

## 合成珪酸알루미늄의 制酸能 및 吸着能에 미치는 製造條件의 影響

羅 雲 龍

(서울大學校 藥學大學)

### Effects of Several Manufacturing Conditions on Acid Consuming and Adsorbing Capacities of Aluminum Silicate

Woon Lyong Lah

(Received March 15, 1985)

The effects and the optimum manufacturing conditions for the preparation of synthetic aluminum silicate which has acid-consuming power and adsorbing capacity were investigated. The results are as follows:

1. The adsorbing capacity was affected by the mixing order of the reactants, that is, the excellent ones were obtained by the method which add the sodium silicate solution to the potassium alum solution.
2. Even though preparing by the same manufacturing condition, the acid-consuming power is superior to the adsorbing capacity.
3. According to the Box-Wilson Plan, the optimum reaction conditions are concentration of sodium silicate solution; 38% w/w, settling time; 43 hours at room temperature, drying time; 13 hours at 110°C

合成珪酸알루미늄은 여러가지 方法에 의해서 製造되어 오래전부터 胃酸過多, 胃炎, 胃潰瘍, 十二指腸潰瘍등에 制酸劑 및 吸着劑로서 널리 사용되어 오고 있는 藥品이며 이는 胃粘膜을 被覆保護하여 胃의 潰瘍部位 또는 炎症部位에 끼치는 胃液의 刺戟을 차단하고 胃酸을 서서히 中和하여 生成된 珪酸은 過剩의 酸을 吸着하며, 한편 胃酸과 反應하여 生成된 鹽化알루미늄은 胃壁에 收斂作用을 하여 胃의 蠕動運動을 조절한다.

一般的으로, 合成珪酸鹽은 그 製造條件의 근소한 差異에 따라 生成된 製品의 性質이 현저하게 달라진다<sup>1~7)</sup>.

---

College of Pharmacy, Seoul National University

本研究은 1984年度 文敎部 學衛研究助成費에 의해서 이루어졌음.

따라서 製造條件이 다른 珪酸알루미늄을 合成하고 그 製品들의 制酸力 및 吸着力을 究明하는 일은 實際製藥工業에서 매우 重要的인 일이다. 이같은 見地에서, 여러가지 條件이 다른 製法에 의하여 合成된 珪酸알루미늄의 制酸能 및 吸着能試驗에서 얻은 data로부터 制酸能 및 吸着能이 좋은 合成珪酸알루미늄의 最適製造條件을 把握코자 本研究를 實施하였다.

## 實 驗 方 法

칼륨명반水溶液에 珪酸나트륨水溶液을 加하는 製法——本實驗에서는 칼륨명반水溶液의 濃度를 10%로 고정시켜 놓고 여기에 25% 및 50%의 珪酸나트륨水溶液을 加하여 複分解에 의한 珪酸알루미늄 沈澱을 生成시킨다.

여기서 製造要因으로 채택한 것은

反應液의 濃度(m); 10% 칼륨명반 水溶液을 고정, 25% 및 50% 珪酸나트륨水溶液을 注加.

反應溫度 (t); 25°C 및 60°C

攪拌時間 (c); 1時間 및 2時間

放置時間 (r); 常溫에서 24時間 및 48時間

乾燥時間 (l); 110°C에서 10時間 및 20時間

의 5種이며 各 要因을 위와 같이 2水準으로 나누어 實驗을 실시하였다. 이 境遇에 있어서의 條件의 모든 組合은 2<sup>5</sup> 회를 要하나 實驗回數를 줄이고 同等效果를 얻기 위한 方法으로 直交配列表를 이용하여 製造實驗하였다.

要因 m, t, c, r, l levels 을 各各 (m<sub>1</sub>, m<sub>2</sub>), (t<sub>1</sub>, t<sub>2</sub>), (c<sub>1</sub>, c<sub>2</sub>), (r<sub>1</sub>, r<sub>2</sub>), (l<sub>1</sub>, l<sub>2</sub>)로 표시하고 直交配列表에 따라 level의 各 組合을 표시하면 Table I 및 Table II와 같다<sup>10-13</sup>).

