

저농도 SF₆ 기체혼합물로부터 SF₆의 회수

이 현 정^{*,**} · 이 현 경^{**} · 최 호 상^{***} · 이 상 협^{*,†}

*한국과학기술연구원, 물환경센터, 서울 성북구 하월곡동 39-1

**상명대학교 공업화학과, 서울 종로구 홍지동 7번지

***경일대학교 화학공학과, 경북 경산시 하양읍 부호리 33

(2011년 8월 25일 접수, 2011년 9월 23일 수정, 2011년 9월 23일 채택)

Recovery of SF₆ from Gas Mixtures with Low Concentration of SF₆

Hyunjung Lee^{*,**}, Hyunkyung Lee^{**}, Hosang Choi^{***}, and Sanghyup Lee^{*,†}

*Water Environment Center, Korea Institute of Science and Technology, Hawolgok-dong, Wolsong-gil 5, Seongbuk-gu, Seoul 136-791, Korea

**Department of Industrial Chemistry, Sangmyung University, Hongji-dong, Jongno-gu, Seoul 110-743, Korea

***Department of Chemical Engineering, Kyungil University, 33 Buhori, Hayang, Gyeongsan-si, Gyeongbuk 712-701, Korea

(Received August 25, 2011, Revised September 23, 2011, Accepted September 23, 2011)

요약: 저농도의 SF₆를 포함하고 있는 기체 혼합물(10% SF₆/70% N₂/19% O₂/1% CF₄)로부터 SF₆를 분리 및 회수하기 위한 PSF막과 PC막의 성능에 대하여 연구하였다. 회수된 기체 내의 SF₆의 농도와 회수율 그리고 혼합기체(N₂/SF₆, O₂/SF₆, CF₄/SF₆)의 선택도는 배출 유량과 온도의 함수로 측정하였다. PSF막과 PC막 모두 회수된 기체 내의 SF₆ 농도는 배출 유량이 증가하면서 감소하였으며 온도가 증가함에 따라 증가하였다. 동일한 실험조건에서는 PSF막에서 회수된 기체 내의 SF₆의 농도가 PC막에서보다 높게 나타났다. 최대회수율은 298.15 K과 배출유량 150cc/min에서 PSF막의 경우 95.9%이고 PC막의 경우 67.8%를 나타냈다. CF₄/SF₆를 제외한 N₂/SF₆와 O₂/SF₆의 실제 선택도는 PSF막이 PC막보다 더 높게 나타났다.

Abstract: This study describes the performance of PSF and PC membranes for separation and recovery of SF₆ from gas mixtures (10% SF₆/70% N₂/19% O₂/1% CF₄) containing low concentration of SF₆. The SF₆ concentration in retentate, recovery efficiency and selectivity of mixed gases were measured as a function of retentate flow rate and temperature. The concentration of SF₆ in the gas recovered from PSF and PC membrane respectively decreased with increase of retentate flow rate and increased with increase of temperature. The values of SF₆ concentration in retentate of PSF membrane were higher than those of PC membrane at constant experimental conditions. The maximum value of recovery efficiency of PSF and PC membranes are 95.9% and 67.8%, respectively, under 298.15 K and 150 cc/min of retentate flow rate. With the exception of CF₄/SF₆, the real selectivities of N₂/SF₆ and O₂/SF₆ at PSF membrane were higher than those of PC membrane.

Keywords: SF₆, gas mixture, membrane, separation, recovery

1. 서 론

중전기 산업에서 고압 차단기의 절연가스 및 반도체 제조 공정에서 에칭(etching) 가스로 많이 사용되고 있는 SF₆는 매우 높은 지구 온난화 지수(GWP; global warming potential)를 가지고 있다[1-11]. SF₆는 고압에

서 절연성과 아크(arc) 방지력이 뛰어나 가스절연개폐기(GIS; gas insulated switchgear), 가스누전차단기(GCB; gas circuit breakers), 가스절연송전선(GIL; gas insulated lines) 등의 중전기 산업에서 총 소비량 중 80%를 사용하고 있다. 그리고 나머지 20%는 SF₆의 비가연성, 비활성, 물리·화학적으로 안정한 특성을 이용한 플라즈마 에칭공정, 화학기상증착 등의 반도체 웨이퍼 및 LCD 패널 등 초정밀 제품 제조 공정에 사용하고 있다

