

## 펠렛형 제올라이트를 이용한 이산화황의 흡착특성

이재희 · 김정국<sup>\*†</sup> · 양희철<sup>\*</sup> · 김준형<sup>\*</sup> · 이제근

부경대학교 환경공학과  
608-737 부산시 남구 대연3동 599-1

<sup>\*</sup>한국원자력연구소 핵화학연구부

305-600 대전시 유성구 덕진동 150

(2002년 6월 10일 접수, 2002년 9월 18일 채택)

## Adsorption Characteristics of Sulfur Dioxide on Pellet Type Zeolites

Jae-Hee Lee, Jeong-Guk Kim<sup>\*†</sup>, Hee-Chul Yang<sup>\*</sup>, Joon-Hyung Kim<sup>\*</sup> and Jea-Keun Lee

Department of Environmental Engineering, Pukyong National University, 599-1, Daeyeon 3-dong, Nam-gu, Busan 608-737, Korea

<sup>\*</sup>Nuclear Chemical Engineering Research Team, Korea Atomic Energy Research Institute,

150 Dukjin-dong, Yusong-gu, Daejeon 305-353, Korea

(Received 10 June 2002; accepted 18 September 2002)

### 요 약

KA, NaA, CaA 및 NaX 제올라이트가 충전된 실험실 규모의 흡착층을 이용하여 SO<sub>2</sub> 유입농도, 충전층 높이 및 공간속도를 변화시키면서 SO<sub>2</sub> 흡착실험을 수행하였다. 평형흡착량과 파과시간 모두 제올라이트 세공크기에 따라 KA, NaA, CaA, NaX 순으로 증가하였다. NaX상에서 SO<sub>2</sub>를 흡착시킬 경우 SO<sub>2</sub> 유입농도 504 ppm 이하에서 파과시간은 증가하나 역시 물질전달범위도 증가하여 물질전달 속도는 감소하였다. Wheeler 식으로부터 제올라이트상의 파과시간에 대한 평형흡착량, 공간속도 및 1/C<sub>0</sub>의 관계를 확인한 결과, 504 ppm 이상보다 504 ppm 이하의 저농도에서 파과시간이 상대적으로 증가하였다.

**Abstract** – The experimental of SO<sub>2</sub> adsorption, with varying SO<sub>2</sub> concentration, packed-bed depth, and space velocity, was carried out using a lab-scale fixed bed with zeolites, such as KA, NaA, CaA and NaX. Both of an equilibrium adsorption capacity and a breakthrough time increased with zeolite pore size, in order of KA, NaA, CaA and NaX. Breakthrough time of NaX increased under SO<sub>2</sub> concentration of 504 ppm, but mass transfer rate decreased due to expansion of mass transfer zone. Breakthrough time is relatively increased in the low gas concentration(<504 ppm) more than high concentration(>504 ppm), which is proved by the effects of equilibrium adsorption capacity, space velocity and 1/C<sub>0</sub> for the zeolite from the relationship of Wheeler equation.

**Key words:** Zeolite, Sulfur Dioxide, Adsorption, Packed-Bed, NaX, Breakthrough Time

### 1. 서 론

대기오염물질중의 하나인 SO<sub>2</sub>는 석탄화력발전이나 산업공정에서 발생하는 비율이 전체의 85%를 차지하고 있으며, 나머지 15%가 엔진, 금속제조공정 및 기타 공정에서 대기중으로 배출되는 것으로 미국 EPA (Environmental Protection Agency)에서 보고하고 있으며, 이렇게 배출되는 SO<sub>2</sub>의 대부분이 습식공정에 의해 처리되고 있으나 SO<sub>2</sub> 재이용 측면에서 건식법에 의한 SO<sub>2</sub> 처리기술의 개발이 요구된다.

가스상의 SO<sub>2</sub> 분자는 산과 염기의 양성적인 성질로 인해 흡착제의 서로 다른 산/염기점과 쉽게 결합할 수 있는 성질을 지니고 있는 리간드로 알려져 있다[1]. 건식법에 의한 SO<sub>2</sub>의 제어법으로는 흡착제에 의한 SO<sub>2</sub>흡착, O<sub>2</sub> 화학흡착에 의한 원소화합물의 환원, SO<sub>3</sub>로 산화 후

