

## Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 및 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 침착활성탄을 이용한 CO<sub>2</sub> 제거 - 고정층 반응기에서의 CO<sub>2</sub> 흡착특성 -

최원준 · 정종현\*<sup>†</sup>

부산대학교 환경공학과, \*서라벌대학 보건행정과  
(2008. 5. 11. 접수/2008. 5. 30. 수정/2008. 6. 15. 채택)

## Removal CO<sub>2</sub> Using Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> and Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> Impregnated Activated Carbon - Characteristics of CO<sub>2</sub> Adsorption in Fixed Bed Reactor -

Won-Joon Choi · Jong-Hyeon Jung\*<sup>†</sup>

Department of Environmental Engineering, Pusan National University

\*Department of Health Administration, Sorabol College

(Received May 11, 2008/Revised May 30, 2008/Accepted June 15, 2008)

### ABSTRACT

The purpose of this study was to gain basic information on the characteristics of CO<sub>2</sub> adsorption in relation to Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-impregnated activated carbon in a Fixed Bed Reactor. From the results of this study the following conclusions were made: Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-impregnated activated carbon had a longer breakthrough time and more enhanced adsorption capacity than activated carbon alone. When tested with isothermal adsorption and tested for CO<sub>2</sub> adsorption the amount of CO<sub>2</sub> adsorbed varied with temperature, CO<sub>2</sub> inlet concentration, gas flow rate, aspect ratio, etc. Based on the results, when Langmuir, Freundlich and Dubinin-Polanyi adsorption isotherms were used for linear regression of isothermal adsorption data, Langmuir adsorption isotherm was the most suitable. And, the optimum condition for Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> and K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> impregnated activated carbon make-up was 1N and Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> was 0.1N. It could be concluded that adsorption capacity was decreased with adsorption temperature and increased gas concentration. When the aspect ratio (L/D) was varied 0.5, 1.0 and 2.0, the significant drop of adsorption amount was observed below 1.0 and breakthrough time was shortened with gas flow rate.

**Keywords:** impregnated activated carbon, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, carbon dioxide, alkali metal salt, adsorption

### I. 서 론

화석사용량의 증가와 이산화탄소 등의 농도 상승에 따른 지구온난화와 기후변화, 해수면 상승 및 기상이변, 오존층파괴, 사막화, 산성우, 생물다양성 감소, 유해화학물질 노출 및 환경호르몬 등 범지구적 환경문제와 보건환경학적 문제가 대두되고 있고, 최근 황사와 이황산가스 및 질소산화물 등의 대기오염물질이 동북아 지역 내에서 국경을 넘어 이동하는 현상이 빈번하게 발생하고 있는 실정이다.<sup>1-5)</sup> 특히 지구온난화 문제가 심각

해지면서 온실가스 방출을 억제하고자 1997년 채택된 교토의정서가 2004년 10월 러시아의 비준으로 2005년 2월 16일 발효되었다. 우리나라의 경우 중국, 인도 등과 함께 1차 의무이행 대상국에서는 제외되었지만, 2004년 국제에너지기구(IEA)에 따르면 우리나라의 이산화탄소 배출량이 세계 9위로 총배출량의 1.79%를 차지하여 온실가스 의무감축 부담이 현실화될 가능성이 높아지고 있다. 또한, 2020년 CO<sub>2</sub> 배출량 전망치 대비 10%를 줄일 경우 GDP의 0.29%인 3조 9천억원의 GDP 감소가 예상되므로 이에 대한 적극적인 대책 마련이 필요한 실정이다.<sup>6)</sup>

주요 온실가스로는 CO<sub>2</sub>(이산화탄소), CH<sub>4</sub>(메탄), N<sub>2</sub>O(아산화질소), HFC(수소불화탄소), PFCs(과불화탄소), SF<sub>6</sub>(육불화황) 등이 있으며, 지구온난화지수에서 CO<sub>2</sub>를

<sup>†</sup>Corresponding author : Department of Health Administration, Sorabol College  
Tel: 82-54-770-3713, Fax: 82-54-741-5429  
E-mail : airgas@sorabol.ac.kr

1로 볼 때, CH<sub>4</sub>는 21, N<sub>2</sub>O는 310, HFC는 1,300, PFCs는 7,000, SF<sub>6</sub>은 23,900으로 SF<sub>6</sub>의 경우 온실효과를 일으키는 잠재능력이 CO<sub>2</sub> 보다 23,900배나 크다. 그러나 온실가스 중 CO<sub>2</sub> 배출량은 2001년 기준으로 131,178천 TC로 그 비중은 89%를 차지하고 있으며,<sup>6)</sup> 발생량에 따른 CO<sub>2</sub>의 온실효과 기여도는 55% 이상을 차지하는 것으로 알려져 있으므로 CO<sub>2</sub>가 지구온난화 논의의 주요 대상이 되고 있다. 이러한 상황에서 CO<sub>2</sub>를 저감할 수 있는 방법에는 분리 특성에 따라 크게 심냉법, 흡수법, 막분리법 및 흡착법 등이 있으며, 이 중 심냉법은 과다한 에너지 사용으로 인하여 경제성이 취약한 실정이고, 아민계 흡수제를 이용한 흡수법은 현재 국외에서 상업적으로 이용되고 있음에도 불구하고 설비투자비의 증가 및 부식성이 크다는 단점이 부각되고 있다. 또한, 막분리 공정은 근래까지 뚜렷한 실용화 공정이 적용된 예가 없는 실정이며, 최근에는 두 가지 이상의 기술을 접목한 hybrid 공법이 선진국에서 연구되고 있는 추세이다.<sup>7)</sup>