†교신저자(e-mail: yisanghyup@kist.re.kr)

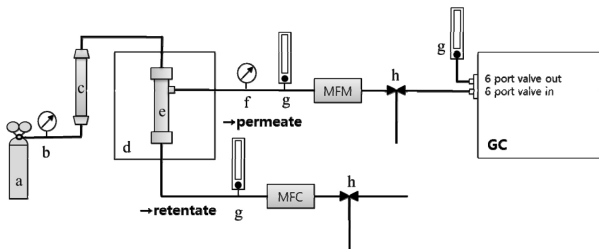


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus (a; SF₆/N₂/O₂/CF₄ gas mixture, b; back pressure regulator, c; moisture trap, d; heated oven, e; membrane module, f; pressure gauge, g; flow meter, h; three way valve).

[2-4,17,18]. 중전기 산업에서 배출되는 고농도의 SF₆뿐만 아니라 반도체 제조 공정에서 배출되는 저농도의 SF₆에는 N₂, O₂, CF₄, SO₂, H₂O, HF, SOF₂, SOF₄, SO₂F₂, CuF₂, WO₃, AlF₃ 등의 유독성의 분해 부산물이 포함되어 있다[6,12-15]. 이러한 분해 부산물들은 높은 반응성과 독성으로 인해 장치의 부식을 유발한다[16]. 그러므로, 대기권으로 방출되는 SF₆ 기체를 회수하여 재사용하거나 분리 또는 정제 등에 관한 연구가 요구되고 있다.

현재 SF₆의 처리 기술은 심냉분리법(cryogenic capture), 압력순환흡착법(pressure swing adsorption) 그리고 플라즈마 분해법(plasma decomposition)에 국한되어 있다[6,7,12,18-20]. 반면에, 막분리법(membrane separation)을 이용한 SF₆의 회수 및 재사용에 대한 연구는 초기 단계이다. 최근 일본의 O. Yamamoto와 그의 연구진들은 고분자막을 이용한 SF₆의 회수에 대한 연구를 발표하였다. 그리고 K. Shiojiri와 그의 연구진들은 다공성 마이크로글라스막을 이용하여 혼합기체로부터 HFC-134와 SF₆를 분리하였다[7,18,21-23]. 또한, 중전기 산업에서 발생하는 SF₆ 농도 90 vol% 이상의 고농도에 대하여 분리막법을 적용한 연구[25,26]는 진행되고 있으나 폐가스 내 SF₆ 농도가 0.1% 이하의 저농도로 존재하여 재사용이 불가능한 반도체 및 디스플레이 산업에서 발생하는 SF₆에 대한 연구는 거의 이루어지지 않고 있다.

그러므로, 본 연구에서는 고분자막을 이용하여 저농도의 SF₆를 포함하는 기체 혼합물(10% SF₆, 70% N₂, 19% O₂와 1% CF₄)로부터 SF₆의 회수 및 분리 특성을 알아보려고 하였다. 기 보고된 N₂, O₂, CF₄와 SF₆의 단일 기체 투과도와 선택도 연구에 의하면[24,25] 폴리설피론(PSF; polysulfone), 테트라-브로모 폴리카보네이트(PC; tetra-bromo polycarbonate) 중공사막이 가장 높은

투과도와 선택도를 나타내었다. 또한, 혼합기체에 대한 SF₆의 분리 및 회수 연구[25,26]로부터 압력변화에 따른 회수된 SF₆의 농도와 회수율의 경우 압력 0.3 MPa 일 때 가장 높다는 연구 결과를 얻었다. 따라서 높은 투과성능과 선택도를 갖는 PSF막과 PC막을 혼합기체 회수와 분리 실험을 위한 고분자막으로 선택하여 SF₆/N₂/O₂/CF₄ 혼합기체에서 SF₆를 효율적으로 분리할 수 있는 공정 개발을 위하여 0.3 MPa의 일정 압력에서 배출유량과 온도 변화에 따른 회수된 SF₆의 농도, 회수율 그리고 혼합기체의 실제 선택도를 알아보았다.