Table I—Factors and Levels

Factors	Level 1	Level 2	Symbol	Unit
Concentration of sodium silicate	25	50	m	%
Reaction temperature	25	60	t	°C
Agitation time	1	2	c	h
Settling time	24	48	r	h
Drying time	10	20	l	h

Table II—Combination of Experimental Condition

Factors	Experimental Number															
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
m	25	50	25	50	25	50	25	50	25	50	25	50	25	50	25	50
t	25	25	60	60	25	25	60	60	25	25	60	60	25	25	60	60
c	2	1	1	2	2	1	1	2	2	1	1	2	2	1	1	2
r	24	24	24	24	48	48	48	48	24	24	24	24	48	48	48	48
l	20	10	20	10	10	20	10	20	20	10	20	10	10	20	10	20

實驗操作：反應溫度 25°C(60°C)에서 每分 10ml의 속도로 25%(50%) 珪酸나트륨 水溶液을 10%(고정)칼륨명반水溶液에 攪拌下 滴下시키고, 沈澱이 완전히 생성된 다음 常溫에서 24時間(48時間) 放置한 후 濾過하여 混在이온(K<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, SO<sub>4</sub><sup>-</sup>)이 없어질 때까지 水洗한다. 이것을 110°C로 10時間(20時間) 乾燥시켜 200mesh 篩로 걸러 粒子度를 고르게 하여 珪酸알루미늄 A<sub>1-8</sub>을 얻었다.

珪酸나트륨水溶液에 칼륨명반水溶液을 加하는 製法—反應條件은 위의 製法에 준하였으며 여기서는 다만 珪酸나트륨水溶液에 칼륨명반水溶液을 滴下하는 mixing order 만이 다르다. 여기서 얻은 제품을 珪酸알루미늄 B라 한다.

領域沈澱法<sup>8)</sup>—여기서는 pH의 高低에 따라 다음의 2가지 pH 領域에서 珪酸알루미늄을 제조한다.

10% 珪酸나트륨水溶液(pH 12.3) 150ml에 10%칼륨명반水溶液을 每分 10ml의 속도로 滴下시켜 pH가 11.0이 되도록 하고 이 pH 領域內(pH 12.3~11.0)에서 생성된 것을 珪酸알루미늄 C<sub>1</sub>이라 한다.

위 濾液에 다시 10%칼륨명반水溶液을 加하여 pH가 9.0이 되도록 하고 이 pH 領域內(pH 11.0~9.0)에서 생성된 것을 珪酸알루미늄 C<sub>2</sub>라 한다. 또한 이 濾液에 더욱 10% 칼륨명반水溶液을 加하였으나 이 領域內(pH 9.0~8.0)에서는 珪酸알루미늄의 沈澱生成을 볼 수 없었다.

均密沈澱法<sup>9)</sup>—Mixer 內에 10%칼륨명반水溶液 100ml을 넣고 또한 여기에 10%珪酸나트륨水溶液 100ml을 加하여 일시에 攪拌混合하여 均一한 沈澱을 얻어 이 제품을 珪酸알루미늄 D라 한다.<sup>14)</sup>

吸着能試驗—試料 100mg에 methylene blue(3→8,000) 20ml을 넣어 15分間 흔들어 섞고 37°±2°C에서 5時間 放置한 다음 遠心分離한다. 上澄液 1.0ml을 취하여 물을 넣어 500ml로 하고 吸着質의 濃度는 分光光度計로 波長 667nm에서 吸光度를 測定하고 미리 作成한 檢量線으로부터 吸着量을 구하였다.

制酸能試驗<sup>15~18)</sup>—試料 1g을 정밀히 달아 유리마개 플라스크에 넣어 0.1N 鹽酸 200ml을 정확히 넣어 막고 37±2°C에서 1時間 흔들어 섞고 濾過한다. 이 濾液 50ml을 정확히 취하고 過량의 鹽酸을 0.1N 水酸化나트륨液으로 pH 3.5까지 滴定함으로써 各 製品의 酸消費量을 測定한다.