한편, 흡착에 의한 CO<sub>2</sub> 제어를 위하여 이용되는 건식법은 조업 중 부식문제가 발생하지 않고 설비의 가동시간이 짧으며, 흡착제의 수명이 길고 손실이 없으며 연소배가스로부터 CO<sub>2</sub>를 분리하는데 이상적인 공정으로 평가되고 있다.<sup>8)</sup> 흡착공정에서 흡착제는 공정 성능을 좌우하는 가장 중요한 요소이다. 따라서 CO<sub>2</sub>의 흡착 성능 증진을 위한 흡착제 개발에 관한 연구들이 보고되고 있다.<sup>9)</sup> 그러나 일반활성탄은 단순한 물리적인 흡착으로 충분한 흡착성능을 확보하지 못해 운전효과가 높지 않은 것으로 보고되고 있어 흡착성능을 증가시키기 위한 방안으로 활성탄의 표면 개질에 대한 연구가 활발히 진행되고 있으며, 질산(HNO<sub>3</sub>), 인산(H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>) 등의 산 수용액을 이용하여 활성탄의 표면을 화학적으로 산화시키는 방법<sup>10,11)</sup>과 금속염과 같은 물질을 침착하는 방법이 이용되고 있다.<sup>12-16)</sup>

본 연구에서는 일반활성탄에 알카리 금속염(Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)을 침착시킨 활성탄과 CO<sub>2</sub> 흡착능을 비교하여 가장 우수한 알카리 금속염을 제시하고자 한다. 또한, 효과적인 흡착효율을 나타내는 침착활성탄을 선정하여 흡착온도, 유입가스 농도, aspect ratio(L/D), 가스유량 등을 달리하여 고정층반응기에서 실험을 수행함으로써 각 실험변수들이 흡착능에 미치는 영향을 비교·분석하고자 한다.

## II. 연구방법

### 1. 흡착특성 및 흡착량의 계산

흡착은 흡착제의 표면과 흡착질이 물리적 또는 화학

적인 인력에 의하여 결합하는 현상을 말하는 것으로 혼합된 흡착질로부터 일정 성분을 선택적으로 분리 또는 정제할 때에 이용되는 방법으로는 물리적 흡착(physical adsorption)과 화학적 흡착(chemical adsorption)으로 구분되어진다. 물리적 흡착은 다중흡착을 이루므로 최종 흡착 종결시간이 지연되며, 식 (1)과 같이 흡착온도가 낮을수록 흡착량이 증가하는 것으로 보고되고 있다.<sup>16)</sup> 여기서, V<sub>e</sub>는 van der Waals 에너지(kJ/mol), C<sub>v</sub>는 상수로써 식 (2)와 같이 나타낼 수 있으며, μ는 가스의 점도(poise), T는 온도(K)이다.

$$V_e = \frac{-C_v}{r^6} \tag{1}$$

$$C_v \propto \frac{(\mu_1 \mu_2)^2}{T} \tag{2}$$

반면, 화학적 흡착은 대부분의 화학반응처럼 활성화를 필요로 하고, 단일흡착만을 발생시키며 물리흡착과는 달리 온도가 높을수록 활성탄 표면에 침착된 물질과 CO<sub>2</sub>간의 충돌분율이 증가하게 된다. 여기서, f는 충돌분율, E<sub>a</sub>는 활성화에너지(kJ/mol), R은 기체상수(L·atm/mol·K), T는 온도(K)이다.

$$f = e^{-E_a/RT} \tag{3}$$

흡착계의 총괄 흡착속도는 위에서 언급한 각 과정에서의 속도에 의하여 결정되나 대부분이 세공 및 표면 확산과 기체막에서의 흡착질 이동속도에 의하여 지배되며, 이 중에 세공확산(식 (4)) 및 충돌속도(식 (5))의 영향이 큰 것으로 알려지고 있다.<sup>17)</sup> 여기서, J는 확산속도 플럭스(kmol/m<sup>2</sup>·s), D<sub>p</sub>는 확산계수(m<sup>2</sup>/s), C는 가스 농도(%)이다.