H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 생성 등[2]이 있으며, 이 중 가장 간단하면서도 경제적인 것은 흡착제에 의한 SO<sub>2</sub> 흡착이라 할 수 있다. 이 방법은 주로 상온에서 물리흡착에 의해 SO<sub>2</sub> 상태로 흡착되고, 포화된 흡착제는 온도를 증가시키거나 압력을 낮춤으로서 SO<sub>2</sub>를 탈착시키거나 Claus 공정을 통해 원소화합물로 재이용 한다[3]. SO<sub>2</sub> 흡착법에 이용되는 흡착제로는 활성탄, 활성점토, 실리카겔과 활성알루미나 그리고 결정성 알루미노 실리카이트인 제올라이트 등이 주로 사용되고 있으나, 이들 흡착제중에서도 활성탄과 제올라이트가 현재 가장 많이 이용되고 있다. 활성탄의 경우 흡착제의 세공직경 분포는 20 Å 이상의 세공크기가 전체의 20-50%를 차지하고, 최대 세공크기가 수천 Å에 해당되기 때문에 흡착 가능한 내부표면적이 적다. 이에 비해 균일한 크기(3-10 Å)의 세공을 가지는 제올라이트 분자체는 결정의 단위구조에 의해 결정되며, 결정구조에 따라 세공크기와 산세기가 달라진다. 그러므로 고체상의 전체 부피를 차지하는 세공에 균일하게 침투하기 때문에 흡착 가능한 넓은 내부표면적을 지니고 있다. 이러한 제올라이트는 폐가스로부터 SO<sub>2</sub>의 저온회수[4]와 산업가스

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.  
E-mail: jungkim@kaeri.re.kr

로부터  $\text{SO}_2$  제거[5]를 위한 유망한 흡착제로 알려져 있다.

흡착시스템 적용을 위해서는 고상에서의 가스 흡착량과 물질전달 속도의 함수로 알려진 파과시간을 이용한 조업변수 변화에 대한 흡착특성 자료가 요구된다. 지금까지 CuO/zeolite를 이용하여 300-550 °C의 온도범위에서의 반응특성[6]과 H-ZSM-5와 Na-mordenite 제올라이트에서 다성분 흡착에 대한 연구[7]가 수행되었고, 파과시간에 대한 이론적인 예상[8, 9]과 20-200 °C의 온도범위에서  $\text{SO}_2$ 의 메커니즘에 대한 연구[10]들은 활성탄을 위주로 수행되었다. 그러나 세공크기가 서로 다른 제올라이트에서 파과시간에 대한 상온에서의  $\text{SO}_2$  흡착특성 연구는 미비한 것으로 알려져 있다.

본 연구에서는 금속제조공정이나 기타 산업공정에서 발생하는 유해성 가스인  $\text{SO}_2$  처리를 위해 세공입구의 크기에 따라 분자들이 세공내에 선택적으로 흡착 또는 탈착되는 분자채 효과[11] 특성을 지니고 있는 제올라이트를 이용하고자 한다.

현재 상용화 되어있는 pellet형 제올라이트 KA, NaA, CaA 및 NaX 등에 대한  $\text{SO}_2$  흡착은  $\text{N}_2$  기체로 농도 조절한 혼합가스를 이용하였으며, 유입농도, 충전층 높이, 공간속도 등의 조업조건 변화에 따른 흡착특성을 파악하고자 하였다.

## 2. 실험장치 및 방법

### 2-1. 실험장치

본 연구에 적용한 고정 흡착층 실험장치를 Fig. 1에 도식화하였다. 흡착특성 실험을 위한 고정 흡착 시스템은 일정농도의 모사가스를 유입시키는 가스 공급부, 유입가스를 흡착 제거하는 제올라이트 흡착층 반응기, 흡착층의 온도 유지를 위한 온도조절부와 배출되는 가스농도를 분석하는 가스 분석부로 구성되어 있다. 가스공급부에서 가스 유량은 MFC(Mass Flow Controller, MKS, Type 1179)로 조정하였으며  $\text{SO}_2$  가스는 1,030 ppm(bal.  $\text{N}_2$ )으로 조제한 가스를 이용하였으며,  $\text{SO}_2$  가스와 99.9%  $\text{N}_2$  가스를 혼합시키기 위해 가스 혼합기를 설치하였다. 고정 흡착층 반응기는 유리로 된 condenser-type이며, jacket 길이 30 cm, 내부직경 2.7 cm로 되어 있고, 반응기 상부로 가스가 유입되고 흡착층을 통과한 가스는 하부로 배출된다. 온도조절부는 water bath를 이용하여 흡착층 온도를  $20 \pm 0.1$  °C로 조절하였으며 제올라이트 흡착층 하부에서 상부로 순환된다. 가스 분석부의 가스 농도분석은 가스유량이 1 l/min 이상인 경우 자동연도가스 측정기(TESTO 350)를 사용했고, 1 l/min 미만인 경우 가스 배출관에 on-line 분석이 가능하도록 자동밸브를 설치하여 GC-MS(Gas Chromatograph-Mass Spectrometer, Hewlette Packard 5972 Mass Spectrometer,