2. 실험재료 및 방법

2.1. 분리막 및 실험가스

실험에 사용한 막은 국내·외에서 기체 분리막으로 상용화된 (주)에어레인사의 폴리설피론(PSF; polysulfone) 중공사막과 Generon (IGS)사의 테트라-브로모 폴리카보네이트(PC; tetra-bromo polycarbonate) 중공사막을 사용하였다. 직경이 450 μm인 PSF와 직경이 108 μm인 PC 중공사막을 유효길이 16 cm, 유효면적 1,800 cm²로 모듈화하였다. SF₆/N₂/O₂/CF₄ 혼합기체는 폐 SF₆ 기체의 재사용 농도 기준과 불순물들이 명시되어 있는 국제 전기 표준회의 가이드라인을 참고하여[27] 10% SF₆, 70% N₂, 19% O₂와 1% CF₄ 가스들로 고압용 실린더에 저장되어 있는 것을 신양산소에서 구입하여 사용하였다.

2.2. 실험장치 및 실험방법

Fig. 1은 SF₆의 분리 및 회수 실험에 사용한 기체 분리 실험 장치의 모식도이다. 기체 분리 실험장치에서 모듈 앞 단에 설치된 수분제거용 트랩(moisture trap)은 공급가스 및 외부로부터의 수분 유입을 방지한다. 모듈을 오븐 안에 장착하여 막의 온도 조절 및 중공사막 모듈의 교체가 가능하도록 하였다. 미세압력 조절기를 사용하여 공급기체의 공급압력은 0.3 MPa로 일정하게 유지하였다. 배출 유량은 질량유량제어기(MFC; mass flow controller, MKP TSC-220, Korea)를 사용하여 30 cc/min에서 150 cc/min까지 변화를 주었고, 투과 유량은 질량유량측정기(MFM; mass flow meter, MKP TSM-120, Korea)를 사용하여 측정하였다. SF₆/N₂/O₂/CF₄ 혼합기체로부터 SF₆의 분리 및 회수에 미치는 온도의 영향을 평가하기 위해서 온도는 298.15 K과 318.15 K에

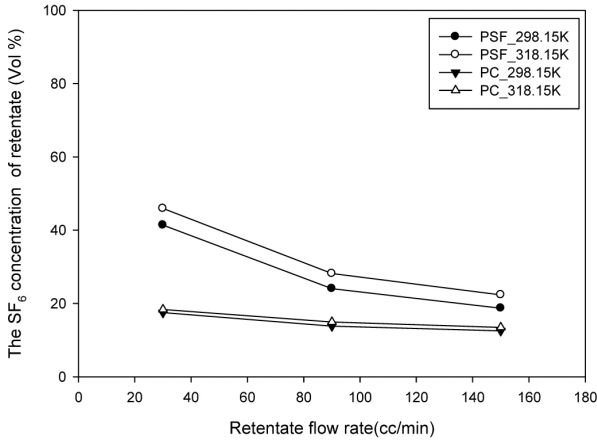


Fig. 2. The SF₆ concentration in retentate as a function of retentate flow rate.

서 측정하였다. 막을 투과하여 나온 투과 기체와 막 내부에 남아 모듈 외부로 배출되는 배출 기체 내의 SF₆의 농도는 기체 크로마토그래피(GC; gas chromatography, Agilent 7890 A, USA)를 이용하여 분석하였다.

