大韓環境工學會誌 · 논문
J. of KSEE Vol. 22, No. 10, pp. 1861~1867, 2000.
Journal of Korean Society of Environmental Engineers

역층상 점증형 흡착탑에서의 흡착특성

이승목 · 김대현 · 이일영

관동대학교 건설환경시스템공학부

(2000년 4월 17일 접수, 2000년 8월 11일 채택)

Adsorption Characteristics of Reverse Stratified Tapered Adsorber

Seung-Mok Lee · Dae-Hyun Kim · Il-Young Lee

Division of Construction, Environment and System Engineering, Kwandong University

ABSTRACT

Granular activated carbon(GAC) adsorption is one of the best available technology to remove synthetic organic chemicals(SOCs) from water supplies and wastewater. In order to satisfy enviromental criteria and reduce GAC treatment cost, optimal study of reverse stratified tapered adsorber(RSTA) has been conducted. The RSTA was found to provide on increase in breakthrough time when compared to a conventional cylindrical adsorber(CA). Through the RSTA optimal experiment, optimal mean bed velocity was decided 19.10cm/min and optimal angle was decided RSTA(3.0°). Adsorption efficiency was increased with increasing activated carbon doses and the number of activated carbon layers.

Key Words : Adsorption, RSTA, GAC, Phenol, Optimal Study

요 약 문

활성탄 흡착법은 유해 유기화합물질을 처리하기 위한 최적기법이다. 강화되어 가는 각종 환경 기준을 만족시키고, 활성탄처리 비용절감을 위하여 RSTA의 최적화를 연구하였다. 실린더형 흡착탑과 RSTA의 비교실험에서는 동일 조건하에서 RSTA의 파과시간이 증가하였다. RSTA의 최적화를 위한 실험에서 최적 선속도는 19.10cm/min였으며, 최적각은 압력강하 실험과 최적각도 결정 실험을 통해서 RSTA(3.0°)인 것으로 나타났다. 그리고 활성탄 주입량과 충전층수가 많을수록 흡착효율은 증가하였다.

주제어 : 흡착, 역층상 점증형 흡착탑, 활성탄, 페놀, 최적화

1. 서 론

USEPA에서는 1989년 National Drinking Water Regulation을 통해 유해 유기화합물질을 처리하기 위한 최적기법(Best Available Technology)으로 활성탄 흡착법을 규정하였다.[1] 그러나 기존의 재래식 처리기술과 활성탄 흡착법을 비교해 볼 때, 활성탄 흡착법을 이용하여 다양한 종류와 많은 양의 유해 유기화합물질을 처리하기 위해서는 상당한 처리비용과 숙련된 기술력을 필요로 한다. 그러나 산업화가 가속화됨에 따라 머지 않은 장래에 유해 유기화합물질 뿐만 아니라 기타 오염유발물질에 대한 규제가 더욱 강화될 것은 자명한 일이다. 따라서 활성탄 흡착법은 이러한 단점에도 불구하고 그 중요성이 더해질 것으로 예상된다.

우리 나라에서도 1980년대 후반부터 중금속, THMs, phenol 등에 의한 수질 오염문제가 빈번히 발생하고 있다. 그리고 이에 대한 여러 가지 처리기술 중 활성탄을 사용한 흡착처리기술의 도입이 활발히 진행되고 있으며, 활성탄 사용량 또한 매년 증가하고 있는 추세이다.

지난 30여년 동안 흡착과 관련된 기본적인 반응기작을 이해하고 흡착평형과 반응속도 및 피흡착질 간의 상호작용을 알아내기 위하여 많은 연구들이 진행되었으나 흡착효율 증진을 위한 연구는 일부 학자들에 의해서만 수행되고 있다.

