

아세트알데하이드 흡착을 위한 활성탄의 침착 및 개질 효과

박진찬 · 김동민 · 이종대[†]

충북대학교 화학공학과
28644 충청북도 청주시 서원구 충대로1
(2023년 6월 13일 접수, 2023년 6월 28일 수정본 접수, 2023년 6월 28일 채택)

Effect of Impregnation and Modification on Activated Carbon for Acetaldehyde Adsorption

Jin Chan Park, Dong Min Kim and Jong Dae Lee[†]

Department of Chemical Engineering, Chungbuk National University, 1 Chungdaero, Seowongu, Cheongju, Chungbuk, 28644, Korea
(Received 13 June 2023; Received in revised from 28 June 2023; Accepted 28 June 2023)

요 약

본 연구에서는 공기청정기 필터용 활성탄의 아세트알데하이드 제거 특성이 금속 촉매 침착 및 관능기 도입 방법을 사용하여 조사되었다. 아자각 차의 KOH 활성화를 통해 고 비표면적(1700 m²/g)과 미세기공이 발달한 활성탄을 제조하였으며, 금속촉매 침착과 관능기 개질을 위해 침지 후 기공 내 건조조건에 따른 침착 효율을 조사하였다. 제조된 활성탄의 물성은 비표면적 및 기공 분석(BET), 유도결합 플라즈마 분광 분석(ICP), 유기 원소 분석(EA) 및 푸리에변환 적외선 분광 분석(FT-IR) 등을 통해 분석하였으며, 활성탄 성능 확인을 위해 침지 농도에 따른 아세트알데하이드 흡착성능을 가스크로마토그래피(GC)로 분석하였다. 침착용액의 농도가 증가함에 따라 금속촉매 침착량은 증가하였으며, 비표면적은 감소하는 경향을 보였다. 각 금속촉매 침착 및 표면개질 활성탄의 과파시험 결과 MgO10@AC, CaO10@AC, EU10@AC, H-U3N1@AC 조성에서 우수한 아세트알데하이드 흡착성능을 보여주었다. 흡착성능이 가장 뛰어난 MgO10@AC에 대해 과파 시간은 533.8 분, 흡착량은 57.4 mg/g으로 측정되었으며, 이는 활성탄에 나노 크기의 MgO 촉매를 침착할 경우 아세트알데하이드의 카보닐기와 상호작용하여 흡착성능이 개선됨을 알 수 있었다.

Abstract – In this study, the acetaldehyde removal characteristics of activated carbon (AC) for air purifier filters were investigated using metal catalysts-impregnation and functional group-modification method. The AC with a high specific surface area(1700 m²/g) and micropores was prepared by KOH activation of coconut charcoal and the efficiency of catalyst and functional group immobilization was examined by varying the drying conditions within the pores after immersion. The physical properties of the prepared activated carbon were analyzed by BET, ICP, EA, and FT-IR, and the acetaldehyde adsorption performances were investigated using gas chromatography (GC) at various impregnation and modified conditions. As the concentration of impregnation solution increased, the amount of impregnated metal catalysts increased, while the specific surface area showed a decreasing trend. The adsorption tests of the metal catalyst-impregnated and functional group-modified activated carbons revealed that excellent adsorption performance in compositions MgO10@AC, CaO10@AC, EU10@AC, and H-U3N1@AC, respectively. The MgO10@AC, which showed the highest adsorption performance, had a breakthrough time of 533.8 minutes and adsorption capacity of 57.4 mg/g for acetaldehyde adsorption. It was found that the nano-sized MgO catalyst on the activated carbon improved the adsorption performance by interacting with carbonyl groups of acetaldehyde.

Key words: Acetaldehyde, Adsorption, Activated carbon, Impregnation, Modification

1. 서 론

대부분의 사람들은 주로 실내에서 생활하기 때문에 실내 공기 질은 건강에 많은 영향을 끼친다. 최근에는 가구 및 건축 관련 실내 자재의 발전과 방향제, 흡연 등으로 실내 공기 오염은 더욱 심각해지고 있으며, 톨루엔, 포름알데하이드, 벤젠 등의 휘발성 유기 화합물과

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: jdlee@chungbuk.ac.kr

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.

미립자 물질 등의 다양한 오염물질이 검출된다. 따라서 실내 환경을 개선하기 위해서는 공기청정기의 사용이 필수적이며, 이에 따라 수요도 증가하고 있다[1]. 주요 실내 공기 오염물질은 암모니아, 아세트산, 톨루엔, 아세트알데하이드, 포름알데하이드이며, 아세트알데하이드의 경우 제거의 어려움이 있는 반면, 다른 공기오염물질은 상대적으로 쉽게 흡착되는 경향을 보인다[2-5].

공기청정기의 경우 흡착제로 활성탄을 사용하는데[6], 활성탄은 주로 석탄 또는 아자각을 원료로 사용하여 다양한 물리적 및 화학적 활성화 법을 통해 제조된다[7,8]. 물리적 활성화는 고온에서 수증기, 이산화탄소, 산소 및 기타 산화성 가스를 접촉시키는 가스 활성화법이 주로 사용되며, 화학적 활성화는 KOH, NaOH, H₃PO₄, Na₂CO₃ 등의 활성화제를 사용하는 방법으로, 물리적 활성화 대비 저온에서 공정이 가능하다는 장점이 있다[9,10]. 이러한 방법 등으로 제조된 활성탄은 흡착물질의 끓는점이 낮을수록, 증기압이 높을수록 흡착능이 떨어지는 것으로 보고되었으며, 포름알데하이드와 아세트알데하이드의 경우 증기압이 높아 일반 활성탄으로 흡착 제거에 어려움이 있다. 따라서 포름알데하이드 및 아세트알데하이드의 흡착능을 개선하기 위해 활성탄의 개질이 필요하며, 개질 방법은 크게 관능기 도입과 금속 촉매 침착 방법이 사용되는 것으로 알려져 있다[11].