2.3. 이론적 배경

2.3.1 회수율(recovery efficiency)

SF₆/N₂/O₂/CF₄ 기체혼합물로부터 SF₆의 분리 및 회수에 미치는 고분자막의 재질과 온도의 영향을 평가하기 위해서 회수율(recovery efficiency, R)을 이용하였다. 회수율은 식 (1)에 의해 산출하였다[5].

$$R = \frac{I_R X_R}{I_F X_F} \times 100 = \frac{I_R X_R}{I_P X_P + I_R X_R} \times 100 \quad (1)$$

여기에서 X_F , X_P 와 X_R 은 각각 공급부와 투과부, 배출부의 SF₆ 농도(vol%)이고, I_F , I_P 와 I_R 은 각각 공급부, 투과부, 배출부의 유량이다.

2.3.2. 이상선택도와 실제선택도(Ideal Selectivity & Real Selectivity)

고분자막에서 순수한 두 기체의 투과도의 비를 이상선택도(ideal selectivity, α^*)라고 정의하며, 단일 기체를 통과시켜 측정한 각 기체의 투과도 값을 이용하여 다음과 같이 표현된다.

$$\alpha^* = \frac{P_i}{P_j} \quad (2)$$

여기에서 P_i 와 P_j 는 각각 단일기체 i 와 j 의 투과도를 나타낸다.

실제선택도(real selectivity, α_{ij})는 혼합기체에서 기체 j 에 대한 기체 i 의 분리 특성을 나타내는 매개변수로 정의되며, 다음과 같이 표현된다.

$$\alpha_{ij} = \frac{[y_i/y_j]}{[x_i/x_j]} \quad (3)$$

여기에서 x 와 y 는 각각 공급부와 투과부에서의 각 성분에 대한 몰분율을 나타낸다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 회수된 SF₆의 농도(vol%)에 대한 배출 유량과 온도의 효과

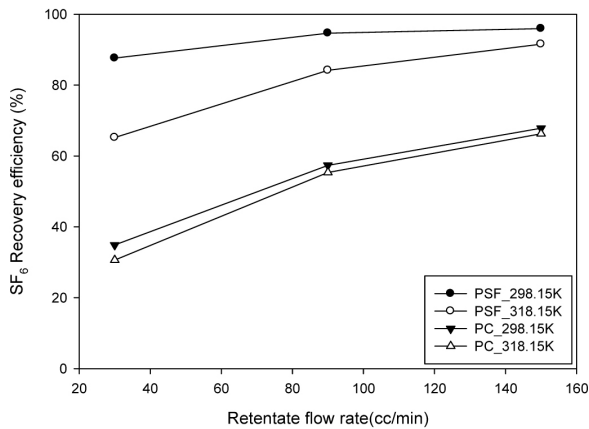
PSF, PC 중공사막을 사용하여 0.3 MPa의 일정 압력에서 배출유량 변화에 따른 회수된 SF₆의 농도(vol%)를 Fig. 2에 나타내었다. PSF, PC막 모두에서 배출유량이 증가할수록 회수된 SF₆의 농도는 감소하였으며, 반면에 온도가 증가하면 회수된 SF₆의 농도는 증가하는 경향을 나타내었다. 배출 유량이 증가함에 따라 공급되는 기체의 막내 체류시간이 감소하기 때문에 SF₆의 분리효율이 낮아져 회수된 SF₆의 농도(vol%)는 감소하는 것으로 생각된다. 반면에, 온도가 증가함에 따라 회수된 SF₆의 농도(vol%)는 증가하였는데 이는 N₂와 O₂ 기체의 경우 온도가 증가할수록 확산속도가 증가하여 투과도가 증가하게 되지만, 온도의 영향을 거의 받지 않는 SF₆ 기체의 투과도는 일정하여 온도가 증가할수록 투과되는 SF₆의 농도는 상대적으로 감소하게 되어서 회수된 기체 내의 SF₆의 농도는 증가하게 된다[24-30]. 회수된 SF₆의 최대 농도는 PSF막의 경우 318.15 K, 배출유량 30 cc/min일 때 45.9 vol%였으며, PC막은 318.15 K, 배출유량 30 cc/min에서 18.4 vol%로 가장 높았다. 따라서 저농도 SF₆를 포함하는 혼합기체의 경우에 배출유량과 온도의 변화에 따른 회수된 SF₆의 농도 실험 결과, 배출 유량이 작을수록 그리고 온도가 높을수록 회수된 기체 내의 SF₆의 농도는 증가함을 알 수 있다.