## 實驗結果 및 考察

珪酸알루미늄의 Methylene Blue 吸着—12種의 珪酸알루미늄에 methylene blue를 吸着시켜 單位重量당 吸着量은 Table III의 adsorption amount 항에 표시하였다.

**Table III**—Adsorption Amounts and Acid Consuming Power of Aluminum Silicate

Tests	Aluminum silicate											
	A <sub>1</sub>	A <sub>2</sub>	A <sub>3</sub>	A <sub>4</sub>	A <sub>5</sub>	A <sub>6</sub>	A <sub>7</sub>	A <sub>8</sub>	B	C <sub>1</sub>	C <sub>2</sub>	D
Adsorption amounts(mg/g)	87.5	46.0	32.5	68.0	44.5	35.0	56.5	40.5	27.0	24.5	20.5	18.0
Acid consuming power (ml)	60	56	70	59	57	65	54	67	61	37	40	49

單位重量當의 methylene blue吸着量은 製造條件에 따라 다르며 A<sub>1</sub>, A<sub>4</sub>, A<sub>7</sub> 등은 다른 것들에 비하여 吸着量이 훨씬 많으며 이 製品들은 그 어느것이나 칼륨명반水溶液에 珪酸나트륨水溶液을 加하는 製法에 의하여 얻은 것이다.

製造條件에 따르는 珪酸알루미늄의 制酸能—Table III에 있어서 制酸能은 製品 1g을 2時間內에 pH 3.5로 中和하는데 要하는 0.1N HCl의 消費量(ml)으로 표시한 것이다.

各 製品의 制酸能도 역시 製造條件에 따라 差界가 있으며 A<sub>3</sub>, A<sub>6</sub>, A<sub>8</sub> 등이 다른 것들에 비하여 制酸能이 높다. 그러나 이들 제품의 吸着能은 비교적 좋지 못하다. 즉, 吸着能이 좋은 것이 制酸能이 떨어짐을 알 수가 있다. 이것들 역시 칼륨명반水溶液에 珪酸나트륨水溶液을 加하는 製法에 의한 것이며 領域沈澱法 및 均密沈澱法에 의한 製品들은 制酸能이나 吸着能이 다같이 훨씬 뛰지고 있다.

**Box-Wilson 計劃**에 따르는 實驗結果<sup>11)</sup>—5要因 *m, t, c, r, l*이 변화하였을 경우, 收得率(*y*)가 要因의 변화량에 比例하여 변화한다고 가정하면 다음 (1)式이 成立한다. 즉,

$$y = b_0 + b_1m + b_2t + b_3c + b_4r + b_5l \dots \dots \dots (1)$$

實驗條件으로서 Table IV에 표시한 바와 같이 各 要因의 2水準을 선택하였다. 이 같은 條件의 組合에 따라 실험한 다음, 正規方程式을 푸는 데 있어서 여러가지 係數가 들어있는 6元 1次聯立方程式을 푸는 복잡성을 덜기 위하여 조건으로서 선택한 數值群을 변환하여 간략화시켰다.

**Table IV**—Conversion for Simplification

Factor	Before conversion		Direction of conversion		After conversion	
	Level 1	Level 2	Original point measure		Level 1	Level 2
M (%)	25	50	37.5	12.5	-1	+1
T (°C)	25	60	42.5	17.5	-1	+1
C (hr)	1	2	1.5	0.5	-1	+1
R (hr)	24	48	36	12	-1	+1
L (hr)	10	20	15	5	-1	+1

Key : M, concentration; T, temperature; C, agitation time; R, settling time; L, drying time;

**Table V**—Data by Orthogonal System

	Experimental number							
	1	2	3	4	5	6	7	8
M	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	+1
T	-1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	+1
C	+1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	+1
R	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1
L	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	+1
y(%)	90	80	95	92	97	93	85	83

