

금속이온이 치환된 Y형 제올라이트에서 벤젠의 촉매연소반응

홍 성 수*

부경대학교 화학공학과
608-739 부산광역시 남구 용당동 신선로 365

(2016년 4월 21일 접수; 2016년 6월 15일 수정본 접수; 2016년 6월 17일 채택)

Catalytic Combustion of Benzene over Metal Ion-Substituted Y-Type Zeolites

Seong-Soo Hong*

Department of Chemical Engineering, Pukyong National University
365 Shinsun-ro Nam-gu, Busan 608-739, Korea

(Received for review April 21, 2016; Revision received June 15, 2016; Accepted June 17, 2016)

요 약

여러 가지 금속이온이 치환된 제올라이트에서 벤젠의 촉매연소 반응에 대해 연구하였다. 사용한 제올라이트 중 Y(4.8)형 제올라이트가 가장 높은 활성을 보여주었고, Y(4.8)형 제올라이트에 치환된 금속 이온 중 구리이온이 가장 높은 활성을 보였다. 촉매의 활성은 산소 TPD에 의해 얻어진 흡착산소의 양에 비례하였다. Cu/Y(4.8) 촉매에서 Cu 이온의 농도가 커질수록 반응활성이 증가하였다. 벤젠의 연소반응의 전환율은 반응물 중 벤젠의 농도보다는 산소 농도의 영향을 많이 받았다. 또한, 반응물에 첨가된 물은 촉매 활성을 감소시켰다.

주제어 : 벤젠의 촉매연소반응, Cu/Y(4.8) 촉매, 제올라이트

Abstract : Catalytic combustion of benzene over various metal cation-exchanged zeolites has been investigated. Y(4.8)-type zeolite showed the highest activity among the used zeolites and Cu/Y(4.8) catalyst also showed the highest activity among metal cation/ Y(4.8) zeolites. The catalytic activity increased according to the amount of adsorbed oxygen acquired from O₂ TPD results. The catalytic activity also increased with an increase of Cu cation concentration on Cu/Y(4.8) catalysts. The conversion of benzene on the combustion reaction depended on not benzene concentration but the oxygen concentration. In addition, the introduction of water into reactants decreased the catalytic activity.

Keywords : Catalytic Combustion of Benzene, Cu/Y(4.8) Catalysts, Zeolites

1. 서 론

방향족 화합물 중 하나인 벤젠은 석유화학, 페인트, 도장시설, 철강제조와 같은 많은 화학공업 산업 전반에 개시물질로써 광범위하게 사용되고 있다. 이러한 휘발성 유기화합물의 제거 방법으로 소각법이 가장 널리 사용되고 있는데, 그러나 이 방법은 1000 °C 이상의 고온이 요구되고 있으며 난분해성 휘발성 유기화합물이 존재할 경우 연소반응온도가 더 높아져 운전비용이 증가할 뿐만 아니라 NO_x 및 다이옥신과 같은 2차 오염물질이 발생한다. 따라서 이를 대체할 수 있는 가장 효

과적인 방법으로 알려져 있는 촉매연소법은 낮은 반응온도에서 작용할 수 있다는 장점을 가지고 있으며 반응온도가 낮기 때문에 연간 운전비가 적게 들어 경제적이며 장치가 소형이므로 설비 확장이 용이하다는 장점을 가지고 있다. 일반적으로 귀금속 촉매(Pt, Pd)는 휘발성 유기화합물의 산화에 대하여 높은 활성을 보여준다고 보고되고 있다[1]. 그러나 귀금속 촉매의 경우, 고가이고 염소나 황과 같은 촉매독의 존재 시 활성이 급격히 감소하기 때문에 귀금속 촉매와 유사한 활성을 가지면서 저렴한 촉매의 개발이 요구되고 있다. 따라서 이들 귀금속 촉매를 대신할 수 있는 촉매로써 제올라이트(zeolite),

* To whom correspondence should be addressed.

E-mail: sshong@pknu.ac.kr; Tel: +82-51-629-6433; Fax: +82-51-629-6429

doi: 10.7464/kset.2016.22.3.161 pISSN 1598-9712 eISSN 2288-0690

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

층상점토(pillared clays) 및 페로프스카이트(perovskites) 등이 연구되고 있다[2,3].

