

특허와 논문으로 본 석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 동향

*이수정 · 조영주 · 조봉규

한국지질자원연구원

Trends of Recycling Technologies in Utilization of Coal Combustion Byproducts for Manufacturing Geopolymers through Patent and Literature Analysis

*Sujeong Lee, Young-Ju Cho and Bong-Gyoo Cho

Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources

요 약

화력발전소 석탄재는 2010년을 기준으로 약 850만톤, 연탄재는 약 74만톤 배출된다. 이는 대량 재활용되지 않아 경제적, 환경적으로 부담이 되고 있는 실정이므로, 석탄 연소부산물의 자원화기술개발이 시급하다. 석탄 연소부산물을 균질하게 가공하는 분쇄 및 선별 등의 자원처리기술을 적용하고, 석탄 연소부산물의 품질을 관리하여, 비소성 그린시멘트인 지오폐리머의 원료로 재활용하고자 본 연구에서는 석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술에 대한 특허와 논문을 분석하였다. 분석범위는 1979년 ~ 2013년까지의 미국, 유럽연합, 일본, 한국의 등록/공개된 특허와 SCI 논문으로 제한하였다. 특허와 논문은 키워드를 사용하여 수집하였으며, 기술의 정의에 의해 필터링하였다. 특허와 논문의 동향은 연도, 국가, 기업, 기술 등에 따라 분석하여 고찰하였다.

주제어 : 석탄 연소부산물, 지오폐리머, 원료화, 특허, 논문, 기술 동향

Abstract

Approximately 8.5 million tons of fly ash and 740,000 tons of briquette ash were produced in 2010. Inefficient recycling of coal ash has been a heavy economic and environmental burden and economical coal ash utilization technologies are required to turn coal ash into valuable resources. In this study the patents and literature were analyzed to understand the present situation of coal ash recycling technologies and to promote utilization of coal ash for producing a non-sintering green cement, geopolymer. The survey was based on the open patents of USA, European Union, Japan and Korea, and the papers in SCI - indexed journals published between 1979 and 2013. Technical key words were used for data collection and noise filtering. Trends of recycling technologies in utilization of coal ash for producing geopolymers were discussed in terms of time periods, countries, companies and various forms of technologies.

Key words : Coal combustion byproduct, geopolymer, utilization, patent, paper, technical trend

* Received : December 27, 2013 · Revised : February 20, 2014 · Accepted : March 12, 2014

*Corresponding Author : Sujeong Lee (E-mail : crystal2@kigam.re.kr)

Mineral Resources Research Division, Korea Institute of Geoscience & Mineral Resources, 124 Gwahang-no, Yuseong-gu, Daejeon, 305-350 Korea

Tel : +82-42-868-3125 / Fax : +82-42-868-3418

©The Korean Institute of Resources Recycling. All rights reserved. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>), which permits unrestricted non-commercial use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

1. 서 론

지오폴리머는 1972년 프랑스 화학자인 Davidovits 박사에 의해 명명되었으며, 높은 초기 압축강도, 인장강도, 낮은 수축율, 높은 내화학적, 내열성, 독성원소의 고정 등 기존의 시멘트에서 구현할 수 없는 성능으로 주목받고 있다. 무엇보다도 시멘트 제조에 비해 이산화탄소 배출량을 현저히 감소시킬 수 있는 그린시멘트로서 대표적인 녹색기술로 평가되고 있다.

한국전력 산하 5개 발전사에서 유연탄을 연소한 후 남은 석탄재의 재활용률이 해마다 감소하고 있다. 이에 따라 매립장이 포화상태로 치닫고 있다. 영흥 5·6호기, 당진 9·10호기까지 건설되면 연간 300만t 이상의 석탄재가 추가 발생할 것으로 보여 재활용 대책이 시급하다는 지적이 나오고 있다.

석탄연소부산물로 제조된 인공경량골재를 이용한 지오폴리머 경량흡음판넬 및 폐기물의 원료화를 통한 처리량 감소와 이산화탄소 저감의 두 가지 환경문제를 동시에 해결할 수 있는 고기능성 친환경 소재로 판단되며, 이에 대한 시급한 연구개발이 필요한 실정이다.

특정 주제에 대한 연구에 앞서, 특허 및 논문 분석에 의한 기술동향 파악은 기존에 수행되었던 관련 기술들의 연구내용 뿐만 아니라, 향후 연구의 방향을 설정하기 위한 중요한 자료로 활용되고 있으며, 연구내용이 중복되는 것을 사전에 막아주는 역할을 한다. 이에 본 연구에서는 석탄 연소부산물의 지오폴리머 원료화 기술에 대하여 미국, 한국, 일본, 유럽의 특허정보와 논문정보를 분석함으로써 기술의 동향을 고찰하고자 하였다.