3.2. 회수율(%)에 대한 배출 유량과 온도의 효과

Fig. 3은 배출 유량에 따른 PSF, PC막에 대한 SF₆의 회수율을 나타낸 결과이다. 배출유량이 증가할수록 공

Table 1. Ideal Selectivity and Real Selectivity of PSF and PC Membranes on Retentate Flow Rate : 150 cc/min

Membrane	N ₂ /SF ₆		O ₂ /SF ₆		CF ₄ /SF ₆		
	298.15 K	318.15 K	298.15 K	318.15 K	298.15 K	318.15 K	
real separation factor ($\alpha_{i/j}$)	PC	1.3	1.5	2.4	2.8	1.0	1.0
	PSF	13	19	25	35	1.0	1.0
ideal separation factor (α^*) ^[16,17]	PC	2.4	3.3	8.5	13	1.0	1.0
	PSF	24	45	153	209	1.0	1.0

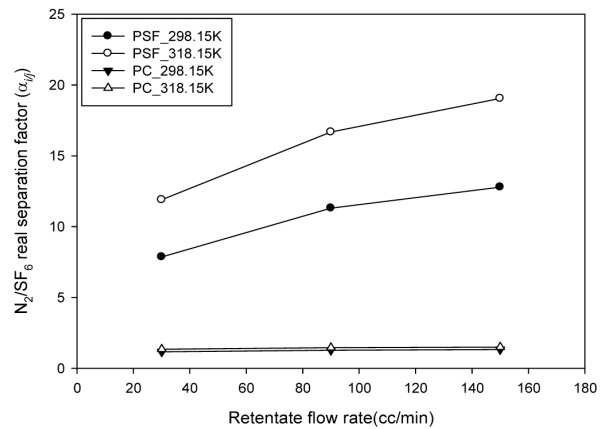
**Fig. 3.** SF₆ recovery efficiency as a function of retentate flow rate.

급 유량 대비 투과 유량이 작아져서 SF₆의 회수율은 증가하였다. 반면에, 온도가 증가함에 따라 SF₆의 회수율은 감소하였다. SF₆의 최대 회수율은 298.15 K, 배출유량 150 cc/min일 때 PSF막은 95.9%, PC막은 67.8%로 나타났다. 따라서 저농도 SF₆를 포함하는 혼합기체의 경우에 배출유량과 온도의 변화에 따른 SF₆의 회수율 실험 결과, 배출 유량이 높을수록 그리고 온도가 낮을수록 SF₆의 회수율은 증가함을 알 수 있다.

Fig. 2와 3의 결과, 회수된 SF₆의 농도(vol%)와 회수율은 PSF막이 PC막보다 높게 나타났다. 이와 같은 결과로부터 저농도 SF₆를 포함하는 혼합가스로부터 SF₆를 회수하기 위한 막으로 PSF막의 성능이 더 우수함을 알 수 있다.

3.3. N₂/SF₆, O₂/SF₆, CF₄/SF₆ 혼합기체의 실제선택도

Figs. 4~6은 각각 10% SF₆, 70% N₂, 19% O₂와 1% CF₄ 혼합기체로부터 식 (3)에 의하여 구하여진 N₂/SF₆, O₂/SF₆, CF₄/SF₆의 실제 선택도를 나타내었다. N₂/SF₆, O₂/SF₆의 실제 선택도는 PSF막에서는 배출유량과 온도