활성탄 관능기 도입 방법으로 알데하이드류 제거를 위해 질소 및 황 관능기 등을 활성탄 표면에 침착하여 사용한다고 보고되고 있다[12]. 3-Aminopropyltrimethoxysilane (APTMS) 등 아민기를 포함한 물질로 활성탄과 같은 흡착제 표면에 아민기를 도입하여 포름알데하이드 흡착능을 향상시킬 수 있다[13]. 활성탄 소 함유를 아닐린 용액에 침지하여 아민기를 도입하여 아세트알데하이드 흡착능을 향상시키는 연구가 보고되었는데[14] 이는 아민기와 알데하이드류 물질 간의 반응을 통해 Schiff 염기를 생성하기 때문이다[15]. 활성탄의 금속 촉매를 이용한 알데하이드류 제거성능 개선 연구에는 촉매로 La₂O₃, MgO, CaO, ZnO 등의 금속산화물을 사용하여 아세트알데하이드 흡착능을 향상하였다[16]. 또한 다양한 조성의 망간산화물 촉매를 침착한 활성탄의 포름알데하이드 흡착능이 향상되었음이 보고되었는데, 이러한 효과는 비표면적이 넓은 활성탄의 표면에 금속산화물이 균일하게 분포하여 알데하이드류의 산화 반응을 촉매하기 위한 산소종을 제공할 수 있기 때문이다[17].

본 연구에서는 다양한 촉매 침착 및 관능기 도입을 통하여 우수한 아세트알데하이드 흡착능을 가진 공기청정기용 활성탄을 연구하였다. 아자각 차의 KOH 활성화를 통해 제조된 활성탄을 사용하여 다양한 건조 방법에 따른 침착 효율 개선 방법을 조사하고, 최적화된 건조 방법을 통해 아세트알데하이드 제거성능 개선을 위해 제조된 활성탄에 금속산화물 촉매 침착 및 에틸렌 우레아, 우레아/질산을 사용한 아민기 도입 연구를 수행하였다. 제조된 침착 활성탄의 물성 분석을 위해 BET, ICP, EA, FT-IR 등의 분석을 진행하였으며, 각 제조된 활성탄 내의 침착 물질 농도에 따른 아세트알데하이드 제거성능 및 유량에 따른 흡착능을 확인하였다.

2. 실험

2-1. 활성탄 활성화 및 침착 방법

본 연구에서는 고 비표면적과 미세기공을 가진 활성탄을 제조하기 위하여 아자각 차를 사용하였다. 화학적 활성화 법에 따른 미세

기공을 형성하기 위하여 KOH (Potassium hydroxide 98%, SAMCHUN)를 사용하였다. 활성탄의 제조 방법으로는 아자각 차와 KOH를 1:4의 중량비로 혼합한 후 유량 100 cc/min 아르곤 가스 분위기에서 30분 동안 800 °C로 승온 후 2시간 열처리하였다. 열처리한 시료를 9 wt% HCl (Hydrochloric acid solution, SAMCHUN) 수용액에 분산시키고 상온에서 0.5 시간 동안 교반하여 불순물을 제거하였다. 이후 용액의 pH가 7이 되도록 증류수로 5회 이상 수세 처리를 한 뒤 100 °C 오븐에서 12시간 건조하여 활성탄을 제조하였다.

활성탄의 건조 방식에 따른 특성을 조사하기 위해 Mg(NO₃)₂·6H₂O (Magnesium nitrate hexahydrate, 98.0%, SMACHUN) 용액에 침지한 활성탄을 용액이 모두 증발할 때까지 오븐에서 대류 건조한 방식과 진공 오븐에서 건조한 방식 및 진공 오븐에서 30분간 활성탄 내 미세기공의 공기를 제거 후 일반 오븐에서 건조한 방식을 사용하였으며, 건조 시 온도는 60 °C로 동일하였다. 각 건조 방법을 일반 건조, 진공건조, 기공 내 에어 제거 후 일반 건조로 명명하였다.

활성탄의 주요 공기오염물질 제거성능 향상을 위해 MgO, CaO 금속촉매 침착 및 아민기가 도입된 활성탄을 제조하였다. 금속 촉매 침착 활성탄을 제조하기 위해 전구체를 에탄올 또는 증류수에 녹인 후, 제조된 활성탄과 혼합 후 상온에서 24시간 동안 100 rpm으로 교반하여 침지하였다. 이때, MgO, CaO의 전구체로는 각각 Mg(NO₃)₂·6H₂O와 Ca(NO₃)₂·4H₂O (Calcium nitrate tetrahydrate, 98.5%, SAMCHUN)가 사용되었다. 침지된 활성탄 용액을 60 °C에서 건조, 활성탄 기공 내 에어 제거 후 건조 및 진공건조를 수행하여 침착 활성탄의 특성을 조사하였다. 침지 후 건조된 활성탄을 200 cc/min의 아르곤 가스 분위기에서 170 °C에서 2시간, 500 °C에서 1시간 동안 소성하여 MgO 및 CaO가 침착된 활성탄을 제조하였으며, 각각 MgO@AC, CaO@AC로 명명하였다. 활성탄 표면 아민기 도입을 위해 에틸렌 우레아와 우레아/질산을 증류수에 혼합한 후, 제조된 활성탄과 100 rpm으로 교반하며 24시간 동안 침지하였다. 우레아/질산 개질 활성탄의 경우 질산 농도를 1 wt%로 고정하고, 우레아의 농도를 1~5 wt%로 하여 제조하였다. 혼합 용액을 60 °C에서 활성탄 기공 내부의 에어 제거 후 건조하여 아민기가 도입된 활성탄을 제조하였으며, 각각 EU@AC, UN@AC로 명명하였다. 침착 활성탄의 제조 방법은 Fig. 1에 나타내었다.