금속산화물 촉매에 의한 휘발성 유기화합물의 연소반응은 CuO 및 CeO₂ 등의 전이금속들이 사용되었으며[4,5], LaCoO₃, LaMnO₃ 등의 페로프스카이트형 산화물 역시 벤젠의 연소반응에서 귀금속 촉매에 비교되는 높은 활성을 보여준다고 보고되고 있다[6,7]. 또한, SBA-15와 같은 메조동공체에 Cu를 담지시킨 촉매에서도 높은 산화반응 활성을 나타내었다[8]. 하지만 금속 이온이 교환된 제올라이트는 대부분 탄화수소의 산화반응이나 일산화탄소의 연소반응 등에 사용된 경우가 보고되고 있다[9,10]. 일반적으로 전이금속 이온을 교환한 제올라이트가 산화촉매로 사용된다면 산소를 활성화시키든지 혹은 산화반응의 반응물을 활성화시켜야 한다. 산화반응에서 현재까지 많이 사용되고 있는 금속산화물 촉매에 비해 전이금속이 치환된 제올라이트 촉매는 제올라이트 내의 금속이온이 산화물과 달리 자유로운 금속이온 상태이고 독특한 배위 형태를 가지고 있으며, 산화물보다 높은 Brönsted 산의 세기를 나타내고 있다[11]. 또한 전이금속으로 이온 교환된 Y형 제올라이트를 촉매로 사용한 일산화탄소의 산화반응에서 사용된 산소는 격자산소가 아니라고 보고되고 있다[12]. 실제로 제올라이트에서는 격자 내의 산소는 탈착되기 어려운 반면에 전이금속으로 이온 교환하였을 때는 산소가 여러 가지 형태로 화학 흡착되어 있고, 이들이 산화반응에서 활성산소로 작용한 것으로 알려져 있다[12].

본 연구에서는 Y형 제올라이트를 포함한 다양한 제올라이트에 금속 이온을 교환시킨 촉매를 제조하였고, 이들 촉매의 금속 이온의 양과 흡착산소의 양을 조사하였다. 또한 이들 촉매를 사용하여 벤젠의 연소반응에서의 반응활성을 조사하였다. 또한, 접촉시간, 초기 산소의 농도, 반응물에 첨가된 물의 영향 등 반응조건에 따른 활성의 변화를 조사하였다.

2. 실험

2.1. 촉매의 제조 및 특성 분석

Na-Y 제올라이트를 Cu, Co, Ni, Mn, Fe, Zn 및 Cr 전이금속의 질산염(>98%, Sigma-Aldrich) 1 N 농도의 용액으로 93 °C에서 약 40시간 동안 교반시키면서 이온 교환시킨다. 이렇게 하여 얻어진 용액을 충분히 세척시킨 다음 120 °C에서 하루 동안 건조시킨 후, 500 °C에서 12시간 동안 공기 분위기하에서 소성시켜 제조하였다. 천연제올라이트는 먼저 93 °C에서 1.5 N NH₄NO₃ (99%, Junsei) 용액으로 12시간 동안 교반시켜서 암모늄이온으로 이온교환 된 천연제올라이트를 제조한 후, Cu(NO₃)₂·6H₂O 용액으로 위와 같은 공정을 거쳐 Cu 이온으로 교환된 천연제올라이트를 제조하였다. 또한, H-ZSM-5도 1 N NaNO₃ 용액으로 12시간 동안 교반시켜 Na-ZSM-5를 먼저 제조한 다음, Cu(NO₃)₂·6H₂O 용액으로 위와 같은 공정을 거쳐 Cu 이온으로 교환된 ZSM-5 촉매를 제조하였다. 끝으로 Na-mordenite는 다른 처리를 하지 않고 Cu(NO₃)₂·6H₂O 용액으로 위와 같은 공정을 거쳐 Cu 이온으로 교환된 mordenite

Table 1. The composition of metal on various catalyts

Catalyst	Cation/Al	Cation/Zeolite (wt.%)
Cu/ZSM-5	0.07	0.45
Cu/Natural zeolite	0.04	0.38
Cu/Mordenite	0.10	1.09
Cu/Y(4.8)	0.89	3.32
Fe/Y(4.8)	1.79	7.25
Co/Y(4.8)	0.41	2.90
Ni/Y(4.8)	0.36	2.41
Mn/Y(4.8)	0.11	1.09

를 제조하였다. 제조된 촉매들의 이온 교환된 금속이온의 양은 ICP를 이용하여 계산하여 그 결과를 Table 1에 나타내었다. 제조된 촉매들의 산소흡착량을 알아보기 위해 산소 승온탈착(temperature programmed desorption, TPD) 실험을 행하였다. 상온에서 600 °C까지 16 °C min⁻¹의 속도로 온도를 올리면서 산소를 30 mL min⁻¹의 유속으로 공급하였고, 600 °C에서 30분 동안 흡착을 진행시켰다. 그 후 50 °C까지 온도를 낮춘 후, He을 20 mL min⁻¹의 유속으로 흘리면서 온도를 10 °C min⁻¹의 속도로 올리면서 산소의 탈착실험을 행하였다. 승온 과정에서 탈착되는 산소의 양은 질량분석기(mass spectrometer, Hiden Analytical, USA)를 이용하여 측정하였다.

