

특허와 논문으로 본 초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 동향

홍순만 · 구종민* · 조영주** · 조봉규**

*한국과학기술연구원, **한국지질자원연구원

Trend on the Recycling Technologies for Recycling of Insoluble/infusible Plastic Wastes using Supercritical Fluids by the Patent and Paper Analysis

Soon-Man Hong, Chong Min Koo*, Young-Ju Cho** and Bong-Gyoo Cho**

**Korea Institute of Science and Technology*

***Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources*

요 약

초임계 유체공정 및 반응상용화에 의한 불용/불용성 폐플라스틱 재활용은 다양한 분야에서 응용이 가능하며, 고부가가치의 신제품 생산과 연계하여, 국내 유화산업의 국제 경쟁력 확보가 가능하다고 판단된다. 본 연구에서는 초임계유체를 이용하여 불용/불용 폐플라스틱의 자원순환기술에 대한 특허와 논문을 분석하였다. 분석범위는 1993년에서 2012년까지의 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 : 불용/불용 폐플라스틱, 초임계유체, 재활용, 특허, 논문, 기술 동향

Abstract

It is believed to have the international competitiveness of the domestic petrochemical in conjunction with the production of high value-added new product and variety of application by supercritical fluid process and the reaction of infusible/insoluble plastic wastes recycling. In this article, the patents and papers for the recycling of organic residues from the plastic wastes using supercritical fluids were collected and analyzed. The open patents of USA (US), European Union (EP), Japan (JP), and Korea (KR) and SCI journals from 1993 to 2012 were investigated. The patents and journals were collected using key-words and filtered by the definition of the technology. The patents and journals were analyzed by the years, countries, companies, and technologies and the technical trends were discussed in this paper.

Key words : Insoluble/infusible plastic wastes, supercritical fluids, recycling, patent, paper, technical trend

· Received : December 27, 2013 · Revised : March 10, 2014 · Accepted : March 28, 2014

*Corresponding Author : Soon Man Hong (E-mail : smhong@kist.re.kr)

Institute for Multidisciplinary Convergence of Materials, Center for Materials Architecturing, Korea Institute of Science and Technology, Hwarang-ro 14-gil 5, Seongbuk-gu, Seoul 136-791, Korea

Tel : +82-2-958-5315 / Fax : +82-2-958-5309

©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

대부분 소각 또는 매립되는 폐 불용/불용 플라스틱(고압절연 전선, 온수온돌용 파이프 등)의 자원순환기술 개발이 유기계 폐기물의 자원화, 온실 가스 저감, 환경오염 물질의 저감 및 제로화 기술 등 환경 개선 측면에서 매우 필요한 상황이나 국내에서는 일부 연구소와 대학에서만 기초 연구가 진행되고 있는 실정이다. 반면 선진외국에서는 이 분야를 미래산업으로 적극 육성하고 있는 상황이다.

불용/불용성 페플라ستيك의 망상구조를 분해하여, 재활용이 가능한 플라스틱으로의 변환 뿐 아니라 자원화 및 원료화하기 위해 초임계 유체를 이용한 탈가고 공정기술과 기능성 유/무기 반응 상용화/복합화 기술이 필요하다.

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 초임계유체를 이용하여 불용/불용 페플라ستيك의 자원순환기술에 대하여 일본, 한국, 미국, 유럽의 특허정보와 논문정보를 분석함으로써 기술의 동향을 고찰하였다.

2. 기술 검색대상 및 분석기준

2.1. 특허 및 논문검색 대상

초임계유체를 이용하여 불용/불용 페플라ستيك을 자원순환하는 기술과 관련된 특허와 논문을 분석하기 위하여 이들과 관련된 모든 특허와 논문을 검색하여 분석하는 것이 이상적이지만, 모든 것을 수집하는 데는 한계가 있으므로 우선 자료의 검색 범위를 설정할 필요가 있다. 특허의 공개 또는 등록일자 및 논문의 게재연도는 제한하지 않았으며, 키워드는 특허의 명칭, 요약, 청구항에 제한을 두어 검색하였다. 이에, 1993년부터 2011년까지 등록 또는 공개된 특허와 1997년부터 2012년까지 게재된 논문이 검색되었으며, Table 1과 같은 검색 DB를 사용하여 진행하였다. 논문은 Scopus DB를 사용하였으며 특허는 WIPS DB를 사용하여 한국, 미국, 일본, 유럽연합의 PCT 특허로 제한하였다. 본 연구에서는 검색된 특허와 논문의 요약문을 검토하여, 선정된 특허 113건과 논문 10건을 대상으로 분석하였다. 특허의

