

실내환경 유해가스 제거를 위한 활성탄의 흡착특성

김인기[†]

한서대학교 신소재공학과

Adsorption Properties of the Activated Carbons for Removing Harmful Gases in Indoor Environments

In-Ki Kim[†]

Department of Material Science & Engineering, Hanseo University, Haemimyeon Seosan Chungnam 356-706, Korea

Activated carbons for removing harmful gases in indoor environments were prepared by impregnating granulated activated carbons from coconut chars into HCl and NaOH solutions. BET surface area of the activated carbons after 4 hours activation at 850°C were 1035 m²/g. And the activated carbons had total pore volume of 0.502 m³/g and average pore size of 19 Å. Adsorption capacities of the HCl-impregnated activated carbons were 6.9 g/100 g-AC for (CH₃)₃N gas of 10 ppm and 3.0 g/100 g-AC for NH₃ gas, respectively, which were 3~7 times larger than that of non impregnated activated carbons. Adsorption capacities of the NaOH-impregnated activated carbons showed 33 g/100 g-AC for H₂S gas of 10 ppm and 8 g/100 g-AC for CH₃SH gas, respectively, and these values were 5~18 times higher than that of non impregnated activated carbons, as well. Impregnated activated carbons rapidly adsorbed harmful gases in the adsorption box of 1m³ volume, which corresponds to living indoor environments. Especially, the concentration of H₂S gas decreased from 100 ppm to 1.2 ppm after 60 minutes adsorption, which means adsorption efficiency of 98.8%.

Key words: Impregnated activated carbon, adsorption, indoor gases, H₂S, CH₃SH, (CH₃)₃N, NH₃

1. 서 론

최근 아파트를 비롯한 일반 가정, 사무실, 자동차 실내에서 배출되는 유해물질로 인하여 두통, 각종 피부염, 알레르기 등 각종 질환이 발병되는 것이 밝혀지면서¹⁾ 이와 관련된 오염제거에 대한 관심이 많이 증가하고 있다. 현재 사무실이나 일반 가정환경과 같은 실내에서 발견되어지는 휘발성 유기화합물의 종류는 900가지 이상으로 보고되고 있으며²⁾ Robinson 등의 조사³⁾에 따르면 대부분의 사람은 하루 24시간 중 88% 정도를 빌딩과 같은 실내공간에 머무르고 있어 새집증후군,⁴⁾ 빌딩증후군⁵⁾을 비롯한 많은 질병의 원인이 되고 있다.

이러한 실내오염을 줄이기 위해서 신중한 건축자재의 선정이나 통풍구조의 개선처럼 건축 초기부터 접근하는 방안이 우선 검토되고 있으며⁶⁾ 이미 건축된 건물에 대해서는 실내오염공기를 정화하는 방법 등이 연구

되고 있다.⁷⁾

현재 실내오염물질을 정화하는 가장 손쉬운 방법은 활성탄의 흡착 특성을 이용하는 것이다. 일반적으로 활성탄은 휘발성 유기화합물들을 잘 흡착하는 성질을 가지고 있는데 모든 VOCs에 대해서 동일한 흡착특성을 가지고 있는 것은 아니다. 우선 VOCs 들의 분자량 혹은 분자크기는 이들 분자들이 활성탄 내의 기공내로의 흡착 여부를 결정하고 활성탄과의 상호 작용 능력에 따라 달라진다. 또한 활성탄의 균간을 이루는 탄소원자가 비극성 성질을 가지고 있어서 산성가스나 염기성 가스에 대해서는 이들의 극성에 따라서 흡착 효율이 상대적으로 변화한다.