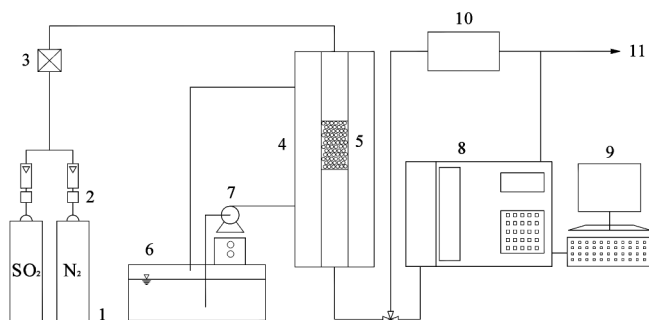


Fig. 1. Schematic diagram of the  $\text{SO}_2$  dynamic adsorption test.

- |                         |   |
|-------------------------|---|
| 1. Gas bomb             | 7. Circulating pump                           |
| 2. Mass flow controller | 8. GC-MS(Gas Chromatograph-Mass Spectrometer) |
| 3. Gas mixer            | 9. Data acquisition system                    |
| 4. Water jacket         | 10. Automatic gas analyzer                    |
| 5. Catalyst bed         | 11. Vent                                      |
| 6. Water bath           |   |

HP-5MS column)로 가스농도를 분석하였다. 분석된 농도 데이터는 개인용 컴퓨터로 저장할 수 있게 하였다.

### 2-2. 실험방법

흡착특성 실험을 위해 사용된 고상 흡착제로 펠렛형(크기 1.6 mm) KA(Aldrich, Lot. No. 04817DR, 3A), NaA(Aldrich, Lot. No. 10510TQ, 4A), CaA(Aldrich, Lot. No. 01710HQ, 5A), NaX(Aldrich, Lot. No. 01715KR, 13X)를 이용하였으며, 조업조건은  $\text{SO}_2$  206-1,030 ppm, 충전층 높이 7, 12 cm, 공간속도 8,600-17,200  $\text{hr}^{-1}$ 의 범위로 변화시키면서 실험하였다. 농도변화의 경우 MFC를 이용하여  $\text{SO}_2$  1,030 ppm의 조제가스와 99.9%  $\text{N}_2$  가스를 적절히 혼합하였으며, 이외의 조업조건은 충전량과 유량 변화를 주면서 실험하였다. 제올라이트는 105 °C에서 12시간 이상 건조시킨 후 실험하였고, 순환펌프를 이용하여 물을 흡착층 jacket으로 강제 순환시켜  $20 \pm 0.1$  °C 온도상태를 유지시켰다.

## 3. 결과 및 고찰

세공크기가 서로 다른 제올라이트를 이용하여  $\text{SO}_2$  흡착실험을 수행하였다. 실험으로 얻은 파과곡선 결과를 Fig. 2에 나타내었으며, 이로부터 얻은 특성치 값을 Table 1과 같다.

Lennard-Jones 포텐셜로 계산된  $\text{SO}_2$  분자의 kinetic diameter( $\sigma$ )는 3.6 Å 분자크기로 알려져 있다[11]. 또한 제올라이트의 세공입구는 산소원자고리의 개수 외에도 산소원자고리의 배열형태에 따라 서로 달라지는데 산소 8개로 이루어진 제올라이트 중에서 고리모양이 평면인 제올라이트 A는 입구지름이 4.3 Å 정도이며 보통 Na 이온을 양이온으로 하여 합성된다. 양이온이 Na 이온인 A형(NaA)의 유효세공크기는 3.9 Å이다. 양이온이 K 이온이면 유효 세공크기가 3.3 Å(KA), 양이온이 Ca 이온이면 4.4 Å(CaA)로 달라진다. 제올라이트 X는 양이온이 Na 이온이며, 세공크기가 8.4 Å(NaX)이 된다[11].

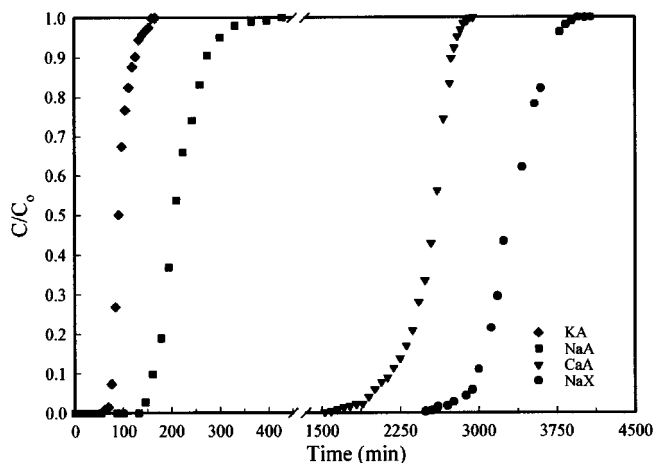


Fig. 2. Experimental breakthrough curves for  $\text{SO}_2$  dynamic adsorption on the different zeolites(20 °C, 7 cm, 15 ml/min, 1,030 ppm).

