

일반강연 2-8

PORE MODIFICATION OF SOL-GEL DRIVEN ALUMINA MEMBRANE VIA SOAKING AND VAPOR-DEPOSITION METHOD

이 상연, 이 승진, 양 승만, 박 승빈

한국과학기술원 화학공학과

기체 분리용 무기분리막은 고분자막과 비교하여 열 및 구조적 안정성이 우수하므로, 석탄가스화 반응 혼합기체중의 기체분리등 고온 또는 고압공정에 적합한 분리방법으로서 주목되고 있다. 기체의 분리를 위한 무기재료막은 크게 다공성막과 비다공성막으로 나눌 수 있으며, 이 중 비기공성막의 경우 높은 선택도를 가지나 투과도가 낮아 경제성이 떨어지는 것으로 평가되고 있다. 한편, 기존의 다공성막의 경우 투과도는 높으나 기체의 분리가 혼합기체중 각 기체의 분자량의 차이에 의존하는 Knudsen 확산에 제한되는 낮은 선택도를 갖는 단점이 있다. 따라서 다공성막의 기공을 특정기체의 선택도가 우수한 촉매물질등으로 개선하여 비기공성막에 비해 우수한 투과도를 갖고, 기공성막에 비해 향상된 선택도를 보이는 복합막의 연구가 활발히 추진되고 있다. 본 연구는 솔젤법에 의해 제조된 팔라듐 함침 알루미늄 지지막의 기공을 침투·증착(Soaking and Vapor-deposition)법에 의해 개선하여 기체의 투과도를 높게 유지하면서 수소의 선택성을 향상시키는 것을 목적으로 하였다.

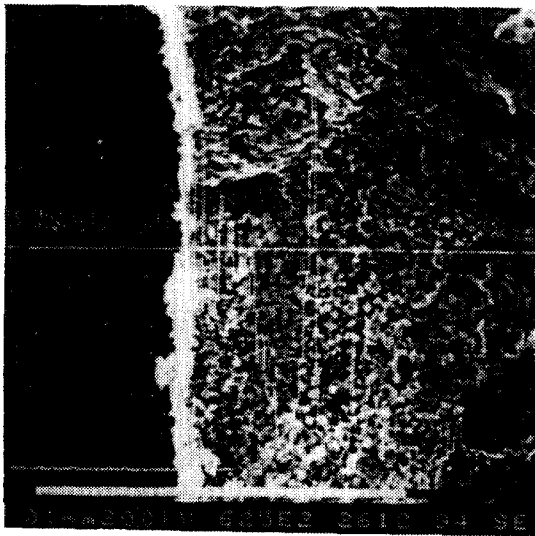
Yoldas의 방법[1]에 의해 제조된 알루미늄 솔에 수소선택성이 뛰어난 팔라듐의 전구체를 직접 혼합하여 이를 비대칭성 알루미늄 지지체에 침적 코팅하였다. 이때 지지체의 내부에 진공을 유지시켜 코팅용액이 충분히 내부로 빨리 들어오게 함으로써 팔라듐 함침 알루미늄 막층을 지지체의 중간부에 생성시킬 수 있었다. 이상의 솔젤법에 의해 제조된 5 wt.% 팔라듐 함침 알루미늄 지지막의 경우 팔라듐이 함침되지 않은 알루미늄 지지막의 투과도를 유지하면서, 낮은 압력차에서 함침된 미량의 팔라듐에 기인한 수소의 표면 활성화확산(activated surface diffusion)에 의해 Knudsen 확산의 선택도보다 높은 선택도를 얻을 수 있었다[2]. 그러나, 좋은 선택도를 얻기 위한 실험조건이 압력차가 상당히 낮은 경우에만 국한되며 압력차가 증가하면서 선택도가 Knudsen확산의 선택도에 접근되므로, 비교적 높은 압력 하에서도 높은 선택도를 유지하는 분리막의 제조가 필수적이다.

수소 선택성이 뛰어난 팔라듐으로 솔젤법에 의해 제조된 이상의 지지막의 기공을 개선하는 새로운 방법으로서 palladium acetate 전구체를 아세톤에 녹인 상태로 막의 기공 속에 침투(soaking)시킨 후 온도를 서서히 올리며 증착(vapor deposition)시켜 지지체의 중간층 기공에 팔라듐이 집

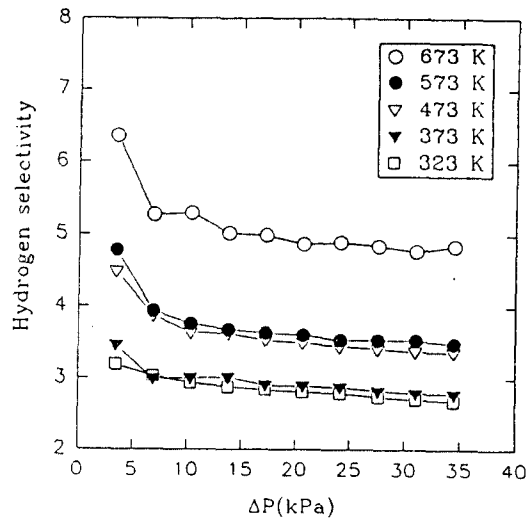
중적으로 증착된 팔라듐 함침 알루미나 지지막을 제조하였다. 이 방법은 기존의 유기금속 화학증착법(Metal Organic Chemical Vapor Deposition)에 의해 제조된 막의 경우[3] 증착된 막층이 지지체의 표면에 국한되고 상당히 작은 부분만을 균일하게 코팅할 수 있는 점 등을 개선한 것이며, 지지막의 기공구조의 변화 없이 팔라듐 층을 기공의 표면에 균일하게 증착시킴으로써 투과도의 감소 없이 수소 선택도를 향상시킬 수 있었다. 활성확산에 의한 수소 선택성은 실험온도가 증가함에 따라 향상된 값을 보였고, 압력차가 증가해도 향상된 선택도를 유지하였다.

References

1. B.E. Yoldas, Alumina sol preparation from alkoxides, *Ceramic Bull.*, 54 (1975) 289
2. S.-J. Lee, S.-M. Yang and S.B. Park, Synthesis of palladium impregnated alumina membrane for hydrogen separation, *J. Membrane Sci.*, 96 (1994) 223
3. S. Yan, H. Maeda, K. Kusakabe and S. Morooka, Thin palladium membrane formed in support pores by metal-organic chemical vapor deposition and application for hydrogen separation, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 33 (1994) 616



SEM microphotograph of palladium modified γ -alumina membrane and the distribution of palladium obtained by EDX (white peak line)



Hydrogen selectivity relative to nitrogen as a function of transmembrane pressure between 323K and 673K