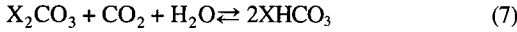
$$J = -D_p \frac{\partial C}{\partial x} \tag{4}$$

$$A + B \rightarrow C + D \text{ 일 때, 충돌속도} \propto [A][B] \tag{5}$$

고정흡착층 파괴특성은 동일한 유속일 때 흡착질의 유출점은 흡착가스의 농도가 높을수록 빨라지고, 흡착가스의 유속이 증가됨에 따라 식 (6)과 같이 Reynolds 수가 증가하여 기체막에서의 물질전달계수가 커지며 흡착질이 흡착제에 흡착되어 평형에 도달하는 시간을 단축시키므로 흡착질의 파괴점은 흡착가스의 유량이 증가할수록 빨라지게 된다. 여기서, R<sub>e</sub>는 Reynolds 수(-), ρ는 가스의 밀도(kg/m<sup>3</sup>), V는 가스 속도(m/s), D는 반응기 직경(m), ν는 동점성계수(cm<sup>2</sup>/s)이다.

$$R_e = \rho \frac{VD}{\mu} = \frac{VD}{\nu} \quad (6)$$

또한, 고정층 반응기내에서의 CO<sub>2</sub> 제거를 위하여 알칼리금속염(X<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, X=Li, Na, K)을 침착시킨 활성탄을 이용하는데 이때의 반응식은 다음과 같다.<sup>18)</sup>



고정층반응기를 이용한 실험결과로 얻어진 파과곡선으로부터 단위 흡착제당 흡착질의 흡착량은 파과곡선과 C/C<sub>0</sub>=1.0인 곡선 사이의 면적으로부터 얻을 수 있다. 이상적인 파과곡선을 가정하고 유입된 흡착질이 시간 t\*에서 모두 흡착된다고 가정하면 다음과 같은 물질수지식을 세울 수 있다.<sup>19)</sup> 여기서, F<sub>A</sub>는 흡착질의 유입속도(F<sub>A</sub>=u<sub>0</sub>C<sub>0</sub>, u<sub>0</sub>는 선속도) (ml/min), M은 흡착질의 분자량(g/mol), S는 층의 단면적(m<sup>2</sup>), L은 층 길이(m), ρ<sub>b</sub>는 bulk density(g/cm<sup>3</sup>), W<sub>sat</sub> 및 W<sub>0</sub>는 단위 흡착제당 평형흡착량 및 초기 흡착량(mmol/g)이다.

$$t^* F_A M S = L S \rho_b (W_{sat} - W_0) \quad (8)$$

그리고, t\*는 파과곡선으로부터 구할 수 있으므로 평형흡착량은 식 (9)와 (10)으로부터 구할 수 있다.<sup>19)</sup>

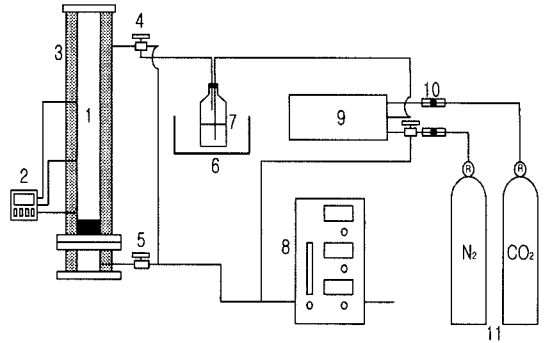
$$W_{sat} = \frac{u_0 C_0 M t^*}{L \rho_b} + W_0 \quad (9)$$

$$W_{sat} = \frac{F_A t^*}{L \rho_b} + W_0 \quad (10)$$

**2. 실험장치 및 침착활성탄 제조방법**

본 연구에서 사용된 원료물질은 삼천리(주)에서 생산된 입자상 활성탄으로 야자수(coconut shell)를 원료로 하여 만든 것이다. 침착활성탄의 제조는 활성탄의 선별, 건조, 일반활성탄의 수용액 침착, 건조 등의 순서에 의해 제조하였다. 먼저, 흡착제를 제조하기 전 단계로 입자크기를 고정시키기 위해 활성탄을 분류, 선별한 후 증류수로 수차례 세척한 뒤 건조기(drying oven, 110°C)에서 24시간 동안 건조한 다음 데시케이터(desiccator)에 보관하였다. 이와 같이 전처리된 활성탄 25g과 원하는 농도(0.1, 0.5, 1, 2N)로 녹인 각각의 침착용액(Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>) 250 ml를 넣고 약 30분간 혼합한 후 상온에서 5시간 방치후 dry oven에서 다시 110°C로 건조하였다.<sup>16)</sup> 제조된 침착활성탄(IAC; Impregnated Activated Carbon)은 공기중의 수분이나 이물질에 의하여 열화·피득되는 것을 방지하기 위하여 밀폐용기에 넣어 보관하였다.