2-2. 금속촉매 침착 및 관능기 개질 활성탄의 물성 분석

제조된 활성탄과 침착 활성탄의 건조 방법에 따른 침착 효율 및 농도에 따른 침착 특성을 확인하기 위해 BET/BJH 장비(ASAP2020,

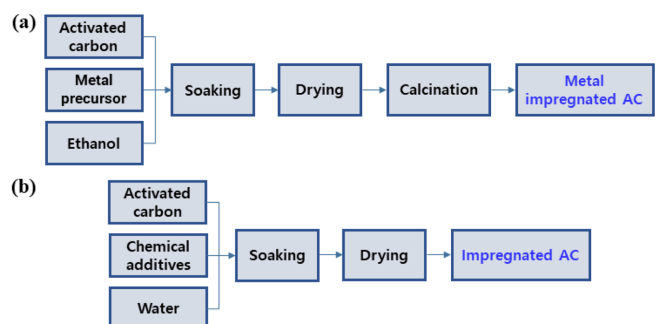


Fig. 1. Process diagram of (a) metal catalyst impregnation activated carbons, and (b) functional group modified activated carbons.

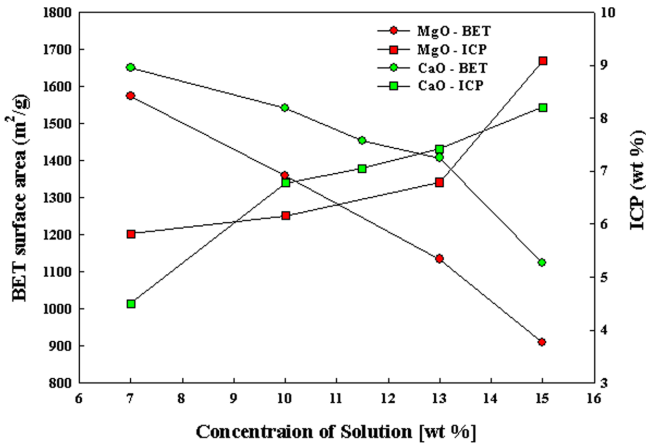


Fig. 2. Specific surface area and metal catalyst content curves of impregnated activated carbons treated in various solution concentration.

Micromeritic)를 사용하여 비표면적 및 기공 분포를 분석하였다. 또한 침지 용액 농도에 따른 금속촉매 침착량을 확인하기 위해 ICP-OES (5900, Agilent Technologies)를 사용하여 Mg 및 Ca에 대하여 분석하였으며, 관능기 도입 활성탄의 경우 EA (Vario MICRO cube, Elementar)를 사용한 유기 원소 분석을 통해 침지용액 농도에 따른 활성탄의 질소 함량을 조사하였다. 또한 활성탄 표면에 도입된 질소 관능기를 확인하기 위해 FT-IR (Cary670-Main Bench + Cary620-Microscope, Agilent Technologies)을 사용하여 관능기 종류를 분석하였다.

2-3. 아세트알데하이드 제거 실험

제조된 활성탄에 대한 주요 공기오염물질 제거성능을 확인하기 위한 실험 장치 공정도를 Fig. 2에 나타내었다. 실험에 사용되는 가

스는 100 ppmv의 아세트알데하이드를 사용하였다. 침착물질 농도에 따른 과과 특성을 확인하기 위해 직경 1 cm, 길이 12.5 cm의 흡착 칼럼에 활성탄을 0.50 g 충전하여 상온에서 가스 유량 300 mL/min으로 흡착 실험을 실시하였으며, 출구 가스 검출을 위해 GC (Gas Detector Tube Acetaldehyde, Gastec, 92M)를 사용하였다. 또한 유량에 따른 흡착 특성 조사를 위해 동일한 흡착 칼럼 및 활성탄 조건에, 유량을 각각 100~400 mL/min의 속도로 변화시켜 아세트알데하이드 제거 특성을 확인하였다. 흡착 실험 기구에 대한 개략도를 Fig. 3에 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 제조된 활성탄 및 침착 활성탄의 물성 특성

침착 활성탄의 건조 방법에 따른 기공 특성을 알아보기 위해, BET 분석을 통해 측정된 활성탄의 비표면적 및 평균 기공 부피를 Table 1에 나타내었다. KOH를 사용하여 활성화한 활성탄의 경우 비표면적과 기공 부피는 각각 1753.9 m²/g, 0.66480 cm³/g이었다. 건조, 진공 건조, 기공 내 에어 제거 후 건조 방법으로 제조된 침착 활성탄의 비표면적은 각각 1384.8, 1424.9, 1232.6 m²/g, 기공 부피는 0.51621, 0.53032, 0.46234 cm³/g이다. 침착 후 비표면적과 기공 부피는 모두 감소하였으며, 이는 촉매 및 작용기 도입에 따라 생성되어 있는 기공이 감소하기 때문이다. 기공 내 에어 제거 후 일반 건조를 하는 경우 비표면적과 기공 부피가 가장 크게 감소하였으며, 진공건조, 일반건조 순으로 비표면적 및 기공 부피가 감소하였다. 이를 통해 기공 내 에어 제거 후 일반 건조를 하는 경우 금속 촉매가 활성탄 기공 내 가장 많이 침착 되었음을 확인할 수 있었다. 건조에 비하여 에어 제거 후 건조 방법은 활성탄 기공의 공기를 제거하여 내부까지 침지 용액이 잘 침투하여 안정적으로 침착되며, 계속 진공건조를 하는 경우에는 에어는 제거되나 침지 용액이 활성탄 기공 내로 깊이