Table 1. Analysis of the patents and papers

	Patent	Paper
The name of search database	WIPS	Scopus
The number of analysis	113	10
The date of search	1993~2011	1997~2012

Table 2. Technical classification of recycling for insoluble/infusible plastic wastes using supercritical fluids

The name of technology	Technical classification
Recycling of insoluble/infusible plastic wastes using supercritical fluids	Supercritical fluids process
	Cross-linked reaction
	Commercialization reaction /raw materials/structure control

경우, 출원 후 1년 6개월 이후에 공개되는 특허제도의 특성상 2012년도부터 미공개 특허가 존재하므로 분석 결과의 유효기간은 2011년까지인 것으로 볼 수 있다.

2.2. 데이터베이스 구축

DB 구축은 초임계유체 이용 불용/불용 페플라ستيك 자원순환기술과 관련된 키워드의 조합으로 검색된 결과를 활용하였다. 대부분 매립 또는 소각되는 불용/불용 페플라ستيك의 재활용으로 소각에 따른 환경 오염문제를 해결하고, 파쇄 및 분쇄 과정에서 파생되는 복합체에 대한 최적 반응상용화 기술 개발에 따른 기대성과를 바탕으로, Table 2와 같이 초임계유체 공정, 탈가고화 반응, 반응상용화/원료화/구조제어 기술에 관한 3개의 기술 분야로 나누어 분석하였다.

3. 초임계유체 이용 불용/불용 페플라ستيكdml 자원순환기술 관련 특허 동향 분석

3.1. 연도별 동향

초임계유체 이용 불용/불용 페플라ستيك 자원순환기술의 연도별 특허출원 건수를 Fig. 1에 나타내었다. 초임계유체 이용 불용/불용 페플라ستيك 자원순환기술 관련 특허는 1993년에 처음 출원되어, 2000년대 초반까지 미미한 특허활동을 나타냈다. 2000년대 중반부터 활발한 특허활동을 보이기 시작했으며, 2005년에는 가장 많은 19건의 특허가 출원된 것으로 나타났다.

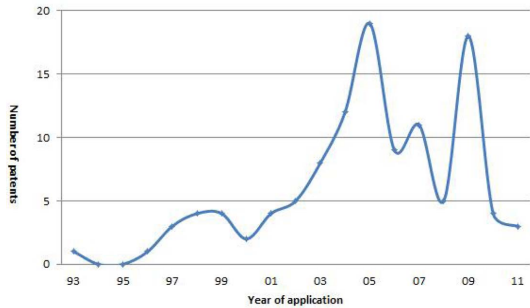


Fig. 1. Trend in the number of the patents from 1993 to 2011.

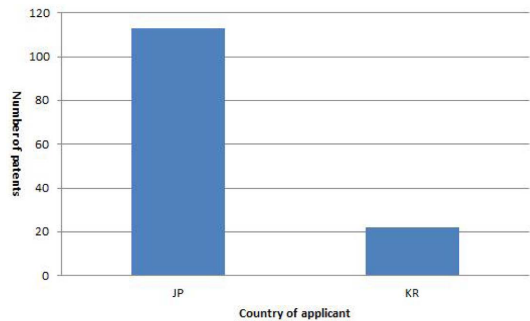


Fig. 2. Number of the patents from countries of applicants.

3.2. 국가별 동향

Fig. 2는 특허의 출원인 국적별 특허출원 건수를 나타낸 그래프이다. 초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 관련 특허 113건 중 일본국적 출원인이 108건으로 95.6%의 가장 큰 점유율을 차지하였으며, 한국국적 출원인은 5건(4.4%)으로 나타났다.

국가별 출원 동향을 살펴보면, 일본특허가 1993년에 가장 먼저 출원되었으며, 91건으로 80.5%의 가장 높은 점유율을 차지하였고, 한국특허는 9건(8.0%), 미국특허 7건(6.2%), 유럽특허 6건(5.3%)의 순으로 나타났다.

