

## 폐 활성탄을 이용한 타일 제조 및 특성 평가에 관한 연구

박흥재<sup>†</sup> · 김민수 · 정징운 · 정 운 · 이봉현\* · 김영식\*\* · 박연규\*\*\* · 정성욱

인제대학교 환경학과

\*부산대학교 화학과

\*\*밀양대학교 환경공학과

## A Study on the Production of Tile using Waste Activated Carbon and its Character Evaluation

Heung Jai Park<sup>†</sup>, Min Su Kim, Jing Wun Jeong, Un Jeong, Bong Hun Lee\*,  
Young Sik Kim\*\*, Yeon Kyu Park\*\*\* and Sung Uk Jung

*Dept. of Environmental Science, Inje Univ., Kimhae 621-749*

*\*Dept. of Chemistry, Pusan National Univ., Pusan 609-735*

*\*\*Dept. of Environmental Engineering, Miryang National Univ., Miryang 627-702*

(Received 28 December 2000 ; Accepted 30 January 2001)

### ABSTRACT

The tiles were manufactured using a mixture of the TK material(a raw material in making tile) and Cu-Cr-Ag impregnated activated carbon(ASC charcoal). The extraction character of heavy metals in making tile was evaluated and the manufacturing conditions of tile were studied. The heavy metals in the mixture-before and after the tile was produced-were analyzed and the effects of the acidic and basic solution on the produced tile were examined. The production of tiles was successful and as a result of heavy metal analysis, the tile showed that the concentration of heavy metal after the production of tile was lower than that of the before one. The concentration of eluted heavy metal by acidic and basic solutions was low and the quality of the produced tile was similar to the commercial one. The result of this study suggested that the waste ASC charcoal was used to produce good tiles and it also might reduce the soil pollution.

**Keywords :** ASC charcoal, Tile, Heavy metal

### I. 서 론

석탄을 원료로 제조한 활성탄은 기상이나 액상에서 유해한 유기 물질을 효과적으로 제거하는 흡착제로 사용되고 있고, 환경 문제와 관련하여 배출 가스에서 유해 가스 제거 또는 공기 정화 등 활성탄의 이용이 급속히 증가하고 있다. 일반적으로 활성탄 정화 방법은 다른 습식 처리장에 비하여 유기, 무기의 광범위한 유해 가스에 적용할 수 있는 장점이 있다. 특수한 예라면 화학전에 사용되는 방독면이 최소형 장치라 할 수 있고, 수술실, 동물 실험실 등에 이용할 때 다른 어떤 장

치로도 불가능한 것을 유효하게 활용할 수 있는 것이다. 국내 입상 활성탄의 2000년 예상 수요량은 91년 기준 195%(연평균 19.5% 신장), 분말 활성탄의 2000년 예상 수요량은 91년 기준 20%(연평균 2% 신장)로 증가되리라 예상된다.

다공성의 활성탄에 Cu, Cr 및 Ag를 침착한 ASC 활성탄은 활성탄 자체의 물리적 흡착 성능과 함께 침착물(impregnant)에 의한 화학 흡착 성능을 동시에 발휘할 수 있어 각종 유해 독가스를 제거하는 방독면의 정화통이나 공기 정화 장치에 사용하고 있다. 활성탄에 담지된 Cu 및 Cr 이온은 각각 2가 및 6가로 유지되어야 독성 기체에 대한 활성 작용이 있으므로 활성탄 입자를  $\text{CuCO}_3$ ,  $\text{Cu(OH)}_2$ ,  $\text{CrO}_3$ ,  $\text{AgNO}_3$  및  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ 를 암모니아수에 녹인 침착 용액에 침적시켜 제조하며 이중 Cr(VI)은 특히 시안 화합물의 제독

<sup>†</sup>Corresponding author : Department of Environmental Science, Inje University, Kimhae 621-749  
Tel: 055-320-3418, Fax: 055-320-3418  
E-mail: envphi@ijnc.inje.ac.kr

에 사용된다.<sup>1,2)</sup> 따라서 최종 ASC 활성탄 표면에는 건조 공정을 거친 후 Cu-Cr-NH<sub>3</sub>를 포함하는 복잡한 착물이 존재하며<sup>3)</sup> 공기중의 수분, 온도 및 각종 가스에 노출 시 활성 저하를 방지하기 위하여 밀폐 용기에 보관한다.