Yong[2]은 phenol계 화합물 등 수중의 미량의 유기물을 효과적으로 제거하기 위해 여러 가지 모양의 흡착탑을 실험한 결과, 흡착제 크기의 적당한 분할과 다양한 횡단면의 칼럼을 선택함으로써 흡착효율이 지속적으로 높아질 수 있음을 밝혔다. Basmadjian[3]은 흡착능을 증가시키기 위하여 SA(Stratified Adsorber)를 사용하였다. 큰 입자층 하부에 작은 입자층을 위치하게 하여 두 개의 층을 실린더형 흡착탑 내부에 충진하였으며, 이 배열은 작은 입자로 채워진 흡착탑보다 높은 흡착력을 보였고 압력강하 현상도 1/3 정도였다. 또 Pota와 Mathews[4] 및 김[5]은 재래식 실린더형 흡착탑(Cylindrical Adsorber)을 변형시킨 RSTA를 이용한 유해 유기화합물질의 파과실험에서 RSTA를 이용하면 파과시간을 증가시킬수 있을 뿐만 아니라 파과곡선을 개선시킬 수 있다는 연구결과를 발표했다. 또 이와 김[6]은 RSTA를 이용하여 phenol과 4-nitrophenol의 이성분계 경쟁흡착을 실시하였으며, RSTA를 이용하였을 경우가 기존의 CA를 이용한 경우에서보다 4-nitrophenol의 경쟁흡착능이 향상되고, RSTA에서는 활성탄 충전층 수가 많을수록, 또 수축각이 커질수록 흡착능이 증가하였다.

RSTA는 Fig. 1과 같이 상부로 갈수록 단면적이 증가하는 TA내에 입자가 점점 작아지는 활성탄을 충전하는 RS system을 혼합한 새로운 흡착공정이다. 흡착탑의 형태를 변화시켜 유속을 완만하게 조절하여 흡착대(MTZ ; Mass Transfer Zone)의 전이를 늦추고, 보다 긴 접촉시간을 제공하기 때문에 RSTA에서는 흡착효율이 증진될 뿐만 아니라, 파과특성곡선도 개선된다.

본 연구에서는 CA와 RSTA의 흡착특성을 비교하여 RSTA의 우수성을 나타내고, RSTA의 각도, 활

성탄 충전 층수, 활성탄 주입량 등의 변화를 통해 최적의 운영조건을 도출하고자 하였다.

2. 실 험

2.1. 실험재료

본 실험에서는 동양탄소 주식회사에서 제조한 석탄계(bituminous coal) 입상활성탄(Granular Activated Carbon)을 sieve size(12/14, 14/16, 16/18, 18/20, 20/30, 30/40)별로 체가름한 후, 초순수(전기저항: 6.2MΩ-cm)를 사용하여 세공내의 미분을 제거하였으며, 105±5℃의 dry oven에서 건조한 후 사용할 때까지 데시게이터 안에 보관하였다. 그리고 흡착질은 일급의 phenol(J. T. Baker Chemical Company)을 사용하여 합성폐수를 조제하였다.

2.2. 실험장치

연속식 실험에서 사용한 실험장치는 아크릴로 제작하였다. 실린더형 흡착탑(Cylindrical Adsorber)과 하부로의 수축각이 1.5°, 3.0° 및 4.5°인 점증형 흡착탑(Tapered Adsorber)을 사용하였으며, 상향류 연속실험으로 수행하였다(Fig. 1).

실험에 사용한 각 흡착탑의 제원을 살펴보면, 실린더형 흡착탑은 내부지름이 20mm이며, 점증형 흡착탑은 1.5°, 3.0°, 4.5° 순으로 상부안지름이 21.5 mm, 25.0mm, 28.2mm이고, 하부안지름이 13.7 mm, 9.3mm, 4.6mm이다. 또한 모든 흡착탑의 높이와 체적이 각각 300mm와 94.25cm^{2}로 같게 설계하였다(Fig. 2). 점증형 흡착탑에는 흐름 방향에 따라 점점 작은 크기의 활성탄 층이 형성될 수 있도록 충진하였으며, 실린더형 흡착탑은 현재 일반적으로 사용되고있는 흡착탑과 비교를 위하여 혼합상의 활성탄을 충진하였다. 각 흡착탑의 유입구에 확산장치(distributor)를 설치하여 유입수가 흡착탑내에 고르게 분산할 수 있도록 설계하였다. 미량유량 소실펌프(digi-staltic, Masterflex)를 통하여 균등한 양의 시료를 연속적으로 주입하였다.