**Fig. 4.** N₂/SF₆ real selectivity as a function of retentate flow rate.

가 증가할수록 증가하는 경향을 보이고 있다. 그리고 PC막의 경우에는 배출유량과 온도의 영향을 거의 받지 않는 것으로 나타났다. Table 1과 Figs. 4~5의 결과, 298.15 K일 때, N₂/SF₆의 이상 선택도는 PC막은 2.4, PSF막은 24에서 실제 선택도는 각각 1.3과 13으로 감소하였다. 또한, O₂/SF₆의 이상 선택도는 PC막은 8.5, PSF막은 153에서 실제 선택도는 각각 2.4와 25로 감소하였다. 이와 같은 현상은 기체가 막을 통과할 때 다른 기체의 존재로 인하여 막 내의 미세공을 감소시키고 확산 경로를 방해함으로써 투과도가 감소하기 때문에 혼합기체의 실제 선택도와 순수한 단일 기체의 이상 선택도에는 차이가 나는 것으로 보고되고 있는데[30,31], PSF와 PC막에서도 SF₆가 존재하여 N₂와 O₂의 투과도 감소에 영향을 미친 것으로 생각된다. Table 1과 Fig. 6에서 CF₄/SF₆의 실제 선택도는 이상 선택도에서와 동일하게 1.0을 나타내어 PSF와 PC막에서 SF₆와 CF₄는 상호간의 투과에 영향을 미치지 않는 것으로 생각된다. 이와 같은 결과로 배출유량과 온도에 따른 SF₆/N₂/O₂/CF₄ 혼합가스의 실제선택도 실험결과 PSF막의 분리능력이 PC막보다 높은 것을 알 수 있었다.

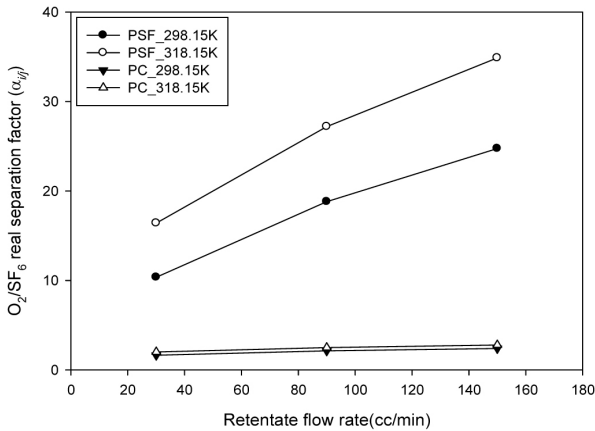


Fig. 5. O₂/SF₆ real selectivity as a function of retentate flow rate.

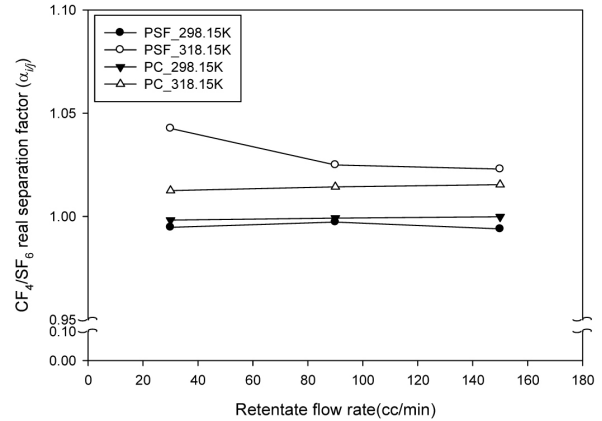


Fig. 6. CF₄/SF₆ real selectivity as a function of retentate flow rate.

4. 결 론

PSF, PC 중공사막을 이용하여 배출 유량과 온도의 함수로써 저농도 SF₆ 혼합기체로부터 SF₆의 회수에 대한 실험 결과로부터 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1) 회수된 기체 내의 SF₆의 최대 농도(vol%)는 318.15 K, 배출유량 30 cc/min일 때 PSF 막은 45.9 vol%, PC 막은 18.4 vol%로 나타났다.

2) SF₆의 최대 회수율은 298.15 K, 배출유량 150 cc/min 일 때 PSF막은 95.9%, PC막은 67.8%을 얻었다.

3) 혼합기체의 N₂/SF₆, O₂/SF₆의 실제 선택도는 PC막보다 PSF막에서 더 높게 나타났으며, PSF막의 경우에 배출유량과 온도가 증가할수록 선택도는 증가하였으나, PC막은 배출유량과 온도의 영향이 미비하였다.