Table 1. The breakthrough(dynamic) concentration in solid phase of the different zeolites( $Q=15$  ml/min, 7 cm,  $C_0=1,030$  ppm)

Zeolites type	$\text{SO}_2$ dynamic capacities (g- $\text{SO}_2$ /g-zeolite)	Mass transfer zone (min)
KA(3A type)	0.0015	95
NaA(4A type)	0.0032	280
CaA(5A type)	0.0377	985
NaX(13X type)	0.0498	1,023

따라서 Fig. 2를 보면 KA와 NaA는 SO<sub>2</sub> 분자의 세공크기보다 작거나 유사하기 때문에 kinetic diameter가 3.6 Å인 SO<sub>2</sub> 분자가 세공내부로 접근하기가 어려워 주로 제올라이트 표면에 흡착하기 때문에 파과시간이 빠르게 나타났다. 이에 비해 CaA와 NaX는 세공크기가 SO<sub>2</sub> 분자보다 크기 때문에 장시간 후 파과곡선이 생성되었다. 이러한 이유는 세공크기가 증가함에 따라 단위 셀당 차지하는 공극부피가 증가하기 때문이다[11].

고상과 유체사이의 물질전달은 Edwards와 Richardson에 의한 선형 추진력 모델(linear driving force model)을 이용하여 설명할 수 있으며, carrier 가스중의 단일성분에 대해서는 Langmuir-Freundlich 양론 모델이 사용 가능하며 다음과 같이 표현된다[12].

$$\frac{q}{q_s} = \frac{bp^n}{1+bp^n} \quad (1)$$

$$q^* = \frac{q_s bp^n}{1+bp^n} \quad (2)$$

식 (1)을  $q^*$ 와  $p$ 의 항으로 정리하면 식 (2)와 같이 된다. 여기서  $q^*$ 는 평형흡착량(g-SO<sub>2</sub>/g-zeolite)이며,  $p$ 와  $q_s$ 는 분압(Torr)과 포화흡착량(g-SO<sub>2</sub>/g-zeolite),  $b$ 는 Langmuir 흡착상수(Torr<sup>-1/n</sup>)이고,  $n$ 은 Langmuir-Freundlich 등온지수를 말한다.

식 (1)과 (2)로부터 평형흡착량을 얻을 수 있으며, 실험으로 구한 평형 흡착량과 분압을 이용하여 식 (2)로부터  $n$ ,  $b$ 와  $q_s$ 값이 결정된다. 이러한 값을 식 (2)에 대입하여 분압에 따른 고상에 흡착된 평형흡착량의 theoretical fit curve를 예측할 수 있다.

본 연구에서는 우선적으로 유입농도와 충전층 높이 변화에 따른 SO<sub>2</sub>의 파과곡선을 확인하였다. 이를 Table 2에 요약 정리 하였으며, 이러한 결과를 가지고 Langmuir-Freundlich 양론 모델을 이용하여 식 (2)의 미지수인  $n$ 값을 구한 후 비교한 결과 동일한 조건(NaX, SO<sub>2</sub> 504 ppm, 20 °C)에서 충전층 높이가 증가함에 따라  $n$ 값이 감소하였고, Langmuir 흡착상수인  $b$ 가 증가함으로써 NaX 제올라이트에 흡착되는 평형흡착량과 최대 흡착량인  $q^*$ 와  $q_s$ 값이 Fig. 3에 나타낸 바와 같이 감소하였다. 따라서 식 (2)에 의해 충전층 높이 7, 12cm에서 SO<sub>2</sub>의 유입농도 변화에 대한 평형흡착량을 알 수 있으며, 파과시간과 관계있는 몇 가지 모델 중에서 가장 넓게 사용되는 Wheeler 식을 이용하여 충전량과 밀접한 관계가 있는 충전층 높이, 유량변화와 유입농도에 따른 파과시간과의 관계를 확인함으로써 유입농도 변화에 대해 식 (3)을 이용하여 파과시간 예측이 가능해진다[13].

$$t_b = \frac{q^*}{C_0 Q} \left[ W - \frac{\rho_B Q}{k_v} \ln \left( \frac{C_0 - C}{C} \right) \right] \quad (3)$$