2. 기술 검색대상 및 분석기준

2.1. 특허 및 논문검색 대상

석탄 연소부산물의 지오폴리머 원료화 기술 관련 특허와 논문을 분석하기 위하여 관련된 모든 특허와 논문을 검색하여 분석하는 것이 이상적이지만 모든 것을 수집하는 데는 한계가 있으므로 우선 자료의 검색 범위를 설정할 필요가 있다. 특허의 공개 또는 등록일 및 논문의 게재연도는 제한하지 않았으며, 키워드는 특허의 명칭, 요약, 청구항에 제한을 두어 검색하였다. 이에, 1979년부터 2013년까지 등록 또는 공개된 특허와 1991년부터 2013년까지 게재된 논문을 검색하였으며, Table 1과 같은 검색 DB를 사용하여 진행하였다. 논문과 특허

Table 1. Analysis of the patents and papers

	Patent	Paper
The name of search database	WIPS	Scopus
The number of analysis	247	61
The date of search	from 1979 to 2013	

Table 2. Technical classification of recycling for utilization of coal combustion byproducts for manufacturing geopolymers

The name of technology	Technical classification
Utilization of coal combustion byproducts for manufacturing geopolymers	Manufacturing geopolymers
	Refinement of coal combustion byproducts

는 Scopus DB 및 WIPS DB를 사용하여 한국, 미국, 일본, 유럽연합, PCT 특허로 제한하였다. 본 연구에서는 검색된 특허와 논문의 요약문을 검토하여, 선정된 특허 247건과 논문 61건을 대상으로 분석하였다. 특허의 경우, 출원 후 1년 6개월 이후에 공개되는 특허 제도의 특성상 2012년도부터 미공개 특허가 존재하므로 분석 결과의 유효기간은 2011년까지인 것으로 볼 수 있다.

2.2. 데이터베이스 구축

DB구축은 석탄 연소부산물의 지오폴리머 원료화 기술과 관련된 키워드의 조합으로 검색된 결과를 활용하였다.

Table 2와 같이 지오폴리머 제조 기술, 석탄 연소부산물 정제 기술에 관한 2개의 기술 분야로 나누어 분석하였다.

3. 석탄 연소부산물의 지오폴리머 원료화 기술 관련 특허 동향 분석

3.1. 연도별 동향

석탄 연소부산물의 지오폴리머 원료화 기술의 연도별 특허출원 건수를 Fig. 1에 나타내었다.

석탄 연소부산물의 지오폴리머 원료화 기술 관련 특허는 1979년에 처음 출원되어, 2000년대 중반까지 미미한 특허활동을 보였다. 이후 활발한 특허출원을 나타내며, 2010년에는 가장 많은 36건의 특허를 출원하였다.

3.2. 국가별 현황

Fig. 2는 특허의 국가별 특허출원 건수를 나타낸 그

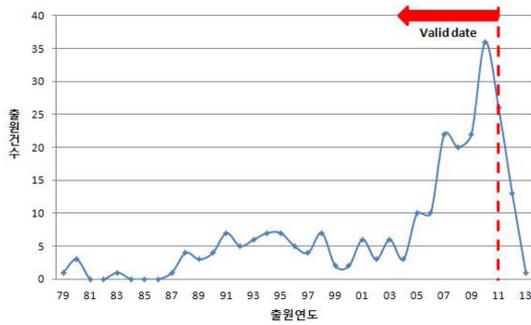


Fig. 1. Trend in the number of the patents from 1979 to 2013.

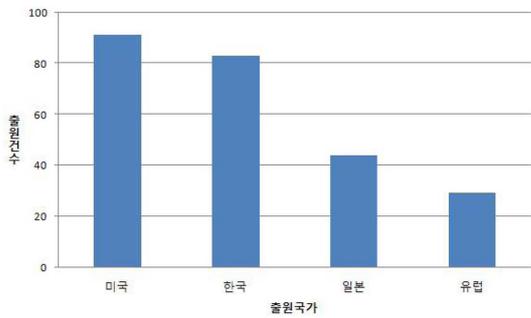


Fig. 2. Number of the patents from different countries.

래프이다.