2.2. 반응활성 조사

촉매를 이용하여 벤젠을 제거하는 실험은 고정층 연속반응기를 사용하였다. 반응기는 직경 1 cm, 길이 24 cm인 석영관을 사용하였고, 촉매층에 삽입된 K-type의 열전대가 연결된 온도조절기로 반응온도를 100~500 °C로 조절하였다. 가스는 헬륨(99.999%)과 산소(99.999%)를 사용하였고 각각의 가스는 수분 트랩을 거쳐서 질량흐름조절기(mass flow controller, MFC)를 거쳐서 유량을 조절하였고, 반응물인 벤젠은 헬륨에 의하여 기화되며 원하는 농도로 조절되어 반응기에 도입되었다. 반응물의 유량은 100 mL min⁻¹(공간속도; GHSV = 30,000 hr⁻¹)로 조절하였다. 반응물과 생성물의 분석은 FID 및 TCD가 장착된 가스 크로마토그래피(HP 5890 series II plus)를 사용하여 분석하였다. 벤젠과 이산화탄소의 분석을 위해 각각 Carbowax 및 Hysep Dip 컬럼을 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 촉매의 물리적 특성

제올라이트는 서로 다른 기공 구조와 크기를 가지고 있으므로 금속 이온을 이온 교환시킬 때 실제로 제올라이트 골격 내에 존재하는 금속 이온의 양이 서로 다를 것으로 예상된다. 따라서 ICP 분석에 의해 제조된 촉매들의 치환된 금속이온의 양을 구하여 그 결과를 Table 1에 나타내었다.

Table 1에 나타나듯이 같은 금속이온이 치환되더라도 제올라이트 종류에 따라 이온 교환되는 양이 달라질 뿐만 아니라

같은 제올라이트에서도 이온 교환되는 금속 이온의 종류에 따라 서로 다른 양이 교환되는 것을 볼 수 있다. 구리 이온이 이온 교환되는 양은 Y > Mordenite > ZSM-5 > Natural Zeolite의 순서로 줄어드는 것을 볼 수 있다. 이와 같은 결과는 기공의 크기 및 구조와 관련이 있는 것으로 생각된다 [13]. 한편, Y형 제올라이트에 치환되는 금속이온은 Fe > Cu > Co > Ni > Mn의 순서로 이온 교환되는 양이 감소하는 것을 볼 수 있다. 이 결과도 역시 이온 교환되는 금속이온의 반경과 관련이 있는 것으로 생각된다.

3.2. 촉매의 성분에 따른 반응활성

여러 가지 제올라이트에 1.0 N 구리이온이 치환된 촉매들에서 벤젠의 연소반응을 행하여 그 결과를 Figure 1에 나타내었다. 천연제올라이트에 치환된 구리 촉매를 제외하고는 다른 촉매들에서는 대부분의 연소반응에서 나타나는 반응온도에 따라 전형적인 S 자형 곡선을 보여주고 있다. 또한, 전환율의 급격한 상승 역시 많은 산화반응에서 나타나고 있는데, 반응 후 배출가스와 함께 과잉으로 생성되는 열 때문으로 알려져 있다[6,7]. 촉매를 사용하지 않은 벤젠연소에서는 2% 정도의 전환율만 보여주었고, 반응 후 얻어지는 물질은 이산화탄소가 전부였고 다른 탄소를 함유한 물질은 나타나지 않았다.

그림에서 보여주듯이 구리 이온이 치환된 제올라이트에서는 Y(4.8) > Y(5.6) > Mordenite > ZSM-5 > Natural Zeolite의 순서로 벤젠의 연소반응의 활성이 감소하였다. 이와 같이 제올라이트의 종류에 따라 서로 다른 활성을 보여주는 것은 제올라이트의 기공의 크기 및 구조가 서로 달라 치환되는 구리 이온의 양이 서로 다르기 때문으로 생각된다. 즉 Y형 제올라

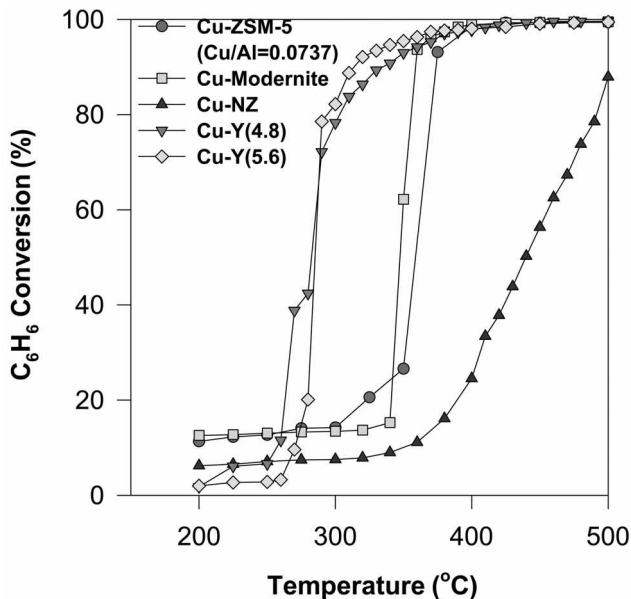


Figure 1. The effect of reaction temperature on the conversion of benzene over various Cu/zeolites catalysts: O₂ concentration = 20%, benzene concentration = 1%, GHSV = 30,000 hr⁻¹.