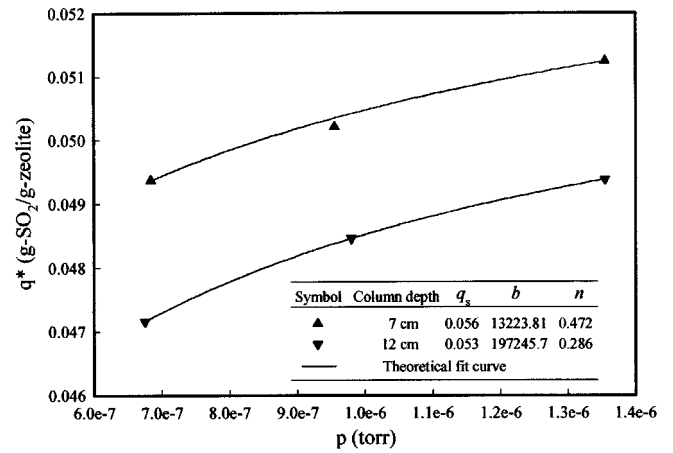


Fig. 3. The plot of Langmuir-Freundlich equilibrium for SO<sub>2</sub> dynamic adsorption on the NaX zeolites with different column depth(20 °C, 504 ppm).

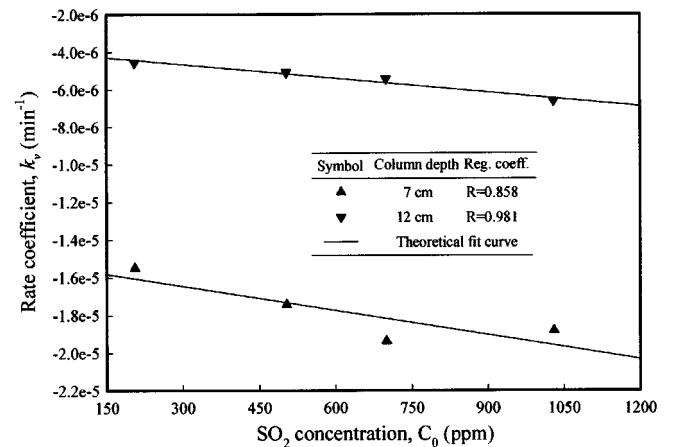


Fig. 4. The relationship between  $k_v$  and SO<sub>2</sub> inlet concentration with different column depth(20 °C, 1,000 ml/min).

여기서  $t_b$ 는 파과시간(min)이며,  $C$ 와  $C_0$ 는 유출, 유입농도(ppm),  $Q$ 는 부피유속(cm<sup>3</sup>/min),  $W$ 는 고상 흡착제의 무게(g)를 나타내고,  $\rho_B$ 는 충전층의 밀도(g/cm<sup>3</sup>),  $k_v$ 는 속도계수(min<sup>-1</sup>)이며,  $q^*$ 는 흡착량(g-SO<sub>2</sub>/g-zeolite)을 말한다.

Wheeler 식으로부터는 실험으로 구한  $t_b$ ,  $C_0$  및  $q^*$ 를 이용하여  $k_v$ 에 대해 theoretical fit curve를 구할 수 있으며, 이를 Fig. 4에 나타내었다.

Table 2. The breakthrough(dynamic) concentration in solid phase of the various conditions on the NaX zeolite

Column depth (cm)	Mass transfer zone (min)	Space velocity (hr <sup>-1</sup> )	SO <sub>2</sub> concentration (ppm)	SO <sub>2</sub> dynamic capacity (g-SO <sub>2</sub> /g-NaX)
7	445	14,300	206	0.0448
7	229	14,300	504	0.0515
7	215	14,300	700	0.0518
7	219	14,300	1,030	0.0543
12	490	8,600	206	0.0459
12	268	8,600	504	0.0463
12	226	8,600	700	0.0490
12	217	8,600	1,030	0.0526
12	220	8,600	504	0.0463
12	255	14,300	504	0.0469
12	215	17,200	504	0.0516

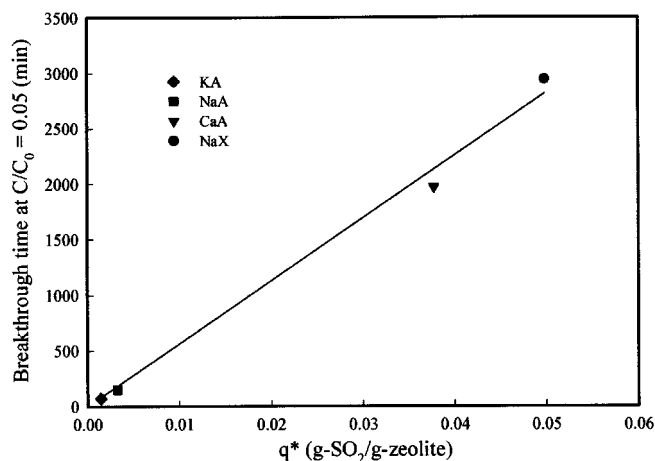


Fig. 5. The relationship between breakthrough time and SO<sub>2</sub> dynamic adsorption with different pore size (20 °C, 15 ml/min, 7 cm, 1,030 ppm).