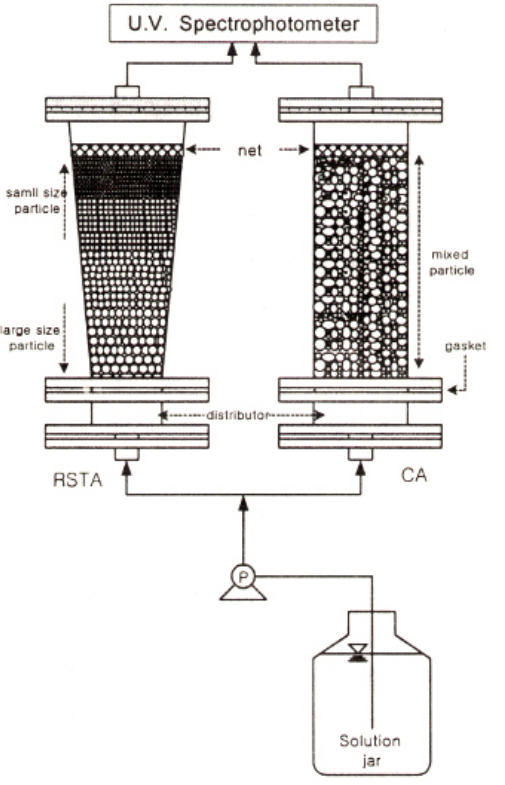
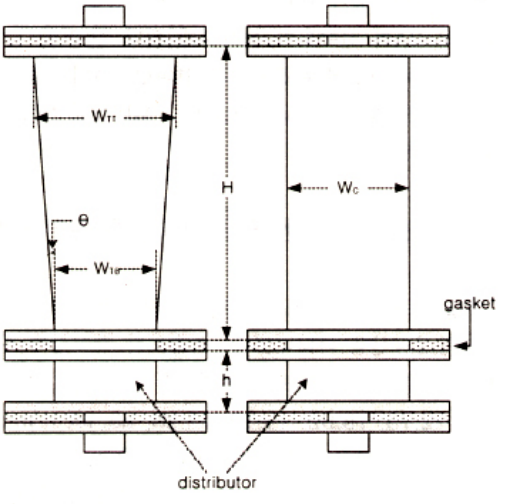


Fig. 1. Schematic diagram of CA and RSTA.



Angle (2θ)	W_{TT}	W_{TB}	W_C	H	h
1.5°	21.5mm	13.7mm	20mm	300mm	50mm
3°	25.0mm	9.3mm			
4.5°	28.2mm	4.6mm			

Fig. 2. Schematic diagram of cylindrical and tapered adsorber for various angle.

2.3. 실험방법

고정상 연속식 흡착실험은 phenol의 농도 200 mg/L를 연속 주입하였으며, 온도 변화에 따른 흡착효율 변화를 최소화하기 위하여 20℃ 항온실에서 수행하였다. Phenol은 U.V.-visible spectro-photometer(UV mini-1240, SHIMADZU)를 사용하여 270 nm에서 분석하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1. CA와 TA에서 선속도변화

Fig. 3은 유량이 60mL/min일 때 CA와 RSTA의 높이에 따른 선속도를 나타낸 것이다. CA는 흡착탑 높이에 따른 선속도가 19.10cm/min으로 변화가 없는 반면 TA의 경우 1.5, 3.0, 4.5°에 대하여 유입부의 선속도는 각각 31.91, 69.77, 285.71cm/min이고 유출부는 12.99, 9.60, 7.55cm/min으로 유입부의 선속도는 CA에 비하여 TA가 높은 반면 흡착탑의 길이가 증가하면서 점차 낮아져 유출부에서는 오히려 CA의 선속도가 높아지게 된다. 이러한 TA의 특성 때문에 본 논문에서는 편의상 CA에서의 평균베드속도(Mean Bed Velocity ; MBV)를 선속도로 사용하였다.

3.2. RSTA에서 선속도 변화에 따른 흡착특성

Fig. 4는 RSTA(3.0°)에서 선속도 변화에 따른 파과특성곡선을 나타내었다. 선속도가 작아짐에 따라 파과시간이 지연되는 경향을 볼 수 있었다. 선속도가 12.73, 15.92, 19.10, 22.28, 25.46cm/min일 때 파과시간은 각각 19.3, 15.3, 12.4, 8.9, 8.3시간으로 나타났다. GAC상에서 흡착이 일어나는 부분을 물질이동대(Mass Transfer Zone ; MTZ)라하며 오염된 물이 흡착탑에서 MTZ의 길이와 같은 깊이를 통과한 후에는 물속의 오염물질이 최소화된다. 따라서 길이가 같은 상에서 물질이동대의 길이(Length of Mass Transfer Zone; LMTZ)가 짧을수록 흡착탑의 파과시간 지연과 파과곡선의 향상