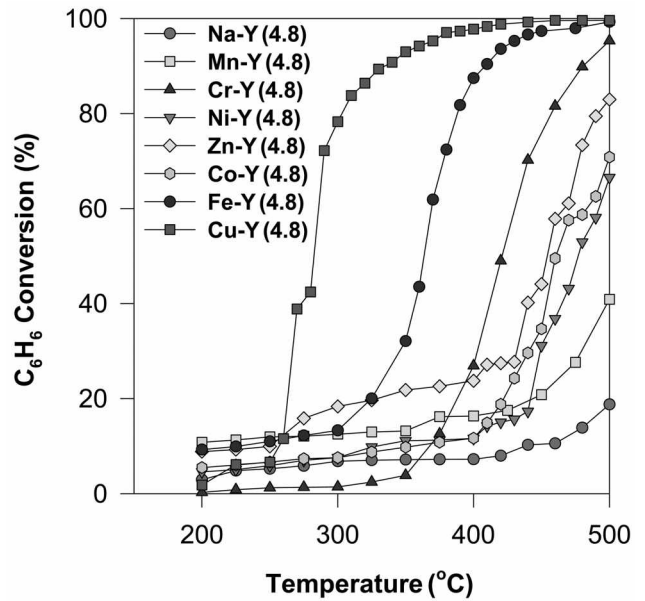


Figure 2. The effect of reaction temperature on the conversion of benzene over various metal/Y(4.8) catalysts: O₂ concentration = 20%, benzene concentration = 1%, GHSV = 30,000 hr⁻¹.

이트의 경우에는 ZSM-5에 비해 두 배가 넘는 구리이온의 치환량을 보여 주고 있다(Table 1). 따라서 반응에서 활성점으로 작용할 것으로 생각되는 구리이온의 양이 반응활성에 영향을 주는 것으로 생각된다. 이후의 실험은 Y(4.8)형 제올라이트를 사용하여 진행하였다.

Figure 2에 Y형 제올라이트에 여러 가지 금속이온을 치환시킨 촉매들의 반응온도에 따른 벤젠의 연소반응의 활성을 나타내었다. Cu 이온이 치환된 촉매에서는 330 °C 부근에서 약 90% 이상의 전환율을 나타내었다. 그러나 Fe 이온이 치환된 촉매의 경우에는 Cu 이온이 치환된 촉매에 비해 70 °C나 높은 400 °C 부근에서 90% 전환율을 나타내었다. 또한, 이들 두 촉매에서만 연소반응에서 나타나는 S형 곡선을 보여주고 있으며 나머지 촉매들은 매우 낮은 활성을 나타내며 Mn 이온이 치환된 촉매에서는 500 °C에서도 40% 이하의 낮은 전환율을 보여주고 있다.

이와 같은 결과는 Ono et al. [14]이 탄화수소의 산화반응에서 Cu 이온이 치환된 제올라이트가 가장 높은 활성을 보여준 보고와 잘 일치하고 있으며, 이온 교환되는 금속이온의 종류에 따라 서로 다른 활성을 보여주고 있다. 제올라이트 내에 치환된 금속 이온은 금속산화물과 달리 자유로운 금속 이온의 상태이며 이 금속 이온에 화학흡착된 산소종이 연소반응에 작용하는 것으로 알려져 있다. 따라서 이온 교환된 금속 이온의 종류에 따라 금속이온 교환량과 화학 흡착된 산소의 양이 달라지기 때문에 연소반응에서의 활성도 차이가 나타나는 것으로 생각된다.

Figure 3에 Y형 제올라이트에 여러 가지 금속이온을 치환시킨 촉매들의 산소 승온탈착 실험(TPD)의 결과를 나타내었다.

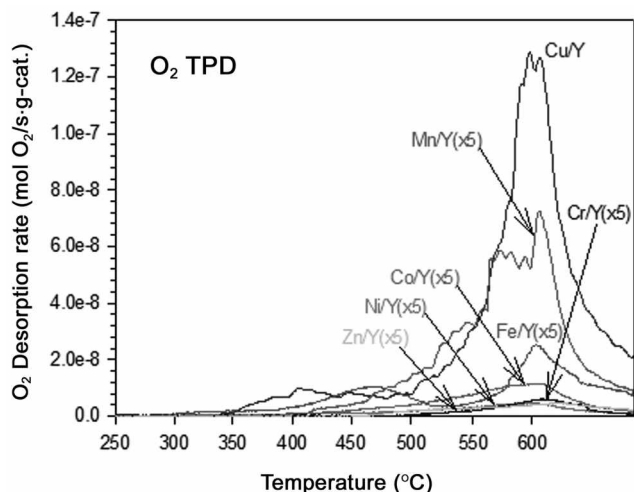


Figure 3. Oxygen desorption profiles on various metal/Y(4.8) catalysts.