국가별 특허출원 현황을 살펴보면, 석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 관련 특허 247건 중 미국 특허가 91건으로 36.8%의 가장 큰 점유율을 차지하였으며, 한국특허는 83건(33.6%)으로 미국과 3.2%p의 차이를 보였다. 일본특허 44건(17.8%), 유럽특허 29건(11.7%)의 점유율을 나타냈다.

3.3. 주요 출원인

Table 3은 특허로부터 도출된 주요출원인(Top 10) 현황을 나타낸 표이다.

주요출원인 현황을 살펴보면, 프랑스의 Davidovits, Joseph가 13건, 한국의 전남대학교에서 10건, 일본의 Dow Mining 9건, 프랑스의 Services Petroliers Schlumberger가 8건, 미국의 Ceramtec 6건, BJ Services, Dow Global Technologies, The Hera가 각각 5건, 한국의 한국건설기술연구원과 한국지질자원연구원이 각각 4건의 순으로 출원하였다.

상위 10위권 내의 출원인 중 1미국국적 소속이 4개 기관, 한국국적 소속 3개 기관, 프랑스국적 소속 2개

Table 3. Main applicants of patents

Main applicant	Number of patents
Davidovits, Joseph(FR)	13
전남대학교 (KR)	10
Dowa Mining(JP)	9
Services Petroliers Schlumberger(FR)	8
Ceramtec(US)	6
BJ Services(US)	5
Dow Global Technologies(US)	5
The Hera(US)	5
한국건설기술연구원 (KR)	4
한국지질자원연구원 (KR)	4

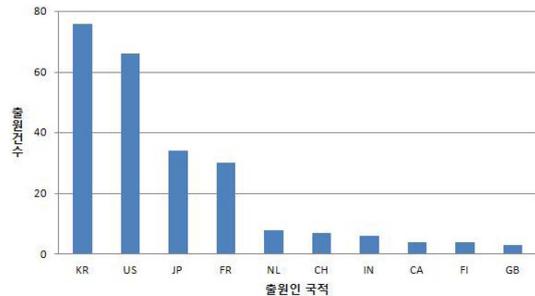


Fig. 3. Number of the patents from countries of applicants.

기관, 일본국적 소속이 1개 기관으로 나타났다.

3.4. 출원인 국적별 현황

Fig. 3은 특허의 출원인 국적별 특허출원 건수를 나타낸 그래프이다.

출원인 국적별 현황을 살펴보면, 총 건수 247건 중 한국국적 출원인이 76건으로 가장 많은 특허를 출원하였으며, 다음으로 미국국적 출원인이 66건을 출원하였다. 일본국적 출원인 34건, 프랑스국적 출원인 30건, 네덜란드국적 출원인 8건, 스위스국적 출원인 7건, 인도국적 출원인 6건, 캐나다, 필리핀국적 출원인 4건, 영국국적 출원인 3건 등의 순으로 나타났다.

3.5. 기술별 동향

Fig. 4는 석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 분야 특허의 기술별 건수를 나타낸 그래프이다.

세부기술별 점유율을 살펴보면, 지오폐리머 제조 기술 관련 특허가 213건으로 86.2%의 가장 큰 점유율을

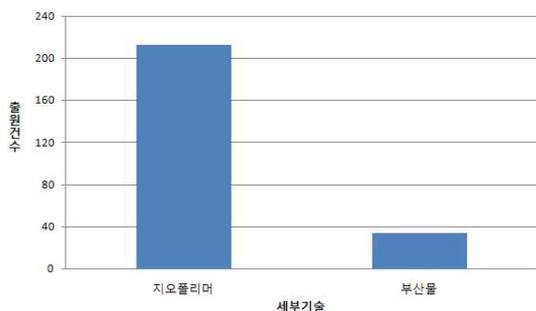


Fig. 4. Number of the patent for specific recycling technologies.

Table 4. Number of the patents applied from different countries for specific recycling technologies

Nationality	Manufacturing geopolymers	Refinement of coal combustion byproducts
US	79	12
KR	80	3
JP	26	18
EP	28	1

차지하였으며, 석탄 연소부산물 정제 기술 관련 특허는 34건으로 13.8%를 나타냈다.

국가별 세부기술의 점유율 및 현황을 살펴보면, 미국, 한국, 일본, 유럽특히 모두 지오폐리머 제조 기술 관련 특허가 석탄 연소부산물 정제 기술 관련 특허보다 많은 출원건수를 나타냈다. 특히 한국특허의 경우, 지오폐리머 제조 기술 관련 특허가 80건, 석탄 연소부산물 정제 기술 관련 특허가 3건으로 현저한 차이를 보였다. 이를 Table 4에 정리하였다.

