

## 定電位電解에 의한 活性炭에 含有된 페놀 除去

\*金成羽\* · 朴勝祚\*\*

동아대학교 환경공학과

### Removal of Phenol Loaded with Activated Carbon by Potentiostatic Method

\*Sung-Woo Kim\* and Seung-Cho Park\*\*

Department of Environmental Eng., Dong-A University

#### 요 약

페놀을 함유한 폐 활성탄의 가열 재생시 대기 오염물인 페놀이 생성되어 환경을 오염시키므로 발생하는 페놀 제거에 대한 검토가 필요하다. 본 연구에서 실험에 사용하여 페놀을 함유한 S.회사 활성탄(WS-GAC), C.회사 활성탄(WC-GAC), L.회사 활성탄(WL-GAC)의 전해산화는 정전위 전해방식으로 실험하였다. 시료에 함유된 페놀농도는 100 mg/g, 지지 전해질은 1.0% 염화나트륨 용액, Ti-Ir(10×10 cm<sup>2</sup>) 전극 간격은 2 cm, 전류밀도는 1.25 A/dm<sup>2</sup> 인 조건에서 실험이 이루어졌을 경우 전해 산화 실험에서 얻은 결과 페놀의 잔류물은 검출되지 않았다. 그러므로 전해산화 반응에서 반응시간, 전류밀도, 지지전해질의 농도, 전극간의 거리가 60 minutes, 1.25 A/dm<sup>2</sup>, 1.0%, 2 cm 임을 알 수 있었다.

주제어: 정전위전해법, 입상활성탄, 지지전해질, 전류밀도, 양극산화,

#### ABSTRACT

Air pollutants, phenol was generated in case of thermal regeneration of used activated carbon loaded with phenol and because of this problem, removal process of phenol were studied. Electrolytic oxidation of samples, used S.company granular activated carbon (WS-GAC), used C.company granular activated carbon (WC-GAC) and used L.company granular activated carbon (WL-GAC) loaded with phenol carried out by potentiostatic method in this study. In case of experiment was to come into operation in condition of samples containing 100 mg/g phenol, supporting electrolyte was 1.0% sodium chloride solution, Ti-Ir (10 × 10 cm<sup>2</sup>) electrode and electrode distance was 2 cm, current density was 1.25 A/dm<sup>2</sup>. Obtained from the results of electrolytic oxidation experiments were not detected residual phenol. And then we knew about reaction time of electrolytic oxidation, current density, concentration of supporting electrolyte and electrode and electrode distance were 60 minutes, 1.25 A/dm<sup>2</sup>, 1.0%, 2 cm.

**Key words:** Potentiostatic method, granular activated carbon (GAC), supporting electrolyte, current density, anodic oxidation.

#### 1. 서 론

국내 활성탄의 수요량은 1999년 기준으로 약 30,000톤이며 이중 수입량이 18,000톤이고 국내생산량은 12,000톤이다. 이중 정수 처리용으로 15,000톤, 대기오염물 제거용으로 15,000톤이 사용되어 매년 활성탄 사

용량은 증가하고 있다.<sup>1,2)</sup> 이와 같이 사용량이 증가함에 따라 폐 활성탄 발생량은 증가하고 있으며 이것은 지정 폐기물로 고시되어 폐 활성탄의 처리에 따른 비용도 상당하다. 폐기되는 활성탄중 페놀을 함유하고 있는 폐 활성탄은 가열 재생 공법으로 처리할 경우 페놀이 발생하여 처리에 어려움을 주고 있다. 그러므로 페놀을 함유하고 있는 폐 활성탄은 가열 재생법이 아닌 다른 공법을 구사하여 처리하는 것이 바람직할 것으로 생각한다.