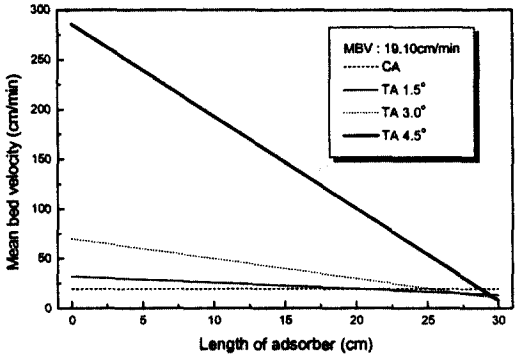


Fig. 3. Mean bed velocity for CA and various angles of TA.

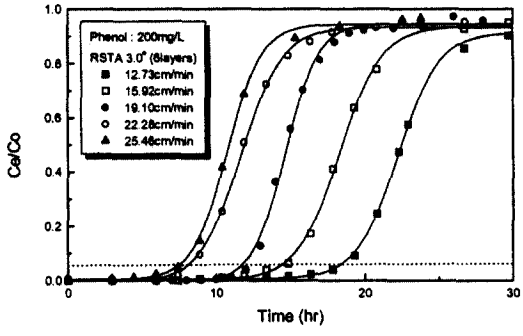


Fig. 4. Breakthrough curves for phenol at various mean bed velocity of RSTA (3.0°).

으로 인한 효율증가를 나타내게 된다. Pota와 Mathews[4]는 유입농도의 10%와 90%가 유출되는 시간차를 이용하여 LMTZ을 계산하였으며 이에 따라 계산하면 선속도가 12.73, 15.92, 19.10, 22.28, 25.46cm/min일 때 LMTZ은 각각 11.24, 11.94, 10.89, 17.79, 15.93cm로 나타나 RSTA(3°)에서의 최적 선속도는 LMTZ가 가장 작은 경우의 선속도인 19.10cm/min인 것으로 판단된다.

3.3. RSTA의 최적수축각도 결정

Fig. 5에는 RSTA(1.5°), RSTA(3.0°), RSTA(4.5°) 및 CA의 파과특성곡선을 나타내었다. 파과시간은 RSTA(3.0°)에서 13시간으로 가장 길었으며, CA에서 10시간으로 가장 짧았다. 그러나 RSTA(4.5°)에서는 RSTA(1.5°)에서와 거의 비슷한 12시간에 파과를 나타냈다. Pota와 Mathews[4]

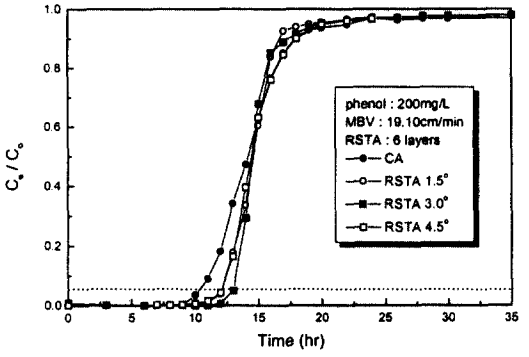


Fig. 5. Breakthrough curves for phenol at various angles of RSTA and CA with 6 layers and 19.10cm/min.

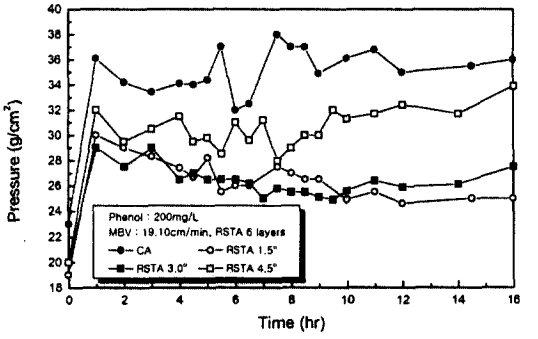


Fig. 6. Comparison of pressure drop characteristics at various angles of RSTA and CA with 6 layers and 19.10 cm/min.