4) 저농도 SF₆ 혼합기체로부터 SF₆의 분리 및 회수를 위한 PSF막과 PC막의 성능을 비교한 결과 회수된 SF₆ 농도, 회수율 그리고 실제 선택도에서 PSF막이 PC막보다 우수한 것으로 나타났다.

감 사

본 연구는 2011년도 자원순환 및 산업에너지기술개발보급사업 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다 (No. 2009501020001A).

참 고 문 헌

1. L. G. Christophor, J. K. Olthofand, and R. J. Van Brunt, "Sulfur hexafluoride and the electric power industry", *IEEE Electrical Insulation Magazine*, **13(5)**, 20 (1997).
2. M. Maiss and C. A. M. Brenninkmeijer, "Atmospheric SF₆: Trends, Sources, and Prospects", *Environ. Sci. Technol.*, **32**, 3077 (1998).
3. M. Maiss, L. P. Steele, R. J. Francey, P. J. Fraser, R. L. Langenfelds, N. B. A. Trivett, and I. Levin, "Sulfur hexafluoride-A powerful new atmospheric tracer", *Atmospheric Environment*, **30(10/11)**, 1621 (1996).
4. M. K. W. Ko, N. D. Sze, W.-C. Wang, G. Shia, A. Goldman, F. J. Murcray, D. G. Murcray, and C. P. Rinsland, "Atmospheric sulfur hexafluoride: sources, sinks and greenhouse warming", *Journal of Geophysical Research*, **98(D6)**, 10,499 (1993).
5. Huang Li, GU Dinghong, Yang Longyu, Xia Lanyan, Zhang Renxi, and Hou Huiqi, "Photoreductive degradation of sulfur hexafluoride in the presence of styrene", *J. Environ. Sci.*, **20**, 183 (2008).
6. W.-T. Tsai, "The decomposition products of sulfur hexafluoride (SF₆): Reviews of environmental and health risk analysis", *J. Fluor. Chem.*, **128(11)**, 1345 (2007).

