

니오비움월프람복합산화물의 합성과 유기물흡착특성

한영남, 김일진

현재 염색공업폐기물제거와 같은 환경오염처리에서 흡착특성이 좋은 흡착제를 개발리 용하는것이 중요한 문제로 제기된다.

니오비움산염재료는 구조와 물리화학적성질이 특이한것으로 하여 많은 반응의 불균일 촉매와 강유전체, 압전체 등으로 리용되고있다.[1-4] 지금까지 니오비움월프람복합산화물은 고상반응법으로 합성[4]하였으며 수열법으로 합성한 연구결과는 발표된것이 거의 없다.

우리는 니오비움월프람복합산화물을 수열법으로 제조하고 메틸렌청에 대한 흡착특성을 평가하였다.

실험 방법

합성방법 1.00g의 Nb_2O_5 과 5.00g의 KOH, 60mL의 증류수를 혼합하고 수열장치에 넣어 조 립한 다음 180°C 에서 2일동안 수열처리하여 $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ 을 함유한 맑은 용액을 얻는다. 반 응액 2.4mL를 분취하고 묽은 염산용액으로 시료용액의 pH가 2~7이 되도록 조절하여 흰 앙 금을 얻는다. 앙금을 분리세척하고 100mg의 H_2WO_4 을 첨가하여 40mL들이 수열장치에 넣 고 220°C 에서 24h동안 반응시킨다. 얻어진 시료를 증류수와 에틸알콜로 려과세척하고 건조 함에서 10h동안 건조시킨 다음 800°C 에서 2h동안 열처리하여 고체생성물을 얻는다.

니오비움월프람복합산화물의 구조는 X선회절분석기(《Rigaku SmartLab》)로, 시료의 립 도와 모양은 주사전자현미경(《JSM-6610A》)으로 분석하였다.

유기물흡착특성평가방법 방온도에서 생성물 25mg을 농도가 10mg/L인 메틸렌청용액 50mL 에 분산시킨다. 묽은 질산용액으로 용액의 pH를 3으로 맞추고 빛이 없는 조건에서 각이한 시간동안 교반한 다음 즉시 원심분리기로 고체시료와 용액을 분리하여 자외가시선분광광 도계로 용액속에 남아있는 메틸렌청의 흡광도(664nm)를 측정하였다.

실험결과 및 해석

$[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ 용액의 pH를 각각 2~3, 5~6, 7~ 7.5로 변화시켜 얻은 수열반응생성물의 XRD도형 은 그림 1과 같다.

그림 1에서 보는바와 같이 모든 시료들의 XRD 도형에서는 선행연구결과[4]에서와 유사하게 $2\theta=22.9, 46.3^\circ$ 에서 회절봉우리가 뚜렷하게 나타났다.

$[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ 용액의 pH가 각각 2~3, 7~7.5일 때 얻은 생성물의 SEM사진은 그림 2와 같다.

그림 2에서 보는바와 같이 pH가 2~3인 경우 직

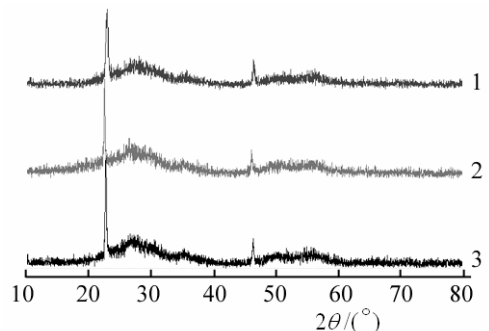


그림 1. 수열반응생성물의 XRD도형
1-3은 pH가 각각 2~3, 5~6, 7~7.5인 경우

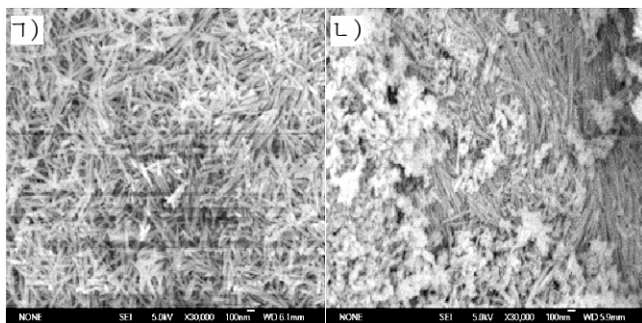


그림 2. 수열반응생성물의 SEM사진
(a), (b)는 pH가 각각 2~3, 7~7.5인 경우

생성물은 니오비움유프람복합산화물($\text{Nb}_{18}\text{W}_{16}\text{O}_{93}$)이라는것을 알수 있다.

소결생성물의 SEM사진은 그림 4와 같다.

그림 4에서 보는바와 같이 pH 7~7.5인 경우 너비가 100nm이고 길이가 수백nm인 각기둥모양과 둥근 형태의 다면체결정들이 얻어졌으며 pH 2~3인 경우에는 각기둥모양의 결정들이 얻어졌다.

pH 2~3인 경우 소결처리한 니오비움유프람복합산화물에 메틸렌청용액을 첨가한 다음 방치시간에 따르는 생성물의 자외가시선흡수스펙트르를 측정한 결과는 그림 5와 같다.