이러한 이유 때문에 최근에는 활성탄 표면과 흡착질 분자간의 상호작용을 향상시키기 위하여 여러 가지 성분을 표면에 도입, 활성탄의 흡착성능을 향상시킬 수 있는 침착활성탄의 연구개발이 활발히 진행되

[†]To whom correspondence should be addressed.
karuso@hanseo.ac.kr

고 있다.^{8~14)} 침착활성탄 연구개발은 오염원에 따라서 침착물질을 결정하게 되는데 흡착가스의 극성을 이용한 산이나 알칼리 침착이 많이 연구되고 있다.^{15~18)}

본 연구에서는 실내 환경에서 발생하는 유해가스들을 흡착제거 할 수 있는 침착활성탄을 제조하기 위하여 야자각탄으로부터 조립활성탄을 만들고 이를 활성화 한 후 HCl과 NaOH를 침착시켰다. 그리고 대표적인 유해 및 악취가스에 해당하는 염기성 가스 H₂S와 CH₃SH 그리고 산성의 (CH₃)₃N와, NH₃에 대한 흡착 특성을 조사함으로써 실내 환경 유해가스 제거용 활성탄으로서의 흡착능력을 간접적으로 평가하고자 하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 출발원료의 활성화와 침착화

본 연구에서 사용된 출발 원료는 야각계 분말활성탄이었다. 흡착실험, 활성화 및 취급을 용이하게 하기 위하여 야자각탄 분말활성탄에 점결제인 클타르피치 등을 섞어 95°C에서 혼련한 뒤 조립 성형기를 이용하여 약 1cm 길이의 실린더형 조립활성탄으로 성형하였다.

조립상의 성형활성탄 중의 수분을 비롯한 휘발분을 건조시키기 위하여 105±5°C의 건조기에서 1일 동안 충분히 건조시켰고 활성화를 위하여 질소분위기 하의 관상 전기로에 넣고 분당 4°C의 속도로 850°C까지 승온시키고 수증기를 10 ml/min 흘려주면서 30~90분간 활성화시켰다.

활성화를 마친 조립상의 활성탄은 침착을 실시하기 전 오염물질을 제거하기 위하여 활성탄 1 g당 500 ml의 증류수로 충분히 세척하고 105°C로 조절된 건조기에서 1일 동안 충분히 건조하였다. 침착에 사용된 시약은 HCl, NaOH 등이었고 이들을 각각 5 wt %의 수용액으로 만들어 침착에 사용하였다. 침착은 침지 방법을 사용하였고 5 wt %의 각 침착 용액 500 ml에 조

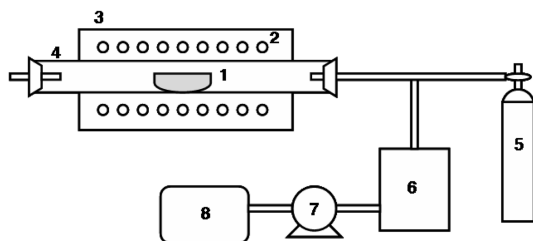


Fig. 1. Schematic diagram of activation system (1. sample 2. heating element 3. tube furnace 4. alumina tube 5. N₂ gas 6. steam generator 7. pump 8. water).

립활성탄 10 g을 넣고 6시간 침지한 후 여과기를 이용하여 조립활성탄을 분리하고 105±5°C의 건조기에서 6시간 건조하였다.

2.2. 가스흡착

흡착실험에 사용된 가스는 염기성의 H₂S와 CH₃SH 그리고 산성의 (CH₃)₃N과 NH₃ 등 4종이었다.

흡착은 가스의 농도에 따른 침착활성탄의 흡착량 변화와 흡착시간에 따른 흡착량 변화 측정 등 두 가지로 나누어 실시하였다. 먼저 각 흡착가스의 농도변화에 대한 활성탄의 흡착 성질을 알아보기 위하여 KSM 1802 활성탄 시험방법에 의거하여 흡착 실험을 실시하였다. 즉 유리로 제작된 U자관에 침착활성탄 5 g을 넣고 25°C로 조절된 항온조에서 여러 가지 농도로 흡착가스를 1시간 통과시킨 후 통과 전후의 무게 변화를 측정하여 흡착가스의 양을 구하였다.