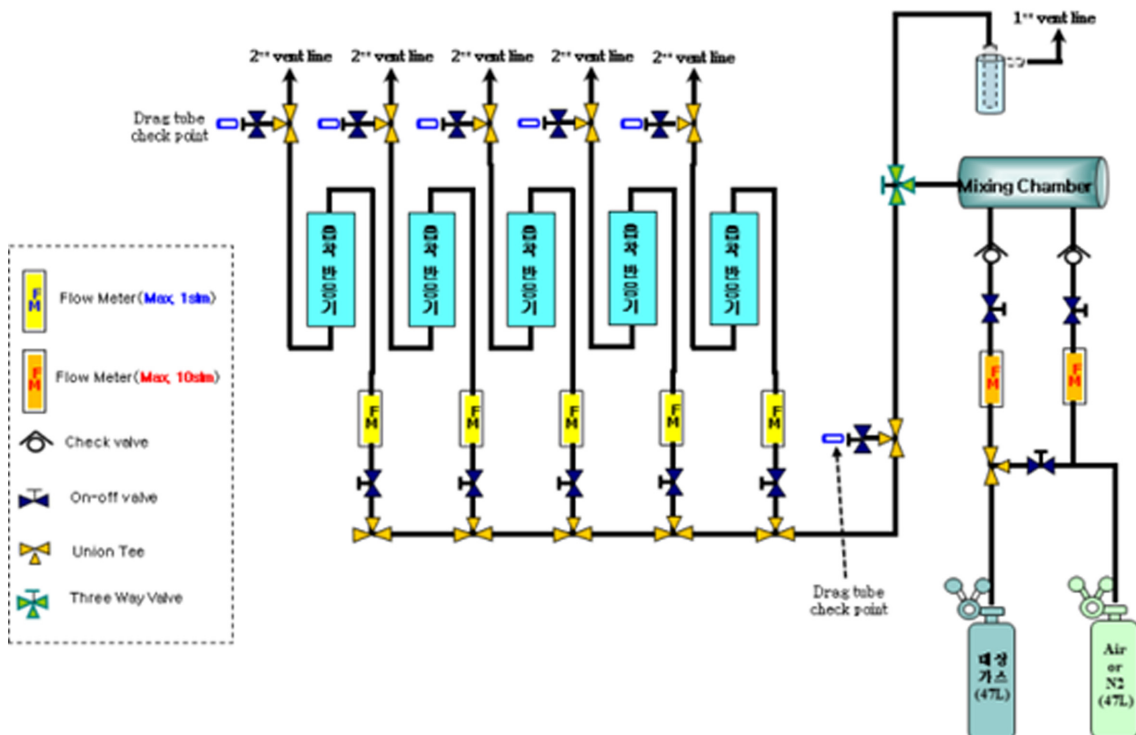


Fig. 3. Schematic diagram of adsorption experimental apparatus.

Table 1. Pore characteristics of impregnated activated carbon

	BET specific area [m ² /g]	Pore volume [cm ³ /g]
AC	1753.9	0.66480
Nomal drying MgO@AC	1384.8	0.51621
Vacuum drying MgO@AC	1424.9	0.53032
Vacuum-Nomal drying MgO@AC	1232.6	0.46234

Table 2. BET specific surface area of EU@AC and U/N@AC

	BET surface area [m ² /g]	BET surface area [m ² /g]
EU7@AC	1254	U3N1@AC 1,491
EU10@AC	923	H-U1N1@AC 1,702
EU13@AC	828	H-U3N1@AC 1,661
EU17@AC	789	H-U5N1@AC 1,120

농도가 증가함에 따라 비표면적이 감소하고 금속 원소 함량이 증가하는 경향을 보였다. 또한 기공 부피는 MgO@AC의 경우 0.6241 cm³/g에서 0.3227 cm³/g, CaO@AC의 경우 0.7732 cm³/g에서 0.6433 cm³/g으로 감소하였으며 이는 침지 용액 농도가 증가함에 따라 금속축매가 더 많이 침착되며 활성탄 내부 기공 부피를 감소시키기 때문이라고 생각된다. 비표면적, 기공 부피 및 ICP 분석을 통해 동일한 조건에서 활성탄에 CaO와 MgO를 침착할 때 CaO에 비해 MgO가 활성탄에 침착이 잘 되었으며, 이는 금속산화물의 입자 크기가 MgO가 더 작아 활성탄의 미세기공에 더 잘 침착될 수 있기 때문이다[19]. 에틸렌 우레아 및 우레아/질산으로 개질된 활성탄의 BET 분석 결과를 Table 2에 나타내었다. 에틸렌 우레아 개질 활성탄의 경우 용액 농도 7~17 wt%에서 제조되었으며, 제조된 EU@AC의 비표면적은 1254, 923, 828, 789 m²/g, 질소 함량은 2.1, 2.9, 3.7, 5.1 wt%로 용액 농도가 증가함에 따라 비표면적은 감소하고 개질된 질소 함량은 증가하는 경향을 보였다. 개질 전 사전 열처리를 진행하여 1~5 wt%로 제조된 우레아/질산 개질 활성탄은 우레아의 농도가 증가함에 따라서 비표면적은 1702, 1661, 1120 m²/g로 감소하고 질소 함량은 3.0, 4.3, 6.6 wt%로 증가하는 경향을 보여주었다. 이는 1000 °C에서 열처리할 경우 소수성 및 결정성 개선되어 오염물질 제거능력이 향상된다는 연구 결과에 상응된다[20].

에틸렌 우레아 및 우레아/질산으로 개질된 활성탄에 도입된 질소 작용기의 종류를 알아보기 위해 FT-IR 분석을 진행하여 Fig. 4에 나타내었으며, 공통적으로 1차 아민기(1660, 1659 cm⁻¹), 지방족 아민

침투되지 못하여 효율이 감소하였다고 판단된다[18].