\* 2001년 6월 1일 접수, 2001년 6월 30일 수리

\*\* E-mail: \*SHRD9140@chollian.net, \*\*sjpark@donga.ac.kr

따라서 본 연구에서는 페놀을 함유한 폐 활성탄중에 존재하는 페놀을 제거할 목적으로 페놀을 함유한 폐 활성탄을 시료로 선정하였다. 페놀을 흡착하고 있는 폐 활성탄과 페놀의 다른 성분이 흡착되어 있는 화학공장의 폐 활성탄을 시료로 선정하여 정전위 전해방법으로 실험하였다. 연구 내용은 전류밀도, 지지전해질농도, 전극간격, 활성탄내의 페놀농도, 반응조내의 페놀농도간 변화를 검토하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 전해 장치

실험에 사용한 회분식 전해장치의 개략도를 Fig. 1에

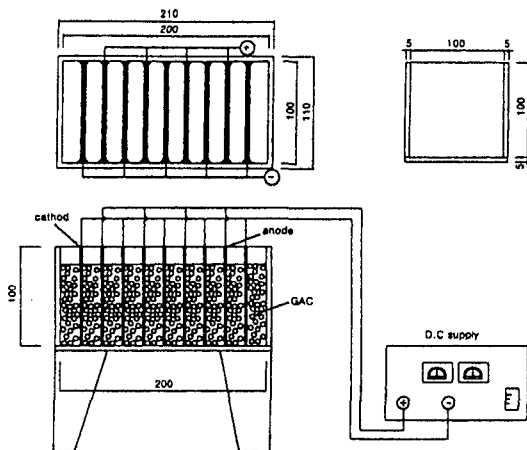


Fig. 1. The electrochemical reactor used in the experiment.

도시하였다.

Fig. 1에 제시한 전해 장치 내부에  $10 \times 10 \text{ cm}^2$  이고 두께가 2 mm인 Ti-Ir 양극을 4개 설치하였고 음극으로는  $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 의 두께 2 mm인 Ti-Ir 음극 5개를 설치하였다. 반응조 용량은 2.0 l이고 반응조의 재질은 내약품성이 강한 두께 5 mm 아크릴 수지판을 사용하였다. 전원은 전류 0~30 A, 전압은 0~50V까지 조절 가능한 직류전원 공급장치를 사용하였다.

### 2.2. 시료

시료는 울산광역시의 L사의 폐활성탄(이하 WL-GAC라 칭함), 국내 S사의 입상 활성탄(S-GAC)과 calgon 사의 입상 활성탄(C-GAC)을 사용하였다. 페놀 용액을 농도별로 S-GAC, C-GAC에 흡수시킨 것 중 S.회사 제품은 WS-GAC, C.회사 제품은 WC-GAC 라하고 L. 공장에서 배출된 폐 활성탄은 WL-GAC라고 명명하였다. 각 시료의 물성을 정리하여 Table 1에 제시하였다. 시료로 사용한 활성탄 WS-GAC, WC-GAC, WL-GAC은 페놀 용액에 충분히 침적시킨 후 시료로 사용하였다.

### 2.3. 방법 및 분석

활성탄에 흡착된 페놀농도, 전해질농도, 전극간격, 활성탄내의 잔류 페놀농도를 측정하였다. 활성탄에 존재하는 페놀분석은 측정시험법은 한국표준협회의 활성탄 시험방법(KS M 1802)<sup>3)</sup>과 환경오염시험법<sup>4)</sup>에 따라 분석하였다. 즉 시료중에 존재하는 페놀량은 gas chromatography(varian 3800, USA)로 분석하였다. 분석 조건은 Table 2에 제시하였다.

Table 1. Composition of various waste activated carbon

Sample item	S-GAC	C-GAC	WS-GAC	WC-GAC	WL-GAC	Remarks
Phenol (mg/g)	-	-	100	100	100	S-GAC : granular activated carbon containing phenol (S. company).
Bulk density (g/ml dry base)	0.49	0.45	0.49	0.46	0.52	
Partical size (mesh)	8/10	8/10	8/10	8/10	8/10	C-GAC : granular activated carbon containing phenol (C. company).
Moisture (%)	2.0	2.5	5.0	4.8	6.4	
Ash(%)	4.0	4.6	8.5	9.2	8.7	WS-GAC : waste granular activated carbon containing phenol (S. company).
pH	6.5	7.5	7.2	7.3	6.7	
Iodine adsorbility (mg/g)	1020	1150	-	-	-	WC-GAC : waste granular activated carbon containing phenol (C. company).
Methylene blue decolorization (mg/g)	172	205	-	-	-	
IPA (mg/g)	-	-	-	-	1.0	WL-GAC : granular activated carbon containing phenol (L. company).
Xylene (mg/g)	-	-	-	-	0.7	