한편 밀폐된 실내 환경 하에서의 흡착시간에 따른 활성탄의 흡착성능을 알아보기 위하여 일정용량의 용기에 활성탄과 흡착가스를 함께 넣은 실내 환경을 조성하고 시간에 따른 가스의 농도변화를 측정하였다. 흡착에 사용된 용기는 1m×1m×1m의 아크릴제로 제작하였고 용기 내부를 흡착하고자 하는 가스를 100 ppm으로 조절한 후 5g의 활성탄을 넣어둔 후 일정 시간 후

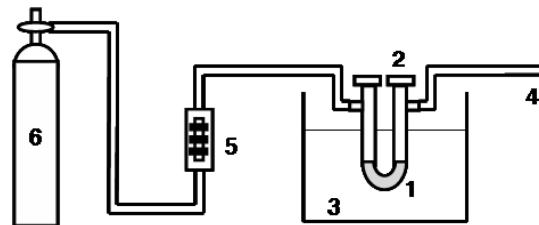


Fig. 2. Schematic diagram of adsorption experimental system (1. sample 2. U tube 3. water bath 4. vent 5. flow meter 6. adsorption gas).

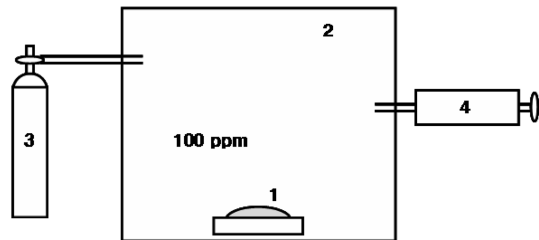


Fig. 3. Schematic diagram of experimental apparatus for adsorption capacity with time (1. sample 2. acrylic box 3. adsorption gas 4. gas detector).

의 가스를 채취 GASTEX사의 가스 검지기와 가스 검지관을 이용하여 가스 농도를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 활성화

분말활성탄을 조립화한 후 이를 750-850°C에서 30-90분 활성화를 실시하고 이들의 비표면적, 총기공부피, 평균기공 크기를 측정된 결과를 Table 1에 나타내었다.

활성화 온도가 750°C일 때 30분 활성화한 시료의 비표면적은 512 m²/g이었고 활성화시간이 60분, 90분으로 늘어감에 따라 비표면적이 603 m²/g, 735 m²/g으로 증가하였다. 활성화온도를 800°C, 850°C로 높아짐에 따라 비표면적이 크게 증가하였다(Table 1과 Fig. 4). 활성화 온도 750°C와 800°C에서 60분 이내에서 활성화 할 경우에는 비표면적이 크게 변하지 않았지만 활성화 시간이 90분으로 늘어나자 비표면적이 크게 증가하였다. 850°C에서의 활성화는 비표면적을 크게 증가시켰고 특히 90분 활성화 하였을 때에는 비표면적이 1021 m²/g에 이르렀다. 총기공부피는 750°C에서 30분 활성화 하였을 때 0.235 cm³/g에서 850°C 90분 활성화 하였을 때 0.502 cm³/g로 크게 증가하였고 비표면적 증가에 비례하여 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 한편 기공크기는 대략 19Å 정도의 중기공이 형성되어 있었다. 이처럼 중기공이 발달해 있어서 실내 환경 하에 존재하는 여러 가지 유기가스들의 분자크기를 고려할 때 이들의 흡착에 아주 유리한 기공구조가 형성되었다는 것을 알 수 있었다.

Fig. 5에 활성화 온도와 시간에 따른 수율을 나타내었다. 활성탄소의 수율은 시간에 따라 큰 영향을 받는 것으로 나타났다. 활성화 온도와 활성화 시간이 증가함

Table 1. BET Characteristics of activated carbons.

