

PF8) 광촉매분해반응에 의한 아세살팜의 제거 및 Box-Behnken Design (BBD)을 이용한 최적화

남성남¹⁾·손미향¹⁾·한종훈¹⁾·허남국¹⁾·조혜경²⁾·김세원²⁾·윤재경²⁾

중앙대학교 사회기반시스템공학부 건설환경공학과, ¹⁾육군3사관학교 충성대연구소,

²⁾한국에너지기술연구원 신재생에너지연구부

1. 서론

인공감미료(예, 아세살팜, 아스파탐, 시클라메이트, 수크랄로스 등)는 설탕보다 수십~수백배 이상의 강한 단맛을 가지고 있으며, 칼로리가 거의 없어 각종 식음료 및 건강보조제 등에 광범위하게 사용되어 왔다. 인공감미료는 체내에 흡수된 후 대사되지 않고 대부분 그대로 배출되는 것으로 알려져 있으며, 폐수처리공정에 의해서도 잘 제거되지 않은 상태로 수생태계로 방류된다. 인공감미료 물질 중 아세살팜은 특히 폐수처리공정에서 잘 제거되지 않는 것으로 알려져 있으며, 정화조 등에서 수년간 분해되지 않고 일정한 농도를 유지하는 것으로 보고되었다. TiO₂를 이용한 광촉매분해반응은 고도산화공정(advanced oxidation process, AOP)의 하나로써, 기존의 폐수처리공정에 의해 제거되는 잘 제거되지 않은 미량화학물질 등의 분해연구에 광범위하게 적용되고 있다. Box-Behnken Design (BBD) 기법은 RSM의 한 종류로서, 각 변수(인자)들을 세 가지 수준(low, center, high)에서 실험하도록 하며, 회전성을 가지고 있는 설계들은 설계의 중심으로부터 거리가 동일한 모든 점들에서의 예측분산을 일정하게 하여, 예측의 질을 향상시킨다. 본 연구에서는 광촉매 분해반응을 이용한 아세살팜 물질의 제거 공정에 물질의 초기농도(C₀), pH, persulfate의 농도, 그리고 하/폐수속에 존재하는 자연유기물질(NOM)을 독립변수로 하여, 광분해반응에 의한 아세살팜의 제거효율을 최적화하는데 RSM 기법을 적용하였다.

2. 연구방법 및 분석

광촉매분해반응은 immobilized-TiO₂ nano powder가 immobilized 형태로 부착된 튜브에 UV lamp (1000 W xenon lamp, Oriol, USA)를 조사하여 수행되었다. 반응기는 이중 자켓형태로 외벽은 냉각수를 순환하여 항온 상태(20±1°C)를 유지하였으며, 처리수는 펌프를 통해 순환시켜 homogeneous 상태가 유지되도록 하였다. 아세살팜 시료의 채취는 매 30분마다 180분까지 수행하였으며, 잔류 농도는 LC-MS/MS (Agilent 6410 triple-quadrupole, column: ZORBAX Eclipse XDB-C18, 5 μm, 50 × 2.1 mm)를 이용하여 분석하였다. 반응표면분석법중 Box-Behnken 실험설계법을 이용하여 광촉매반응에 의한 아세살팜의 분해실험을 설계하였으며, 총 29회의 실험 조건을 도출하였다. 독립변수로는 아세살팜의 초기농도(C₀, 300-900 ppb), pH (4-10), persulfate (PS) 산화제 (0-10 mg/L), 자연유기물질의 농도 (0-5 mg/L)로 설정하여, 4가지 인자에서 세 가지 수준(four factor and three levels)로 실험을 설계하였으며, 실험의 결과는 Design-Expert software (version 7)를 이용하여 통계처리하였다.

3. 결과 및 고찰

실험설계법에 의해 제안된 조건에서 아세살팜의 광분해반응을 실험을 수행하여, 시간대별 잔류농도 결과를 바탕으로 반응표면분석을 실시하였다. 반응의 결과는 이차다항회귀모델식(R²=0.9890, p<0.05)으로 도출되었으며, 식 (1)은 30분간의 제거반응에 대한 식을 보여준다. 식에서 보는 바와 같이 아세살팜의 광분해반응효율에는 pH와 NOM이 강한 음의 영향력을 보이며, persulfate 산화제는 양의 영향력을 갖는 것을 알 수 있다. 분산분석의 결과, 선형항이 미치는 기여도가 가장 컸으며, 순수 2차항(quadratic 항)의 기여도가 다음으로 높았고, 각 변수들간의 교호작용(interaction)은 크지 않은 것으로 나타났다. 최적반응조건을 도출하기 위하여 numerical optimization을 이용한 결과, C₀=887.2 μg/L, pH=4, persulfate=9.0 mg/L, 그리고 NOM=5.0 mg/L일 때 30분 이내에 완전 산화가 가능한 것으로 나타났다.

$$Y_{(30\text{-min removal})} = 34.83 - 0.17 * C_0 - 21.86 * pH + 13.12 * PS - 11.90 * NOM - 2.91 * C_0 * pH + 4.90 * C_0 * PS - 0.93 * C_0 * NOM - 12.12 * pH * PS - 6.03 * pH * NOM - 1.06 * PS * NOM + 5.60 * C_0^2 + 14.71 * pH^2 - 13.53 * PS^2 + 13.06 * NOM^2 \quad (1)$$

4. 결론

- 1) 반응표면분석에 의한 아세살팜의 분해는 2차 다항회귀모델식으로 가장 유의한 것으로 나타났다.
- 2) 통계분석결과, 아세살팜의 분해에 가장 큰 영향을 미치는 인자는 pH와 NOM농도였다.

감사의 글

This study was supported by research project (NRF-2015R1D1A4A01020056) from the National Research Foundation, and the authors are grateful for the support.