

# ADN기반 단일액상추진제 분해용 촉매 제조 및 특성 연구

전종기\*<sup>†</sup> · 허수정\* · 조영민\*\* · 김태규\*\*\*

## A Study of Catalysts for Decomposition of ADN-Based Liquid Monopropellant

Jong-Ki Jeon\*<sup>†</sup> · Sujeong Heo\* · Young Min Jo\*\* · Taegy Kim\*\*\*

### ABSTRACT

In this study, the decomposition performance of ammonia dinitramide (ADN) based liquid monopropellant was evaluated by using metal supported alumina bead catalyst. Alumina bead was calcined at 1200 °C, and Pt and Cu were impregnated on alumina bead by excess water impregnation using a rotary evaporator. The decomposition temperature ( $T_{dec}$ ) of ADN-based liquid monopropellant was measured in a home-made batch reactor. The decomposition temperature of Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst was lower than that of Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst, and  $T_{dec}$  was about 130 °C.

### 초 록

본 연구에서는 금속을 담지한 alumina bead 촉매를 이용하여 ammonium dinitramide (ADN)기반 단일액상추진제 분해 성능 분석을 수행하였다. Alumina bead를 1200 °C에서 소성한 후, 회전 증발기를 이용하여 과량 용액 함침법 (Excess water impregnation)으로 alumina bead에 Pt 및 Cu 를 담지하였다. 자체 제작한 batch 반응기에서 ADN기반 단일액상추진제 분해 온도( $T_{dec}$ )를 측정하였다. Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매가 Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매에 비해 분해 온도가 더 낮게 나타났으며,  $T_{dec}$  는 약 130 °C이었다.

Key Words: ADN-Based Liquid Monopropellant(ADN 기반 단일액상추진제), Catalytic Decomposition(촉매분해), Alumina bead, Pt/Alumina bead, Cu/Alumina bead

### 1. 서 론

추진제로는 하이드라진이 가장 일반적으로 사용되어왔지만, 하이드라진의 독성으로 인해 대체

물질에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다[1]. 최근에 추진제로서 각광받고 있는 녹색 화합물 중 하나는 ammonium dinitramide (ADN, NH<sub>4</sub>N(NO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>)이다. 이는 고에너지 이온성화합물이며 할로젠이 함유된 분해 생성물을 발생시키지 않는다[2]. 또한 ADN은 물에 용해되었을 때 이온간 강한 상호작용으로 인하여 격렬한 반응을 나타낸다[3]. 따라서 ADN은 탄약, 기폭 장치,

\* 공주대학교 화학공학과

\*\* 경희대학교 환경과학과

\*\*\* 조선대학교 항공우주공학과

† 교신저자, E-mail: jkjeon@kongju.ac.kr

폭발물 그리고 로켓 추진제 등 다양한 분야에서 이용되고 있다[4].

현재 표준화된 ADN 기반 단일액상추진제는 ADN 65%, water 10%, methanol 20%, 암모니아 5%로 구성된 LMP-103S 가 있다. 용매로 물이 사용된 ADN 기반 단일액상추진제는 수분 함량이 높아 점화가 어렵다는 문제점이 존재한다. 따라서 일반적인 점화방식이 아닌 촉매를 이용한 촉매분해가 필수적이다. ADN기반 단일액상추진제와 관련된 연구로 반응 에너지 및 분해 경로에 관한 연구와 열분해 반응에 대한 연구가 집중적으로 진행되어 왔다[3]. 그리고 최근 스웨덴 및 일본 등에서 ADN기반 단일액상추진제 분해용 촉매에 대한 연구를 진행하고 있다[5-7]. ADN기반 단일액상추진제 분해용 촉매는 촉매 표면상의 산화환원 특성과 촉매의 구조가 분해 활성에 영향을 미치므로 매우 중요하다. 따라서 안정적인 형태, 넓은 비표면적 및 산소 활성반응의 극대화를 위한 연구가 필요하다.