4. 석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 관련 논문 동향 분석

4.1. 연도별 동향

석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술의 연도별 논문게재 건수를 Fig. 5에 나타냈다.

석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 관련 논문은 1991년에 처음 게재되어, 2008년까지 미미한 논문게재를 보였다. 2009년부터 최근까지 활발한 논문활동 동을 나타내고 있으며, 2012년에는 17건의 가장 많은 논문을 게재하였다.

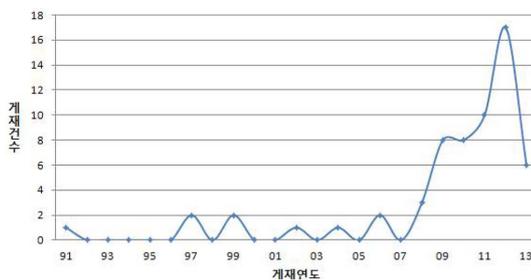


Fig. 5. Trend of the published paper from 1991 to 2013.

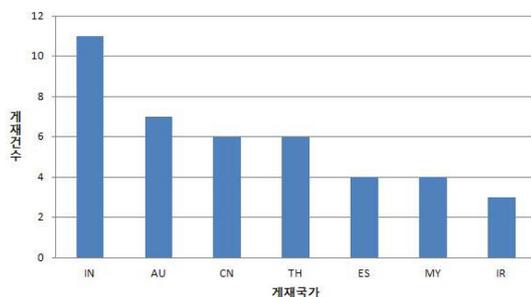


Fig. 6. Number of the papers from different countries.

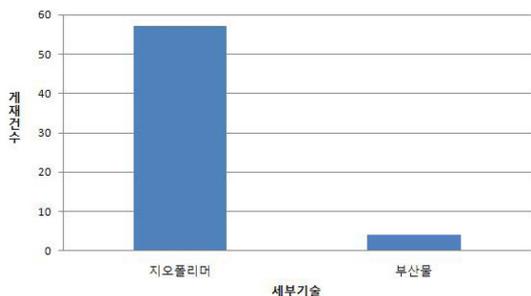


Fig. 7. Numbers of the papers for specific recycling technologies.

4.2. 국가별 동향

Fig. 6은 논문의 국가별 게재건수를 나타낸 그래프이다. 게재국가별 점유율을 살펴보면, 상위 7위권 내의 국가가 차지하는 점유율은 총 논문 61건 중 41건으로 67.2%를 나타냈다. 인도가 10건으로 가장 많은 논문을 게재하였고, 다음으로 호주가 7건, 중국과 태국이 각각 6건, 스페인과 말레이시아는 각각 4건, 이란 3건 등의 순으로 나타났다.

4.3. 기술별 동향

Fig. 7은 석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 분야 논문의 기술별 건수를 나타낸 그래프이다.

Table 5. Main organizations of papers

Main organization	Number of paper
University of Melbourne(AU)	6
Khon Kaen University(TH)	5
V.L.B Janakiammal College of Engineering and Technology Kovaipudur(IN)	3
Iran University of Science and Technology(IR)	3
University Politehnica of Bucharest(RO)	2
University of Seville(ES)	2
University Malaysia Perlis(MY)	2
Tongji University(CN)	2
Technical University in Košice(SK)	2

세부기술별 점유율을 살펴보면, 지오폐기물 제조 기술 관련 논문이 57건으로 93.4%의 가장 큰 점유율을 차지하였고, 석탄 연소부산물 정제 기술 관련 논문은 4건(6.6%)을 나타냈다.

4.4 주요기관 동향

Table 5는 논문으로부터 도출된 논문게재 주요기관 (Top 9) 현황을 나타낸 표이다.

논문의 게재기관 현황 및 점유율을 살펴보면, 총 건수 61건 중 상위 9위권 내의 게재기관에 의한 논문게재 건수가 27건으로 44.3%의 점유율을 차지하였으며, 호주의 University of Melbourne이 6건으로 기술을 주도하고 있는 것으로 보인다. 태국의 Khon Kaen University가 5건, 인도의 V.L.B Janakiammal College of Engineering and Technology Kovaipudur, 이란의 Iran University of Science and Technology가 각각 3건, 루마니아의 University Politehnica of Bucharest, 스페인의 University of Seville, 말레이시아의 University Malaysia Perlis, 중국의 Tongji University, 슬로바키아의 Technical University in Košice가 각각 2건의 순으로 나타났다.