Sample	Surface area (m ² /g)	Total pore volume (cm ³ /g)	Average pore size (Å)
AC 750-30	512	0.235	19.2
AC 750-60	603	0.294	19.3
AC 750-90	735	0.382	19.5
AC 800-30	536	0.266	19.2
AC 800-60	652	0.325	19.4
AC 800-90	827	0.401	19.5
AC 850-30	751	0.378	19.6
AC 850-60	797	0.371	19.6
AC 850-90	1021	0.502	19.8

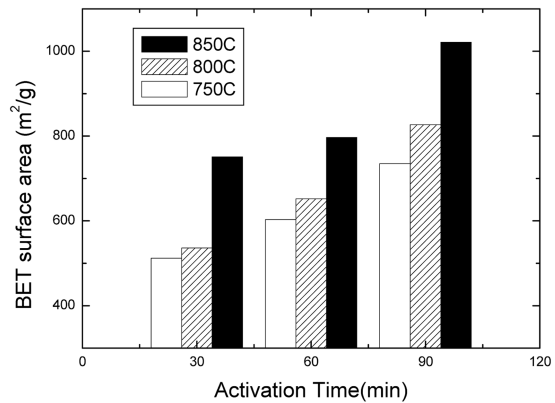


Fig. 4. Variation of BET surface areas with activation temperature and time.

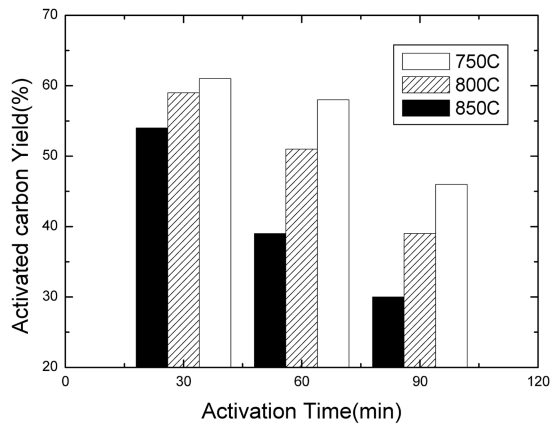


Fig. 5. Variation of AC yields with activation temperature and time.

에 따라 활성탄의 비표면적과 기공용적이 증가하게 되므로 기체화에 따른 활성탄 손실 또한 증가하였다. 활성화 시간이 30분의 경우에는 활성화 온도에 따라 큰 차이를 나타내지 않았지만 활성화 시간이 30분, 60분으로 증가하자 수율이 큰 폭으로 떨어졌고 850°C에서 90분간 활성화 할 경우에는 수율이 30%로 크게 감소하였다.

한편 비표면적 특성이 가장 우수한 850°C 활성화 조건하에서 활성화 시간을 4시간까지 늘려 흡착특성을 요오드 흡착량으로 측정하였는데 그 결과를 Table 2에 나타내었다.

850°C에서 60분 활성화한 요오드 흡착량은 950 mg/g이었고 활성화시간을 2시간에서 4시간으로 증가시키자 요오드 흡착량은 970 mg/g에서 1035 mg/g으로 크게 증가하여 조립활성탄의 흡착성능이 향상된 것을 확

Table 2. Adsorption properties of activated carbons with activation time.

Activation Item	Hardness (%)	I ₂ Adsorption (mg/g)	pH	Benzene Adsorption (%)
850°C 1 hr	99.9	950	10.0	22
850°C 2 hr	99.9	970	10.2	25
850°C 3 hr	99.7	1000	10.6	29
850°C 4 hr	99.5	1035	10.9	33

인할 수 있었다. 이러한 경향은 벤젠 흡착량에서도 확인할 수 있었는데 850°C에서 활성화 시간을 60분에서 4시간으로 늘리자 벤젠 흡착량이 22%에서 33%로 크게 증가하였다. 한편 이렇게 제조된 조립 활성탄은 경도가 꽤 높은 편으로 활성화 시간이 4시간 지난 후에도 99.5%를 유지하고 있었다.