ASC 활성탄에 침착된 Cr은 독성이 강하고 용해도가 높을 뿐만 아니라 발암성 물질이기 때문에<sup>4,5)</sup> 최근 Cr을 Zn, Mo, Co 및 V로 대체하려는 연구가 진행<sup>6,7)</sup>중에 있다. 따라서 현재 사용중인 ASC 활성탄은 사용시한이 만료되어 폐기될 경우 지정 폐기물로 분류되어 환경 관리법의 적용을 받게 되며, 특히 용해도가 높고 열적으로 불안정한 Cr은 토양 오염 및 하천 오염을 유발시켜 동, 식물과 인체에 해를 끼친다. 그러므로 폐 활성탄을 적절하게 처리하기 위하여 위해성 평가와 함께 용출 실험을 통한 특성 연구를 철저히 해야 할 필요성이 대두되어 본 연구에서는 이에 중점을 두고 연구하였다.<sup>10)</sup> 한편 강우에 의한 중금속 용출은 금속의 부식, 호수, 삼림, 생태계의 파괴, 나아가 인류에의 피해 등이 세계 각국에서 주요 관심사로 등장하고 있으며 우리 나라에서도 그 피해가 나타나고 있다.<sup>11,12)</sup>

본 연구에서는 방독면의 정화통이나 공기 정화 장치에 사용하는 ASC 활성탄에 대하여 일정 기간 사용 후 폐기 시 환경 위해성이 높은 중금속 용출의 피해를 줄이기 위한 한 방법으로, 폐 ASC 활성탄과 기존 타일 원료를 일정 비율로 혼합하여 건축 자재로 사용이 가능한 타일을 제조하고 나아가 폐 ASC 활성탄에 의한 환경 오염을 줄이는 방법을 모색하고자 한다.

## II. 재료 및 방법

### 1. 시료

침착 활성탄은 방독면의 공기 정화통 및 가스 입자 여과기에 사용하고 있는 미국 Calgon 사의 ASC 활성탄(입자 크기: 12×30 mesh)으로 사용 시한이 만료된 ASC 활성탄을 사용하였다. 폐 ASC 활성탄의 금속 성분(Cu, Cr, Ag)의 추출을 위하여 사용한 용출 용액은 HCl(PFP Japan)과 NaOH(Junsei Chemical Co. Japan)를 사용하였다. 추출 용액의 pH 측정은 Digital pH/Ion Meter(Dongwoo Medical Systems Co. Ltd, Model DP-215M)를 사용하였다. 표준 용액으로 Cu, Cr은 Sigma사의 제품(Sigma 1000 ppm, USA)을 구입하여 사용하였으며, Ag는 AgNO<sub>3</sub>(Showa Chemical) powder를 탈 이온수에 녹여 1000 ppm으로 만들어 사용하였다. 타일 원료로는 TK(tunnel kiln) 소지를 사용하였다.

**Table 1.** The mix ratio of spent ASC charcoal and TK tile material

Weight (%)	ASC charcoal(g)	TK tile material(g)	Moisture (g)	Total (g)
3	0.75	22.75	1.50	25
5	1.25	22.25	1.50	25
7	1.75	21.75	1.50	25
10	2.50	21.00	1.50	25
13	3.25	20.25	1.50	25
15	3.75	19.75	1.50	25
17	4.25	19.25	1.50	25
20	5.00	18.50	1.50	25

### 2. 폐 ASC 활성탄과 타일 원료의 혼합에 의한 타일 제작

본 연구에서는 폐 ASC 활성탄의 활용 방안의 하나로 폐 활성탄의 일반적인 성상을 고려하여 타일 원료로서의 적용 가능성에 대하여 조사하였다. 폐 활성탄과 타일 원료의 혼합 비율은 예비 실험 결과를 고려하여 타일 원료에 대한 폐 활성탄의 함량을 3, 5, 7, 10, 13, 15, 17 및 20%가 되게 하였고, 혼합 전체량은 25g으로 하였다(Table 1). 또한 입경 mesh별 특성을 조사하기 위하여 타일 원료 입경 20 mesh 입자와 폐 활성탄 입경 20 mesh 입자, 타일 원료 140 mesh 입자와 폐 활성탄 140 mesh 입자, 타일 원료 20 mesh 입자와 폐 활성탄 140 mesh 입자, 타일 원료 140 mesh 입자와 폐 활성탄 20 mesh 입자를 사용, 다음 과정으로 타일을 제조하였다.