Cu, Mn 및 Fe로 치환된 Y형 제올라이트를 제외하고는 매우 적은 양의 산소 탈착피크가 나타났다. 그러나 Cu로 치환된 촉매의 경우에는 600 °C 부근에서 매우 큰 피크가 나타났으며, Mn으로 치환된 Y형 제올라이트를 제외하고는 반응활성과 피크의 크기가 잘 일치하고 있는 것을 볼 수 있다. Iwamoto et al. [15]이 행한 Y형 제올라이트에 구리이온을 치환시킨 촉매에서 산소 승온 탈착실험을 행한 결과, 여러 종류의 화학흡착된 산소가 제올라이트 내에 존재하며 구리이온을 중심으로 산소원자 다리모양으로 결합되어 있고 이것이 산화반응에서 중요한 역할을 한다고 보고하고 있다.

Table 2. The summary of oxygen temperature programmed desorption

Catalyst	Cation/Y (wt.%) ^{a)}	Cation content (μmol/g-cat.)	Amount of O ₂ desorbed ^{b)} (μmol O ₂ /g-cat.)	O/Cation
1.0 N Fe/Y(4.8)	7.25	1297.5	3.28	0.005
1.0 N Co/Y(4.8)	2.90	491.5	1.70	0.007
1.0 N Ni/Y(4.8)	2.41	410.3	0.77	0.004
1.0 N Mn/Y(4.8)	1.09	197.8	7.54	0.076
0.1 N Cu/Y(4.8)	2.75	432.2	513	0.214
0.5 N Cu/Y(4.8)	3.04	478.2	53.6	0.224
1.0 N Cu/Y(4.8)	3.32	523.3	58.1	0.222
2.0 N Cu/Y(4.8)	4.84	762.1	105.9	0.278

^{a)} analyzed by ICP

^{b)} calculated from TPD data

Table 2에 1 N 농도로 여러 가지 금속이 이온 교환된 촉매들과 Cu 이온의 농도를 달리하여 이온 교환시킨 Y형 제올라이트 촉매의 산소 승온 탈착실험 결과를 나타내었다.

여기서 얻어진 탈착산소는 대부분 화학흡착된 산소로서 벤젠의 연소반응에서 중요한 역할을 하는 것으로 생각된다. 촉매 1 g당 탈착되는 산소의 양과 제올라이트 골격 내에 존재하는 금속 이온당 탈착되는 산소의 양이 거의 비슷한 경향을 보여주고 있으며, 1 N 금속이온이 이온 교환된 Y형 제올라이트에서 앞의 Figure 3의 결과와 마찬가지로 Cu 이온으로 치환된 촉매가 가장 많은 양의 산소가 탈착되는 것을 볼 수 있다. 다른 금속이온으로 치환된 촉매의 경우에는 Cu-Y에 비해 월등히 낮은 탈착산소량을 보여주고 있다. 따라서 이와 같은 결과는 Figure 2에 나타난 벤젠연소 반응의 반응순서와 잘 일치하고 있는 것을 볼 수 있다.

Figure 4에 Cu 이온의 농도를 달리하여 이온 교환시킨 Y형 제올라이트 촉매에서 반응온도에 따른 벤젠 연소반응의 활성을 나타내었다.

이온 교환되는 Cu 이온의 농도가 커질수록 반응활성이 증가하는 것을 볼 수 있으며, 2 N 농도로 이온 교환된 촉매는 0.1 N 농도로 이온 교환된 촉매에 비해 90% 전환율을 보이는 온도가 40 °C 정도 낮아지는 것을 볼 수 있다. 이와 같은 결과는 Table 2에서 나타나듯이 이온 교환되는 Cu 이온의 농도가 커질수록 촉매 1g당 탈착되는 산소의 양과 제올라이트 골격 내에 존재하는 금속 이온당 탈착되는 산소의 양이 증가하는 것을 볼 수 있다. 따라서 Cu 이온의 농도가 증가할수록 Y형 제올라이트 내에 존재하는 화학흡착된 산소의 양이 증가하여 반응활성이 커지는 것으로 생각된다.

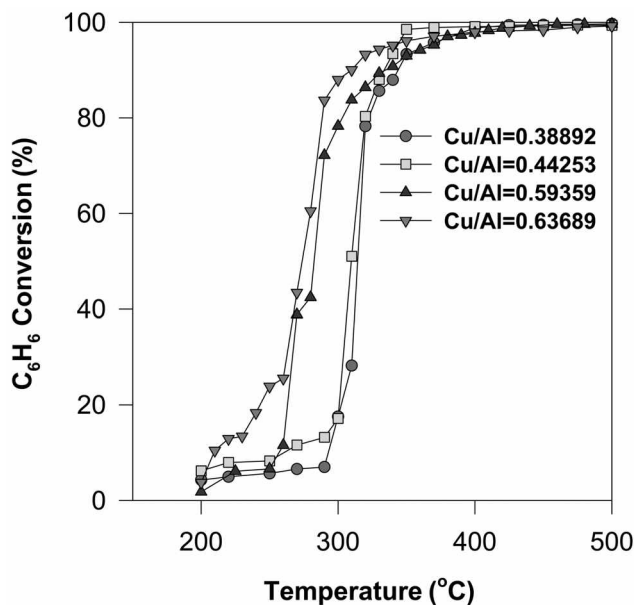


Figure 4. The effect of reaction temperature on the conversion of benzene over various Cu/Y(4.8) catalysts prepared using different concentration : O₂ concentration = 20%, benzene concentration = 1%, GHSV = 30,000 hr⁻¹.

