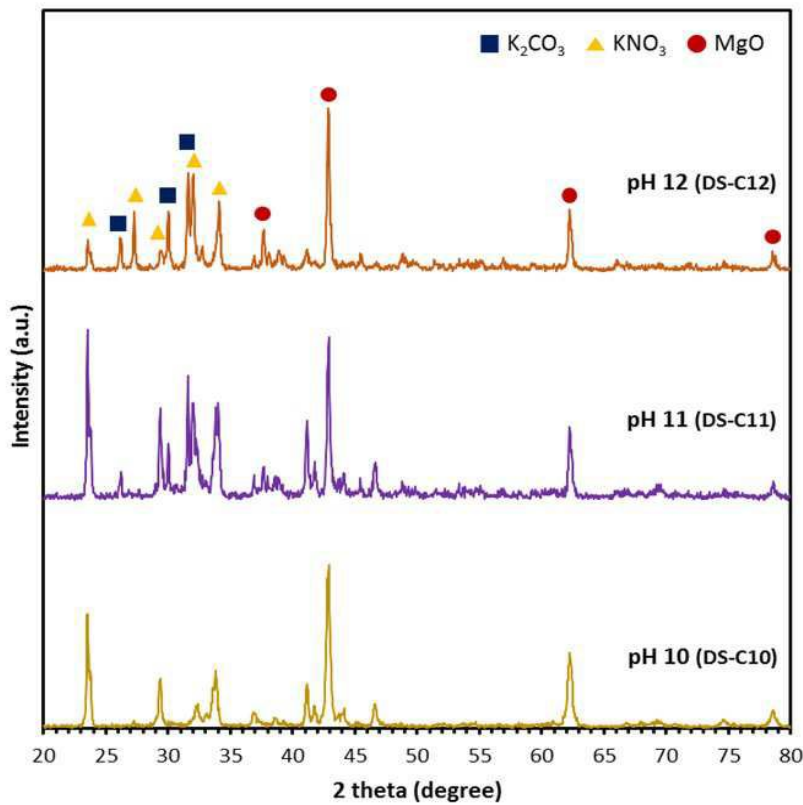
도면4



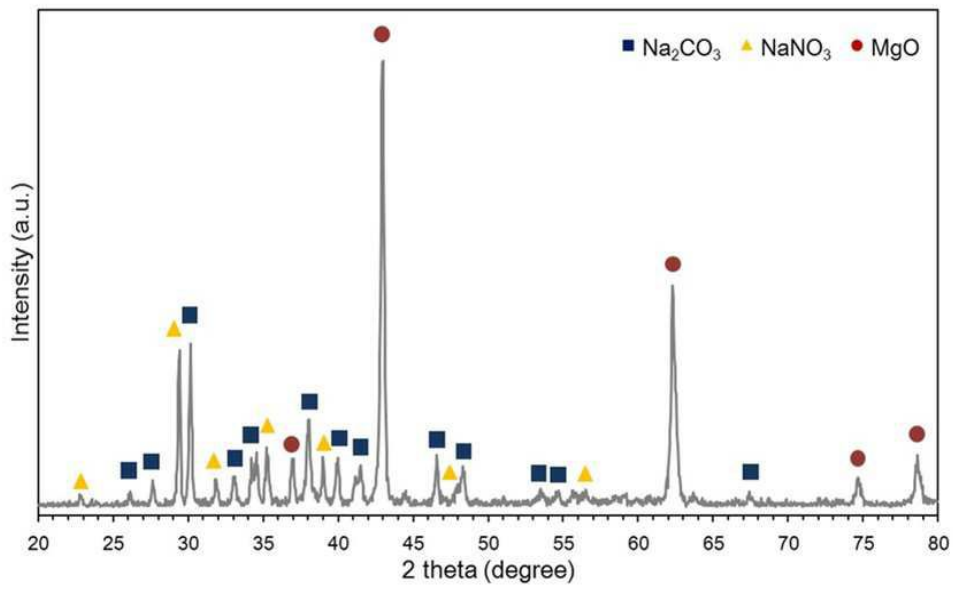
도면5



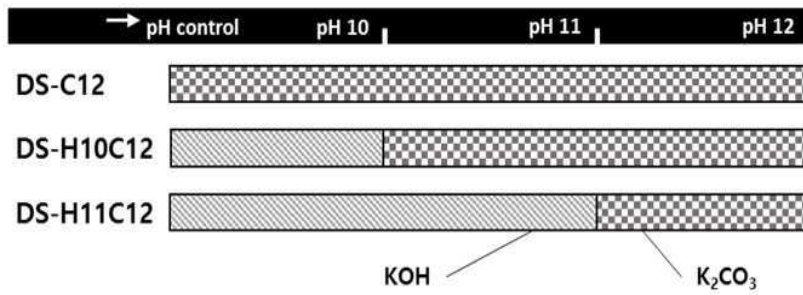