양질의 타일을 제작하기 위하여 원료에 함유된 유기물이나 수분은 450°C의 전기로에서 20분간 가열하여 제거한 후, 혼합 시료에 함유되어 있는 잔사를 절구에서 3시간 동안 분쇄시켰다. 이와 같은 과정을 거친 분말을 건조시켜 20 mesh 및 140 mesh체로 거른 후 수분을 총 중량의 6% 정도 함유되도록 증류수를 가하는 데 고른 숙성을 위하여 건조되지 않도록 숙성 용기에 밀봉, 48시간 방치하였다. 숙성된 시료를 건조한 후 분말을 250 kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 3초, 300 kg/cm<sup>2</sup>로 5초 동안 가압하여 직경 5cm인 시편을 만들고 제작된 시편을 1230°C에서 소성하여 타일을 만들었다.

### 3. 타일의 중금속 함량 분석

폐 활성탄과 타일 원료인 TK 소지를 혼합하여 만든 타일을 부수어 1g씩 정확히 평량하여 비커에 넣고 pH 4, 5, 6, 7, 9 및 13인 용액 10 ml를 가하여 24시간 동안 진탕하고 여과 후 일정량을 시료로 하여 Inductively Coupled Plasma(SPA 1200A Plasma Spectrophotometer, SII Seiko Instrument)를 사용하여

Cu, Cr 및 Ag를 분석하였다.<sup>11,12)</sup>

### III. 결과 및 고찰

#### 1. 제작된 타일의 소성 특성

폐 활성탄을 20, 140mesh의 두 종류로 하고 혼합 전체 량에 대해서 폐 활성탄 함량을 3, 5, 7, 10, 13, 15, 17 및 20%로 타일을 제조하였다. 이렇게 제작한 타일의 소성 특성을 비교한 결과, 폐 활성탄과 타일 원료가 동일한 입경으로 제작된 타일에서 입경이 작은 폐 활성탄 140 mesh 입자의 함량이 많을수록 소성 과정에서 균열과 변형이 일어났으며, 입경이 큰 20 mesh 입자의 경우가 소성이 잘 이루어졌다. 전체적으로 폐 활성탄 입경이 큰 20 mesh 입자가 혼합된 타일에서 입경이 작은 140 mesh 입자 경우보다 균열과 변형이 적었으며, 폐 ASC 활성탄의 함량이 적을수록 소성이 잘 이루어졌다. 이는 타일 제작 시 폐 ASC 활성탄의 이차 분쇄 과정을 줄임으로써 타일 제작 공정을 줄일 수 있고, 제작 비용의 절감 효과도 기대된다.

#### 2. 폐 ASC 활성탄 함량에 따른 수축률

폐 활성탄과 타일 원료를 혼합하여 제작한 타일의 수축률은 Table 2와 같았다. 폐 활성탄 입경과 무관하게 폐 활성탄의 함량이 적을수록 수축률이 낮았다. 즉, 폐 활성탄의 함량이 가장 적은 3%일 때는 20 및 140 mesh에서 각각 13.1%와 13.4%를 나타내어 입경 차이에 따른 변화는 거의 없었으나, 폐 활성탄 함량이 20%인 경우에는 20과 140 mesh에서 각각 25.0%와 24.3%를 나타내어 폐 활성탄 함량 3%에 비해 약 2배 정도의 수축률을 나타내었다.