MgO와 CaO 침착 활성탄의 침지 용액 농도에 따라서 BET 분석과 ICP 분석을 진행하여 얻은 비표면적과 금속 축매 침착량 분석 결과를 Fig. 2에 나타내었다. MgO 및 CaO 침착 활성탄은 침지 용액 농도 7~15 wt%의 범위에서 침착을 진행하였으며, 이때 MgO@AC의 비표면적은 1573, 1359, 1134, 910 m²/g, Mg 함량은 5.8, 6.2, 6.8, 9.1 wt%로 측정되었고, CaO@AC의 비표면적은 1651, 1542, 1454, 1408, 1124 m²/g, Ca 함량은 4.5, 6.8, 7.1, 7.4, 8.2 wt%로 침지 용액

Table 3. Elemental Analysis for modified activated carbons

	Elemental analysis				
	N [%]	C [%]	H [%]	S [%]	O [%]
EU7@AC	2.105	80.899	1.799	0.651	14.546
EU10@AC	2.964	74.137	2.034	0.539	20.326
EU13@AC	3.724	71.394	2.231	0.519	22.132
EU17@AC	5.114	69.468	2.538	0.352	22.528
U3N1@AC	4.647	57.63	1.712	0.475	35.536
H-U1N1@AC	3.025	65.458	1.44	0.66	29.417
H-U3N1@AC	4.374	61.138	1.705	0.492	32.291
H-U5N1@AC	6.666	58.385	2.274	0.416	32.259
H-U7N1@AC	7.09	55.927	2.391	0.314	34.278

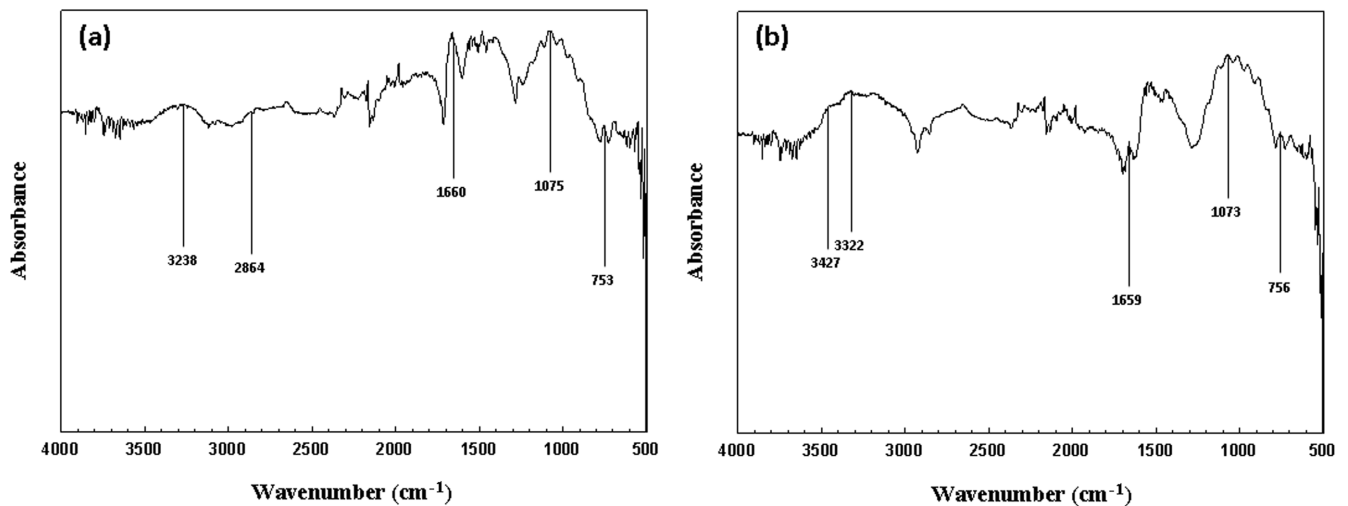


Fig. 4. FT-IR spectra of (a) EU@AC and (b) U/N@AC.

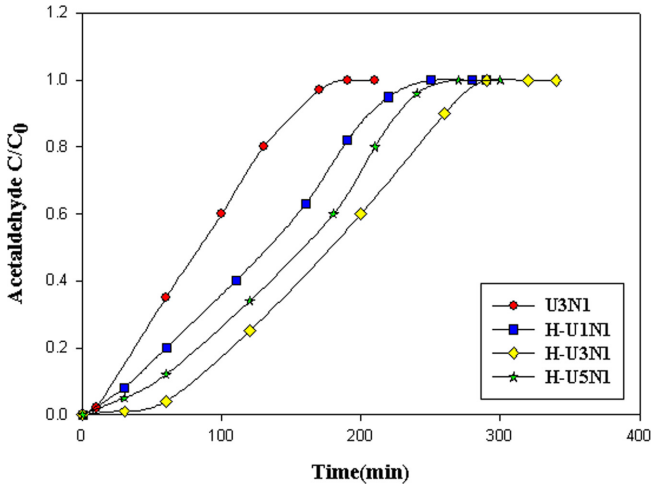


Fig. 5. Acetaldehyde breakthrough curves for Urea and Nitric acid modified activated carbons.

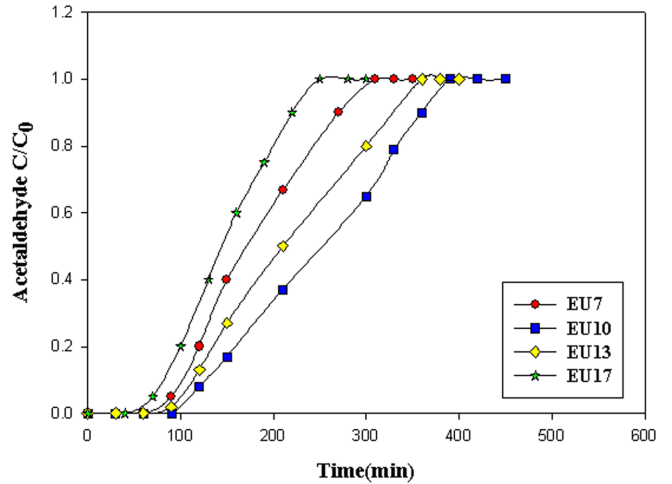


Fig. 6. Acetaldehyde breakthrough curves for Ethylene Urea modified activated carbons.