Fig. 4에 나타난 것과 같이 속도 계수인  $k_v$  값의 변화는 유입농도가 증가함에 따라 선형적으로 감소하였다. 그러나 충전층 높이가 7 cm보다 12 cm인 경우  $k_v$  값이 더 컸으며,  $k_v$  값이 클수록 평형흡착량은 적게 나타났다.

Vahdat[13]은 Wheeler 식을 이용하여 다성분의 파과시간 예측을 활성탄에 적용한 결과 실험치와 이론치가 잘 일치한다고 보고한바 있어 제올라이트 흡착에도 적용하였다. 이로 인해 본 연구에서는 제올라이트에 적용했을 때 충전층 높이가 7 cm인 경우  $R$  값이 0.858, 12 cm인 경우는 0.981로 양호한 결과를 얻었다. 이러한 결과로부터 Wheeler 식을 제올라이트의 SO<sub>2</sub> 흡착에 있어 파과시간 예측에도 적용할 수 있을 것으로 판단된다. 따라서 Wheeler 식의 주요변수인 유입농도와 파과시간과의 관계를 세공크기, 공간속도, 충전층 높이변화에 대해 검토하였다.

Fig. 5에 세공크기변화에 따라 평형흡착량과 파과시간과의 관계를 나타내 본 결과 평형흡착량이 증가함에 따라 파과시간은 선형적인 관계로 증가하였다. 이는 세공크기가 증가함에 따라 단위 셀 부피(unit cell volume)가 증가하기 때문인 것으로 보인다. 이 때의 평형흡착량과 파과시간과의 관계는 식 (3)에서와 같이 일차식을 따르는 것으로 나타났으며 다음 순서의 결과를 얻을 수 있었다:  $KA < NaA < CaA < NaX$ .

이에 비해 반응기에 유입되는 가스 부피유량을 반응기 부피로 나누어 반응기가 가지는 가스처리량을 알 수 있는 공간속도(space velocity, S.V.)

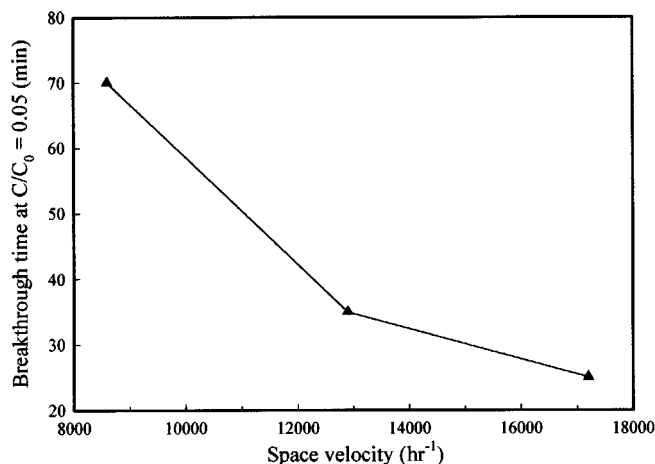


Fig. 6. The effect of breakthrough time for space velocity on the NaX zeolite (20 °C, 12 cm, 1,030 ppm).

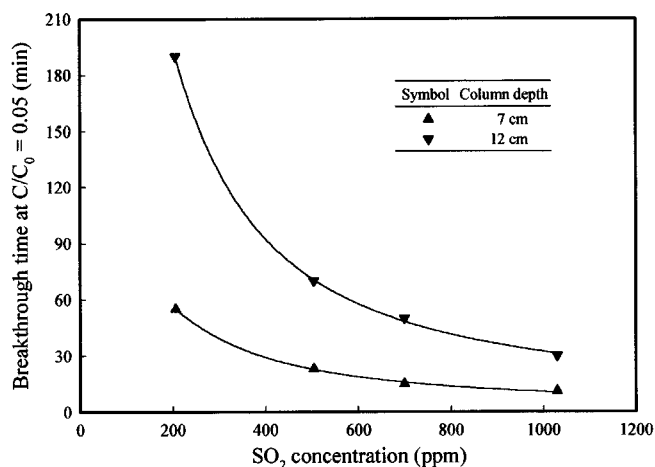


Fig. 7. The effect of breakthrough time for SO<sub>2</sub> dynamic adsorption on the NaX zeolite with different column depth (20 °C, 1,000 ml/min).

변화를 보면 8,000-17,200 hr<sup>-1</sup>의 범위에서 다소 기울기에 차이가 있으나 대체적으로 가스처리량이 증가함에 따라 파과시간이 Fig. 6에 나타낸 바와 같이 감소하는 것으로 나타났다.