실험장치는 반응기부, 모사가스 제조부, 가스분석부로



- 1. Reactor
- 2. Thermometer
- 3. Heating tape
- 4. 3-way valve
- 5. On/off valve
- 6. Water bath
- 7. Saturator
- 8. CO<sub>2</sub> analyzer
- 9. Mixing chamber
- 10. Mass flow controller
- 11. Gas bomb

**Fig. 1.** Schematic diagram of experimental apparatus.

구성되어 있고, 반응기의 재질은 stainless steel column (SS 316)으로서 내경이 24.5 mm이고, distributor의 개공비는 4.39%(총 hole 갯수: 293 mm, Ψ: 0.3 mm)로 Fig. 1에 자세히 나타내었다. 반응기 측면에 일정한 간격으로 온도를 측정할 수 있도록 하였고, 반응기의 온도를 일정하게 유지하기 위하여 반응기 주위에 heating tape을 감은 후 전압 조정장치를 이용하여 온도를 조절하였고, thermometer로 이를 확인하였다. 유입 가스 중 수증기의 함량은 CO<sub>2</sub>를 향온조(water bath)에 담겨져 있는 증발용기 내부 하단부로 유입시켜 수증기와 혼합된 상태에서 질소와 섞이도록 하였으며, 상대습도를 일정하게 유지토록 하였다. 주입되는 CO<sub>2</sub> 가스는 MFC(BROOKS INSTRUMENT, Mass Flow Controller Model 5850E)를 이용하여 농도와 유량을 조절한 후 반응기로 주입하였으며, 반응기에서 배출된 가스는 HITEC社의 GIR 5000을 이용하여 CO<sub>2</sub> 배출농도를 분석하였다.

**III. 결과 및 고찰**

**1. 침착용액의 농도 변화에 따른 CO<sub>2</sub> 흡착량**

Fig. 2에서는 침착용액의 농도에 따른 CO<sub>2</sub> 흡착량 실험을 위하여 고정층반응기내 온도 20°C, 유입가스 농도 10%, 가스유량 1000 ml/min, L/D = 2로 고정시키고, 알칼리 금속염(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>) 각각의 침착용액 농도를 0.1, 0.5, 1, 2N로 변화시켜 실험을 수행하였으며, 물질수지식으로부터 계산한 흡착량을 Fig. 2에 나타내었다. Fig. 2에서 확인한 바와 같이 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, IAC(Impregnated Activated Carbon), K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC 모두 침착용액의 농도가 증가할수록 일반

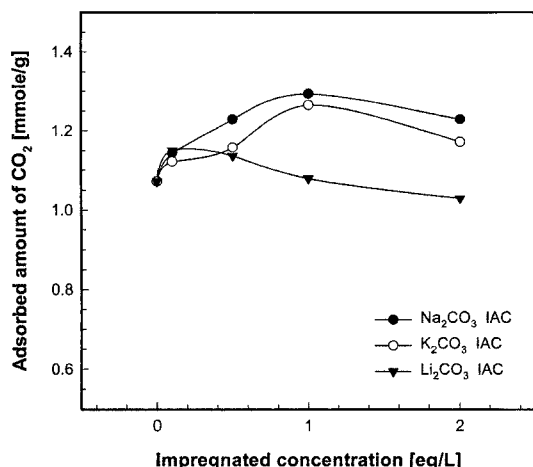
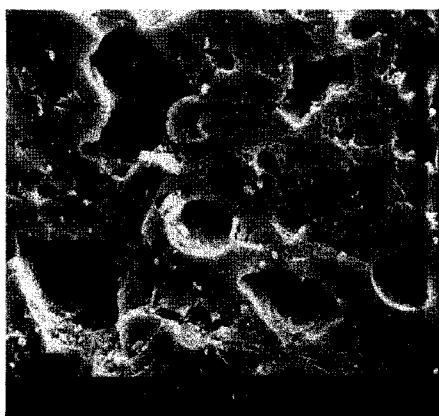
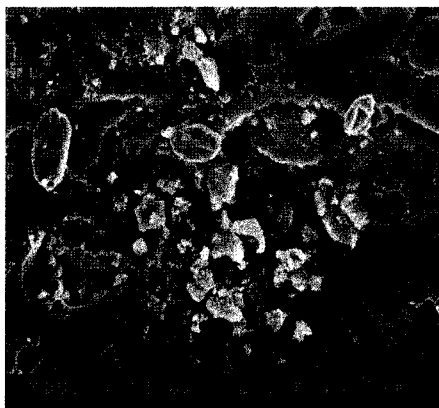


Fig. 2. Effect of impregnated concentration on adsorbed CO<sub>2</sub> amount according to Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> impregnated activated carbon.



Activated carbon



1N-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> Impregnated activated carbon

Fig. 3. Comparison of SEM photograph in activated carbon and impregnated activated carbon (×2000).

Table 1. Physical properties of activated carbon and impregnation activated carbon

Properties	Pure AC	1N-Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> IAC
BET surface area (m <sup>2</sup> /g)	1109.24	901.85
Micro pore area (m <sup>2</sup> /g)	935.86	858.67
Average pore diameter (Å)	19.21	18.35
Total pore volume (cm <sup>3</sup> /g)	0.44	0.38

활성탄과 비교하여 CO<sub>2</sub>의 흡착량이 증가하였으며, 각각의 침착용액에 대하여 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>와 K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>은 1N, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>는 0.1N에서 CO<sub>2</sub> 흡착량이 가장 많은 것으로 확인되었다. 그리고 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC의 경우 침착용액농도 1N 이상부터 일반활성탄에 비교하여 흡착량이 적어지는 것을 확인할 수 있는데, 이러한 이유는 침착활성탄 제조시 가장 중요한 변수인 침착하고자 하는 용액의 용해도와 활성탄과의 친화성<sup>17,20)</sup>이 낮기 때문인 것으로 사료된다.