**Table 2.** Analysis conditions for gas chromatography

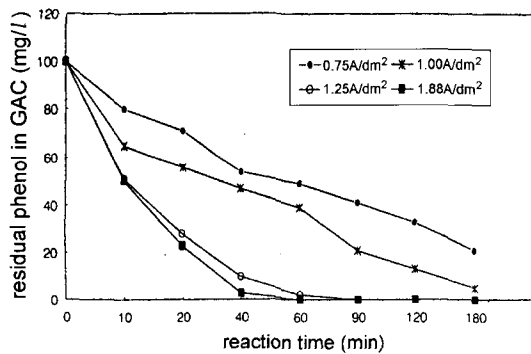
parameter	specification
Column	cat. No. VA-123103-20
Column oven temperature (°C)	150
FID oven (°C)	250
Carrier gas	nitrogen

### 3. 결과 및 고찰

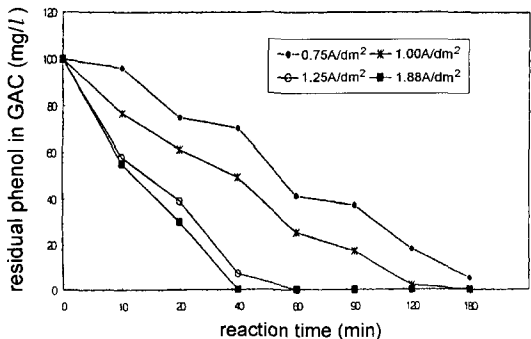
#### 3.1. 반응시간과 활성탄내 페놀농도 변화

Fig. 2 는 전류밀도, 잔류 페놀농도 및 반응시간 변화에 따른 WS-GAC의 내부 페놀농도를 나타내었다.

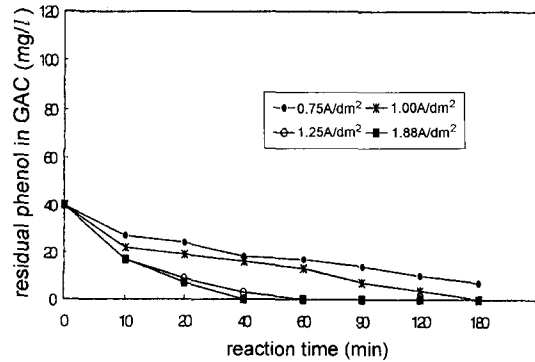
Fig. 2 를 보면 0.75~1.00 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서는 반응 초기에는 활성탄 내부의 잔류 페놀 농도가 높게 나타나 반응시간이 경과할수록 서서히 감소하였다. 그러나 1.25~1.88 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서는 반응개시 60분



**Fig. 2.** Relationship between residual phenol in GAC and reaction time with WS-GAC at various current density.



**Fig. 3.** Relationship between residual phenol in GAC and reaction time with WC-GAC at various current density.



**Fig. 4.** Relationship between residual phenol in GAC and reaction time with WL-GAC at various current density.

경과 후에는 활성탄의 잔류 페놀이 거의 검출되지 않았다. 이와 같이 반응시간 경과에 따라 활성탄 표면에 흡착된 페놀이 감소하는 것은 반응조내에서 생성된 산화제에 의해 세공내의 페놀이 중간 생성물로 전환되거나 페놀성분 자체가 전해질속으로 용해되기 때문이라고 생각된다. 한편 WC-GAC의 전류밀도, 잔류 페놀농도 및 반응시간 변화에 따른 활성탄 내부 페놀농도를 서로 관련시켜 Fig. 3 에 도시하였다.