**Table VI**—Normal Equation

	$\dot{1}$ $b'_0$	$\dot{M}$ $b'_1$	$\dot{T}$ $b'_2$	$\dot{C}$ $b'_3$	$\dot{R}$ $b'_4$	$\dot{L}$ $b'_5$	$\dot{y}$ $\dot{1}$
1	8						705
M		8					-9
T			8				5
C				8			-1
R					8		-9
L						8	17

이에 따르는 변환식은 (2)식과 같이 된다. 즉,

$$\left. \begin{aligned} M &= \frac{m-37.5}{12.5} \\ T &= \frac{t-42.5}{17.5} \\ C &= \frac{c-1.5}{0.5} \\ R &= \frac{r-36}{12} \\ L &= \frac{l-15}{5} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots(2)$$

(2)식에 의하여  $m, t, c, r, l$  등의 2水準은 낮은 쪽이 -1, 높은 쪽이 +1로 부여된다. 이 변환을 실시하면 (1)식도 다음과 같이 변환된다. 즉,

$$y = b'_0 + b'_1 M + b'_2 T + b'_3 C + b'_4 R + b'_5 L \dots\dots\dots(3)$$

實驗을 Table II의 直交配列表를 이용하여 1/4 實施하였을 경우의 data를 Table V에 표시하였다.

이 Table V와 (3)식으로 부터 正規方程式을 풀어 Table VI을 얻었다. 여기에서 빈칸은 0 이다.

$$\begin{aligned} \therefore b'_0 &= 705/8 = 88.125, & b'_1 &= -9/8 = -1.125 \\ b'_2 &= 5/8 = 0.625, & b'_3 &= -1/8 = -0.125 \\ b'_4 &= -9/8 = -1.125, & b'_5 &= 17/8 = 2.125 \end{aligned}$$

이것들을 (3)式에 代入하여 다음의 (4)式을 얻었다. 즉,

$$y = 88.125 - 1.125M + 0.625T - 0.125C - 1.125R + 2.125L \dots\dots\dots(4)$$

위 (4)式으로부터 다음과 같은 사실을 알 수가 있다. 즉, *M, C, R*의 계수는 (-)임으로 이들 要因은 줄이고 *T, L*의 계수는 (+)임으로 이 要因들을 증가시키면 收得率이 높아진다.

그런데 著者の 目的은 最適反應條件을 찾아내는 것이며 (4)式은 이 같은 最終目的에 도달하기까지의 제 1 단계를 나타내는 1次近似式에 지나지 않기 때문에 最大傾斜上昇法에 따라 進行經路를 정하기 위하여 Table IV와 (4)式의 계수를 이용하여 Table VII을 작성하였다.

Table VII의 最下端의 값을 1 step으로 하여 原點으로부터의 進行經路를 8 step까지 표시하면 다음의 Table VIII와 같다.

이제까지는 1次式을 가정하고 要因의 水準은 2로 한정하였으나 2次式을 가정한 實驗에서는

**Table VII—Unit of Steps**

Factor	Original point	Measure	Coefficient(b')	Measure×b'	Calculated asm
m	37.5	12.5	-1.125	-14.063	1
t	42.5	17.5	0.625	10.938	-0.778
c	1.5	0.5	-0.125	-0.063	0.0045
r	36	12	-1.125	-13.50	0.960
l	15	5	2.125	10.625	-0.756

**Table VIII—Proceeding Course**

Factor	Step									
	0	1	2	3	4	5	6	7	8	
m	37.5	38.5	39.5	40.5	41.5	42.5	43.5	44.5	45.5	
t	42.5	41.72	40.94	40.17	39.39	38.61	37.83	37.05	36.27	
c	1.5	1.5045	1.5090	1.5135	1.5180	1.5225	1.5270	1.5315	1.5360	
r	36	36.96	37.92	38.88	39.84	40.80	41.76	42.72	43.68	
l	15	14.24	13.49	12.73	11.98	11.22	10.46	9.71	8.95	