#### 3. 타일 제작 전 ASC 활성탄과 TK 소지의 중금속 농도

폐 활성탄의 중금속 함량 분석 결과, Cu와 Ag는

**Table 2.** The contraction ratio of the tile produced from the mixture containing spent ASC charcoal

Mix ratio (%)	Contraction ratio (%)	
	20 mesh	140 mesh
3	13.1	13.4
5	14.6	14.8
7	16.0	16.1
10	18.3	18.3
13	20.9	20.8
15	22.2	22.3
17	23.6	23.1
20	25.0	24.3

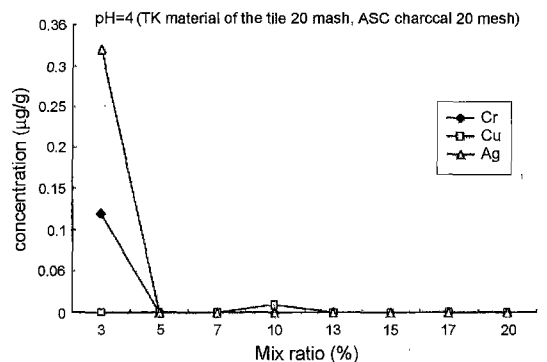
**Table 3.** The extraction concentration of heavy metal in spent ASC charcoal

pH	Heavy metal (µg/g)		
	Cr	Cu	Ag
4	8.30	0.02	-
5	10.52	-	-
6	10.09	-	-
7	9.90	-	-
9	13.10	0.01	-
13	18.94	0.02	-

거의 검출되지 않았고 Cr은 pH의 증가에 따라 고농도로 용출되어 pH 13에서 18.94 µg/g로 최고 농도이었다(Table 3). 이와 같은 경향은 이 중철 등<sup>13)</sup>의 연구에서와 같이 pH가 높을수록 용매의 OH<sup>-</sup> 이온의 농도가 높아짐에 따라 활성탄 표면이 탈수소이온화(deprotonation)되며 화합물 내의 음이온과 활성탄 표면의 결합력(complexation)이 약화되어 Cr이 쉽게 용출되기 때문이라 생각된다. 이러한 현상은 토양이나 콘크리트 등에 흡착된 Cr의 용출 특성에서도 찾아볼 수 있었다.<sup>14)</sup> 한편 TK 소지에서의 중금속 함량 분석 결과 Cr과 Ag는 검출되지 않았고 Cu는 pH 13에서만 0.02 µg/g 검출되었다.

#### 4. pH에 따른 타일의 중금속 용출 특성

폐 활성탄과 타일 원료를 혼합했을 경우 pH 4, 5, 6, 7, 9 및 13인 용액에 의한 중금속 용출을 20 및 140 mesh 입경별로 조사하였다. 먼저 폐 활성탄 입경이 20 mesh일 때 중금속 용출량은 Fig. 1-6에 나타난 바와 같이 Cr의 경우 pH 13에서 활성탄의 함량이 5%일 때 가장 높은 농도 0.22 µg/g가 용출되었다. Cu의 경우는 pH 5와 9에서 폐 활성탄의 함량이 15 및 20%에



**Fig. 1.** Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=4, 20 mesh).

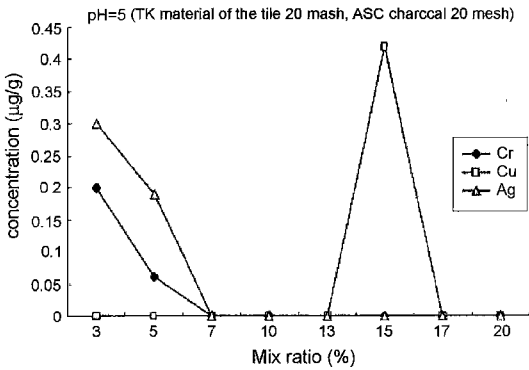


Fig. 2. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=5, 20 mesh).