3.3. 주요 출원인

Table 3은 특허로부터 도출된 주요출원인(Top 10) 현황을 나타낸 표이다. 일본의 Matsushita Electric Works가 30건, Sumitomo Bakelite가 27건, Panasonic Electric Works가 18건, 한국의 한국과학기술연구원과 일본의 Sanyo Chem Ind가 각각 5건, Chubu Electric Power 4건, Matsushita Electric Ind 3건, Asahi Chem Ind, Kamiwano Mitsuo, Kurita Water Ind가 각각 2건의

Table 3. Main applicants of patents

Main applicant	Number of patents
Matsushita Electric Works(JP)	30
Sumitomo Bakelite(JP)	27
Panasonic Electric Works(JP)	18
Korea Institute of Science and Technology(KR)	5
Sanyo Chem Ind(JP)	5
Chubu Electric Power(JP)	4
Matsushita Electric Ind(JP)	3
Asahi Chem Ind(JP)	2
Kamiwano Mitsuo(JP)	2
Kurita Water Ind(JP)	2

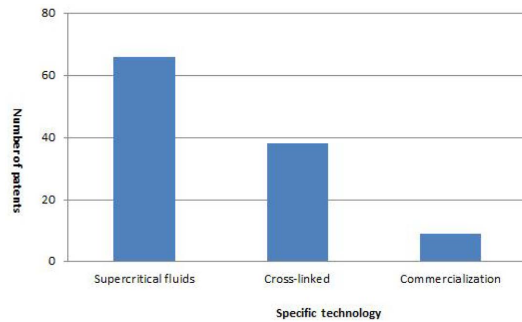


Fig. 3. Number of the patent for specific recycling technologies.

순으로 나타났다. 초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 관련 특허는 상위 10위권 내의 출원인 중 일본 국적 소속이 9개 기관으로 가장 많은 것으로 나타났다.

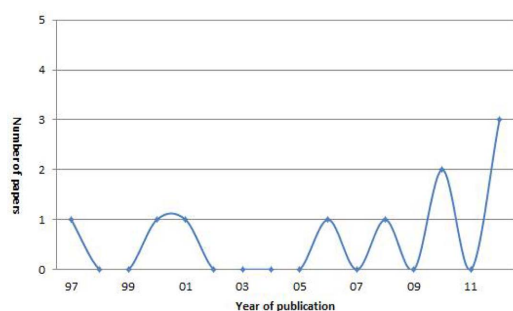
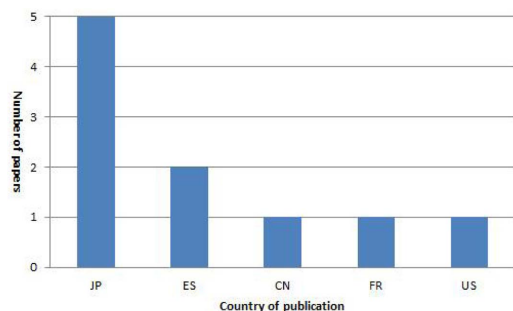
3.4. 기술별 동향

Fig. 3은 초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 분야 특허의 기술별 건수를 나타낸 그래프이다. 기술별 점유율을 살펴보면, 초임계유체 공정 기술 관련 특허가 66건으로 58.4%의 가장 큰 점유율을 보이며, 탈가교화 반응 기술 관련 특허는 38건(33.6%), 반응상용화/원료화/구조제어 기술 관련 특허는 9건(8.0%)의 순으로 나타났다.

출원인 국적별 특허건수를 비교해보면, 일본이 모든 기술에서 가장 많은 특허건수를 보였다. 이를 Table 4에 정리하였다.

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

Nationality	Supercritical fluids	Cross-linked	Commercialization
JP	66	36	6
KR	0	2	3

**Fig. 4.** Trend of the published paper from 1997 to 2012.**Fig. 5.** Number of the papers from different countries.

4. 초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱의 자원순환기술 관련 논문 동향 분석

4.1. 연도별 동향

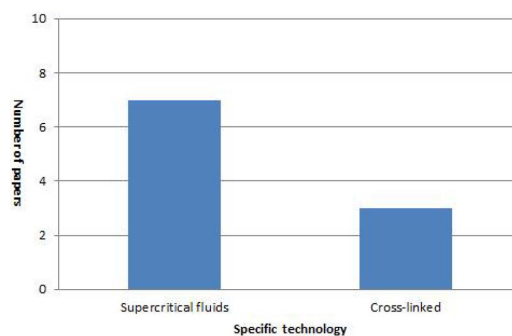
초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술의 연도별 논문게재 건수를 Fig. 4에 나타냈다. 초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 관련 논문은 전반적으로 미미한 게재활동을 보였다. 1997년에 처음 게재되었으며, 2012년에 가장 많은 3건의 논문이 게재된 것으로 나타났다.