Fig. 3은 일반활성탄과 대표적으로 Fig. 2에서 CO<sub>2</sub> 흡착량이 가장 많은 1N-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>를 침착시킨 IAC의 SEM 사진을 나타낸 것이다. Fig. 3에서 1N-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC의 경우 일반활성탄과 달리 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>가 활성탄 표면에 침착되어 있는 것을 알 수 있었으며, 이로 인하여 Table 1에서 나타난 바와 같이 함침법으로 제조한 활성탄의 경우 침착용액이 기존 활성탄의 미세기공을 막는 현상이 발생하고, 일반활성탄과 비교하여 비표면적과 기공부피가 감소한 것으로 사료된다. 그러나 이러한 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>는 식 (7)에서 제시한 바와 같이 CO<sub>2</sub>와 반응하여 물리적 흡착만을 하는 일반활성탄 보다 많은 양의 CO<sub>2</sub>를 제거하는 것으로 판단된다.<sup>16)</sup>

## 2. 흡착온도의 영향

Fig. 4에서는 흡착온도에 대한 침착활성탄의 흡착특성을 살펴보기 위하여 유입가스 농도 10%, L/D=2, 유량 1000 ml/min의 조건에서 고정층반응기 내 온도를 20, 50, 80°C로 변화시키면서 흡착실험한 결과를 나타낸 것이다. 일반적으로 흡착실험에서 일반활성탄의 경우 온도가 증가함에 따라 흡착능이 감소하며, 이는 물리흡착의 경우 식 (1)로 표현되는 van der Waals 상호작용에 의해 흡착이 이루어지기 때문에 온도에 반비례하는 경향을 보인다. 한편, 침착활성탄의 CO<sub>2</sub> 흡착량도 감소하나 일반활성탄에 비해 흡착량의 감소폭은 적어짐을 확인할 수 있었다. 이는, 식 (3)에서 전술한 바와 같이 온도가 증가할수록 활성탄 표면에 침착된 용액의 흡열반응이 향상되며, 충돌분율이 증가하기 때문에 온도가 증가할수록 흡착량이 많아짐에 기인한 것으로 판

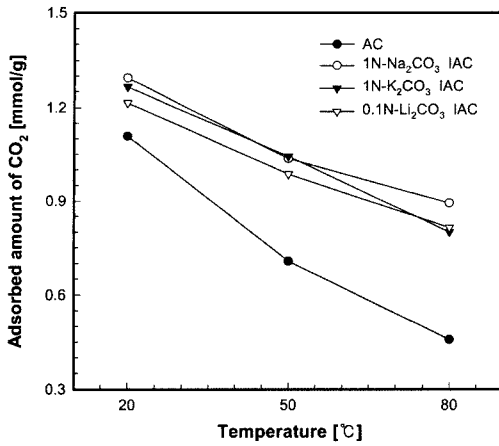


Fig. 4. Effect of temperature on adsorbed CO<sub>2</sub> amount according to Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> impregnated activated carbon.

단된다.<sup>16)</sup> 한편, Fig. 4에서 확인한 바와 같이 20°C에서 1N-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>를 침착시킨 활성탄의 CO<sub>2</sub> 흡착량이 가장 높았으며, 침착용액은 흡착온도의 변화와는 관계없이 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>가 K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 및 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 보다 흡착능이 우수한 것을 확인하였다.

### 3. 유입가스 농도의 영향

Fig. 5에서는 흡착가스 농도의 영향을 살펴보기 위하여 유입가스 유량 1000 ml/min, 온도 20°C, L/D=2에서 CO<sub>2</sub>의 농도를 5, 10, 15%로 변화시키면서 실험한 결과를 나타내었다. 이론적 고찰에서 고정흡착층 파괴 특성은 동일한 유속일 때 흡착질의 유출점은 흡착가스의 농도가 증가할수록 빨라지는 것으로 전술하였으며,

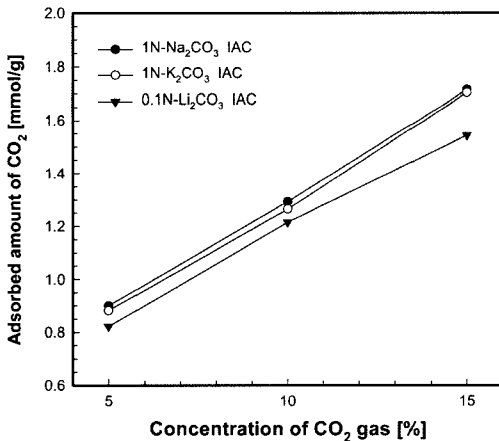


Fig. 5. Effect of gas concentration on adsorbed CO<sub>2</sub> amount according to Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> impregnated activated carbon.