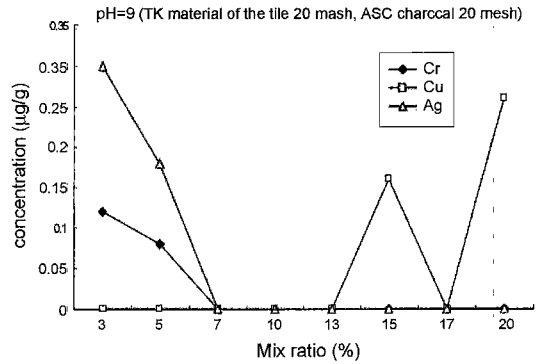


Fig. 5. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=9, 20 mesh).

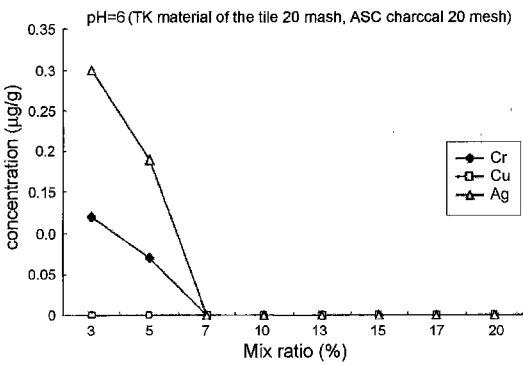


Fig. 3. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=6, 20 mesh).

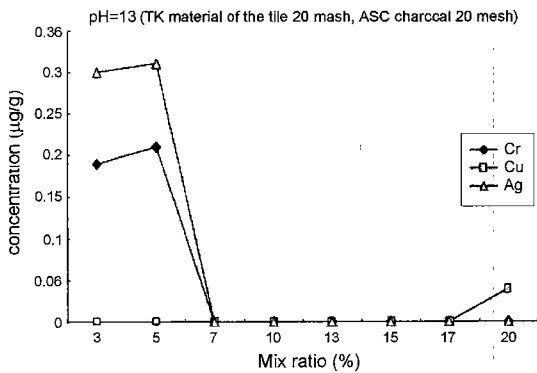


Fig. 6. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=13, 20 mesh).

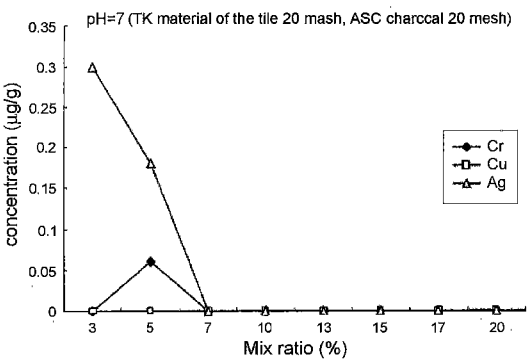


Fig. 4. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=7, 20 mesh).

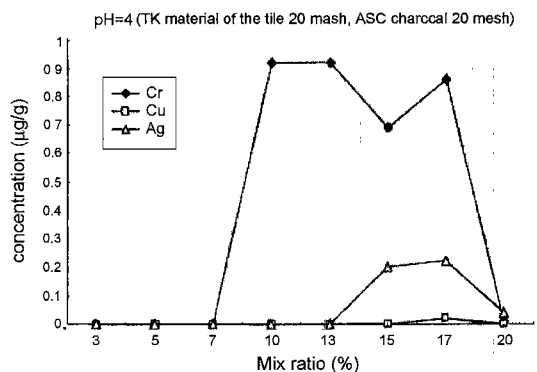


Fig. 7. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=4, 140 mesh).

서 가장 많이 검출되었다. Ag는 pH와 무관하게 폐 활성탄 함량이 5% 이하에서 용출되었다. 전체적으로 폐 활성탄 20 mesh에서 Cr 및 Ag는 용출 용액의 액성과는 무관하게 용출되었으며 Cu는 폐 활성탄의 함량이

많을 때 고농도로 용출되었다.