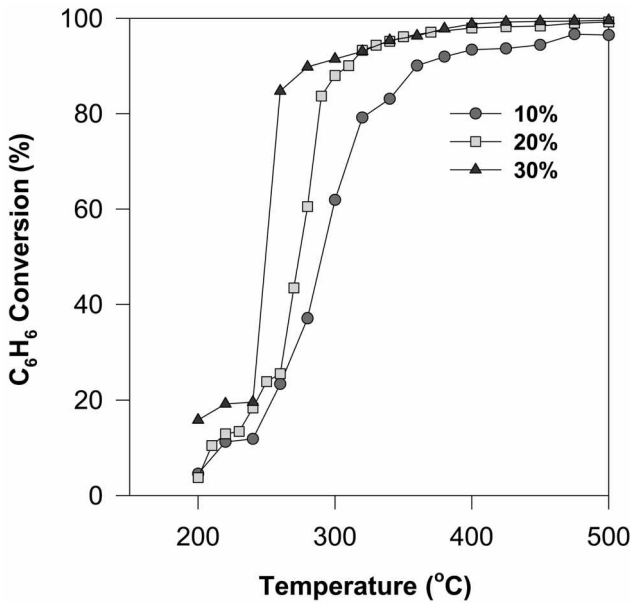
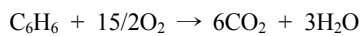


Figure 5. The effect of reaction temperature on the conversion of benzene at various oxygen concentration over Cu/Y(4.8) catalysts: benzene concentration = 1%, GHSV = 30,000 hr⁻¹.

3.3. 반응조건에 따른 반응활성

지금까지의 결과로부터 가장 높은 활성을 보여주는 Cu 이온이 치환된 Y형 제올라이트 촉매를 사용하여 여러 가지의 반응조건에 따른 벤젠 연소반응의 활성을 조사하였다. 우선 반응물에서의 산소의 농도에 따른 벤젠의 연소반응의 활성을 Figure 5에 나타내었다.

반응물 중 산소의 농도가 증가할수록 벤젠의 연소반응의 활성이 증가하는 것을 볼 수 있다. 일반적으로 벤젠이 완전 연소되는 반응은 다음 반응식에 의해 진행될 것이다.



본 연구에서는 반응물 중 벤젠의 농도가 1%이므로 산소의 농도가 7.5%가 공급될 경우 완전연소가 진행될 것으로 생각된다. 그러나 Figure 5에 나타나듯이 산소가 과잉인 10%가 공급되더라도 300 °C에서 40%의 전환율을 보여주었다. 그러나 산소가 과잉으로 공급될수록 벤젠의 연소반응의 활성은 점차 증가하였다. 특히 산소 농도가 10%일 경우에 비해 30%일 경우에는 90%의 전환율을 보이는 반응온도가 150 °C 정도 낮아지는 것을 볼 수 있다.

반응물에서의 벤젠의 농도에 따른 벤젠의 연소반응의 활성을 Figure 6에 나타내었다. 그림에서 나타나듯이 벤젠의 연소반응의 활성은 산소농도의 영향과 달리 벤젠의 농도에는 거의 영향을 받지 않는 것을 볼 수 있다. 이와 같은 결과는 벤젠의 연소반응은 산소 분압에 의해 결정된다는 것을 의미한다.

한편 탄화수소의 연소반응에서 배출되는 가스에는 다량의 수증기가 함유되어 있다. 따라서 물에 대한 저항성이 높은 촉매의 개발이 요구되고 있으므로 반응물에 공급되는 물이 벤

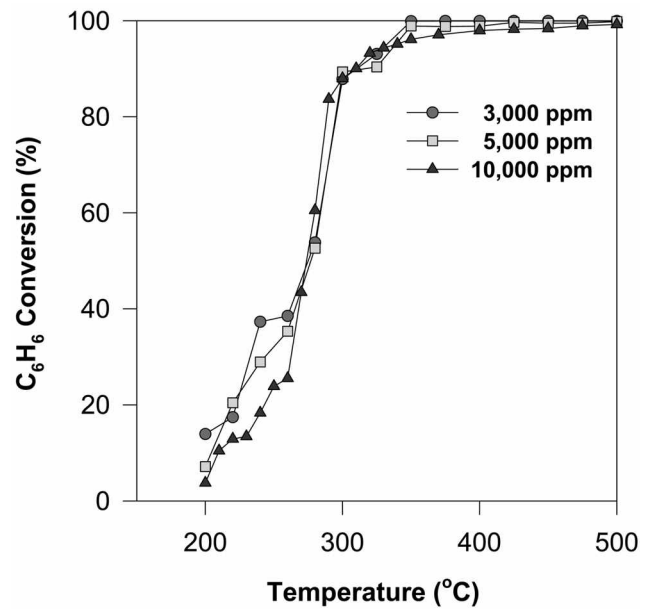


Figure 6. The effect of reaction temperature on the conversion of benzene at various benzene concentration over Cu/Y(4.8) catalysts: O₂ concentration = 20%, GHSV = 30,000 hr⁻¹.