석탄 연소부산물의 지오폐기물 원료화 기술 관련 논문게재 상위 9위권 내의 기관을 살펴보면, 호주, 태국, 인도, 이란, 루마니아, 스페인, 말레이시아, 중국, 슬로바키아가 각각 1개 기관으로 나타났다.

5. 석탄 연소부산물의 지오폐기물 원료화 기술 관련 특허 및 논문의 심층 분석

Table 6은 기술적 중요도를 기준으로 해당기술 전문가에 의해 선별된 핵심특허와 핵심논문을 정리하여 나타내었다.

석탄 연소부산물의 지오폐기물 원료화 기술 관련 핵심특허 49건 중 47건이 지오폐기물 제조 기술 관련 특허로 나타났으며, 나머지 2건이 석탄 연소부산물 정제/균질제품화 기술 관련 특허인 것으로 나타났다. 핵심논문의 경우, 총 7건 중 5건이 지오폐기물 제조 기술 관련 논문으로 나타났으며, 나머지 2건이 석탄 연소부산물 정제/균질제품화 기술 관련 논문인 것으로 나타났다.

지오폐기물 제조 기술 관련 핵심특허 및 핵심논문을 살펴보면, Davidovits, Joseph은 1987년과 1988년에 독성 폐기물 고정화 방법에 관한 특허를 미국과 유럽에 출원하였고, 1989년에 The Hera는 지오폐기물 복합재료 관련 특허를 일본에 출원하였다. Davidovits, Joseph은 1991년에 독성 폐기물 고정용 지오폐기물 바인더를 얻기 위한 과정 관련 특허를 유럽에 출원하였고, 지오폐기물 알루미늄 규산염 바인더를 얻기 위한 과정에 관한 특허를 유럽에 2건 출원하였다. Geopolymer Institute는 독성 물질 또는 방사성 폐기물 고정용 무기고분자 신소재 지오폐기물 관련 논문을 게재하였다. 1992년에는 알루미늄규산 알칼리의 지오폐기물 매트릭스를 얻는 방법, 지오폐기물 알루미늄 규산염 바인더를 얻기 위한 과정, 독성 폐기물 고정용 지오폐기물 바인더를 얻기 위한 과정에 관한 특허를 각각 미국에 출원하였다. The Hera는 지오폐기물 복합재료 관련 특허를 출원하였고, 1996년에 Davidovits, Joseph은 섬유 강화재를 포함한 복합재료를 위한 알루미늄규산 알칼리의 지오폐기물 매트릭스 및 상기 매트릭스를 얻는 방법에 관한 특허를 유럽에 출원하였으며, Drexel University는 플라이 애쉬 시멘트 제조 방법 관련 특허를 미국에 출원하였다. 1997년에 University of Melbourne은 독성물질(중금속)의 고정화 및 효과적인 안정화를 위한 지오폐기물 제조 관련 논문을 게재하였다. 1998년에 Cordi-Geopolymere는 지오폐기물 시멘트 제조 방법에 관한 특허를 유럽에 출원하였고, 1999년에 University of Melbourne은 독성원소 고정·고립화용 지오폐기물 제조에 관한 논문을 게재하였다. 2003년에 Cordi-Geopolymere는 지오폐기물 시멘트 제조 방법에 관한 특허를 유럽에 출원하였고, Red Lion Cement Technology는 지오폐기물 시멘트