폐 활성탄 입경이 140 mesh의 경우 Cr은 Fig. 7~12에서 알 수 있듯이 전 pH 범위의 용액에 의하여 용출이 많이 되었고, 폐 활성탄의 함량이 10% 이상일 때

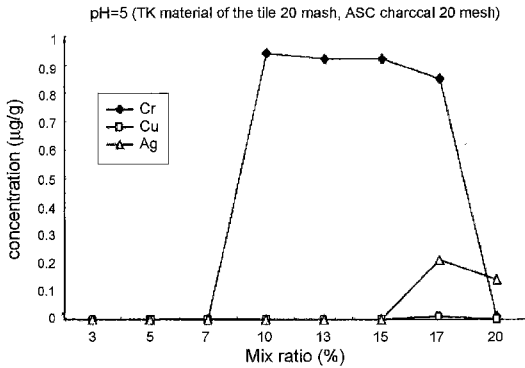


Fig. 8. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=5, 140 mesh).

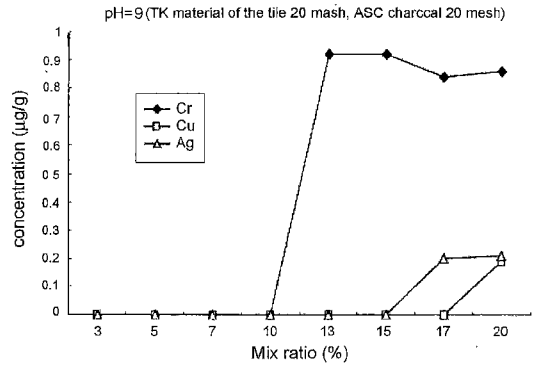


Fig. 11. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=9, 140 mesh).

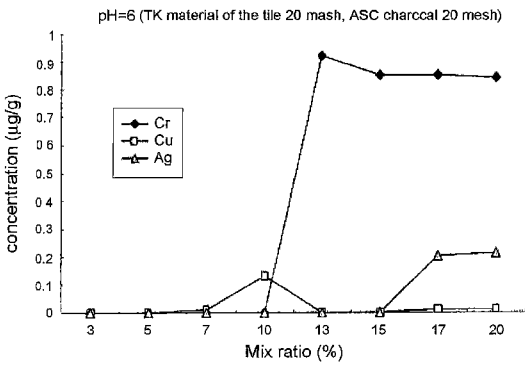


Fig. 9. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=6, 140 mesh).

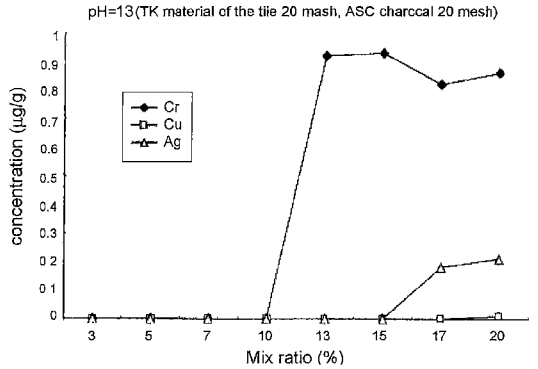


Fig. 12. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=13, 140 mesh).

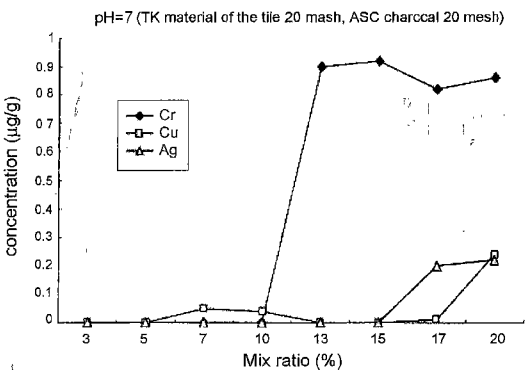


Fig. 10. Effect of ASC charcoal mixing ratio on extraction of heavy metals from the tile (pH=7, 140 mesh).

고농도로 검출되었으며, Cu는 용출 용액의 pH나 폐 활성탄의 함량과는 무관하였고 용출량도 아주 적었다. Ag의 경우는 대체로 pH와 무관하게 폐 활성탄의 함량이 17% 이상일수록 용출되는 경향을 나타내었다. 입

경별로 비교해보면 Cr은 140 mesh에서 중금속의 용출량이 더 많았고 Cu와 Ag는 20 mesh에서 용출량이 더 많았다.