의 연구결과에 의하면 흡착탑의 체적과 높이가 일정한 상태에서 수축각이 커짐에 따라 유입부의 단면적이 감소하여, 유입부의 유속이 증가하게 된다. 본 실험에서 선속도가 19.10cm/min일 때 CA, RSTA (1.5, 3.0, 4.5°)에서는 유입구의 선속도를 보면 각각 19.10, 31.91, 69.77, 285.71cm/min으로 RSTA(4.5°)일 때 선속도가 과도하게 빨라져 흡착탑의 하부에서는 충분한 흡착시간을 갖지 못하고 고농도의 시료가 흡착탑의 중·상부까지 빠른 시간에 전달되기 때문에 RSTA(3.0°)에 비해 상대적으로 유효흡착 site가 줄어든 것으로 판단된다.

Fig. 6은 RSTA(1.5°), RSTA(3.0°), RSTA (4.5°) 및 CA의 압력강하특성을 나타내었다. 실험결과 RSTA(1.5°)는 40%, RSTA(3.0°)는 32%, RSTA(4.5°)는 53% 그리고 CA는 50%의 평균압력증가를 나타내었다. 실험장치가 가동된 직후에는 모든 흡착탑에서 45~60%의 급격한 압력증가를 나타냈다. 계속적인 실험을 통해 RSTA(1.5°)와 RSTA (3.0°)에서는 압력이 서서히 줄어들었으나, RSTA (4.5°)와 CA에서는 가동직후와 별다른 차이를 보이지 않았다.

따라서 수축각 변화실험과 압력강하 실험을 통해, 본 실험에서 사용한 RSTA의 최적각은 3.0°인 것으로 판단되며, 이후에 수행된 활성탄 충전량 변화실험, 활성탄 층수 변화실험은 RSTA(3.0°)에서 수행하였다.

3.4. RSTA에서 활성탄 층수변화에 따른 흡착특성

Fig. 7에는 RSTA(3.0°)에 충전되는 활성탄의 층수를 2층, 3층 및 6층으로 변화시켰을 경우 phenol의 파과곡선을 나타내었다. 이 실험에 사용된 활성탄은 sieve size 12/14, 14/16, 16/18, 18/20, 20/30, 30/40을 각각 6g씩 분취하여 2층의 경우 12/18, 18/40, 3층의 경우 12/16, 16/20, 20/40으로 혼합하여 충전하였으며 실험결과 충전 층수가 증가됨에 따라 파과시간이 증가하였으며, 2층, 3층, 그리고 6층에 대한 LMTZ은 12.99, 8.63, 8.40cm로 나타나 층수가 증가할수록 효율이 증가함을 보였다. 이러한 실험결과는 Pota와 Mathews[4]가 RSTA의 충전층을 변화시켜 TCE(trichloroethylene)을 흡착시켜 얻은 결과와도 잘 일치한다.

3.5. RSTA에서 활성탄 충전량 변화에 따른 흡착특성

Fig. 8에는 RSTA(3.0°)에서 활성탄 충전량을 18g, 27g, 그리고 36g으로 변화시켰을 경우 파과곡선을 나타내었다. 활성탄은 RSTA의 중앙부분을 기준으로 하여 충전하였으며, 실험조작 중 활성탄의 들뜸과 흐트러짐을 방지하기 위하여 망을 사용해 활성탄을 충전하고 난 RSTA의 잔여공간을 충전하였다. 18g의 활성탄을 충전한 경우에는 파과시간이 5

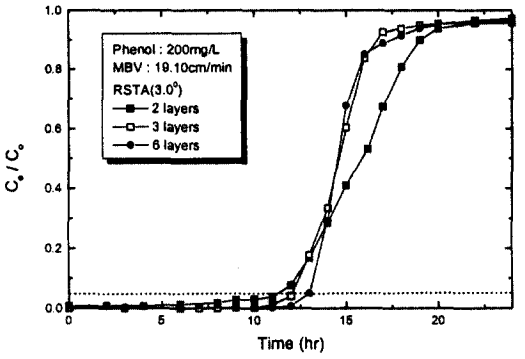


Fig. 7. Breakthrough curves for phenol at various layers of RSTA(3.0°) with 19.10cm/min.