Table 6. List of the core patents & papers

Technical classification	[nationality]Patent (Publication) Number/Source title, Volume, Pages	Patent(Publication)Date/ Publication Year	Applicant/ Organization
지오폴리머	[KR] 1263227	2013.05.06	권은자
	[KR] 0759855	2007.09.12	요업기술원
	[KR] 1165694	2012.07.09	한국건설기술연구원
	[KR] 1018009	2011.02.21	
	[KR] 1121983	2012.02.23	한국지질자원연구원
	[KR] 0852215	2008.08.07	
	[US] 2013-0055924	2013.03.07	Arizona Board of Regents for and on Behalf of Arizona State University
	[US] 2012-0260594	2012.10.18	Banah UK
	[KR] 2010-0085112	2010.07.28	Commissariat a L'energie Atomique
	[JP] 2011-500494	2011.01.06	
	[US] 2010-0222204	2010.09.02	Commissariat Energie Atomique
	[EP] 1507749	2011.08.03	Cordi-Geopolymere
	[EP] 0891310	1999.01.20	
	[EP] 2105420	2009.09.30	Council of Scientific & Industrial Research
	[KR] 0846821	2008.07.10	Council Scient Ind Res
	[EP] 0815064	1999.09.01	Davidovits, Joseph
	[US] 5342595	1994.08.30	
	[US] 5352427	1994.10.04	
	[US] 5539140	1996.07.23	
	[EP] 0500845	1996.07.10	
	[EP] 0518962	1994.12.14	
	[EP] 0518980	1994.12.14	
	[EP] 0338060	1991.06.26	
	[US] 4859367	1989.08.22	
	[US] 2011-0132230	2011.06.09	
	[KR] 2012-0030464	2012.03.28	
	[US] 5601643	1997.02.11	
	[US] 8444763	2013.05.21	Drexel University
	[KR] 2008-0073785	2008.08.11	Inst Francals Des Sciences et Technologies des Transports de L Amenagement et des Reseaux
	[JP] 2013-502367	2013.01.24	James Hardie International Finance
[JP] 2013-502367	2013.01.24	Laboratoire Central des Ponts et Chaussees	
[US] 2012-0156381	2012.06.21	Louisiana Tech University res Foundation a division of Louisiana Tech University Foundation	
[JP] 2013-001580	2013.01.07	Nishimatsu Constr	
[JP] 2012-116677	2012.06.21		

Table 6. Continued

Technical classification	[nationality]Patent (Publication) Number/Source title, Volume, Pages	Patent(Publication)Date/ Publication Year	Applicant/ Organization
	[JP] 2008-239446	2008.10.09	Railway Technical Research Institute
	[US] 8202362	2012.06.19	Red Lion Cement Technology
	[US] 7229491	2007.06.12	
	[US] 7442248	2008.10.28	Research Incubator
	[US] 2007-0125272	2007.06.07	Rocla Pty
지오폐리머	[EP] 2093200	2009.08.26	Services Petroliers Schlumberger
	[US] 2012-0152153	2012.06.21	The Catholic University of America
	[US] 2012-0024196	2012.02.02	
	[US] 5244726	1993.09.14	The Hera
	[JP] 3018341	2000.01.07	
	[US] 2012-0094028	2012.04.19	Tnemecc
	[US] 2013-0019780	2013.01.24	Total E&P Canada
	[US] 2012-0167804	2012.07.05	United States Gypsum
	[JP] 2008-254939	2008.10.23	Yamaguchi Prefecture
	Journal of Thermal Analysis, 37, pp1633-1656	1991	Geopolymer Institute
	Journal of Hazardous Materials, 168, pp44-50	2009	Khon Kaen University
	Journal of Hazardous Materials, 157, pp. 587-598	2008	University of Melbourne
	Minerals Engineering, 12, pp. 75-91	1999	
	Minerals Engineering, 10, pp. 659-669	1997	
부산물	[US] 4229329	1980.10.21	Bennett; Herbert
	[JP] 1996-277151	1996.10.22	Sekisui Chem
	Minerals Engineering, 22, pp1073-1078	2009	Burapha University
	Cement and Concrete Research, 29, pp1323-1329	1999	Eduardo Torroja Institute (CSIC)

제조 방법 관련 특허를 미국에 출원하였다. 2004년에 Rocla Pty는 지오폐리머 콘크리트 제조 방법 관련 특허를 미국에 출원하였고, 2005년에 요업기술원은 플라이 애쉬를 사용한 비소성 무기결합재 관련 특허를 한국에 출원하였으며, Research Incubator는 시멘트 조성물에 관한 특허를 미국에 출원하였다. 2007년에 Council Scient Ind Res는 플라이 애쉬로부터 지오폐리머 물질을 제조하는 공정에 관한 특허를 한국에 출원하였고, Railway Technical Research Institute는 지오폐리머 조성물 및 그 제조 방법 관련 특허를 일본에 출원하였다. Red Lion Cement Technology는 플라이 애쉬 기반의

지오폐리머 시멘트에 관한 특허를 미국에 출원하였으며, Yamaguchi Prefecture는 고강도 지오폐리머 관련 특허를 일본에 출원하였다. 2008년에 한국건설기술연구원은 결합재로 폐유리 미분말과 플라이애쉬를 이용한 무시멘트 콘크리트의 제조방법에 관한 특허를 한국에 출원하였고, 한국지질자원연구원은 연탄재의 지오폐리머 반응을 이용한 친환경 예코벽돌 제조방법에 관한 특허를 출원하였다. Commissariat a Lienergie Atomique는 제어된 다공성 지오폐리머의 제조 방법 및 그 방법으로 생성된 지오폐리머 및 이의 다양한 용도에 관한 특허를 각각 한국과 일본에 출원하였으며, Council of Scientific

