

Titanium Silicalite-1 촉매 특성 및 2-butanol의 산화반응 Oxidation of 2-butanol and Catalytic Characteristics of Titanium Silicalite-1

송현정, 김복희, 좌용호*, 김광진**

전북대학교 재료공학전공, *한양대학교 화학공학전공, **요업기술원 차세대 사업단
(shj-22@hanmail.net)

1. 서론

TS-1의 격자 내에 존재하는 Ti^{+4} site는 유기물질의 산화반응 활성점으로 작용하는 것으로 알려져 있다. TS-1은 H_2O_2 수용액을 이용한 유기물의 산화반응에 특히 우수한 촉매적 활성을 가지며 H_2O_2 의 분해반응에 매우 낮은 활성을 보인다. TS-1의 활용 예로는 불포화 탄화수소의 에폭시화 반응, 벤젠, 페놀, 알칸 등의 수화반응 등이 있다.

반면에 TS-1 제올라이트를 합성할 때에 부수적으로 생성되는 anatase형 TiO_2 는 광촉매 특성을 가지고 있어서 H_2O_2 의 분해반응을 촉진시킨다. 이는 TS-1의 유기물 산화반응을 촉진하는 촉매 특성을 저하시키므로, TS-1 촉매 합성과정에서 TiO_2 는 생성하지 않고 최대한 많은 양의 Ti^{+4} 를 함유할 수 있도록 조절해야 할 필요가 있다. 따라서 본 연구에서는 다양한 Ti 함량을 갖는 TS-1을 합성하고, Ti 함량에 따른 TS-1 분말의 특성과 촉매 특성을 조사하였다.

2. 실험방법

TS-1 제올라이트 조성은 $[TiO_2/(SiO_2 + TiO_2)] = 0.01 \sim 0.2$ 로 하였으며 SiO_2 의 농도인 4.5mol을 기준으로 하여 유기유도체의 농도를 $TPAOH/SiO_2 = 0.34$ 로, 물의 농도는 $H_2O/SiO_2 = 16$ 으로 하였다. 반응온도는 110°C로 고정하고, 반응시간은 24~72hr로 하여 수열합성법으로 TS-1 분말을 합성하였다.

합성된 TS-1 분말의 특성은 XRD, FE-SEM, Surface Area Analyzer(BET), FT-IR, Raman Spectroscope를 사용하여 조사하였다. 2-butanol의 산화반응 실험을 하기위해, 환류 냉각장치가 달린 pyrex 4구 반응기에 2-butanol과 H_2O_2 를 넣고 40°C로 가열 및 교반한 후, 다양한 Ti 함량의 TS-1, silicalite-1, TiO_2 (아나타제) 촉매를 첨가하였다. 이 혼합용액을 70°C에서 1시간 30분 동안 교반한 후, 촉매와 용액을 분리하였으며 분리한 용액을 Chromatography(Shimadzu, GC-17A)로 분석하였다.

3. 결론

- 1) 수열 합성하여 제조된 TS-1 분말은 Ti의 함량에 관계없이 입경이 약 300~400nm이고, 비표면적은 620~630m²/g이며 MFI 구조를 갖는 결정이었다.
- 2) Ti 함량이 20mol%로 가장 많은 TS-1은 XRD 및 FT-IR분석에서 단독의 TiO_2 존재를 확인할 수 없었지만 Raman spectra분석에서는 TiO_2 를 확인하였다.
- 3) H_2O_2 를 이용한 2-butanol의 산화 반응시 TS-1 분말의 우수한 촉매 활성도를 확인할 수 있었고, TiO_2 가 존재하는 TS-1은 2-butanol에서 2-butanone의 전환율을 급격하게 감소시켰다.