7. O. Yamamoto, T. Takkuma, and M. Kinouchi, "Recovery of SF₆ from N₂/SF₆ gas mixtures by using a polymer membrane", *IEEE Electrical Insulation Magazine*, **18(3)**, 32 (2002).
8. S. A. Montzka and P. J. Fraser, "Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2002, Controlled Substances and Other Source Gases", *World Meteorological Organization (WMO)*, 1.22-1.61 (2003).
9. U. S. Climate Change Technology, "4.3.3 Semiconductors and Magnesium: Recovery and Recycle", *U. S. Climate Change Technology Program - Technology Options for the Near and Long Term*, 4.3-4.6 (2005).
10. S. P. Cashion, N. J. Ricketts, and P. C. Hayes, "Characterisation of protective surface films formed on molten magnesium protected by air/SF₆ atmospheres", *J. Light Metals*, **2(1)**, 37 (2002).
11. S. H. Lee, N.-K. Park, S. H. Yoon, W. C. Chang, and T. J. Lee, "Catalytic Decomposition of SF₆ by Hydrolysis and Oxidation over γ -Al₂O₃", *Clean Technol.*, **15(4)**, 273. (2009).
12. Y.-F. Wang, M. Shih, C.-H. Tsai, and P.-J. Tsai, "Total toxicity equivalents emissions of SF₆, CHF₃, and CCl₂F₂ decomposed in a RF plasma environment", *Chemosphere*, **62(10)**, 1681 (2006).
13. D. R. James, I. Sauers, G. D. Griffin, R. J. Van Brunt, J. K. Olthoff, K. L. Stricklett, F. Y. Chu, J. R. Robins, and H. D. Morrison, "Investigation of S₂F₁₀ Production and Mitigation in Compressed SF₆-Insulated Power Systems", *IEEE Electrical Insulation Magazine*, **9(3)**, 29 (1993).
14. G. D. Griffin, I. Sauers, L. G. Christophorou, C. E. Easterly, and P. J. Walsh, "On the toxicity of sparked SF₆", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, **E1-18(5)**, 551 (1983).
15. International Standard, "Guidelines for the checking and treatment of sulfur hexafluoride (SF₆) taken from electrical equipment and specification for its re-use", *International Electrotechnical Commission*, IEC 60480 Second edition (2004).
16. S. Solomon, D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K. B. Averyt, M. Tignor, and H. L. Miller, "Climate Change 2007: The Physical Science Basis", *IPCC Fourth Assessment Report (AR4)*, <http://www.ipcc.ch/pdf/assessment-report/ar4/wg1/ar4-wg1-chapter2.pdf> (2007).
17. Y. Jo, "Development of measurement method & inventory methodology for SF₆ in electrical equipment", *Ministry of Knowledge Economy*, 18. (2008).
18. S. Lee, "Development of SF₆ Gas Recycling System for Global Warming Reduction", *Ministry of Knowledge Economy*, (2010).
19. R. Kurte, H. M. Heise, and D. Klockow, "Quantitative infrared spectroscopic analysis of SF₆ decomposition products obtained by electrical partial discharges and sparks using PLS-calibrations", *J. Mole. Struc.*, 565-566, 505-513 (2001).
20. F. Pepi, A. Ricci, M. D. Stefano, and M. Rosi, "Sulfer hexafluoride corona discharge decomposition: gas-phase ion chemistry of SOF _{χ} ⁺ (χ =1-3) ions", *Chemical Physics Letters*, **381(1-2)**, 168 (2003).
21. D.-H. Kim, Y.-M. An, H.-D. Jo, J.-S. Park, and H.-K. Lee, "Studies on the N₂/SF₆ Permeation Behaviors Using the Polyethersulfone Hollow Fiber Membranes", *Membrane Journal*, **19(3)**, 244 (2009).
22. K. Shiojiri, Y. Yanagisawa, A. Yamasaki, and F. Kiyono, "Separation of F-gases (HFC-134a and SF₆) from gaseous mixtures with nitrogen by surface diffusion through a porous Vycor glass membrane", *J. Membr. Sci.*, **282**, 442 (2006).
23. F. Jareman and J. Hedlund, "Permeation of H₂, N₂, He and SF₆ in real MFI membranes", *Microporous and Mesoporous Materials*, **83**, 326 (2005).
24. H. Lee, M. Lee, H. Lee, and S. Lee, "Permeation and Permselectivity variation of O₂, CF₄ and SF₆ through Polymeric Hollow Fiber Membranes", *Membrane Journal*, **20(3)**, 249 (2010).
25. H. Lee, M. Lee, H. Lee, and S. Lee, "Separation and Recovery of SF₆ Gas from N₂/SF₆ Gas Mixtures by using a Polymer Hollow Fiber Membranes", *Korean Soc. Environ. Eng.*, **33(1)**, 47

- (2011).
26. H. Lee, M. Lee, H. Lee, and S. Lee, "Recovery of SF₆ gas from Gaseous Mixture (SF₆/N₂/O₂/CF₄) through Polymeric Membranes", *Membrane Journal*, **21(1)**, 22 (2011).
 27. International Standard, "Specification of technical grade sulfur hexafluoride(SF₆) for use in electrical equipment", *International Electrotechnical Commission*, IEC 60376 Second edition (2005).
 28. J. H. Kim, J. W. Rhim, and S. B. Lee, "Research trend of membrane technology for separation of carbon dioxide from flue gas", *Membrane Journal*, **12(3)**, 121 (2002).
 29. S. H. Han, H. B. Park, and Y. M. Lee, "Recent technology trends of polymeric gas separation membranes", *Polym. Sci. and Technol.*, **19(4)**, 284 (2008).
 30. J.-S. Cho, J.-S. Kim, and K.-R. Lee, "Sorption and permeation characteristics of oxygen and nitrogen for polysulfone hollow-fiber membrane", *Membrane Journal*, **9(1)**, 25 (1999).
 31. R. T. Chern, W. J. Koros, E. S. Sanders and R. Yui, "'Second component' effects in sorption and permeation of gases in glassy polymers", *J. Membr. Sci.*, **15(2)**, 157 (1983).