4.2. 국가별 동향

Fig. 5는 논문의 국가별 게재건수를 나타낸 그래프이다. 게재국가별 점유율을 살펴보면, 초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 관련 논문 10건 중

Table 5. Number of the published papers by the nationalities of author in each technology

Nationality	Supercritical fluids	Cross-linked
JP	2	3
ES	2	-
CN	1	-
FR	1	-
US	1	-

**Fig. 6.** Numbers of the papers for specific recycling technologies.

일본이 5건으로 50.0%의 가장 큰 점유율을 차지했으며, 스페인 2건(20.0%), 중국, 프랑스, 미국이 각각 1건(10.0%)의 순으로 나타났다.

Table 5는 저자 국적별 기술별 게재논문 현황을 나타낸 표이다. 저자 국적별 기술별 게재논문 현황을 살펴보면, 일본이 초임계유체 공정, 탈가교화 반응 기술 관련 논문을 가장 많이 게재한 것으로 나타났다.

4.3. 기술별 동향

Fig. 6는 초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 분야 논문의 기술별 건수를 나타낸 그래프이다. 논문의 기술별 건수를 살펴보면, 초임계유체 공정 기술 관련 논문이 7건으로 70.0%의 가장 큰 점유율을 차지하였으며, 탈가교화 반응 기술 관련 논문은 3건(30.0%)으로 나타났다.

4.4. 주요기관 동향

Table 6은 논문으로부터 도출된 논문게재 주요기관 (Top 9) 현황을 나타낸 표이다. 일본의 Osaka Prefecture University가 2건으로 가장 많은 논문을 게재하였고, 중국의 Changchun Institute of Applied Chemistry, 일본의

Table 6. Main organizations of papers

Main organization	Number of paper
Osaka Prefecture University(JP)	2
Changchun Institute of Applied Chemistry(CN)	1
Gunma University(JP)	1
ICAM-LTN de Nantes(FR)	1
Natl. Inst. of Adv. Indus(JP)	1
Shizuoka University(JP)	1
University of Castilla-La Mancha(ES)	1
University of Maine(US)	1
University of Valladolid(ES)	1

Gunma University, 프랑스의 ICAM-LTN de Nantes, 일본의 Natl. Inst. of Adv. Indus, Shizuoka University, 스페인의 University of Castilla-La Mancha, 미국의 University of Maine, 스페인의 University of Valladolid 가 각각 1건의 논문을 게재한 것으로 나타났다.

초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 관련 논문게재 주요기관을 살펴보면, 일본이 4개 기관으로 기술을 주도하고 있는 것으로 보인다.

5. 특허 및 논문의 심층 분석

Table 7은 기술적 중요도를 기준으로 선별된 핵심특허와 핵심논문을 정리하여 나타내었다.

초임계유체 공정 기술 관련 핵심특허 및 핵심논문을 살펴보면, 1998년에 Asahi Chem Ind는 폐플라스틱의 분해 및 처리에 관한 특허를 일본에 출원하였고, Sumitomo Bakelite는 열경화성 수지의 분해 기술 관련 특허를 출원하였으며, 2000년에 Chubu Electric Power는 열경화성 수지 재활용 방법에 관한 특허를 출원하였다. Gunma University는 초임계 메탄올을 이용하여 폐놀 수지의 화학적 재활용에 관한 논문을 게재하였고, 2001년에 Natl. Inst. of Adv. Indus는 높은 온도와 압력에서 유체를 사용하여 섬유 강화 플라스틱 분해 관련 논문을 게재하였다. Sumitomo Bakelite는 2002년에 열경화성 수지의 재활용을 위한 분해 방법 관련 특허를 출원하였고, 2004년에 플라스틱의 리사이클 방법, 플라스틱의 처리 회수물, 열경화성 수지 성형 재료 및 리사이클 플라스틱 관련 특허 3건을 출원하였다. 2005년에 Matsushita Electric Works는 플라스틱의 리사이클 방법

