

OF1) 스코리아를 이용한 Na-A와 Na-X형 제올라이트 합성 및 결정화 특성

이창한¹⁾·안현진¹⁾·감상규¹⁾·박종원²⁾·이민규³⁾

부산가톨릭대학교 환경행정학과, ¹⁾제주대학교 환경공학과, ²⁾엠테크(주), ³⁾부경대학교 화학공학과

1. 서론

제주도 지역에 널리 산재해 있는 스코리아(Scoria)는 화산암, 화산모래, 화산회 등이 혼합되어 있는 가볍고, 쉽게 파괴되지 않을 정도의 강도를 지니고 화산성토이다. 스코리아는 다공성, 저밀도 및 이온교환능력과 같은 물리화학적 특성 때문에 경량골재, 흡착제, 화장품 등 다양한 기능성 원료로 활용되고 있다(Gündüz, 2008; Alemayehu and Lennartz, 2009). 석탄계 비산재, 카올린 및 화산석 등에 알카리를 처리하여 제올라이트의 합성 및 기능성을 높이는 연구가 여러 연구자들에 의해 다양하게 진행되어 왔다(Novembre et al., 2009; Tanaka and Fujii, 2009; Carlos et al., 2009). Novembre et al.(2009)은 이탈리아 Crotone Basin 화산석으로부터 Na-X 제올라이트를 합성시 반응조건에 따라 합성되는 제올라이트의 결정화 특성 및 구조에 대해 연구하였다. Tanaka and Fujii(2009)은 비산재와 NaOH 수용액을 혼합하여 수열합성을 통해 SiO₂/Al₂O₃ 비를 1로 조절하여 실험하였다. 본 연구에서는 선형연구(Lee and Park, 2011)의 합성조건을 이용하여 스코리아로부터 용융/수열합성법(fusion/hydrothermal method)을 이용하여 Na-A와 Na-X 제올라이트를 제조하기 위한 합성조건을 도출하였다. 합성된 제올라이트는 SEM 및 XRD, XRF를 이용하여 제올라이트의 구조 및 결정화도, 성분의 변화를 특정하였다.

2. 재료 및 방법

실험에서 사용한 시약은 제올라이트(zeolite A, Wako, GR, zeolite X, Cosmo Chem., CP), 수산화나트륨(Sodium hydroxide, Daejung, EP), 알루미늄나트륨(NaAlO₂, Wako, EP)을 사용하였으며, 합성시 초순수(Milli-Q Millipore 18.2 Mcm-1 conductivity)를 첨가하였다. SiO₂/Al₂O₃ 몰비를 2.5 ~ 4.0으로 하고, NaOH/Scoria 비를 0.6-2.4로 변화시키면서 합성하였다. 제올라이트 합성은 교반 및 온도가 조절되는 200 mL 부피의 스텐레스 재질의 반응기를 사용하였다. NaOH/Scoria 비를 일정한 비율로 혼합한 후 550°C에서 1시간동안 용융시키고, 소성된 시료에 NaAlO₂를 일정량 첨가한 후 수용액에서 교반하면서 숙성(30°C, 5시간) 및 결정화(90°C, 5 ~ 24시간) 과정을 거쳐 제올라이트를 제조하였으며, 탈이온수로 수차례 세척하고 105°C에서 2시간 건조한 후 분석하였다. 제올라이트의 화학적 조성은 XRF(Shimadzu, XRF-1700)을 이용하여 분석하였다. 제올라이트의 결정구조는 XRD(Rigaku, D/MAX2100H)를 사용하여 분석하였다. 제올라이트의 표면구조는 SEM(Scanning Election Microscope, Philips, XL20)을 이용하여 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서는 제주 화산석인 스코리아를 이용하여 Na-A형과 Na-X형 제올라이트 합성할 수 있는 용융/수열합성 조건을 제시하였다. Z-S1는 SiO₂/Al₂O₃ 몰비를 2.5로 고정하고 NaOH/Scoria 비를 0.6 ~ 2.4로 조절하는 조건에서 합성된 제올라이트는 Na-A형과 Na-X형 제올라이트의 XRD 특성 피크와 일치하는 결과를 나타내었다. NaOH/Scoria 비가 0.6에서 1.8로서 알카리 함량이 증가함에 따라 제올라이트 결정이 크기가 감소하는 경향을 보였으며, NaOH/Scoria 비가 1.8에서 Si/Al의 몰비가 1.04가 되어 약 1.0 μm이하의 미세한 결정을 합성하는 것이 가능하였다. NaOH/Scoria 비와 SiO₂/Al₂O₃ 몰비를 각각 1.8과 4.0으로 변화시켜 Na-A형과 Na-X 제올라이트를 합성할 수 있었다.

4. 참고문헌

- Alemayehu, E., Lennartz, B., 2009, Virgin volcanic rocks: Kinetics and equilibrium studies for the adsorption of cadmium from water, *J. Hazard. Mater.*, 169(1-3), 395-401.
- Carlos, A. R., Williams, C. D., Clive, L. R., 2009, A comparative study of two methods for the synthesis of fly ash-based sodium and potassium type zeolites, *Fuel*, 88(8), 1403-1416.
- Gündüz, L., 2008, Use of quartet blends containing fly ash, scoria, perlite pumice and cement to produce cellular hollow lightweight masonry blocks for non-load bearing walls, *Const. Build. Mater.*, 22(5), 747-754.
- Lee, C. H., Park, J. W., 2011, Synthesis of zeolite using discharged fly ash in an industrial complex in Ulsan, *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 33(5), 301-306.
- Novembre, D., Di Sabatino, B., Gimeno, D., Garcia-Vallès, M., Martínez-Manent, S., 2004, Synthesis of Na-X zeolites from tripolaceous deposits (Crotona, Italy) and volcanic zeolitised rocks (Vico volcano, Italy), *Microporous Mesoporous Mater.*, 75(1), 1-11.
- Tanaka, H., Fujii, A., 2009, Effect of stirring on the dissolution of coal fly ash and synthesis of pure form Na-A and -X zeolites by two step process, *Adv. Powd. Tech.*, 20(5), 473-479.