일반강연 Ⅰ-8

제올라이트 - 세라믹 복합분리막의 제조 및 기체 투과특성

Synthesis and Gas Permeation Characteristics of Zeolite - Ceramic Composite Membranes

현상훈, 송재권, 김준학*

연세대학교 세라믹공학과

*요업기술원 정밀요업과

ZSM-5 계 제올라이트의 특성을 이용한 기체분리용 제올라이트 - 세라믹 복합분리막을 개발하기 위하여 최적 ZSM-5 계 제올라이트의 합성 조건, 복합막 제조 및 합성 복합막의 기체 투과/분리 특성에 대하여 연구하였다.

ZSM-5 와 silicalite 는 각각 실리카 졸에 질산 알루미늄, 수산화나트륨 및 TPABr 을 첨가한 혼합졸과 물유리에 물과 TPABr 을 첨가한 용액을 150 ~ 170 ℃ 온도범위의 오토클레이브내에서 수열처리함으로써 합성될 수 있었다. 합성 제올라이트의 결정구조는 사방정이었으나 500 ℃에서 하소하였을때에는 단사정으로 전이됨과 동시에 채널 속을 채우고 있던 TPABr 이 제거되면서 ZSM-5 계 제올라이트의 3 차원 채널 형태의 기공 구조가 생성되었다. 하소 제올라이트의 비표면적은 360 m^2/g 이었고 표면은 소수성을 띄었으며 결정크기는 하소전과 변화없이 ZSM-5 가 0.5 ~ 1.0 ㎛ 이고 실리카라이트는 8 ~ 10 ㎛ 임을 알 수 있었다. 특히 제올라이트 결정의 형상과 크기는 실리카 공급원과 반응용액 / 졸의 농도에 따라 매우 민감하게 변화하였다.

슬립 캐스팅법 또는 압출 성형법으로 제조한 튜브형 α-alumina 담체 (기공 크기 0.15 ~ 0.8 ㎛) 에 ZSM-5 혼합졸을 가압 코팅한 후 최적 ZSM-5 합성조건인 160 ℃ 이상의 온도에서 수열처리하여 담체의 기공내부와 표면에 기체 불투과성인 결정층을 형성시킨 다음 ZSM-5 제올라이트의 균일한 기공 형성 (pore opening) 을 위해 500 ℃ 에서 24 시간 동안 하소하여 최종 분리막을 제조하였다. ZSM-5 제올라이트 복합 분리막의 기체 불투과성과 균열 유무는 N_2 기체 투과율의 평균 압력에 대한 의존성으로 평가하였으며 N_2, CO_2 및 He 등에 대한 기체 투과 특성으로부터 막내에서의 기체투과 메카니즘을 규명하였다. 합성 ZSM-5 제올라이트 복합막의 CO_2/N_2 분리계수는 상온에서 1.6 정도이었다.