본 실험에서도 이와 같은 현상이 관찰되었으며, Fig. 5에서 확인한 바와 같이 유입되는 CO<sub>2</sub> 가스의 농도가 증가할수록 흡착질 양이 증가함을 확인할 수 있었다. 이러한 이유는 식 (4)~(5)에서 설명한 흡착질의 농도가 높을수록 활성탄 세공으로의 확산속도와 반응물들간의 충돌속도가 비례하여 증가하기 때문으로 판단된다. 그리고 침착활성탄 각각의 흡착량은 CO<sub>2</sub> 농도 5, 10, 15%일 때 모두 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>를 침착시킨 활성탄의 흡착량이 높게 나타나 K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>와 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>를 침착시킨 활성탄보다 효과적임을 확인하였다. 따라서 일반적으로 현장공정에서 보고된 화석연료 연소시 배출되는 CO<sub>2</sub>의 농도는 약 10%이므로 본 연구에서도 주입가스 농도를 10%로 결정하여 baseline condition 실험을 수행하였다.

### 4. Aspect ratio(L/D)의 영향

Fig. 6에서는 CO<sub>2</sub> 유입농도 10%, 고정층반응기 내부 온도 20°C, 유입되는 CO<sub>2</sub> 가스유량 1000 ml/min의 실험조건에서 L/D를 0.5, 1, 2로 변화시키면서 실험한 결과를 나타내었다. 그림에서 확인한 같이 L/D가 증가함에 따라 CO<sub>2</sub> 흡착량 증가폭의 차이가 확인되었다. 고정층반응기 L/D=1 이하의 범위에서는 급격한 흡착능의 차이가 발생하였으며, 이러한 이유는 L/D=1 이하에서는 흡착층 높이가 낮아 유입된 CO<sub>2</sub> 가스가 흡착되지 않고 반응기를 빠져나가기 때문으로 판단되며, aspect ratio의 영향을 효과적으로 확인하기 위해서는 유입되는 가스가 충분히 체류할 수 있는 반응영역 및 체류시간을 확보하는 것이 필요한 것으로 사료된다. 한편, 1N-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC, 1N-K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC, 0.1N-Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC의 침착활성탄에 대한 CO<sub>2</sub>의 영향을 확인한 결과,

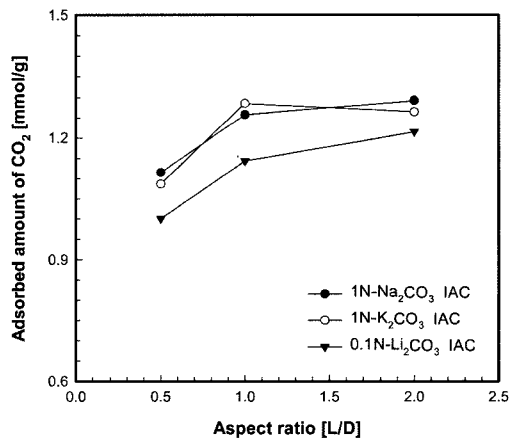


Fig. 6. Effect of aspect ratio on adsorbed CO<sub>2</sub> amount according to Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> impregnated activated carbon.

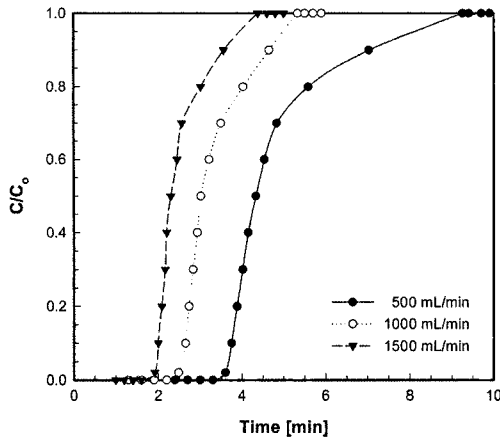


Fig. 7. Variation of concentration ratio as function of time according to gas flow rate.

L/D = 1에서는 흡착량이 증가하는 것으로 확인되었으며, L/D = 1 이상에서는 L/D를 증가시키더라도 breakthrough time이 길어질 뿐 단위 g당 흡착되는 CO<sub>2</sub>의 흡착량에는 큰 변화가 없음을 확인할 수 있었다.

### 5. 가스유량의 영향

Fig. 7에서는 흡착가스의 유량의 변화에 따른 영향을 확인하기 위하여 대표적으로 1N-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC를 이용하여 CO<sub>2</sub> 유입가스 농도 10%, 고정층반응기 내부온도 20°C, L/D = 2에서 유입가스 유량을 500, 1000, 1500 nL/min으로 변화시키면서 실험한 결과를 나타낸 것이다. Fig. 7에서 확인한 바와 같이 유입되는 CO<sub>2</sub> 가스 유량이 증가할수록 breakthrough time이 감소하는 것으로 확인되었다. 이러한 이유는 유입되는 가스유량이 증가할수록 Reynolds 수(식 (6))가 증가하기 때문이며, 특히 가스막에서의 물질전달이 활발히 이루어져 물질전달 영역이 확대되고, 흡착질이 흡착제에 흡착되어 평형에 도달하는 시간이 단축되므로 인하여 흡착질의 유출점은 흡착가스 유속이 증가할수록 빨라지기 때문인 것으로 사료된다.