Fig. 3 을 보면 0.75~1.00 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서 활성탄내 잔류 페놀농도는 서서히 감소하였다. 그러나 1.25~1.88 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서는 반응시간 60분과 40분이 경과하였을 때 활성탄내에서 페놀은 검출되지 않았다. 또한 WL-GAC의 전류밀도, 잔류 페놀농도 및 반응시간 변화에 따른 활성탄 내부 페놀농도를 서로 관련시켜 Fig. 4 에 도시하였다.

Fig. 4 에서는 0.75~1.00 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서 잔류 페놀이 감소하는 것은 WS-GAC나 WC-GAC와 유사하였으나 1.25 A/dm<sup>2</sup>와 1.88 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서는 반응시간 60분과 40분이 경과한 지점에서는 활성탄내 페놀이 검출되지 않았다. 이상의 결과를 검토하여 보면 전류밀도와 반응시간 경과에 따라 활성탄내의 잔류 페놀농도가 감소하였으나 WS-GAC, WC-GAC 및 WL-GAC 등의 활성탄종에 따른 특별한 분해특징은 없었다. 전해반응시 전해 시간 60분, 전류밀도 1.25 A/dm<sup>2</sup>가 적합하였다.

#### 3.2. 전해질농도 및 전극간격에 따른 잔류 페놀농도 변화

전해질 농도 변화에 따른 활성탄내의 잔류페놀을 검출 목적으로 전해질 농도에 따른 활성탄내의 잔류페

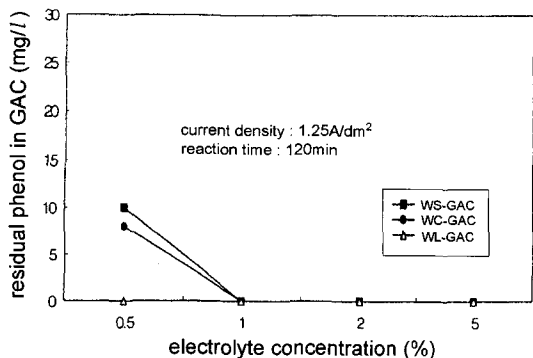


Fig. 5. Changes of residual phenol concentration in GAC to electrolyte concentration.

농도변화를 Fig. 5 에 도시하였다.

Fig. 5 에 제시한 그림을 보면 지지전해질인 염화나트륨 전해질용액의 농도가 0.5%에서 전해한 결과 WS-GAC와 WC-GAC의 시료에서 잔류 페놀농도는 10, 8 mg/g이 검출되었다. 그러나 전해질 농도가 1.0% 이상에서 전해했을 경우 WS-GAC, WC-GAC 및 WL-GAC 등의 활성탄에서 페놀은 검출되지 않았다. 따라서 전해시 지지 전해질로 사용한 염화나트륨 용액의 농도는 1.0% 이상이면 족할 것으로 생각된다.

전해 산화시 전류밀도 1.25A/dm<sup>2</sup>, 전해질 용액농도가 1.0% 일 때 60분간서 전해하였을 경우 전극간격에 변화에 따른 활성탄 종별 잔류 페놀농도 변화를 측정하여 Fig. 6 에 도시하였다.

Fig. 6 에 제시한 그림을 보면 전극간격을 2cm로 하였을 경우 WS-GAC, WL-GAC 및 WL-GAC 등의 활성탄중에 관계없이 페놀은 검출되지 않았고 WC-GAC인 경우에는 전극간격이 4cm에서도 페놀은 검출

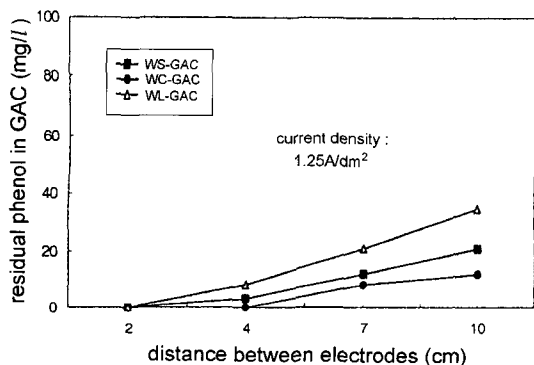


Fig. 6. Residual phenol concentration in GAC to change of electrode distance.