& Industrial Research는 건축 재료 및 프로세스의 구성 관련 특허를 유럽에 출원하였다. James Hardie International Finance는 지오폐리머 입자, 섬유, 성형품 및 이들의 제조 방법 관련 특허를 한국에 출원하였고, Services Petroliers Schlumberger는 지오폐리머 복합재료 관련 특허를 유럽에 출원하였다. 2009년에 한국건설기술연구원은 플라이애시를 포함하는 비소성 결합재 및 이를 이용한 콘크리트 조성물에 관한 특허를 한국에 출원하였고, 한국지질자원연구원은 바다재의 지오폐리머 반응을 이용한 친환경 에코벽돌의 제조방법 관련 특허를 출원하였다. University of Melbourne은 독성 폐기물(Pb, Cr, Cd) 고정용 지오폐리머 관련 논문을 게재하였고, 2009년에 Khon Kaen University는 효율적인 바텀 애쉬 지오폐리머 모르타르 관련 논문을 게재하였다. 2010년에 권은자는 고강도 지오폐리머 조성물 및 그 제조방법에 관한 특허를 한국에 출원하였고, Arizona board of Regents for and on behalf of Arizona State University는 다공성 지오폐리머 재료 관련 특허를 미국에 출원하였으며, Banah UK는 지오폐리머 구조체 및 그 제조 방법 관련 특허를 출원하였다. Dow Global Technologies는 지오폐리머 구조체 및 그 제조 방법 관련 특허를 출원하였고, 개질 지오폐리머 조성물, 방법 및 용도 관련 특허를 한국에 출원하였으며, Inst Francals Des Sciences et Technologies des Transports de L aménagement et des Reseaux는 지오폐리머 시멘트에 관한 특허를 미국에 출원하였다. Laboratoire central des Ponts et Chaussees는 지오폐리머 시멘트 및 그 사용에 관한 특허를 일본에 출원하였고, Louisiana Tech University res Foundation a Division of Louisiana Tech University Foundation은 지오폐리머 모르타르 관련 특허를 미국에 출원하였으며, Nishimatsu Constr는 지오폐리머 구조체 관련 특허를 일본에 출원하였다. The Catholic University of Amarica는 지오폐리머 복합 마인더 관련 특허를 미국에 출원하였고, Tnemec는 지오폐리머 조성물 및 그 제조 방법에 관한 특허를 출원하였다. 2011년에 Nishimatsu Constr는 지오폐리머 조성물 및 그 제조 방법에 관한 특허를 일본에 출원하였고, The Catholic University of Amarica는 지오폐리머 복합재료 관련 특허를 미국에 출원하였으며, United States Gypsum은 플라이 애쉬 기반의 경량 시멘트 혼합물 제공 방법에 관한 특허를 출원하였다. 2012년에 Total E&P Canada는 지오폐리머 첨가제 및 사용 방법에 관한 특허를 출원하였다. 석탄 연소부산물 정제/순

질제품화 기술 관련 핵심특허 및 핵심논문을 살펴보면, 1979년에 Bennett; Herbert가 플라이 애쉬를 포함하는 도로 조성물 관련 특허를 미국에 출원하였고, 1995년에 Sekisui Chem은 경화성 무기질 조성물 관련 특허를 일본에 출원한 것으로 나타남. 1999년에 Eduardo Torroja Institute(CSIC)는 알칼리로 활성화 된 석탄재: 친환경시멘트 관련 논문을 게재하였고, 2009년에 Burapha University는 플라이 애쉬 지오폐리머 조성물 관련 논문을 게재하였다.

6. 결 론

석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 관련 특허는 1979년에 처음 출원되어, 2000년대 중반까지 미미한 특허활동을 보였다. 이후 활발한 특허출원을 나타내며, 2010년에는 가장 많은 36건의 특허를 출원하였다. 국가별 특허출원 현황을 살펴보면, 석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 관련 특허 247건 중 미국특허가 91건으로 36.8%의 가장 큰 점유율을 차지하였으며, 한국특허는 83건(33.6%)으로 미국과 3.2%p의 차이를 보였다. 출원인 국적별 현황을 살펴보면, 총 건수 247건 중 한국국적 출원인이 76건으로 가장 많은 특허를 출원하였으며, 다음으로 미국국적 출원인이 66건을 출원하였다. 세부기술별 점유율을 살펴보면, 지오폐리머 제조 기술 관련 특허가 213건으로 86.2%의 가장 큰 점유율을 차지하였으며, 석탄 연소부산물 정제 기술 관련 특허는 34건으로 13.8%를 나타냈다.