에 관한 특허를 출원하였고, Osaka Industrial Promotion Organization은 열경화성 수지 분해 및 재활용 방법 관련 특허를 출원하였다. Sumitomo Bakelite는 재생 수지의 제조 방법, 재생 수지, 수지 조성물의 처리회수물, 재생 수지 조성물 및 수지 조성물의 재생 방법에 관한 특허를 한국에 출원하였고, Yamaguchi Prefecture는 열경화성 수지 분해 및 처리 방법 관련 특허를 일본에 출원하였으며, 2007년에 Sumitomo Bakelite는 분해 반응 장치, 재생수지 조성물 원료 제조 시스템, 재생 수지 조성물 원료 제조방법, 재생수지 조성물 원료 및 성형체에 관한 특허를 한국에 출원하였다. 2008년에 University of Valladolid는 초임계 조건 하에서 알코올을 사용하여 탄소 함유 복합 재료의 화학적 재활용 관련 논문을 게재하였고, Panasonic Electric Works는 2008년과 2009년에 열경화성 수지 분해 및 처리 방법 관련 특허를 유럽에 출원하였다. 2011년에 Matsushita Electric Ind는 열경화성 수지의 분해 회수 방법에 관한 특허를 일본에 출원하였다.

탈가교화 반응 기술 관련 핵심특허 및 핵심논문을 살펴보면, Asahi Orgmic Chem Ind는 2003년에 열경화성 수지 또는 그 경화물의 분해 방법 및 그것에 의해 얻어진 분해 생성물을 이용한 열경화성 수지의 제조 방법에 관한 특허를 일본에 출원하였다. Matsushita Electric Works는 2004년부터 2007년까지 열경화성 수지의 분해 및 회수 방법 관련 특허 6건을 출원하였고, 2007년에 Panasonic Electric Works는 열경화성 수지의 분해·회수 방법에 관한 특허를 출원하였다. 한국과학기술연구원은 폐 저밀도 폴리에틸렌계 발포체의 재생방법 관련 특허와 폐 가교 고밀도 폴리에틸렌계 파이프의 재생방법에 관한 특허를 2008년과 2009년에 각각 한국에 출원하였다. Panasonic Electric Works는 2009년에 열경화성 수지의 분해·회수 방법 관련 특허 2건을 미국과 일본에 출원하였고, 2010년에 National University Corporation Shizuoka University는 열경화 에폭시 수지의 재생성 방법 및 열경화 수지 재생성용 조성물 관련 특허를 일본에 출원하였다.

반응상용화/원료화/구조제어 기술 관련 핵심특허 및 핵심논문을 살펴보면, Hitachi는 1997년에 열경화성 페수지의 처리 기술 관련 특허를 일본에 출원하였고, 1999년에 Japan Organo는 열경화성 수지의 처리 기술 관련 특허를 출원하였으며, 2006년에 한국과학기술연구원은 반응압출을 이용한 폐 고밀도 폴리에틸렌의 재활용 방법에 관한 특허를 한국에 출원하였다.

Table 7. List of the core patents & papers

Technical classification	[nationality]Patent (Publication)Number/ Source title, Volume, Pages	Patent(Publication)Date/ Publication Year	Applicant/Organization
Supercritical fluids process	[JP]2000-053800	2000.02.22	Asahi Chem Ind
	[JP]2001-253968	2001.09.18	Chubu Electric Power
	[JP]WO2010-123093	2010.10.28	Matsushita Electric Ind
	[JP]2006-297836	2006.11.02	Matsushita Electric Works
	[JP]2006-213873	2006.08.17	Osaka Industrial Promotion Organization
	[EP]2258756	2010.12.08	Panasonic Electric Works
	[EP]2226353	2010.09.08	
	[KR]2007-0085373	2007.08.27	Sumitomo Bakelite
	[KR]1226414	2013.01.18	
	[JP]2005-126669	2005.05.19	
	[JP]2006-160794	2006.06.22	
	[JP]4581607	2010.09.10	
	[JP]2003-253041	2003.09.10	
	[JP]1999-302442	1999.11.02	Yamaguchi Prefecture
	[JP]2006-219640	2006.08.24	
	Journal of Supercritical Fluids, 46 pp83-92	2008	
Kobunshi Ronbunshu, 58 pp557-563	2001	Natl. Inst. of Adv. Indus	
Industrial and Engineering Chemistry Research, 39 pp245-249	2000	Gunma University	
Cross-linked reaction	[KR]2011-0026035	2011.03.15	Korea Institute of Science and Technology
	[KR]2010-0045282	2010.05.03	
	[JP]4317696	2009.05.29	Asahi Orgnic Chem Ind
	[JP]4979568	2012.04.27	Matsushita Electric Ind
	[JP]2008-231394	2008.10.02	Matsushita Electric Works
	[JP]2008-081549	2008.04.10	
	[JP]2008-050521	2008.03.06	
	[JP]2006-247476	2006.09.21	
	[JP]2005-290206	2005.10.20	
	[JP]WO2010-050442	2010.05.06	National University Corporation Shizuoka University
	[US]2011-0086930	2011.04.14	Panasonic Electric Works
	[JP]2010-043273	2010.02.25	
[JP]2009-155404	2009.07.16		
Commercialization reaction /raw materials /structure control	[KR]0728087	2007.06.07	Korea Institute of Science and Technology
	[JP]1999-140224	1999.05.25	Hitachi
	[JP]2001-079511	2001.03.27	Japan Organo