되지 않았다. 그러므로 전해 반응시 전극간격은 2 cm 가 적합함을 알 수 있었다.

### 3.3. 전해 반응시간가 전해질중 페놀농도 변화

WS-GAC 시료를 전해산화 할 경우 전류밀도, 반응시간 및 전해질내 잔류페놀 농도변화를 관련시켜 Fig. 7 에 도시하였다.

Fig. 7 을 살펴보면 0.75 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서 60분간 전해산화 할 경우 전해질내의 페놀농도는 498 mg/l 이었고 1.00 A/dm<sup>2</sup>에서 40분간 전해했을 경우 전해질내 페놀농도는 387 mg/l이었다. 그리고 전류밀도가 1.25, 1.88A/dm<sup>2</sup>에서 전해시작 40분 경과후 전해질내 페놀농도는 각각 232, 228 mg/l이었다. WC-GAC 시료를 전해산화 할 경우 전류밀도, 반응시간 및 전해질내 잔류 페놀 농도변화를 관련시켜 Fig. 8 에 도시하였다.

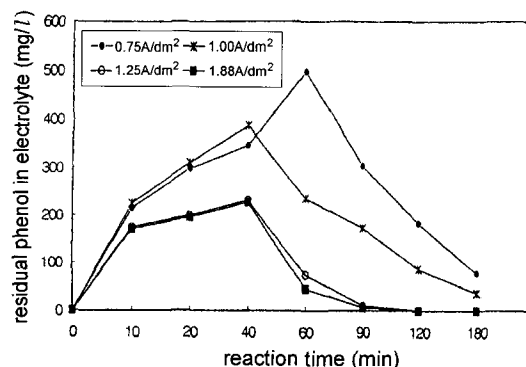


Fig. 7. Relationship between residual phenol in electrolyte and reaction time with WS-GAC at various current density.

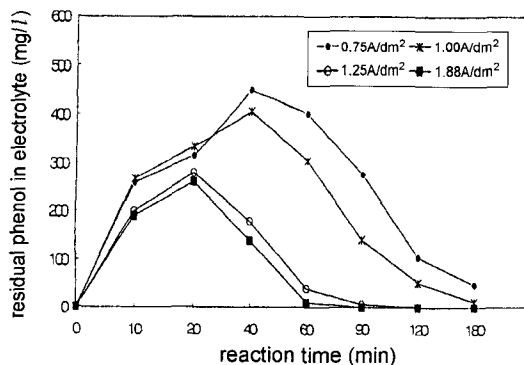


Fig. 8. Relationship between residual phenol in electrolyte and reaction time with C-GAC at various current density.

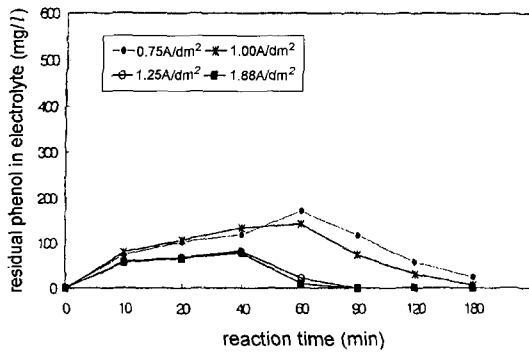


Fig. 9. Relationship between residual phenol in electrolyte and reaction time with WL-GAC at various current density.

Fig. 8 에서 0.75, 1.00 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서 반응시작 40분 경과후 전해질중의 잔류하는 페놀농도는 각각 470, 450 mg/l이었다. 전해질내의 페놀농도는 상대적으로 높아 WS-GAC 시료를 사용하였을 경우보다 반응시간이 빨랐다. 1.25, 1.88 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서 20분간 전해 산화하였을 경우 전해질중의 페놀농도는 각각 280, 261 mg/l이었으나 반응시간이 90분 경과후에는 전해질내의 페놀이 검출되지 않았다. Fig. 9 는 WL-GAC의 폐 활성탄을 전해하였을 경우 반응시간에 따른 전해질내의 페놀농도 변화를 나타낸 것이다.