석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 관련 논문은 1991년에 처음 출원되어, 2008년까지 미미한 논문계재를 보였다. 2009년부터 최근까지 활발한 논문활동을 나타내고 있으며, 2012년에는 17건의 가장 많은 논문을 게재하였다. 게재국가별 점유율을 살펴보면, 상위 7위권 내의 국가가 차지하는 점유율은 총 논문 61건 중 41건으로 67.2%를 나타냈다. 인도가 10건으로 가장 많은 논문을 게재하였고, 다음으로 호주가 7건을 게재하였다. 세부기술별 점유율을 살펴보면, 지오폐리머 제조 기술 관련 논문이 57건으로 93.4%의 가장 큰 점유율을 차지하였고, 석탄 연소부산물 정제 기술 관련 논문은 4건(6.6%)을 나타냈다.

석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술 관련 핵심특허 및 핵심논문을 살펴보면, 지오폐리머 제조 기술 관련 논문이 주를 이루고 있는 것으로 나타났다.

지오폐리머 제조에 자원처리 기술이 필요한 이유는

지오폐리머 제품을 생산하기 위해 석탄재를 기후 등 지역특성과 시장성격에 맞는 최적의 원료로 가공해야하기 때문이다. 세계적으로 보편적인 석탄재 단일 가공공정은 없다. 따라서 국내환경에 맞는 지오폐리머를 제조하기 위해 국내 석탄재를 최적으로 가공할 수 있는 공정이 개발되어야 한다. 이를 바탕으로 지오폐리머 기술수출 대상국에 대한 기술개발을 확보할 수 있는 경험과 지식이 축적될 것이다.

석탄 연소부산물의 지오폐리머 원료화 기술은 미국이 한국보다 우위에 있으므로, 독창적인 연구개발을 통해 원천/핵심특허를 선점해야 할 필요가 있다. 또한 국내에서 상대적으로 특허출원이 부진한 석탄 연소부산물 정제 기술의 주요출원인 및 발명자 등을 파악하여 공백 특허 및 IPC(국제특허분류)를 연구개발에 집중시켜 중복방지과 권리충돌 등의 문제 발생을 미연에 방지할 필요가 있는 것으로 생각된다.

감사의 글

본 논문은 환경부 글로벌탑 환경기술개발사업 중 폐금속·유용자원 재활용 기술개발사업의 지원에 의하여 연구되었으며 이에 감사드립니다.

References

1. Davidovits J., 1991: *Geopolymers - Inorganic polymeric new materials*, Journal of Thermal Analysis, 37, pp1633-1656.
2. Van Jaarsveld J.G.S., Van Deventer J.S.J., Lorenzen L., 1997: *The potential use of geopolymeric materials to immobilise toxic metals: Part I. Theory and applications*, Minerals Engineering, 10, pp659-669.
3. Palomo A., Grutzeck M.W., Blanco M.T., 1999: *Alkali-activated fly ashes: A cement for the future*, Cement and Concrete Research, 29, pp1323-1329.
4. Van Jaarsveld J.G.S., Van Deventer J.S.J., Schwartzman A., 1999: *The potential use of geopolymeric materials to immobilise toxic metals: Part II. Material and leaching characteristics*, Minerals Engineering, 12, pp75-91.
5. Zhang J., et al., 2008: *Geopolymers for immobilization of Cr6+, Cd2+, and Pb2+*, Journal of Hazardous Materials, 157, pp58-598.
6. Rattanasak U., Chindaprasirt P., 2009: *UInfluence of NaOH solution on the synthesis of fly ash geopolymer*, Minerals Engineering, 22, pp1073-1078.
7. Sathonsaowaphak A., Chindaprasirt P., Pimraksa K., 2009: *Workability and strength of lignite bottom ash geopolymer mortar*, Journal of Hazardous Materials, 168, pp44-50.

이 수 정

- 현재 한국지질자원연구원 책임연구원
- 당 학회지 제 23 권 1 호 참조

조 영 주

- 현재 글로벌탑환경기술개발사업 폐금속·유용자원재활용기술 개발사업단 연구지원실장
- 당 학회지 제21권 3호 참조

조 봉 규

- 현재 한국지질자원연구원 책임연구원
- 당 학회지 제18권 5호 참조