본 연구에서는 과량 용액 함침법을 사용해서 alumina bead에 Pt 및 Cu를 담지한 후, 촉매의 물리화학적 특성 분석 및 ADN기반 단일액상추진제 분해 활성에 대해 고찰하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 촉매제조

지지체로는 1200 °C에서 소성한 1mm 크기의 alumina bead를 사용하였고, Pt 및 Cu를 각각 담지 하였다. Alumina bead에 Pt를 담지하기 위해  $H_2PtCl_6$  powder를 사용하였고, Pt의 함유량을 1wt%, 3wt%, 5wt%, 10wt%으로 변화시키면서 담지 하였다. Alumina bead에 Cu를 담지하기 위해 전구물질로  $Cu(NO_3)_2 \cdot 3H_2O$ 를 사용하여 Cu의 함유량을 3wt%, 5wt%, 10wt%, 15wt%로 변화시키면서 각각 담지 하였다. 과량 용액 함침법으로 회전증발기를 이용하여 금속을 담지한 후, 500 °C에서 4시간 소성하여 촉매를 제조하였다.

### 2.2 촉매 특성 분석

촉매의 구조적 성질을 분석하기 위해 BEL Japan, INC. 의 BELSORP II 장치를 이용하였다. 촉매의 결정구조와 구성 물질 분석을 위해 X-ray diffraction (XRD) 분석을 수행하였다.



Fig. 1 (a)Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bead (b)Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bead.

### 2.3 촉매 분해 활성 평가

촉매의 ADN기반 단일액상추진제 분해 활성 평가를 위해 자체 제작한 constant volume reactor에서 분해 개시온도와 압력 변화량을 측정하였다(Fig 2). 촉매를 반응기에 로딩한 후 ADN기반 단일액상추진제를 첨가한 후 온도를 일정 승온속도로 상승시켰다. 촉매 분해 후 촉매를 회수하여 특성 분석을 하였고, 온도 및 압력 slope를 이용하여 분해 활성을 평가하였다.

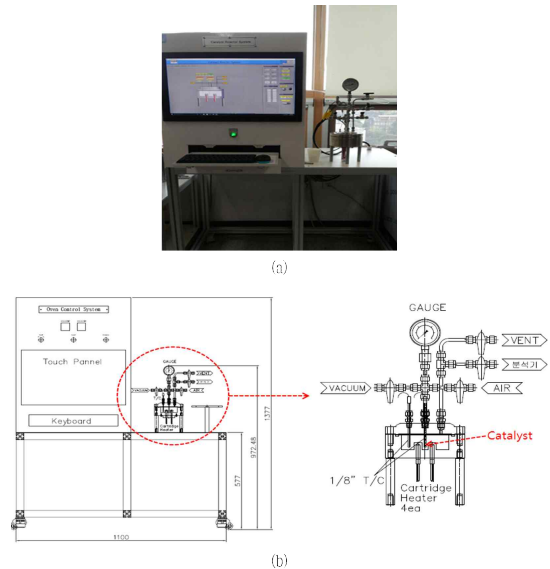


Fig. 2 ADN-based liquid monopropellant decomposition reactor

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 촉매 분해 활성 평가

자체 제작한 batch 반응기에서 수행한 ADN기반 단일액상추진제의 열분해 및 촉매분해 결과를 Table 1dp 정리하였다. 촉매를 사용하지 않은 열분해에서는  $T_{dec}$  가 167.6 °C였으며, Pt/ $Al_2O_3$  촉매를 사용한 경우에는 144.6 - 151.9 °C 범위에서 분해가 진행되었다. Cu/ $Al_2O_3$  촉매를 사용한 경우에는  $T_{dec}$  가 129.9 - 138.6 °C로 나타나서 Pt/ $Al_2O_3$  촉매에 비해 우수한 분해활성을 보였다.