WL-GAC는 S-GAC와 C-GAC의 경우와는 달리 페놀 외에 다른 성분이 흡착되어 있기 때문에 활성탄내 페놀 존재량은 다른 시료와 비교하여 소량 존재한다. 이 그림을 보면 0.75, 1.00 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도에서는 60분간 전해산화 후에 페놀농도는 200 mg/l 이하이었고 그 이후는 반응시간에 따라 계속 감소하여 반응시작 180분 후에는 검출량이 미미하였다. 한편 전류밀도 1.25, 1.88 A/dm<sup>2</sup>에서는 40분 경과후 페놀농도는 각각 83, 78 mg/l이었다. 반응시작 90분 경과후 전해질내에서 페놀이 검출되지 않았다. WL-GAC의 전해질내 페놀 농도변화는 WS-GAC의 농도변화 추세와 유사한 경향을 나타내었다. S-GAC, C-GAC 및 L-GAC의 페놀로 흡착된 활성탄의 전류밀도와 반응시간 변화에 따른 전해질내의 페놀농도를 실험한 결과 활성탄내 페놀의 탈착 속도는 WC-GAC가 WS-GAC에 비해 상대적으로 우수하였다. 이상의 결과를 종합하여 보면 양극 반응조에서 생성된 Cl<sub>2</sub>와 음극 반응조에서 생성된 OH<sup>-</sup>과 반응하여 HOCl과 OCl<sup>-</sup>과 같은 물질이 생성되어 산화제 역할을 할 것으로 생각된다. 이렇게 생성된 산화제에 의하여 페

놀은 catechol, hydroquinone과 같은 중간 생성물로 전환된다. Clark<sup>5)</sup>은 페놀은 전해에 의하여 중간 생성물들이 지방산으로 전환되고 분해되어 최종적으로는 탄산가스로 된다고 보고한바 있다. 이 실험에서 2차오염을 고려한 최적 전류밀도와 반응시간은 1.25 A/dm<sup>2</sup>, 120분이 적합하였다.

#### 3.4. 전해질 농도가 페놀분해에 미치는 영향

전해질속의 잔류 페놀은 2차오염을 유발하는 주요원인이 되기 때문에 염화나트륨 용액을 지지 전해질 농도에 따른 전해질내 페놀농도 변화를 검토할 목적으로 전해질 농도에 따른 잔류페놀의 농도를 관련시켜 Fig. 10에 도시하였다.

Fig. 10을 보면 WS-GAC, WC-GAC 및 WL-GAC의 시료를 사용하고 0.5% 전해질에서 농도에서는 120분간 전해하였을 경우 페놀농도는 각각 185, 135, 59 mg/l이었다. 한편 염화나트륨 전해질 용액농도를 1.0%

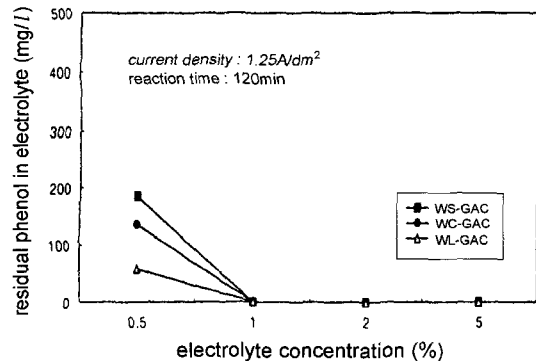


Fig. 10. Residual phenol in electrolyte versus supporting electrolyte concentration.