#### IV. 결 론

방독면의 정화통이나 공기 정화 장치에서 사용된 후 문제가 되는 폐 ASC 활성탄을 대상으로 폐 ASC 활성탄에 의한 환경 위해성이 높은 중금속 용출 오염을 줄이기 위해 TK 소지와 ASC 활성탄을 일정 비율로 혼합하여 타일을 제작하고 pH 변화에 따른 타일 제작 전과 후의 중금속 용출 여부를 실험, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 제조된 타일의 소성 특성은 폐 ASC 활성탄 입경이 큰 경우가 입경이 작은 경우보다 균열과 변형이 적었으며, 폐 ASC 활성탄의 함량이 적을수록 소성이 잘 이루어졌다. 타일의 수축률은 폐 ASC 활성탄의 전 입경에서 폐 ASC 활성탄 함량이 적을수록 수축률이 낮

게 나타났다.

2. 폐 ASC 활성탄과 타일 원료의 입경 및 혼합 비율을 달리하면서 타일을 제작하였고 폐 ASC 활성탄과 타일 원료가 동일한 입경으로 제작된 타일 보다 동일하지 않은 입경으로 제작된 타일에서 중금속 용출이 아주 적었다.

3. 타일의 중금속 용출을 pH의 변화에 따라 실험한 결과로부터 폐 활성탄을 이용한 타일 제조 시 소성이 양호하고 중금속 용출을 최대한 억제할 수 있는 최적의 혼합 조건은 20 mesh 입경의 폐 활성탄을 7, 10 또는 13%로 혼합할 경우로 생각되었다.

4. 이상과 같은 결과로부터 일정 기간 사용 후 폐기되는 폐 ASC 활성탄을 타일로 제작함으로써 토양에 폐기 시 야기되는 환경 오염을 줄일 수 있으리라 생각된다.

### 참고문헌

- 1) 이종철, 양용식, 양재규 : Cr-Cu-Ag 침착 활성탄으로부터 Cr(VI)의 추출에 관한 연구. 한국폐기물 학회지, 14(1), 1997.
- 2) Deitz, V. R., Robinson, J. N., and Poziomek, E. J.: Electron transmission microscopy of charcoals impregnated with ammonium salts of Cu(II) and Cr(VI), Carbon. 13, 181-187, 1975.
- 3) Holdway, D. A.: Chromium in the Natural and Human Environments, John Wiley & Sons, N.Y., U.S.A., p.370, 1988.
- 4) Deitz, V. R., and Karwacki, C. J.: Chemisorption of Cyano-containing Vapors by Metal-Ligand Structures Adsorbed by Activated Carbon, Carbon, 32(4), 703-707, 1994.
- 5) 유재형, 이한철, 이영식 : 제철소 Slag의 중금속 용출 특성에 관한 연구. 한국 환경과학회지, 1(1), 1992.
- 6) 송기형, 박용남, 정용승 : 충청북도 농촌지역의 강수 산성도에 관한 기초 연구. 한국 대기 보전 학회지, 8(1), 38-44, 1992.
- 7) Hammarstrom, J. L., and Sacco, A. J.: Investigation of Deactivation Mechanisms of ASC Whetlerite Charcoals, J. Catal. 112, 267-281, 1988.
- 8) 서병직 : 폐기물 발생 예측과 자원화 활용 방안에 관한 연구, 한양대학교 환경과학 대학원, 석사학위 논문, p.50, 1989.
- 9) 심상규 : 산성비, 화학 세계, 대한 화학회, 32(7), 640-646, 1992.
- 10) 이민희 : 산성비 강하 물질 분석, 대기 오염 물질의 장거리 이동과 산성비 강하에 관한 연구, 국립 환경 연구원, 1990.
- 11) 송승달 : 금호강 유역의 수질, 토양 및 무의 중금속 함량에 관한 연구, 경북대학교 보건대학원 학위논문집, 1984.
- 12) 김동민, 안승규, 이동훈 : 슬래그 여재에 의한 Cr 이온의 제거 효율, 흡착량 및 pH 상승 효과에 관한 실험적 연구. 대한 환경공학회지, 3(1), 39-47, 1981.