공간속도와 파과시간과의 관계는 Wheeler 식에서도 반비례관계임을 확인할 수 있다. 또한 Table 2에 나타내었듯이 공간속도가 증가함에 따라 SO<sub>2</sub> 흡착량이 증가하였는데, 이는 결과적으로 interstitial velocity가 증가하기 때문에 나타난 결과로 보인다[14].

흡착탑 설계시 주요한 변수인 충전층 높이변화의 영향에 대한 실험 결과를 Fig. 7에 나타내었다.

Fig. 7에 보면 충전층 높이를 증가시키고 유입농도가 감소할수록 파과시간 변화는 더 급격하게 감소하였으며, 유입농도가 504 ppm 이하의 농도에서 충전층 높이 7, 12 cm 모두 변화정도가 크게 증가하였다. 하지만 Table 2에 나타내었듯이 물질전달이 이루어지지 않은 것으로 보인다. 펠렛형의 다공성 흡착모델식에 의하면 선형추진력 모델(linear driving force model)에서의 총괄 물질전달계수는 film, macropore, micropore resistance와 연관성을 지닌다고 나타나 있다[15]. 이를 이용한 Tantai 등[12]에 의한 결과를 보면 제올라이트 상의 SO<sub>2</sub> 흡착은 macropore resistance가 주가 되는 것으로 보고하고 있다. 그러므로 macropore 분포특성이 주요한 인자가 될 수 있음을 알려주기 때문에 macropore에 따른 흡착량 변화에 대한 연구는 추가적으로 이루어져야 할 것이다. 이러한 결과를 바탕으로

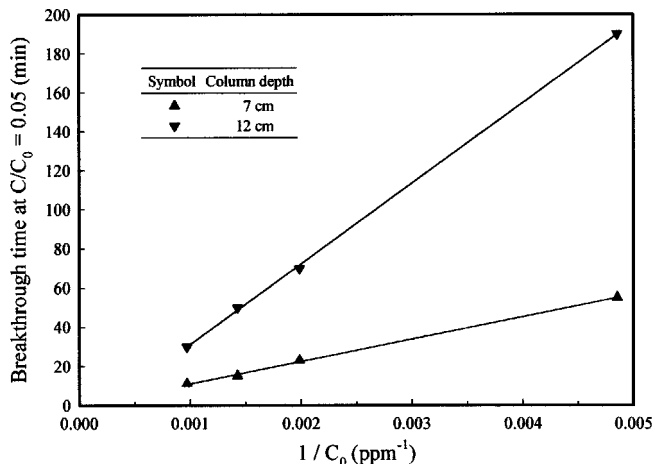


Fig. 8. The relationship breakthrough time and reciprocal of SO<sub>2</sub> inlet concentration (20 °C, 1,000 ml/min).

본 연구에서는 504 ppm 이상의 농도범위에서 파과시간을 고려해 볼 때 변화정도가 큰 12 cm로 충전하는 것이 유리한 것으로 판단된다.

또한, Wheeler 식에서  $q^*/Q$ 의 비는 주어진 흡착제에서 다성분 중 어느 성분이 더 강하게 흡착되는지 결정하는 주요한 변수로 지적하고 있다[13]. Fig. 8에 충전층 높이변화에 따른 파과시간과  $1/C_0$ 의 관계를 나타내었다.

Wheeler 식에서 보면,  $1/C_0$ 과 파과시간은 반비례 관계임을 보여주듯이 본 연구에서도 이러한 결과를 얻었다. Vahdat[13]에 의하면 활성탄의 경우 다성분 흡착에서 기울기가 클수록 더 강하게 흡착된다고 보고하였으며, 본 연구에서는 제올라이트 상에서 단일성분에 적용했을 때 충전층 높이가 증가할수록 기울기가 증가하는 결과를 얻었다. Fig. 3의 결과에서  $q_s \cdot b$ 값을 비교하면 7 cm보다 12 cm로 충전했을 때가 더 큰 값을 보인다. 이러한 결과는 Vahdat이 보고한 결과와 대체로 일치하는 것으로 나타났으며, 충전층 높이가 증가함에 따라 분압이 증가하여 더 강하게 흡착되는 것으로 판단된다. 이러한 관계를 응용하여 다성분의 흡착에서 기울기를 비교함으로써 어떤 성분이 더 강하게 흡착하는지 그 특성을 파악할 수 있을 것으로 판단된다.