**Table IX—Rational Combination Plan**

Factor	originl point	measure	Levels							
			1	2	3	4	5	6	7	8
m	40.5	5	30.5	35.5	40.5	45.5	50.5	55.5	60.5	65.5
r	38.88	6	26.88	32.88	38.88	44.88	50.88	56.88	62.88	68.88
l	12.73	2	8.73	10.73	12.73	14.73	16.73	18.73	20.73	22.73



$$\begin{aligned} b'_{33} &= 2.125, & b'_{12} &= 1.1125 \\ b'_{13} &= 0.125, & b'_{23} &= -0.625 \end{aligned}$$

이것들을 (6)式에 代入하여 다음의 (7)式을 얻었다. 즉

$$y = 86.125 - 0.9375M - 1.0625R + 0.8125L - 0.25M^2 + 1.25R^2 + 2.125L^2 + 1.125MR + 0.125ML - 0.625RL \dots\dots(7)$$

여기서 가장 큰  $y$  값을 구하기 위하여 各 要因에 대하여  $y$  값을 0 으로 하여 偏微分하여

$$M = -0.490, \quad R = 0.624, \quad L = -0.085$$

를 얻고 이를  $m, r, l$  로 變換하여

$$\begin{aligned} \frac{m-40.5}{5} &= -0.490, & \frac{r-38.88}{6} &= 0.624, & \frac{l-12.73}{2} &= -0.085 \\ \therefore m &= 38.05, & r &= 42.62, & l &= 12.56, & y &= 85.99 \end{aligned}$$

이와 같은 數値를 얻었다.

이는 珪酸나트륨水溶液의 濃度; 38%, 沈澱放置時間; 43時間, 乾燥時間; 13時間으로 最高收得率; 86%을 얻을 수 있는 最適條件임을 나타내는 것이다.

## 結 論

合成珪酸알루미늄의 制酸能 및 吸着能에 影響을 미치는 製造條件은 反應液의 作用順序, 沈澱生成後의 放置時間 및 製品의 乾燥時間임을 알 수 있다.

Box-Wilson 計劃에 따라, 合成珪酸알루미늄 製造에 있어서 그 最適條件은 다음과 같다. 즉 10% 칼륨명반水溶液에 38% 珪酸나트륨水溶液을 加하는 作用順序에 의하여 얻은 珪酸알루미늄 沈澱을 常溫에서 43時間 放置한 다음 110°C에서 13時間 乾燥한다. 이 같은 製造條件下에서 제조한 合成珪酸알루미늄의 制酸力 및 吸着力이 最大이며 그 收得率은 86%이다.



## 文 獻

- 1) 榎木, 棚田, 材料, **19**, 592(1970)
- 2) 棚田成記, 粉體工學, **8**, No.2, 19(1971)
- 3) 棚田, 松本, 坊本, 藥劑學, **32**, 1(1972)
- 4) J.J. Chessick, A.C. Zettlemoyer, *J. Phys. Chem.*, **58**, 887(1954)
- 5) F.H. Healey, Y.F. Yu, J.J. Chessick, *J. Phys. Chem.*, **59**, 399(1955)
- 6) L.A. Romo, *J. Colloid. Sci.*, **16**, 139(1961)
- 7) L.G. Leeson, A.M. Mattocks, *J. Pharm. Sci.*, **47**, 329(1958)
- 8) 野澤, 工化, **74**, 569(1971)
- 9) 白崎, 加藤, 清水, 觸媒, **6**, 37(1964)
- 10) 岡田, 化學의 領域, **15**, No.1, 16(1961)
- 11) G.E.P. Box, K.B. Wilson, *J. Roy. Stat. Soc. Ser.*, **1**, 1313(1951)
- 12) 畑, 板谷, 新田, *Gypsum und Lime*, **74**, 281(1965)
- 13) 城野, 渡邊, 芦田, 工化, **60**, 515(1957)
- 14) 大韓藥典 第4改正, 保健社會部 (1982)
- 15) Fuch, *Drug and Cosmetic Ind.*, **64**, 692(1949)
- 16) N.E. Rosset, M.L. Rice, *Gastroenterology*, **26**, 490(1954)
- 17) 金洛斗, 大韓藥學會誌, **27**, No.2, 139(1983)
- 18) R.D. Smith, *J. Pharm. Sci.*, **65**, 1045(1976)