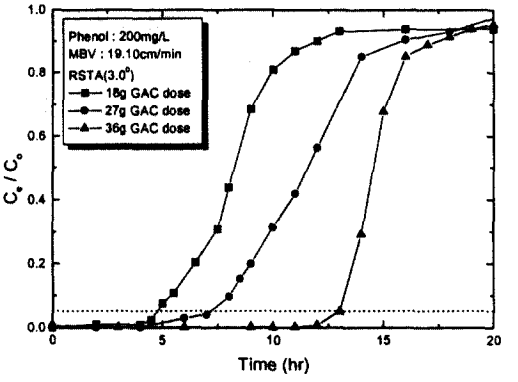


Fig. 8. Breakthrough curves for phenol at various carbon doses of RSTA(3.0°) with 6 layers and 19.10cm/min.

시간이고, 27g을 충전하였을 경우에는 7.5시간이었다. 그러나 활성탄을 36g 충전하였을 경우에는 파과시간이 13시간으로 현저한 증가를 나타내었으며, 18g을 기준으로 27g의 경우 충전량이 50% 증가시 파과시간이 50% 증가한 반면 36g의 경우 충전량이 100% 증가시 160%의 증가를 보였다. 이는 활성탄 충전량이 증가할수록, 선속도 감소율이 큰 흡착탑 상부에서 활성탄 입자와 phenol의 접촉시간이 증가하였기 때문으로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 기존의 연구를 바탕으로 현재 일반적으로 사용되고 있는 CA와 RSTA의 비교 및 변수변환실험을 통해 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1) 유입유량변화에 따른 파과특성곡선을 분석한 결과, RSTA(3°)로의 최적 선속도는 19.10 cm/min이다.
2) RSTA 최적각 결정을 위해 수축각 변화에 따른 파과특성실험과 수축각 변화에 따른 압력강하실험을 수행하였으며, 실험결과 RSTA의 최적각도는 3.0°였다.
3) RSTA(3.0°)에서 활성탄 충전층수를 2층, 3층, 그리고 6층으로 변화시킨 실험에서는 활성탄 충전층수가 많을수록 파과시간이 증가하였으며, 파과곡선도 개선되었다.
4) RSTA(3.0°)에서 활성탄의 주입량을 18g, 27g 및 36g으로 변화시킨 실험에서는 활성탄 주입량을 비례적으로 증가시킬 경우 파과시간의 차이는 그 이상 커지는 것으로 나타났고, 파과곡선 또한 개선되는 것으로 나타났다. 활성탄 충전층수가 많을수록 우수한 흡착효율을 나타내었다.

이러한 결과를 바탕으로 RSTA에 대한 흡착효율 향상, 파과곡선의 개선, 현장적용을 위한 scale-up 등의 계속적인 연구가 진행된다면, 지하수 처리, 침출수 처리, 폐수처리, 상수처리 등 각종 수처리에 광범위하게 적용할 수 있을 뿐만 아니라, 강화되어 가는 환경기준의 만족과 수처리 비용을 절감할 수 있는 새로운 기술을 갖출 수 있을 것이다.

사 사

본 연구는 한국과학재단의 핵심전문 연구비(981-1113-073-2)의 지원에 의해 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. USEPA, National Primary Drinking Water Regulations Volatile Synthetic Organic Chemicals, Proposed Rulemaking, *Fed.*

Reg., **49**, 24330~24355(1984).
2. Yong, K. L., Activated Carbon Adsorption of Circular and Tapered Fixed Bed, M. S. Thesis, Kansas State University(1989).
3. Basmadjian, D., The Adsorption Drying of Gases and Liquids, Advances in Drying, Vol. 3, Majumdar, A. S., (Ed.), Hemisphere, Washington, DC., Chap. 8(1983).
4. Pota, A. A. and Mathews, A. P., "Adsorption Dynamics in a Stratified Convergent Tapered Bed," *Chemical Engineering Science*, **55**(200), 1399~1409(1999).
5. 김원기, 실린더형 흡착탑과 점감형흡착탑의 페놀 과과특성 비교연구, 관동대학교 석사학위논문, pp. 23~36(1999).
6. 이승목, 김대현, "GAC를 이용한 RSTA에서 Phenol과 4-Nitrophenol의 이성분계 경쟁흡착," 대한환경공학회지, **22**(4), 723~731(2000).