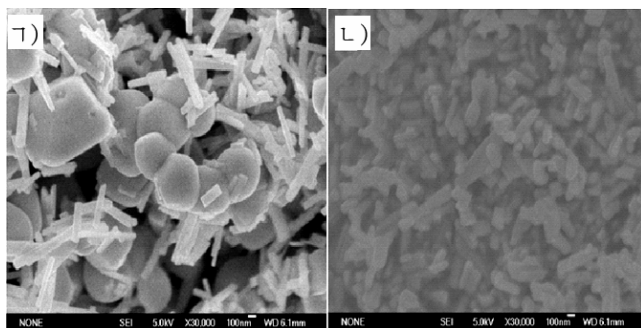


그림 4. 소결생성물의 SEM사진
(a), (b)는 pH가 각각 7~7.5, 2~3인 경우

그림 5에서 보는바와 같이 합성한 니오비움유프람복합산화물은 5min동안 97%이상의 메틸렌청을 흡착제거할수 있으며 결국 용액의 색이 무색으로 변한다. 즉 우리가 합성한 니오비움유프람복합산화물의 유기물흡착능력이 매우 세다는것을 알수 있다. 이것은 초산동으로부터 합성한 나노산화동[5]과 KMnO_4 으로부터 변성합성한 나노 MnO_2 [6]의 메틸렌청흡착능력과 매우 유사하다. pH는 흡착제에 의한 유기물흡착[5]에 일정한 영향을 미치는데 메틸렌청은 일종의 전형적인 양이온염료로서 pH값이 낮을수록 메틸렌청흡착에 유리하다.

pH가 2~3인 경우 합성한 수열반응생성물과 열처리한 소결생성물의 시간에 따르는 메틸렌청흡착률변화는 그림 6과 같다.

경이 수십nm인 나노봉들이 얻어지고 pH가 7~7.5인 경우에는 나노봉들과 함께 다른 형태의 립자들도 얻어졌다.

수열반응생성물들을 800℃에서 2h 동안 열처리하여 얻은 소결생성물의 XRD도형은 그림 3과 같다.

그림 3에서 보는바와 같이 pH가 7~7.5인 경우 생성물은 니오비움유프람산칼리움과 니오비움유프람복합산화물의 혼합물이며 pH가 2~3인 경우 생

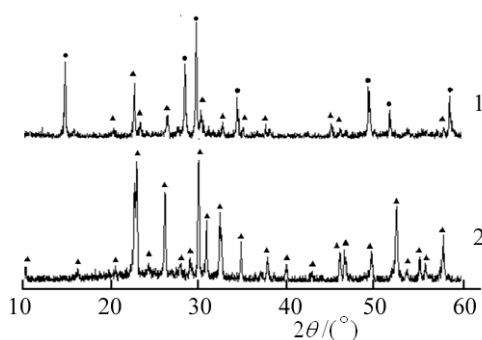


그림 3. 소결생성물의 XRD도형
1, 2는 pH가 각각 7~7.5, 2~3인 경우

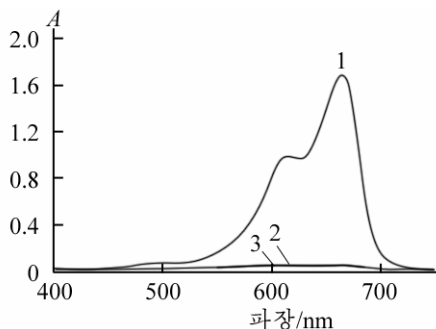


그림 5. 생성물의 자외가시선흡수스펙트르
1-3은 방치시간이 각각 0, 5, 10min인 경우

그림 6에서 보는바와 같이 수열반응생성물은 소결생성물에 비하여 메틸렌청에 대한 흡착률이 더 높다는것을 알수 있다.

맺 는 말

수열법으로 니오비움윌프람복합산화물을 합성하기 위한 반응조건은 반응용액의 pH 2~3, Nb와 W의 물질량비 1 : 2.5, 반응온도 220℃, 반응시간 24h 이다. 복합산화물은 직경이 수십nm인 나노봉형태이며 수열법으로 합성한 무정형산화물의 메틸렌청흡착특성이 소결처리한 결정형산화물보다 더 좋다.

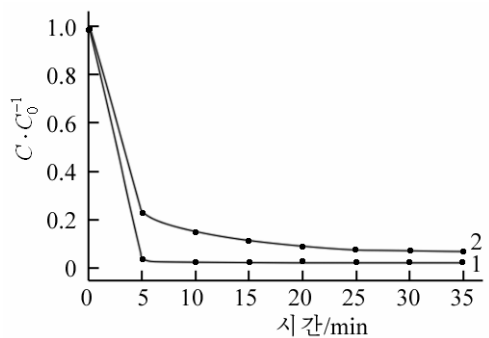


그림 6. 시간에 따르는 메틸렌청흡착률변화
1-수열반응생성물, 2-소결생성물

참 고 문 헌

- [1] 한영남; 조선민주주의인민공화국 과학원통보, 1, 53, 주체105(2016).
- [2] J. T. Lewandowski et al.; Mater. Res. Bull., 27, 981, 1992.
- [3] B. J. Kennedy et al.; J. Alloy. Compd., 302, 94, 2000.
- [4] Kaori Omata et al.; Catalysis Today, 201, 7, 2013.
- [5] Chunhua Wang et al.; Cryst. Eng. Comm., 14, 3677, 2012.
- [6] Hongmin Chen et al.; J. Phys. Chem., C 112, 17540, 2008.

주체106(2017)년 10월 5일 원고접수

Synthesis of Niobium-Tungsten Complex Oxide and Its Adsorption Characteristics of Organic Matters

Han Yong Nam, Kim Il Jin

The amorphous niobium-tungsten complex oxide synthesized by hydrothermal method(pH of solution 2~3) absorbed and removed more than 97% of methylene blue for 5min at room temperature.

Key words: hydrothermal method, complex oxide, methylene blue, absorption