기($1075, 1073\text{ cm}^{-1}$) 및 1,2차 아민기($753, 756\text{ cm}^{-1}$)의 피크가 관찰되었다. EU@AC에서는 3238 cm^{-1} 와 2864 cm^{-1} 에서 각각 2차 아민기 및 에틸렌의 특징적인 피크가 나타났고, U/N@AC에서는 1차 아민기를 나타내는 $3427, 3322\text{ cm}^{-1}$ 의 두 피크와 1659 cm^{-1} 에서 우레아의 특징적인 피크가 관찰되었다. 이를 통해 활성탄에 작용기가 도입되었음을 확인하였다[21,22].

3-2. 침착 활성탄의 아세트알데하이드 흡착 특성

제조된 활성탄과 MgO, CaO, 에틸렌 우레아, 우레아/질산 침착 활성탄의 침착 용액 농도에 따른 아세트알데하이드 흡착 특성을 조사하였다. 아세트알데하이드의 유량은 300 mL/min 의 조건으로 고정하여 파과 실험을 진행하였으며, 출구 농도가 유입농도의 10%일 때 ($C_{out}/C_i=0.1$)를 파과점으로 정의하였다. 우레아/질산 개질 활성탄의 침착 용액 농도에 따른 활성탄의 아세트알데하이드 파과곡선은 Fig. 5에 나타내었다. $1000\text{ }^\circ\text{C}$ 에서 열처리한 활성탄에 질산 1 v/v% 및 우레아 1, 3, 5 w/v% 용액에 침지하였으며, 비교군으로 열처리하지 않은 활성탄을 질산 1 v/v%, 우레아 3 w/v% 용액으로 제조하여 제거성을 비교하였다. U3N1, H-U1N1, H-U3N1, H-U5N1 활성탄의 파과 시간은 각각 22.1, 35.0, 77.1, 51.4 분으로, 같은 농도로 개질할 때 사전 열처리를 했을 경우 파과 시간이 증가하였으며, 우레아의 농도가 3 w/v%일 때 가장 우수하였다. 우레아의 농도가 증가함에 따라 아세트알데하이드 제거 성능이 증가하다 감소하였으며 이는 과량의 우레아가 활성탄의 기공을 막아 아세트알데하이드의 기공 내 흡착 성능을 저하했기 때문으로 생각된다[20]. Fig. 6에는 에틸렌 우레아 개질 활성탄의 파과곡선을 도시하였다. 각각 활성탄 질량 대비 7, 10, 13, 17 wt%의 에틸렌 우레아를 사용하여 침지하였으며, 파과 시간은 각각 100.0, 126.7, 111.8, 80.0 분으로, EU10의 경우 파과 시간이 가장 길었다. 우레아/질산에서와 동일하게 에틸렌 우레아의 농도가 증가함에 따라 파과 시간이 증가하다 감소한 것을 확인할 수 있었다.

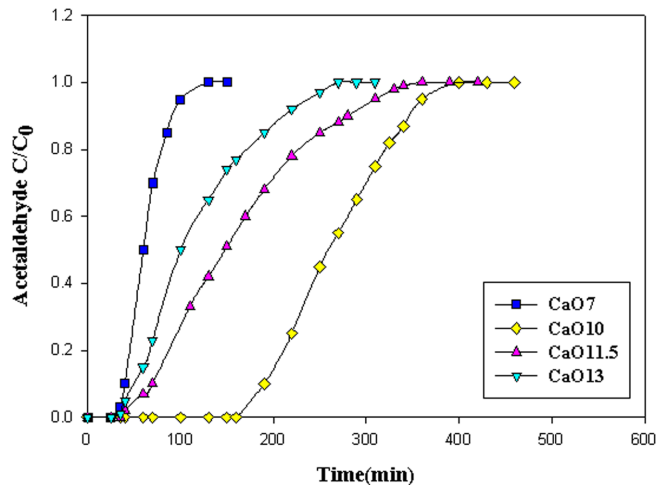


Fig. 7. Acetaldehyde breakthrough curves for CaO impregnated activated carbons.

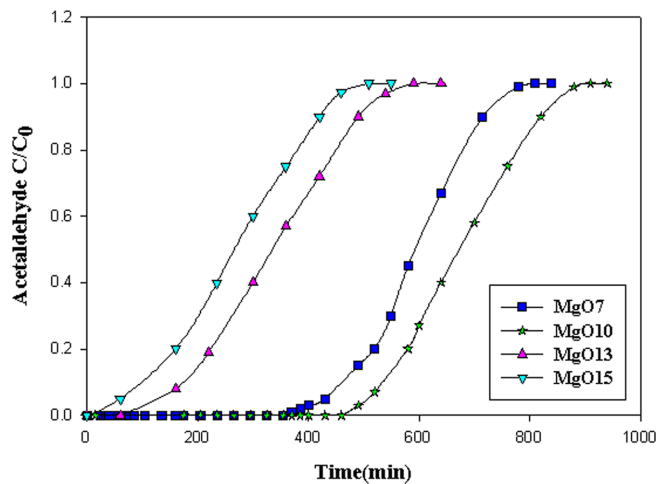


Fig. 8. Acetaldehyde breakthrough curves for MgO impregnated activated carbons.

수한 특성을 보인 용액 농도는 CaO10이다. Fig. 8에는 MgO 침착 활성탄의 아세트알데하이드 파과곡선을 나타내었다. 용액 농도 7,

Table 4. Acetaldehyde adsorption capacity of impregnated and modified activated carbons