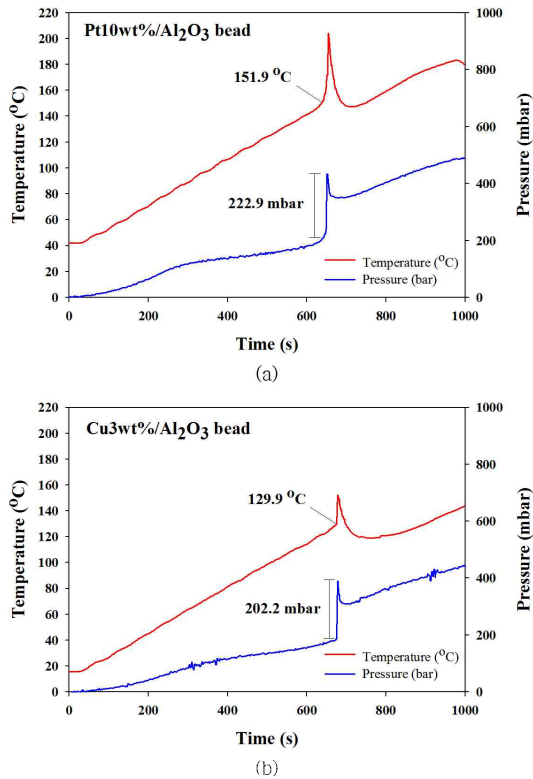


Fig. 3 Catalytic decomposition of ADN based liquid monopropellant in a batch reactor over (a)Pt10wt%/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bead (b)Cu3wt%/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bead.

Table 1. Decomposition of ADN-based liquid monopropellant.

Catalyst	$T_{dec}$ (°C)	$\Delta P$ (mbar)
Without catalyst	167.6	-
Pt1wt%/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bead	147.1	-
Pt3wt%/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bead	154.7	403.4
Pt5wt%/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bead	144.6	-
Pt10wt%/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bead	151.9	222.9
Cu3wt%/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bead	129.9	202.2
Cu5wt%/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bead	131.7	249.2
Cu10wt%/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bead	135.6	229.9
Cu15wt%/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bead	138.6	327.7

### 4. 결론

Alumina bead에 과량 용액 함침법으로 Pt 또는 Cu를 담지한 촉매를 이용하여 ADN기반 단일액상추진제 분해 연구를 수행하였다. Cu/ $Al_2O_3$  촉매가 Pt/ $Al_2O_3$  촉매에 비해 분해 온도가 더 낮게 나타났으며, 약 130 °C 부근의 온도에서  $T_{dec}$  가 형성되었다.

### 참고문헌

1. Wingborg, N., Larsson, A., Elfsberg, M. and Appelgren, P., "Characterization and Ignition of ADN-Based Liquid Monopropellants", 41th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit, Rucson, Arizona, U.S.A., AIAA 2005-4468, Jul. 2005.
2. Amrousse, R., Fujisato, K., Habu, H., Rachar, A., Follet-Houttemance, C. and Hori, K., "Catalytic decomposition of ammonium dinitramide(ADN) as high energetic material over CuO-based Catalysts", *Catal. Sci. Technol.*, Vol. 3, No. ,

- pp. 2614-2619, 2013.
3. Yang, R., Thakre, P. and Yang, V., "Thermal Decomposition and Combustion of Ammonium Dinitramide (Review)", *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, Vol. 41, No. 6, pp. 657-679, 2005.
  4. Kleimark, J., Delanoë, R., Demairé, A. and Brinck, T., "Ionization of ammonium dinitramide: decomposition pathways and ionization products", *Theoretical Chemistry Accounts*, 132:1412, 2013.
  5. Farhat, K., Batonneau, Y. and Kappenstein, C., "Thermal and Catalytic Decomposition of An, ADN and HNF-Based Ionic Monopropellants", *44<sup>th</sup> AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit*, Hartford, C.T., U.S.A., AIAA 2008-4938, Jul. 2008.
  6. Amrousse, R., Hori, K., Fetimi, W. and Farhat, K., "HAN and ADN as liquid ionic monopropellants: Thermal and catalytic decomposition processes", *Appl. Catal. B: Environ.*, Vol. 127, pp. 121-128, 2012.
  7. Gronland, T.A., Westerberg, B., Bergman, G., Anflo, K., Brandt, J., Lyckfeldt, O., Agrell, J., Ersson, A., Jaras, S., Boutonnet, M., Wingborg, N., "Reactor for decomposition of ammonium dinitramid-based liquid monopropellants and process for the decomposition", US patent 7,137,244, 2006.