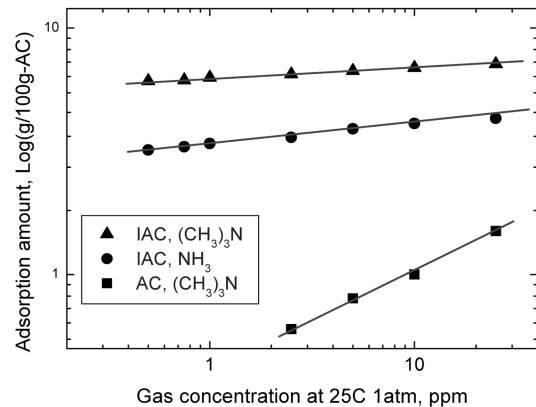
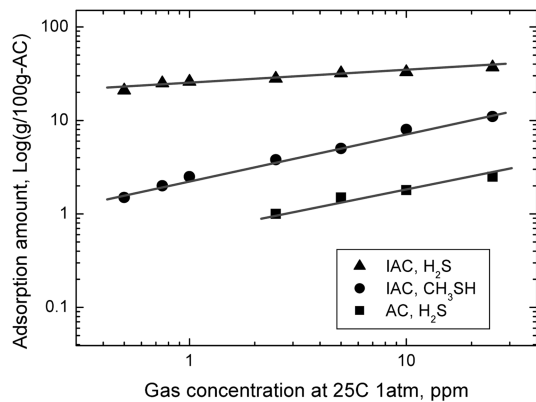
3.2. 침착활성탄의 가스 흡착특성

3.2.1. 침착활성탄의 가스 농도에 따른 흡착특성

Fig. 6과 Fig. 7은 850°C에서 4시간 활성화한 조립 활성탄과 NaOH와 HCl을 침착시킨 침착활성탄의 여러 가지 유해가스의 농도에 따른 평형 흡착량을 나타내었다. HCl을 침착시킨 것은 염기성 가스인 NH₃와 (CH₃)₃N을 흡착하기 위한 것이고 NaOH를 침착시킨 것은 알칼리 성질로부터 중화성질을 이용하여 산성가스인 H₂S와 CH₃SH를 흡착하기 위한 것이다.

그림에서와 보듯이 침착활성탄이나 침착되지 않은 활성탄 모두 가스의 종류에 상관없이 가스의 농도가 증가할수록 흡착량이 커지는 공통점을 보였다. 같은 농도 하에서는 침착하지 않은 조립활성탄의 흡착량이 가장 작게 나왔는데 이는 흡착가스들이 강한 산성 또는 염기성 성질을 가진 반면 비침착활성탄은 그렇지 못하기 때문인 것으로 판단되었다. 침착활성탄에서는 중화를 일으킬 수 있는 흡착가스에 대해 흡착량이 크게 증가하였다. 10 ppm 농도의 염기성 가스 (CH₃)₃N에 대해 비침착활성탄의 흡착량은 약 1 g/100 g-AC이었지만 HCl 침착 활성탄의 경우 6.9 g/100 g-AC로 증가하여 흡착능이 크게 향상된 것을 알 수 있었다. 10 ppm 농도하에서 암모니아 가스의 경우 흡착량이 3.0 g/100 g-AC으로 (CH₃)₃N에 비해서 다소 떨어진 것으로 측정되었으나 이를 활성탄에 대한 몰 비로 환산하면 0.12 : 0.18으로 (CH₃)₃N에 비해 암모니아 가스의 흡착량이 더 많은 것으로 나타났다.

비침착활성탄과 산성가스에 대한 NaOH 침착 활성탄

**Fig. 6.** Variation of adsorption amount of basic gases with gas concentration.**Fig. 7.** Variation of adsorption amount of acidic gases with gas concentration.

의 흡착량 분석 결과를 보면(Fig. 7) 침착하지 않은 활성탄의 경우 H₂S의 흡착량은 1.8 g/100 g-AC로 비교적 적은 양이었다. 이에 반해 NaOH 침착활성탄의 산성가스 흡착은 산성가스의 종류와 농도에 매우 큰 영향을 받았다. 10 ppm의 가스 농도 하에서 일반 활성탄이 1.8 g/100 g-AC의 H₂S 가스를 흡착한 반면 NaOH 침착활성탄의 경우 H₂S 흡착량이 33 g/100 g-AC로 18 배 이상으로 크게 증가하였다. 가스농도에 따라서도 흡착량이 크게 변화하였는데 특히 CH₃SH의 경우 저농도와 고농도에서의 흡착량이 큰 차이를 보였다. 동일한 가스 농도에서 가스 종류에 따라서도 큰 차이를 보였는데 1 ppm 정도의 농도에서는 CH₃SH의 흡착량보다 H₂S의 흡착량이 10배정도 높은 것으로 나타났다.