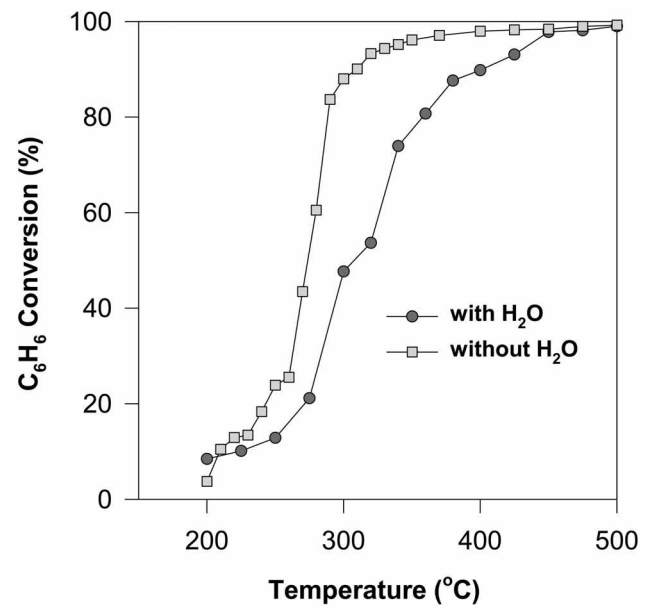


Figure 7. The effect of reaction temperature on the conversion of benzene in the presence of water over Cu/Y(4.8) catalysts: O₂ concentration = 20%, benzene concentration = 1%, GHSV = 30,000 hr⁻¹.

젠의 연소반응에 미치는 영향을 살펴볼 필요가 있다. Figure 7에 벤젠의 연소반응에서 반응물 중 물의 영향을 나타내었다. 반응물에 3%의 물이 함유된 경우에는 촉매의 활성이 감소하였으며, 특히 90% 전환율을 보여주는 반응온도가 80 °C 정도 높아지는 것을 볼 수 있다. 일반적으로 제올라이트의 경우에는 물에 대한 저항성이 낮은 것으로 알려져 있으나, 촉매의 활성이 낮아지는 것은 물분자가 반응물인 벤젠과 경쟁적으로

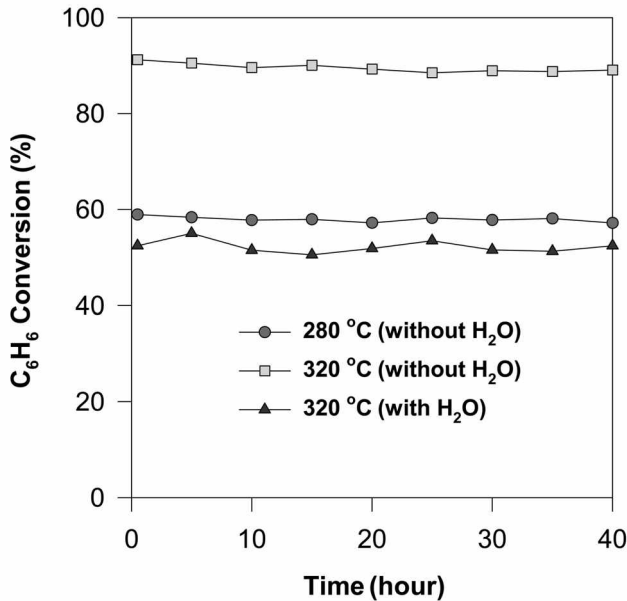


Figure 8. The effect of time on stream on the conversion of benzene over Cu/Y(4.8) catalysts: O₂ concentration = 20%, benzene concentration = 1%, H₂O = 3%, GHSV = 30,000 hr⁻¹.

촉매의 활성점에 흡착하여 반응물의 흡착을 방해하기 때문에 생각된다.

제올라이트 촉매는 탄화수소의 연소반응이나 산 촉매 반응에서 비활성화가 촉매에 침적되는 탄소로 인해 급격히 진행되는 경우가 있다[16]. 구리 이온으로 치환된 Y형 제올라이트 촉매를 장시간 사용하는 경우 촉매의 활성 변화를 Figure 8에 나타내었다.

Figure 8에 나타나듯이 40시간 동안 벤젠의 연소반응을 진행시켜도 비활성화가 전혀 진행되지 않는 것을 볼 수 있으며, 반응물에 물을 공급한 경우에도 역시 촉매의 비활성화가 일어나지 않았다. 이것은 구리 이온으로 치환된 Y형 제올라이트 촉매가 상업적으로 사용될 수 있다는 것을 의미한다.

