

PC8) 공존이온과 회수된 촉매의 재사용이 질산성질소 환원처리반응성에 미치는 영향

안삼영*, 전세웅

순천대학교 환경교육과

1. 서 론

질산성질소는 지표수, 호수, 지하수 등 어디서나 흔히 존재하는 수질항목으로서 높은 농도로 존재할 때 부영양화를 유발하며, 건강상 유해물질이다. 질산성질소를 화학적으로 제거하는 방법 중 하나로서 알루미늄 지지체에 Pd/Cu를 담지 한 촉매와 환원제를 사용하는 방법이 연구되고 있다. 환원반응의 반응성은 반응조건에 따라 달라지는데, 촉매의 양, Pd/Cu의 비율, 담체의 양, 환원제의 양, 반응온도, pH, 공존하는 다른 이온들 등이 영향을 미친다. 본 연구에서는 수체 내에 질산성질소와 공존하는 여러 가지 이온들이 환원반응에 미치는 영향을 알아보려고 하였다. 실험대상 이온들로는 일반적으로 수체에 흔히 존재하는 Cl^- , HCO_3^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-} 를 선택하였다. 또한 촉매의 재활용여부는 경제적인 측면에서 매우 중요하다. 따라서 회분식 실험에서 사용한 촉매를 재사용할 때 질산성질소 환원반응성에는 어떠한 변화가 있는지 여부도 조사하였다.

2. 재료 및 실험 방법

2.1. 촉매의 합성

정해진 양의 Pd(0)/Cu(0)를 지지체에 붙이기 위해 Pd과 Cu의 전구체로서 $\text{Pd}(\text{NO}_3)_2$ 와 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ 를 소량의 물에 녹인 후 알루미늄에 담지 시킨다. 물을 제거한 후 약 16시간 100도에서 가열한 후 350도에서 2시간 가열한다. 그 후 NaBH_4 수용액과 반응시켜 Pd(0)과 Cu(0)로 환원시킨다. Pd(0)과 Cu(0)의 함유량은 ICP-AS 로, 알루미늄 담체 표면에서의 분포상황은 SEM-EDS로 확인하였다.

2.2. 반응용액의 준비와 변인의 통제

1L의 질산염 용액에 NaCl , Na_2SO_4 , NaHCO_3 , K_3PO_4 를 넣어 최종 농도가 각각 50ppm, 10ppm, 30ppm, 0.3ppm(각 이온의 농도는 우리나라 하천수에 일반적으로 존재하는 농도를 기준으로 정함) 되도록 준비한 후 약 2시간동안 질소기체로 포화시킨다. 0.75g의 촉매와 질산염의 농도에 따라 화학양론적으로 계산된 포름산을 첨가한다. 촉매와 포름산 환원제를 넣은 후 교반시키면서 일정시간간격으로 시료를 채취한다. 질산성질소의 농도는 이온 크로마토그래피로, 암모니아의 농도는 인도페놀법으로 측정한다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 음이온의 영향

조사한 음이온(Cl^- , HCO_3^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-})들 중 질산성질소의 환원반응에 가장 큰 영향

을미치는 것은 Cl^- 였다. 50ppm의 염소이온은 50ppm의 질산성질소 환원반응에서 약 96%의 반응성 감소를 야기하였다(그림 1). 조사대상 이온 중 PO_4^{3-} 가 가장 적은 영향을 미쳐 반응성이 약 23% 감소하는 것을 알 수 있었다. 한편 네 가지 이온이 모두 존재하는 경우 반응성은 97%가 감소하는 것으로 나타나, 촉매 환원법에 의한 질산성질소 제거 시 공존하는 음이온들에 대한 전처리가 필요함을 시사하는 결과였다.

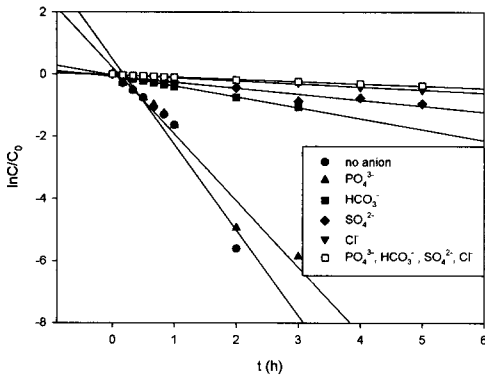


그림 1. 공존이온들의 영향

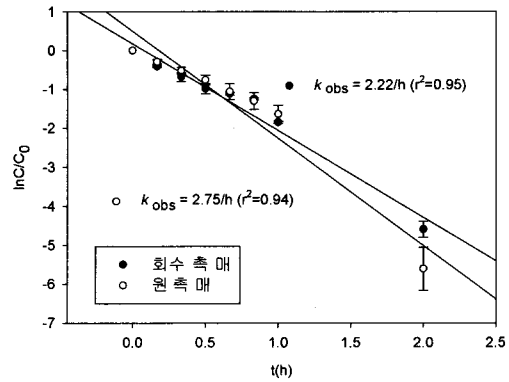


그림 2. 새촉매와 재사용촉매의 환원 반응성 비교

3.2. 촉매 재사용의 영향

질산성질소의 화학적 환원에 사용되는 촉매는 고가의 Pd 금속이 효과가 있는 것으로 알려져 있다. 따라서 촉매의 재사용은 경제적인 측면에서 매우 중요하나 회수된 촉매의 사용으로 인해 질산성질소 환원능력이 어느 정도 영향을 받는지를 조사하여야 재사용의 경제성을 판단할 수 있을 것이다. 본 연구의 회분식 실험에 사용된 촉매를 회수하여 재사용하였을 때 반응성을 그림 2에 비교하였다. 재사용촉매의 반응성은 새촉매에 비해 약 80%로서 충분히 재사용 경제성이 있는 것으로 사료된다.

4. 요약

Pd/Cu/Alumina 촉매와 포름산을 이용한 질산성질소의 환원반응에 수체에 공존하는 여러 이온들이 영향을 줄 수 있다. 조사대상 이온 중 염소이온이 가장 부정적인 영향을 주었으며, PO_4^{3-} 가 가장 적은 영향을 미쳤다. 한편 촉매를 재사용한 경우 질산염 환원반응은 새 촉매를 사용하였을 때 비해 약 80%의 성능을 나타내었다.

참 고 문 헌

- Chem. Eng. Tech.* 1989, 61, 836.
- Catal. Today* 1993, 17, 21.
- Catal. Today* 2000, 55, 79.
- Environ. Sci. Technol.* 2006, 40, 3075.