

## 초음파 분무 열분해법에 의해 합성한 실리카 막의 기체 투과 특성

서봉국, 윤민영, 이규호, 이동욱  
한국화학연구원 분리막다기능소재연구센터

### Gas Permeation Characteristics of Silica Membrane Prepared by Ultrasonic Spray Pyrolysis

Bongkuk Sea, Min-Young Youn, Kew-Ho Lee and Dong-Wook Lee  
Membrane & separation research center,  
Korea Research Institute of Chemical Technology,  
Daejeon Korea 305-600

기체 또는 액체 분리용으로 다양한 종류의 막들이 연구 개발되어 왔으며, 그 중에서 서도 나노 미세공 구조를 가지는 세라믹 소재의 막은 고온 및 화학 약품에 대한 안정성이 우수하여, 고분자 막을 적용하기 어려운 고온, 고압의 부식성 산화 분위기에 사용할 수 있을 것으로 기대된다. 특히, 세라믹 막은 화학 공정에서 나오는 고온 혼합 기체의 분리 정제 및 막 반응기에 적용하여 에너지 및 반응 효율을 향상시킬 수 있을 것으로 기대되고 있다. 이러한 목적으로 연구 개발된 막으로는 alumina, silica, titania, zirconia 막 등이 있으며, 그 중에서도 고온 기체 분리용 막으로 silica 막이 많이 연구되고 있다.

세라믹 막이 높은 기체 투과 속도와 선택적 분리 계수를 가지기 위해서는, pinhole 또는 defect 없이 깨끗한 표면의 박막이 형성되어야 할뿐만 아니라, 세공의 크기도 정교하게 제어되어야 한다. 이러한 막의 합성법으로 sol-gel 공정에 의한 액상법과 기상화학 증착(CVD, chemical vapor deposition) 및 열분해(pyrolysis)에 의한 기상법이 일반적으로 많이 이용되어 왔다.

한편, 분무 열분해법은 합성원료 용액을 스프레이 또는 초음파에 의해 분무화 하여 열분해 반응 영역으로 도입함으로써 지지체에 막을 석출하는 방법이다. 이 방법은 성분의 불균등한 증발이 일어나지 않는 한, 미세구조의 균일한 제어가 가능하다. 초음파 분무 열분해법을 이용하여 실리카 미분체 합성이나 나노 콜로이드 졸로부터 티타니아 박막 및 유기 금속 전구체로부터 YSZ(yttria stabilized zirconia) 박막 합성 연구

사례는 보고되었으나, 고온 기체 분리용의 분리막 합성 및 적용 연구는 거의 없었다. 따라서, 본 연구에서는 sol-gel 공정보다 간단한 방법으로 우수한 선택 투과성을 가지는 분리막을 합성하기 위해 초음파 분무 열분해법을 이용하여 실리카 막을 합성하고자 하였다. Tetraethyl orthosilicate(TEOS)을 전구체로 하여 다공성 stainless steel 지지체(SUS)에 초음파 분무 열분해 실리카 막을 합성하고, 303~523 K에서 수소, 질소, 수증기 및 메탄올의 선택 투과 특성을 조사하였다. 또한, SUS 지지체의 중간층 개질 방법에 따라 열분해 실리카 막의 고온 기체 투과 특성을 평가하였다.

100 nm 크기의 silica 분체 및  $\gamma$ -alumina로 표면 개질한 다공성 금속 지지체에 감압 진공을 하면서 873 K에서 60분간 tetraethyl orthosilicate (TEOS)의 초음파 분무 열분해에 의해 표면에 defect 없이 균일한 양질의 silica막을 성공적으로 합성하였다. 이 열분해 silica막은 투과 온도 523 K에서 수소/질소 및 수증기/메탄올 분리 계수가 각각 17 및 16 정도에 달하는 우수한 선택 투과 성능을 나타냈다. 다공성 금속 지지체의 불균일한 기공에 silica 분체 및  $\gamma$ -alumina층을 soaking-rolling법에 의해 중간층으로 도입하고, 그 위에 열분해법에 의한 silica를 합성한 결과, Knudsen 확산에 의한 투과 영역의 세공이 완전히 제거되어 높은 수소 및 수증기 선택성을 가지는 복합 막이 형성되었다.

1. K.-H. Lee, B. Sea, M.-Y. Youn, Y.-G. Lee and D.-W. Lee, *Korean Membrane J.*, **6**, 10 (2004).
2. M.-Y. Youn, S.-J. Park, K.-H. Lee, B. Sea and D.-W. Lee, *Korean Membrane J.*, **15(2)**, 105 (2005).