4. 결론

여러 가지의 제올라이트에 서로 다른 금속이온을 치환시킨 촉매를 제조하여 벤젠의 연소반응에 사용하였다. 제조된 촉매에서 금속이온에 흡착되어 있는 흡착산소의 양을 측정하기 위하여 산소 승온탈착 실험을 하였다. 여러 가지 제올라이트 중 Y(4.8)형 제올라이트가 벤젠의 연소반응에서 가장 높은 활성을 보여주었고, Y(4.8)형 제올라이트에 치환된 다양한 금속 이온 중 구리이온이 가장 높은 활성을 보여주었다. 벤젠의 연소반응에서 촉매의 활성은 산소 TPD에 의해 얻어진 흡착산소의 양에 비례하였다. Cu/Y(4.8) 촉매에서 Cu 이온의 농도가 커질수록 반응활성이 증가하였다. 벤젠의 연소반응의 전환율은 반응물 중 벤젠의 농도보다는 산소 농도의 영향을 많이 받았다. 또한, 반응물에 첨가된 물은 촉매 활성을 감소시켰다.

감사

본 연구는 한국연구재단의 학술연구비(No. 2011-0006722)로 수행된 연구결과입니다. 연구비 지급에 감사드립니다.

References

- Spivey, J. J., "Complete Catalytic Oxidation of Volatile Organics," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **26**, 2165-2180 (1987).
- Becker, L., and Foster, H., "Oxidative Decomposition of Chlorobenzene Catalyzed by Palladium-Containing Zeolite Y," *J. Catal.*, **170**, 200-203 (1997).
- Jin, L., and Abraham, M. A., "Low-temperature Catalytic Oxidation of 1,4-Dichlorobenzene," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **30**, 89-95 (1991).
- Avgouropoulos G., and Ioannides T., "Selective CO Oxidation over CuO-CeO₂ Catalysts Prepared via the Urea-nitrate Combustion Method," *Appl. Catal. A*, **244**, 155-167 (2003).
- Lee, G. H., Lee, M. S., Lee, G. D., Kim, Y. H., and Hong, S. S., "Catalytic Combustion of Benzene over Copper Oxide Supported on TiO₂ Prepared by Sol-Gel Method," *J. Ind. Eng. Chem.*, **8**, 572-577 (2002).
- Jung, W. Y., and Hong, S. S., "Catalytic Combustion of Benzene over Perovskite-type Oxides Prepared Using Malic Acid Method," *Clean Technol.*, **18**, 259-264 (2012).
- Jung, W. Y., and Hong, S. S., "Combustion Characteristics of Benzene over LaMnO₃ Perovskite-type Catalysts Prepared Using Microwave-assisted Process," *Appl. Chem. Eng.*, **24**, 507-512 (2013).
- Yang, J. S., Jung, W. Y., Lee, G. D., Park, S. S., Jeong, E. D., Kim, H. G., and Hong, S. S., "Catalytic Combustion of Benzene over Metal Oxides Supported on SBA-15," *J. Ind. Eng. Chem.*, **14**, 779-784 (2008).
- Mochida, I., Hayata, H., Kato, A., and Seiyama, "Catalytic Oxidation over Molecular Sieves Ion Exchanged with Transition Metal Ions: III. Catalytic Activities of Molecular Sieves Ion Exchanged with Transition Metal Ions in the Oxidation of Propylene and Ethylene," *J. Catal.*, **23**, 31-37 (1972).
- Mochida, I., Jitsumatsu, T., Kato, A., and Seiyama, "Catalytic Oxidation over Molecular Sieves Ion Exchanged with Transition Metal Ions: VI. A Kinetic Study of the Oxidative Dehydrogenation of Cyclohexane over Y Sieve Ion-exchanged with Cupric Ion," *J. Catal.*, **36**, 361-370 (1975).
- Seiyama, T., Arakawa, T., Matsuda, T., Takita, Y., and Yamazoe, N., "Catalytic Activity of Transition Metal Ion Exchanged Y Zeolites in the Reduction of Nitric Oxide with Ammonia," *J. Catal.*, **48**, 1-7 (1977).
- Howe, R. F., and Lunsford, J. H., "Oxygen Adducts of Cobalt(II)-ethylenediamine Complexes in X- and Y-Type Zeolites," *J. Phys. Chem.*, **79**, 1836-1842 (1975).
- Donald, W. B, Zeolite Molecular Sieves, John Wiley & Sons,

- New York, pp. 379-439 (1974).
14. Ono, Y., Suzuki, K., and Keii, T., "Electron Spin Resonance Study of the Formation of Anion Radicals over Titanium Exchanged Y-Zeolite," *J. Phys. Chem.*, **78**, 218-220 (1974).
 15. Iwamoto, M., Maruyama, K., Yamazoe, N., and Seiyama, T., "Study of Metal Oxide Catalysts by Temperature Programmed Desorption. 2. Chemisorption of Oxygen on Copper(II) Ion-Exchanged Y-Type Zeolites," *J. Phys. Chem.*, **81**, 622-629 (1977).
 16. Hong, S. S., Woo, H. C., and Lee, G. D., "The Skeletal Isomerization of 1-Pentene over Solis Acid Catalysts," *J. Korean Ind. Eng. Chem.*, **7**, 902-912 (1996).