3.2.2. 밀폐용기 내에서 흡착특성

실내 환경과 같은 밀폐된 공간이나 공기순환이 원활

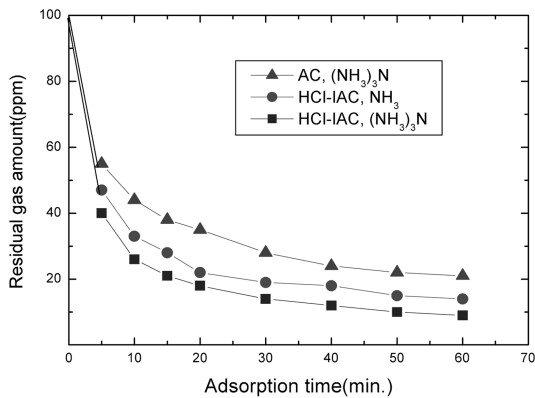


Fig. 8. Variation of residual amount of basic gases with adsorption time.

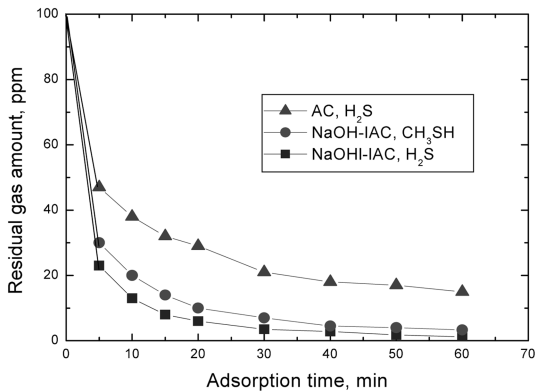


Fig. 9. Variation of residual amount of acidic gases with adsorption time.

하지 못한 공간에서는 활성탄이 실내에 존재하는 유해 가스 성분을 얼마나 빨리 효율적으로 제거할 수 있는가가 중요한 요인이 된다. 활성탄의 이러한 흡착특성을 알아보기 위하여 100 ppm 농도의 가스를 채운 1 m³의 흡착용기 내에 10 g의 활성탄을 넣고 시간이 지남에 따라 용기 내에 잔류하는 가스의 농도를 측정하여 이의 결과를 Fig. 8에 나타내었다.

HCl 침착활성탄에 의한 염기성 가스의 흡착은 초기부터 빠르게 일어나는데 흡착시간 5분경과 시 이미 약 50%정도까지 용기 내의 가스들이 제거된 것을 확인할 수 있었다. 이후 시간이 지남에 따라 완만하게 감소하였다. 60분경과 후 (CH₃)₃N 가스는 9 ppm으로 낮아졌으며 침착하지 않은 일반 활성탄은 약 21 ppm에 머물렀다. NaOH 침착 활성탄의 경우는 NH₃와 (CH₃)₃N의 흡착 속도가 매우 빨랐으며 이 결과를 Fig. 9에 나타내었다. 산성가스의 흡착은 염기성 가스에 비해 더

효과적으로 제거가 되었는데 60분의 흡착시간 경과 후 잔류 H₂S의 양은 1.2 ppm으로 98.8%의 흡착효율을 나타내었다.

4. 결 론

실내 환경의 유해가스 제거를 위한 활성탄을 제조하기 위하여 야자각탄으로 조립활성탄을 제조하고 이를 활성화한 후 HCl와 NaOH 등으로 침착활성탄을 만든 뒤 그 비표면적 특성과 유해가스에 대한 흡착성능을 평가한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 조립활성탄의 활성화 온도와 시간을 높임에 따라 비표면적과 총기공용적은 증가하였다. 850°C에서 활성화시 가장 좋은 특성이 얻어졌는데 850°C에서 30분 활성화시 비표면적은 751 m²/g였고 4시간 활성화시 비표면적은 1035 m²/g로 크게 증가하였다. 이때 총기공용적은 0.502 m³/g 이었고 평균기공 19Å의 중기공이 형성되었다.