6. 결 론

초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 관련 특허는 1993년에 처음 출원되어, 2000년대 초반 까지 미미한 특허활동을 나타냈다. 2000년대 중반부터 활발한 특허활동을 보이기 시작했으며, 2005년에는 가장 많은 19건의 특허가 출원된 것으로 나타났다. 국가별 출원 동향을 살펴보면, 일본특허가 1993년에 가장 먼저 출원되었으며, 91건으로 80.5%의 가장 높은 점유율을 차지하였고, 한국특허는 9건(8.0%), 미국특허 7건(6.2%), 유럽특허 6건(5.3%)의 순으로 나타났다. 특허의 기술별 점유율을 살펴보면, 초임계유체 공정 기술 관련 특허가 66건으로 58.4%의 가장 큰 점유율을 차지했다.

초임계유체 이용 불용/불용 폐플라스틱 자원순환기술 관련 논문은 전반적으로 미미한 게재활동을 보였다. 1997년에 처음 게재되었으며, 2012년에 가장 많은 3건의 논문이 게재된 것으로 나타났다. 게재국가별 점유율을 살펴보면, 일본이 5건으로 50.0%의 가장 큰 점유율을 차지했으며, 스페인 2건(20.0%), 중국, 프랑스, 미국이 각각 1건(10.0%)의 순으로 나타났다. 논문의 기술별 점유율을 살펴보면, 초임계유체 공정 기술 관련 논문이 7건으로 70.0%의 가장 큰 점유율을 차지했다.

핵심특허와 핵심논문을 살펴보면, 초임계유체 공정 기술 관련 특허와 논문이 가장 많은 것으로 나타났다.

초임계 유체 공정 등을 이용한 불용/불용 폐플라스틱의 화학적 재활용은 고유가 시대에 석유 자원의 부족으로 인해 초래되는 에너지의 자원화 측면에서 신규 수요 창출이 가능하고 동시에 환경오염 문제를 크게 해결할 수 있어서 미래산업 기술로 성장할 수 있을 것으로 생각된다.

후 기

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

References

1. Ozaki J.-I., Djaja S.K.I., Oya A., 2000: *Chemical recycling of phenol resin by supercritical methanol*, Industrial and Engineering Chemistry Research, 39, pp245-249.
2. Sugeta T., et al., 2001: *Decompositon of fiber reinforced plastics using fluid at high temperature and pressrue*, Kobunshi Ronbunshu, 58, pp557-563
3. Pinero-Hernanz R., et al., 2008: *Chemical recycling of carbon fibre composites using alcohols under subcritical and supercritical conditions*, Journal of Supercritical Fluids, 46, pp83-92.

홍 순 만



- 한양공대 화학공학과 공학학사
- 연세대학교 화학공학과 공학석사
- KAIST 화학공학과 공학박사
- IBM Almaden 연구소 객원연구원
- 현재 KIST 물질구조제어 연구단 책임연구원

구 종 민



- 한국과학기술원 박사
- 미국 미네소타대학 박사후연구원
- LG화학 연구소 차장
- 현재 UST 부교수
- 현재 한국과학기술연구원 책임연구원

조 영 주

- 현재 글로벌탑환경기술개발사업 폐금속·유용자원재활용 기술개발사업단 연구지원실장
- 당 학회지 제21권 3호 참조

조 봉 규

- 현재 한국지질자원연구원 책임연구원
- 당 학회지 제18권 5호 참조