도면6



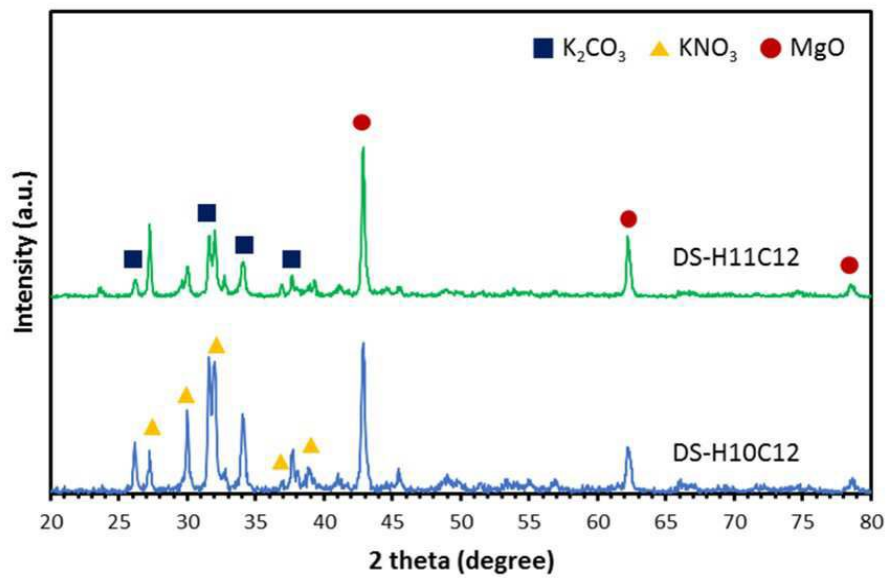
도면7



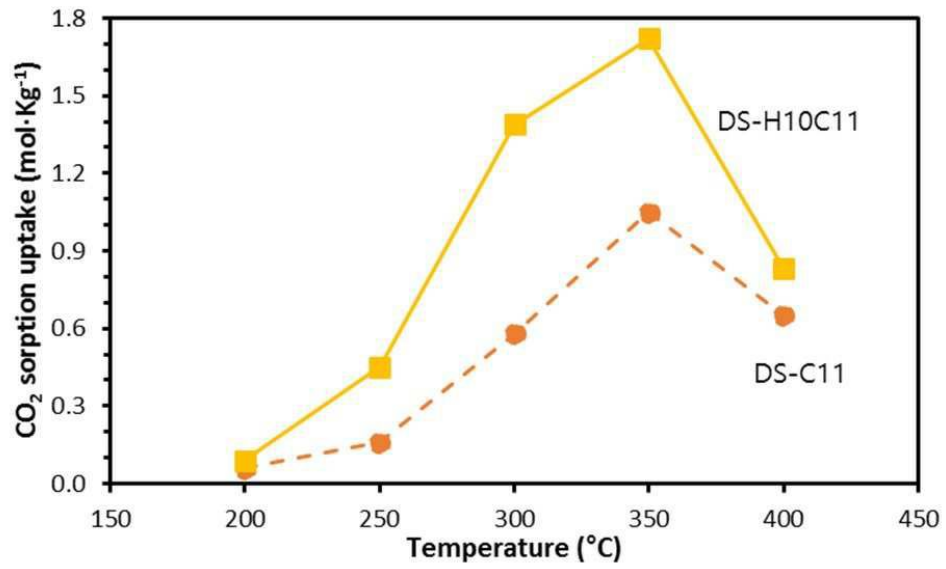
도면8



도면9



도면10



도면11