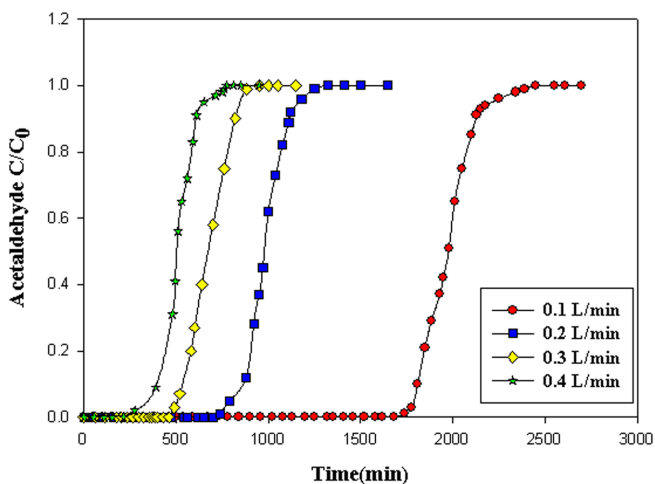
	Adsorption capacity [mg/g]		Adsorption capacity [mg/g]
EU7@AC	10.66	CaO7@AC	4.28
EU10@AC	13.51	CaO10@AC	20.39
EU13@AC	11.93	CaO11.5@AC	7.39
EU17@AC	8.50	CaO13@AC	5.31
U3N1@AC	2.31	MgO7@AC	49.32
H-U1N1@AC	3.61	MgO10@AC	57.40
H-U3N1@AC	8.13	MgO13@AC	17.97
H-U5N1@AC	5.32	MgO15@AC	9.69

10, 13, 15 wt%일 때 파과 시간 460.0, 533.8, 170.9, 93.3 분으로 침착 용액 농도 증가에 따른 흡착성능은 CaO에서와 동일하게 증가 후 감소하였으며, MgO10 활성탄의 경우 가장 파과 시간이 길었다. Fig. 5-8의 파과곡선으로부터 식 (1)을 적용하여 계산된 파과점에서의 아세트알데하이드 흡착량을 Table 4에 나타내었다.

$$Q = \frac{FC_i}{w} \left[\int_0^t \left(1 - \frac{C_{out}}{C_i} \right) dt \right] \quad (1)$$

여기서 Q(mg/g)는 아세트알데하이드 흡착량, F(mL/min)는 흡착 반응기 유입 가스의 유량, C_i 는 흡착 반응기 입구의 아세트알데하이드 농도, C_{out} 는 흡착 반응기 출구의 아세트알데하이드 농도, w(g)는 흡착제 질량을 나타낸다. 각각의 개질 및 침착 활성탄 중 MgO 침착 활성탄의 아세트알데하이드 흡착성능이 우수하였으며, 그중 MgO10 활성탄이 57.40 mg/g으로 제거성능이 가장 뛰어났다. MgO 촉매의 경우 두 가지 메커니즘을 통해 아세트알데하이드를 흡착할 수 있는데, 아세트알데하이드의 카보닐기가 MgO의 수직으로 정렬되어 산소 원자를 통해 부착되거나, 카보닐기가 MgO에 수평으로 배향되어 탄소 원자와 상호작용하여 제거성능이 증가하는 것으로 보고되었다[23].

흡착성능이 가장 우수했던 MgO10에 대하여 아세트알데하이드 유량에 따른 흡착 특성을 Fig. 9에 나타내었다. 아세트알데하이드의 유량이 100~400 mL/min으로 증가함에 따라 파과 시간이 1810.0~343.6 min, 흡착량은 65.1~48.9 mg/g으로 감소하였다. 이는 유량이

**Fig. 9. Acetaldehyde breakthrough curves for MgO10@AC at different flow rates.**

증가할수록 흡착 반응기 내에서의 체류시간이 감소하고, 활성탄과 접촉하는 아세트알데하이드의 양이 증가하여 더 짧은 시간에 흡착되기 때문으로 생각된다[24].

4. 결 론

본 연구에서는 공기청정기 필터용 고성능 활성탄을 제조하기 위해 KOH 활성화를 통한 활성탄을 제조하였으며, 공기오염물질 제거성능 향상을 위해 관능기 도입 및 금속 촉매 침착 활성탄을 연구하였다. 화학적 활성화를 통해 1753.9 m²/g의 고 비표면적을 갖는 활성탄을 제조하였다. 침착 효율 향상을 위해 다양한 조건에서 침착을 진행하였으며, 침지 후 활성탄 내 에어 제거 후 일반 건조 시 가장 높은 침착 특성을 확인하였다. 아세트알데하이드 제거 특성은 침착 물질 중 MgO10 침착 활성탄이 파과 시간 533.8 min, 흡착량 57.4 mg/g으로 가장 우수한 특성을 보였으며, 이 조성에서 금속산화물 촉매 침착을 통해 활성탄 기공 및 균일한 촉매가 적절하게 침착되어 아세트알데하이드 제거성능이 개선됨을 알 수 있었다. MgO와 아세트알데하이드의 카보닐기가 상호작용하여 제거 특성이 향상되는 것으로 생각된다. 아세트알데하이드 유량이 증가함에 따라서 체류시간이 감소되어 제거 특성이 감소하는 것으로 나타났다.

감 사

이 연구는 2023년도 산업통상자원부 및 산업기술평가관리원 (KEIT) 연구비 지원에 의한 연구임(20012870).

References

- Costarramone, N., Cantau, C., Desauziers, V., Pécheyran, C., Pigot, T. and Lacombe, S., "Photocatalytic Air Purifiers for Indoor Air: European Standard and Pilot Room Experiments," *Environ. Sci. Pollut. Res.*, **24**, 12538-12546(2017).
- Sundman, M. R., Lundgren, M., Vestin, E. and Herder, P., "Emissions of Acetic Acid and Other Volatile Organic Compounds from Different Species of Solid Wood," *Eur. J. Wood Wood Prod.*, **56**, 125-129(1998).
- Lillo-Ródenas, M. A., Cazorla-Amorós, D. and Linares-Solano, A., "Behaviour of Activated Carbons with Different Pore Size Distributions and Surface Oxygen Groups for Benzene and Toluene Adsorption at Low Concentrations," *Carbon*, **43**, 1758-1767 (2005).
- Zhang, J. and Smith, K. R., "Emissions of Carbonyl Compounds from Various Cookstoves in China," *Environ. Sci. Technol.*, **33**(14), 2311-2320(1999).
- Mansour, E., Curling, S., Stéphan, A. and Ormondroyd, G., "Absorption of Volatile Organic Compounds by Different Wool Types," *Green Mater.*, **4**(1), 1-7(2016).
- Kim, M., Lim, G., Kim, Y., Han, B., Woo, C. and Kim, H., "A Novel Electrostatic Precipitator-type Small Air Purifier with a Carbon Fiber Ionizer and An Activated Carbon Fiber Filter," *J. Aerosol Sci.*, **117**, 63-73(2018).
- Molina-Sabio, M., Gonzalez, M. T., Rodriguez-Reinoso, F. and Sepulveda-Escribano, A., "Effect of Steam and Carbon Dioxide Activation in the Micropore Size Distribution of Activated Car-