## 5. 결 론

실험실 규모의 고정 흡착층을 이용하여 상용제올라이트인 KA, NaA, CaA 및 NaX 제올라이트 상에서 SO<sub>2</sub> 흡착실험을 행한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- (1) 세공크기가 다른 상용제올라이트인 KA, NaA, CaA와 NaX에 대한 SO<sub>2</sub> 평형흡착량은  $KA < NaA < CaA < NaX$ 로 증가하였으며, NaX의 경우 흡착량은 0.0498 g-SO<sub>2</sub>/g-NaX이었다.
- (2) 세공크기가 증가함에 따라 파과시간은 선형적으로 증가하였고, 공간속도와 파과시간과의 관계는 반비례 관계를 보였다.
- (3) 유입농도가 504 ppm 이하의 농도에서 파과시간은 충전층 높이 7, 12 cm 모두 크게 증가하였고, 12 cm로 충전했을 때 파과시간이 상대적으로 증가하였다. 또한 macropore에 따른 흡착량 변화에 대한 연구는 추가적으로 이루어져야 할 것이다.
- (4) 충전층 높이변화에 따른 파과시간과  $1/C_0$ 의 관계에서 기울기가 클수록 평형흡착량이 증가하는 관계를 보였고, 활성탄에 적용한 Wheeler 식을 제올라이트에 적용한 결과 양호한 결과를 얻었다.

## 감 사

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

## 사용기호

- $q^*$  : equilibrium concentration(g-SO<sub>2</sub>/g-zeolite)  
 $q_s$  : limiting saturation concentration(g-SO<sub>2</sub>/g-zeolite)  
 $p$  : partial pressure(Torr)  
 $b$  : langmuir adsorption constant(Torr<sup>-1/n</sup>)

- $n$  : exponent in Langmuir-Freundlich isotherm  
 $t_b$  : breakthrough time(min)  
 $C$  : outlet concentration(ppm)  
 $C_0$  : inlet concentration(ppm)  
 $Q$  : volumetric flow rate(cm<sup>3</sup>/min)  
 $W$  : weight of adsorbent(g)  
 $\rho_B$  : bulk density of packed bed(g/cm<sup>3</sup>)  
 $k_p$  : rate coefficient(min<sup>-1</sup>)

## 참고문헌

1. Nasluzov, V. A., Shor, A. M., Nortemann, F., Staufner, M., Yudanov, I. V. and Rosch, N., "Density Functional Study of SO<sub>2</sub> Adsorption in HY Zeolites," *J. Molecular Structure(THEOCHEM)*, **466**, 235-244(1999).
2. DeBarr, J. A. and Lizzio, A. A., 22nd Biennial Conference on Carbon July, San Diego(1995).
3. Claus, C. F., British Patent No. 5958(1883).
4. Kirik, S. D., Dubkov, A. A., Dubkova, S. A., Sharonova, O. M. and Anshits, A. D., *Zeolites*, 12(1992).
5. Dubkov, A. A., Bykov, V. I., Versebagina, T. A. and Sharonova, O. M., Proc. VIII Soviet-Freneh Seminar, June, November(1995).
6. Shin, C. S. and Lee, T. H., "Removal of SO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub> by Cupric Oxide Supported on Zeolite," *HWAHAK KONGHAK*, **27**(4), 588-594 (1989).
7. Rouf, S. A. and Mladen E., "Adsorption of SO<sub>2</sub> from Wet Mixture on Hydrophobic Zeolites," *Adsorption*, **4**, 25-33(1998).
8. Xiang, Y. C., Zeng, J. C. and Yan, S. Q., "A Simplified Equation for Predicting Breakthrough Time of a Fixed Carbon Bed," *Carbon*, **36**(7-8), 1057-1060(1998).
9. Jeon, Y. H., Cho, K. C., Jung, D. Y. and Oh, K. J., "The Evaluation of Adsorption Isotherm of SO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>S Gas on Activated Carbon," *J. of KSEE*, **20**(12), 1679-1687(1998).
10. Muniz, J., Herrero, J. E. and Fuertes, A. B., "Treatments to Enhance the SO<sub>2</sub> Capture by Activated Carbon Fibers," *Appl. Catal. B: Environ.*, **18**, 171-179(1998).
11. Breck, D. W., "Zeolite, Molecular Sieves," John Wiley and Sons, NY (1974).
12. Tantet, J., Eic, M. and Desai, R., "Breakthrough Study of the Adsorption and Separation of Sulfur Dioxide from wet Gas using Hydrophobic Zeolites," *Gas. Sep. Purif.*, **9**(3), 213-220(1995).
13. Vahdat, N., "Theoretical Study of the Performance of Activated Carbon in the Presence of Binary Vapor Mixture," *Carbon*, **35**(10-11), 1545-1557(1997).
14. Lin, Y. S. and Deng, S. G., "Removal of Trace Sulfur Dioxide from Gas Stream by Regenerative Sorption Processes," *Sep. Purif. Tech.*, **13**, 65-77(1988).
15. Ruthven, D. M., "Principles of Adsorption and Adsorption Processes," John Wiley and Sons, NY(1984).