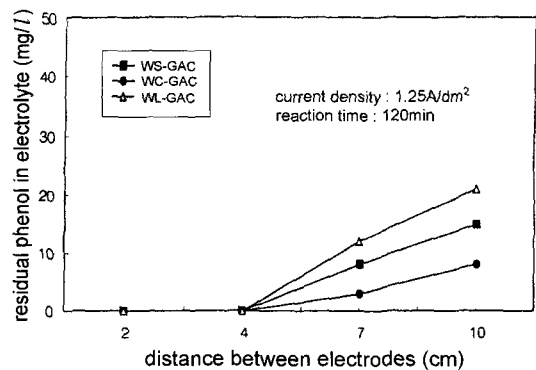


Fig. 11. Effect of residual phenol in electrolyte by the change of electrode distance.

이상의 농도에서 120분간 전해하였을 경우 반응조에서 페놀은 검출되지 않았다. 이것은 페놀이 전해 반응에 의하여 탄산가스로 변화하였기 때문인 것으로 추정할 수 있다. Goto 등<sup>6)</sup>에 의하면 페놀의 전해산화시 지지전해질로서는 가성소다, 황산나트륨, 중탄산나트륨, 초산나트륨, 탄산나트륨 보다 염화나트륨이 우수하다고 보고한 바 있다. 또한 전극간격에 따른 전해질내 페놀농도 변화를 Fig. 11 에 제시하였다.

Fig. 11 을 보면 WS-GAC, WC-GAC 및 WL-GAC 시료를 사용하여 2, 4, 7, 10 cm의 전극간격에서 1.25 A/dm<sup>2</sup>의 전류밀도로 120 분간 전해했을 경우 전극간격 2, 4 cm에서는 페놀은 검출되지 않았다 그러나 7, 10 cm의 간격에서는 WS-GAC 시료는 8, 15 mg/l, WC-GAC 시료를 사용한 경우 페놀농도는 3, 8 mg/l, WL-GAC의 경우 페놀농도는 12, 21 mg/l이었다.

#### 4. 결 론

페놀을 함유한 폐 활성탄이 다량으로 배출되고 있어 많은 환경 오염에 대한 대책이 필요하다. 페놀을 함유한 폐 활성탄의 가열 재생시 대기 오염물인 페놀이 생성되어 환경을 오염시키므로 발생하는 페놀 제거에 대한 새로운 공법의 연구가 필요하다. 페놀을 흡착하고 있

는 폐 활성탄과 페놀의 다른 성분이 흡착되어 있는 화학공장의 폐 활성탄을 시료로 선정하여 정전위 전해방법으로 재생실험을 하였다. 활성탄 시료는 WS-GAC, WC-GAC 및 WL-GAC을 사용하였으며 이 시료에 함유된 페놀을 정전위 전해법으로 제거할 목적으로 전류밀도, 반응시간, 활성탄내의 잔류 페놀농도, 반응조내 페놀농도, 전극간격 및 전해질농도 등에 대한 검토를 하였다. 실험에서 얻은 결과를 요약하면 전해반응시 전해시간 120분, 전류밀도 1.25 A/dm<sup>2</sup>가 적합하였고 전해반응시 전극간격은 2 cm가 적합하였으며 지지전해질로 사용한 염화나트륨 용액 농도는 1.0% 이상이면 충분하였다.

#### 참고문헌

1. 중소기업청, 국내 활성탄 시장동향 (1999).
2. 한국무역협회, 품목별 수입현황 (1999).
3. 韓國標準協會, 活性炭 試驗方法KS M 1802 (1993).
4. 환경부, 환경오염공정시험법 (1991).
5. J. H. Clark : Chemistry of waste minimization, Blackie Academy & Professional Press 302-303 (1995).
6. Goto. M., Hayashi N. and Goto S. : "Adsorption and deorption of phenol on abion-exchange resin and activated carbon", Envir., Sci. Technol. 20, 463-467 (1986).



金 成 羽

- 부경대학교 공학사
- 동아대학교 석사, 박사
- 삼협자원개발 대표



朴 勝 祚

- 인하대학교 화학공학과 학사
- 인하대학교 화학공학과 석사
- 인하대학교 화학공학과 박사
- 현재 동아대학교 환경공학과 교수