- bon,” *Carbon*, **34**(4), 504-509(1996).
8. Evans, M. J. B., Halliop, E. and MacDonald, J. A. F., “The Production of Chemically-activated Carbon,” *Carbon*, **37**, 269-274 (1999).
 9. Selvanathan, N. and Subki, N. S., “Dye Adsorbent by Pineapple Activated Carbon: H₃PO₄ and NaOH Activation,” *ARPN J. Eng. Appl. Sci.*, **10**(20), 9476-9480(2015).
 10. Hanum, F., Bani, O. and Izdiharo, A. M., “Characterization of Sodium Carbonate (Na₂CO₃) Treated Rice Husk Activated Carbon and Adsorption of Lead from Car Battery Wastewater,” *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, **180**, 012149(2017).
 11. Bekyarova, E. and Mehandjiev, D., “Effect of Calcination on Co-Impregnated Active Carbon,” *J. Colloid Interface Sci.*, **161**, 115-119(1993).
 12. El-sayed, Y. and Bandosz, T. J., “A Study of Acetaldehyde Adsorption on Activated Carbons,” *J. Colloid Interface Sci.*, **242**, 44-51 (2001).
 13. Liu, Y., Jia, H., Li, C., Sun, Z., Pan, Y. and Zheng, S., “Efficient Removal of Gaseous Formaldehyde by Amine-modified Diatomite: a Combined Experimental and Density Functional Theory Study,” *Environ. Sci. Pollut. Res.*, **26**, 25130-25141(2019).
 14. Ryu, D. Y., Nakabayashi, K., Shimohara, T., Morio, U., Mochida, I., Miyawaki, J., Jeon, Y., Park, J. I. and Yoon, S. H., “Behaviors of Cellulose-Based Activated Carbon Fiber for Acetaldehyde Adsorption at Low Concentration,” *Appl. Sci.*, **10**(1), 25(2019).
 15. Srinives, S., Sarkar, T. and Mulchandani, A., “Primary Amine-functionalized Polyaniline Nanothin Film Sensor for Detecting Formaldehyde,” *Sens. Actuators B Chem.*, **194**, 255-259(2014).
 16. Baur, G. B., Yuranov, I. and Minsker, L. K., “Activated Carbon Fibers Modified by Metal Oxide as Effective Structured Adsorbents for Acetaldehyde,” *Catal. Today*, **249**, 252-258(2015).
 17. Kim, W., Vikrant, K., Younis, S. A., Kim, K. and Heynderickx, P. M., “Metal Oxide/activated Carbon Composites for the Reactive Adsorption and Catalytic Oxidation of Formaldehyde and Toluene in Air,” *J. Clean. Prod.*, **387**, 135925(2021).
 18. Ma, W., Ding, Y., Yang, J., Liu, X. and Lin, L., “Study of Activated Carbon Supported Iron Catalysts for the Fischer-tropsch Synthesis,” *React. Kinet. Catal. Lett.*, **84**(1), 11-19(2005).
 19. Amornpattana, W. K., Phadungbut, P., Kunthakudee, N., Jonglertjunya, W., Ratchahat, S. and Hunsom, M., “Innovative Metal Oxides (CaO, SrO, MgO) Impregnated Waste-derived Activated Carbon for Biohydrogen Purification,” *Scientific Reports*, **13**(1), 4705(2023).
 20. Ryu, D. Y., Shimohara, T., Nakabayashi, K., Miyawaki, J., Park, J. I. and Yoon, S. H., “Urea/nitric Acid co-impregnated Pitch-based Activated Carbon Fiber for the Effective Removal of Formaldehyde,” *J. Ind. Eng. Chem.*, **80**, 98-105(2019).
 21. Kuruvilla, T. K., Muthu, S., Prasana, J. C., George, J. and Sevvanthi, S., “Spectroscopic (FT-IR, FT-Raman), Quantum Mechanical and Docking Studies on Methyl[(3S)-3-(naphtalene-1-yloxy)-3-(thiophen-2-yl)propyl]amine,” *J. Mol. Struct.*, **1175**, 163-174(2019).
 22. Ahmad, S. I., Syed, I. A., Prasad, P. R. and Ahmad, A., “Quantitation of urea in urine by fourier transforms infrared spectroscopy,” *Der Pharma Chem.*, **6**(1), 90-96(2014).
 23. Baur, G. B., Yuranov, I. and Minsker, L. K., “Activated Carbon Fibers Modified by Metal Oxide as Effective Structured Adsorbents for Acetaldehyde,” *Catal. Today*, **249**, 252-258(2015).
 24. Sidek, M. Z., Cheah, Y. J., Zulkefli, N. N., Yusuf, N. Y. M., Isahak, W. N. R. W., Sitanggang, R. and Masdar, M. S., “Effect of Impregnated Activated Carbon on Carbon Dioxide Adsorption Performance for Biohydrogen Purification,” *Mater. Res. Express*, **6**(1), 015510(2018).

Authors

Jin Chan Park: Ph.D. course, Department of Chemical Engineering, Chungbuk National University, Cheongju 28644, Korea; jpark90hd@gmail.com

Dong Min Kim: Master course, Department of Chemical Engineering, Chungbuk National University, Cheongju 28644, Korea; ark4732@naver.com

Jong Dae Lee: Professor, Department of Chemical Engineering, Chungbuk National University, Cheongju 28644, Korea; jdlee@chungbuk.ac.kr