### 6. 온도와 압력의 변화에 따른 CO<sub>2</sub> 흡착량

Fig. 8에서는 1N-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC의 CO<sub>2</sub> 흡착량(mmol/g)을 확인하기 위하여 고정층반응기 내부온도를 20, 50, 80°C로 조정하면서 CO<sub>2</sub> 흡착량을 비교하였으며, 압력을 0.05~0.45 atm의 범위 내에서 0.05 atm 간격으로 변화시키면서 실험한 결과를 나타낸 것이다. Fig. 8에서 확인한 바와 같이 CO<sub>2</sub> 흡착량은 온도가 증가할수록 감소하였으며, 이러한 이유는 식 (1)에서 나타난 바와 같이 물리적 흡착이 발열반응은 동반하는 특성이 있

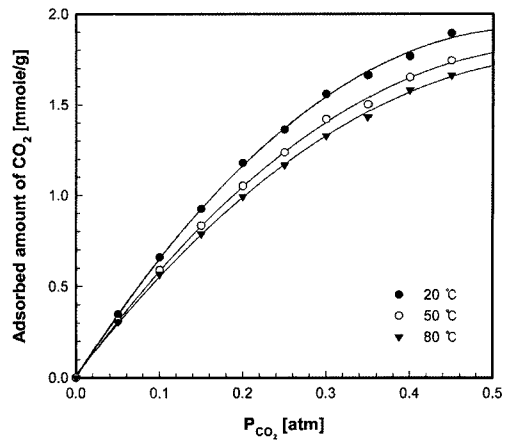


Fig. 8. Effect of partial pressure on adsorbed CO<sub>2</sub> amount according to temperature.

며, 본 연구에서와 같이 첨착활성탄 흡착특성은 대부분 물리적 흡착에 의한 것으로 사료되기 때문이다. 이와 함께 압력이 증가할수록 식 (4)의 확산속도와 식 (5)의 충돌속도가 비례하여 증가하기 때문에 CO<sub>2</sub>의 흡착량이 증가하는 것으로 판단된다.

## IV. 결 론

본 연구에서는 일반활성탄의 breakthrough time을 연장시키고 흡착능을 증가시키기 위하여 일반활성탄에 알칼리 금속염(Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)을 첨착시킨 첨착활성탄을 제조하였으며, 최적 농도의 첨착활성탄을 선정하여 흡착온도, 유입가스 농도, aspect ratio(L/D), 가스유량 등을 달리하여 고정층반응기에서 첨착활성탄의 CO<sub>2</sub> 흡착량 실험을 수행하였으며, 이상의 연구로부터 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 알칼리 금속염(Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)을 첨착시킨 활성탄 흡착량을 비교한 결과, 최적의 첨착 농도는 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>과 K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>는 1N, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>는 0.1N이었다. 이 때, 각 첨착용액별 최고의 흡착능을 나타내었으며, 1N-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> IAC의 CO<sub>2</sub> 흡착력이 상대적으로 가장 우수한 것으로 확인되었다. 그리고 SEM 분석 결과, 첨착활성탄의 경우 일반활성탄에 비해 비표면적과 기공부피가 감소하나, 알칼리금속염과 CO<sub>2</sub>와의 화학반응에 의해 물리적 흡착만을 하는 일반활성탄 보다 많은 양의 CO<sub>2</sub>를 제거하는 것으로 판단된다.

2. 흡착온도에 따른 영향을 살펴본 결과, 일반적으로 온도가 증가할수록 CO<sub>2</sub> 흡착량은 감소하나 첨착활성탄의 경우 첨착된 용액의 흡열반응이 항상되며, 충돌분율이 증가함에 따른 흡착량 증가로 인하여 일반활성탄에

비해 흡착량의 감소폭은 적었다. 아울러, 유입가스의 농도 변화에 따른 실험을 수행한 결과, 유입가스 농도의 증가에 따라 CO<sub>2</sub> 흡착량이 증가하였다.

3. Aspect ratio(L/D)에 따른 영향을 살펴본 결과, 3종류 IAC 모두 1 이상에서는 L/D를 증가시키더라도 breakthrough time이 길어질 뿐 단위 g당 흡착되는 CO<sub>2</sub>의 흡착량에는 큰 변화가 없으므로 최적 L/D는 1이며, 유량변화에 따른 실험을 수행한 결과, 가스유량이 증가할수록 Reynolds 수가 증가하며 물질전달 영역이 확대되어 breakthrough time이 짧아졌으며, 1000 mL/min 이상에서는 증가폭이 감소하였으나 전반적으로 CO<sub>2</sub> 가스유량이 증가할수록 흡착량이 증가하였다.

## 감사의 글

본 연구는 경북지역환경기술개발센터의 2008년 환경기술연구개발사업(08-1-40-41-3)의 지원에 의하여 연구되었으며, 이에 진심으로 감사를 드립니다.