2. HCl-침착활성탄은 10 ppm 농도의 (CH₃)₃N가스를 6.9 g/100 g-AC을, NH₃는 3.0 g/100 g-AC을 흡착하는 것으로 나타났고 활성탄에 대한 몰비로 환산할 경우에는 NH₃의 흡착량이 더 많았다. 이러한 흡착성능은 비침착활성탄에 비해 3-7배 우수한 것이었다.

3. NaOH-침착활성탄은 10 ppm의 농도의 H₂S 가스를 33 g/100 g-AC을, CH₃SH 가스의 경우에는 8 g/100 g-AC을 흡착하였고 비침착활성탄에 비해 5-18배 우수한 흡착성능을 나타내었다.

4. 실내환경을 조성하기 위한 1 m³ 크기의 용기 내에서의 활성탄에 의한 가스 흡착은 초기에 매우 빠르게 진행되고 시간이 지남에 따라 완만한 흡착을 보였다. HCl 침착활성탄의 경우 초기 100 ppm이었던 (CH₃)₃N 가스 농도는 60분경과 후 9 ppm으로 낮아졌고 침착하지 않은 활성탄은 21 ppm에 머물렀다. NaOH 침착 활성탄의 경우는 NH₃와 (CH₃)₃N의 흡착 속도가 매우 빨랐으며 100ppm 이었던 H₂S가스 농도는 흡착 60분 후 1.2 ppm으로 98.8%의 흡착효율을 나타내었다.

참고문헌

1. 김운신, *공기조화냉동공학회*, 1995, 24(1), 31-33.
2. B.O. Brooks, G.M. Utter, Ja.A. Debroy, and R.D. Schimke, *Clinical Toxicology*, 1991, 29(3), 315-374.

3. Robinson. J., and W.C. Nelson, **1995**, “*National human activity pattern survey data base*”, US EPA, Research triangle park, NC.
4. 김현중역, **2004**, “*새집증후군의 실체와 대응전략*”, 51, 한국목재신문사.
5. 김윤신, 노영만, **2005**, “*사무실 실내오염*”, 5-8, 산업보건.
6. Yong Hee Lee, Jeong Ah Yim and Hoon Yi, *J. of the Institute of Construction technology*, **2005**, 24(2), 51-61.
7. Hyeon-Ku Park, Jong-Ho Kim and Seong-Seok Go, *J. of the KOSOS*, **2006**, 21(2), 150-157.
8. M. Domingo-Garcia, A.J. Groszek, F.J. Lopez-Garzon and M. Perez-Mendoza, *Applied Catalysis A: General* **233**, **2002**, 141-150.
9. F. Stoeckli, A. Guillot and A.M. Siasli, *Carbon*, **2004**, 42, 1619-1624.
10. J.P. Boudou, *Carbon*, **2003**, 41, 1955-1963.
11. J.P. Boudou, M. Chehimi, E. Broniek, T. Siemieniowska and J. Bimer, *Carbon*, **2003**, 41, 1999-2007.
12. 심재운, 유승곤, *화학공학*, **1998**, 36, 903-907.
13. 양범호, 김철규, 김지동, 유승곤, *화학공학의 이론과 응용*, **1998**, 4, 2677-2680.
14. Yeon Jae Kim, Jun Goul Ju, Sung Ki Cho and Donguk Kim, *Applied Chemistry*, **2003**, 7(2), 607-610.
15. 심재운, 고경열, 김선영, 양범호, 유승곤, *화학공학의 이론과 응용*, **1997**, 3, 2097-2100.
16. 성주환, 이건홍, *화학공학의 이론과 응용*, **1997**, 3, 2093-2096.
17. Suk-Ki Lee, Yeong-Seong Park, *J. of Korean Society of Environmental Engineers*, **2000**, 22(5), 879-886.
18. Jung-Dae Lee, Suk-Hyun Ju, Sang-Chul Jung and Ho-Geun Ahn, *Applied Chemistry*, **2001**, 5(2), 292-295.