## 참고문헌

- Jung, J. H. : A study on sorbent application of hard-shelled mussel waste shell on the medium/small scale waste incinerator and flue gas desulfurization process. *Korean Journal of Environmental Health*, **29**(1), 34-42, 2003.
- Jung, J. H., Shon, B. H., Jung, D. Y., Kim, H. G. and Lee, H. H. : Emission properties of hazardous air pollutants in solid waste incinerator. *Korean Journal of Environmental Health*, **29**(5), 17-26, 2003.
- Ryu, H. Y., Kim, M. C., Jung, J. H., Lee, G. W. and Chung, J. D. : A study on NO<sub>x</sub> removal efficiency using SNCR process in the industrial waste incineration plant. *Korean Journal of Environmental Health*, **31**(4), 332-339, 2005.
- Jung, J. H. : A study on reaction characteristic of SO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub> simultaneous removal for alkali absorbent/additive in FGD and waste incinerator process. Pusan National University, Ph.D Dissertation, 1999.
- Jung, J. H., Jung, M. H., Shon, B. H., Lee, K. J. and Seo, J. H. : Weathering and deterioration characteristics of the stone cultural properties in Bulguksa and its surroundings -Dabotap and Three Storied Stone Pagoda at Bulguksa-. *The Silla Munhwa*, **31**, 107-135, 2008.
- Kim, M. S., Choi, W. J., Seo, J. B., Cho, K. C., Kim, S. G. and Oh, K. J. : Absorption and regeneration of carbon dioxide in aqueous AMP+AEPD and AMP+TIPA solutions. *Journal of Korean Society for Atmospheric Environment*, **23**(5), 539-546, 2007.
- Um, H. M. : The study on the development of demo plant scale carbon dioxide separation and conversion technologies in power station. Ministry of commerce, industry and energy, 41-53, 2003.
- Min, B. M., Yoo, K. P. and Kim, S. H. : Adsorption of CO and CO<sub>2</sub> on fixed bed of activated carbon impregnated with cuprous chloride. *Hwahak Konghak*, **32**(2), 195-205, 1994.
- Han, J. U., Kim, D. J., Kang, M., Kim, J. W., Kim, J. M. and Yie, J. E. : Study of CO<sub>2</sub> adsorption characteristics on acid treated and LiOH impregnated activated carbons. *Journal of the Korean Industrial and Engineering Chemistry*, **16**(3), 312-316, 2005.
- Ago, H., Kugler, T. Cacialli, F., Salaneck, W. R., Shaffer, M. S. P., Winde, A. H. and Friend, R. H. : Work functions and surface functional groups of multiwall carbon nanotubes. *The Journal of Physical Chemistry B*, **103**(38), 8116-8121, 1999.
- Song, H. K. and Lee, K. H. : Adsorption of carbon dioxide on chemically modified carbon adsorbents. *Separation Science and Technology*, **33**(13), 2039-2057, 1998.
- Ryu, D. K. and Kim, S. H. : Adsorption characteristics of CO<sub>2</sub> on activated carbons treated with alkali-metal salts. *Journal of the Korean Industrial and Engineering Chemistry*, **9**(2), 286-293, 1998.
- Kim, Y. J., Park, J. S., Ju, J. G. and Kim, D. U. : Removal of hydrogen sulfide and ammonia by impregnated activated carbons. *Applied Chemistry*, **7**(1), 341-344, 2003.
- Kim, J. S., Kim, M. C., Kang, E. J. and Kim, M. S. : H<sub>2</sub>S adsorption characteristics of KIO<sub>3</sub> impregnated activated carbon. *Journal of Korean Oil Chemists' Society*, **20**(1), 72-79, 2003.
- Lee, S. K. and Park, Y. S. : Adsorption characteristics of H<sub>2</sub>S on the impregnated granular activated carbon with diethanolamine. *Journal Korean Society of Environmental Engineers*, **25**(5), 567-573, 2003.
- Cho, K. C., Shon, B. H., Jo, Y. M. and Oh, K. J. : A study on the H<sub>2</sub>S removal using Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> impregnated activated carbon (II) -The characteristics of H<sub>2</sub>S adsorption in fixed bed reactor-. *Journal Korean Society of Environmental Engineers*, **21**(11), 2017-2025, 1999.
- Yang, R. T. : Gas separation by adsorption processes. Butterworth Publishers, Boston, 1984.
- Hayashi, H., Taniuchi, J., Furuyashiki, N., Sugiyama, S., Hirano, S., Shigemoto, N. and Nonaka, T. : Efficient recovery of carbon dioxide from flue gases of coal-fired power plants by cyclic fixed-bed operations over K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-on-Carbon. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **37**, 185-191, 1998.
- McCabe, W. L., Smith, J. C. and Harriott, P. : Unit operations of chemical engineering. 5th ed., McGraw-Hill, Inc., 820, 1993.
- Park, G. I., Lee, H. K., Park, Y. T. and Moon, H. : A study on the adsorption characteristics of NH<sub>3</sub> on H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> impregnated carbon in fixed bed. *J. Korean Society of Environmental Engineers*, **19**(9), 1125-1134, 1997.