

참나무 탄화물을 이용한 질산성질소의 흡착 특성

김정애 · 정경훈^{1)*} · 최형일 · 문경도¹⁾ · 이호령

조선대학교 환경공학과, ¹⁾조선대학교 환경공학과 BK21 바이오 가스기반 수소생산 사업팀
(2010년 10월 14일 접수; 2010년 12월 21일 수정; 2011년 1월 7일 채택)

Adsorption Characteristics of Nitrate-nitrogen by Carbonaceous Material Prepared from Oak

Jeong-Ae Kim, Kyung-Hoon Cheong^{1)*}, Hyung-II Choi,
Kyung-Do Moon¹⁾, Ho-Ryeong Lee

Department of Environmental Engineering, Chosun University, Gwangju 501-759, Korea

¹⁾Department of Environmental Engineering and BK21 Team for Biohydrogen Production, Chosun University,
Gwangju 501-759, Korea

(Manuscript received 14 October, 2010; revised 21 December, 2010; accepted 7 January, 2011)

Abstract

The adsorption behavior of nitrate nitrogen was investigated from aqueous solution using char prepared from oak chip. The removal rate of nitrate nitrogen was found to be dependent on temperature and it is increased as the temperature increase. Adsorption equilibrium data of nitrate nitrogen on oak char. reasonably fitted Langmuir and Freundlich isotherm models. The adsorption energy obtained from D-R model was 12.5 kJ/mole at 20°C indicating an ion exchange process as primary adsorption mechanism. Thermodynamic parameters such as ΔG° , ΔH° , and ΔS° were -23.76 kJ/mole, 26.1 kJ/mole and 89.7 J/K-mole at 20°C, respectively, indicated that the nature of nitrate nitrogen adsorption is spontaneous and endothermic.

Key Words : Oak char, Nitrate nitrogen, Adsorption, Adsorption isotherm

1. 서론

지하수 오염은 유기용매, 농약 등의 유기화학물질, 중금속 등을 비롯한 병원성 박테리아, 바이러스, 또는 인간과 동물의 기생충을 함유한 배설물이나 하수 등에 의하여 발생한다. 질산성 질소는 강우에도 함유되어 있지만 인간 및 산업 활동과 깊은 관계가 있으며 주

요 오염원으로는 농업계(유기, 무기비료, 식물의 잔사), 축산계(축산폐기물의 농지 환원, 가축분뇨의 지하침투), 생활하수나 공장폐수의 지하침투 등을 들 수 있다(細見, 1996). 질산이온으로 오염된 물을 마시면 소화기관에서 아질산이온으로 환원되며, 특히 유아의 경우 산소전달을 방해하여 청색증(methemoglobinemia)이라는 질병을 야기하며 심한 경우 유아가 사망하는 것으로 보고되고 있다(Hoek와 Klapwijk, 1987). 또한 질산이온 및 아질산이온은 유력한 발암물질로 알려진 N-nitroso 화합물을 형성하는 잠재력을 가지고 있는 것으로 보고되고 있기 때문에 먹는 물 및 먹는 샘물의 수질기준에서도 10 mg/L 이하로 엄격히 정해져 있다(권 등, 1997).

*Corresponding author : Kyung-Hoon Cheong, Department of Environmental Engineering and BK21 Team for Biohydrogen Production, Chosun University, Gwangju 501-759, Korea
Phone: +82-62-230-6628
E-mail: khjung@chosun.ac.kr

지하수로부터 질산성 질소를 제거하기 위한 처리 기술로서는 화학적 환원법, 역삼투압법, 전기투석법, 생물학적 탈질법, 이온교환법, 0가 금속을 이용한 환원법 등이 있으나 운전 경비와 관리면에서 문제가 있을 뿐만 아니라 결정적 처리법이라고는 할 수 없다 (Yokoyama 등, 2008). 따라서 운전경비가 적게 들고 관리가 쉬운 질산성질소 제거법에 대한 연구개발을 수행할 필요가 있을 것으로 사료된다.

한편 목질 탄화물은 증금속이나 냄새 등의 흡착성을 갖고 있어서 이 들 정화에 이용되는 재료이다. 특히 활성탄은 여러 분야에서 수 처리 재료로써 사용되고 있으나 목탄이나 활성탄은 질산성질소의 오염에 대한 정화는 어렵다. 최근 목탄이나 활성탄에 물리적 흡착성을 갖도록 표면 처리하는 여러 연구가 수행되고 있지만 질산성질소의 화학적 흡착에 대한 연구는 그리 많지 않다. 이 중에서도 森와 小野(1995)는 목탄을 염화철 용액에 침적시켜 질산성질소의 흡착성을 발현한 바 있으며, 정 등(2001, 2005)도 활성탄을 사용하여 염화철 용액으로 처리하였을 때의 질산성질소의 흡착제거 특성을 보고한 바 있다. Yokoyama 등(2008)은 Ca을 도입한 목질 탄화물에 의한 질산성질소의 흡착 특성을 보고한 바 있고, Afkhami 등(2007) 및 Öztürk와 Bektas(2004)는 각각 활성탄소 섬유 및 제올라이트를 산 처리 함으로써 질산성질소의 흡착 능력을 향상시킨 바 있으나, 매우 높은 비표면적(2,500 m²/g)을 갖는 활성탄소 섬유를 이용한 질산성질소의 제거는 경비면에서 문제가 있고, 제올라이트를 사용하는 경우에는 다른 이온의 영향을 크게 받기 때문에 실용적으로 사용하기가 어려울 것으로 사료된다.

따라서, 본 연구에서는 질산성질소에 대한 높은 흡착성을 가진 목질 탄화물을 개발하기 위하여 참나무 칩을 산 처리하였으며, 산 처리 참나무 목탄을 사용하여 질산성질소의 흡착 제거를 위한 회분식 흡착실험을 수행하고 그 결과를 바탕으로 흡착 등온, 흡착 에너지, 흡착 속도 및 흡착 열역학 등을 비교 검토하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 산 처리 목탄 시료의 제조

참나무 절편(1.0-2.8 mm)을 목탄 제조의 원료로 사

용하였으며, 시료를 자기 도가니에 넣어 뚜껑을 하고 연소로에서 400-900℃까지 10℃/min으로 승온 후 소정의 온도에서 1시간 유지한 후 자연 방냉시켰다. 열처리 시료 10 g을 6 mol/L HCl용액 100 mL에 침적시켜 충분히 교반한 후 수세, 건조 후 각 실험에 사용하였다.

2.2. 흡착실험 및 분석방법

참나무 탄화물 2.5 g을 질산성질소 용액(25-200 mg/L) 100 mL에 넣어 140 rpm으로 각각 10℃, 20℃, 30℃, 50℃에서 24시간 진탕하였으며, 시간에 따라 시료를 여과한 후 질산성질소 농도를 수질오염공정시험법(김, 1999)에 따라 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 흡착온도에 따른 NO₃-N의 흡착

Fig. 1에는 산 처리 참나무 탄화물을 사용하여 각각 10℃, 20℃, 30℃ 및 50℃에서 NO₃-N 초기농도 25-200 mg/L에 대한 흡착제거 변화를 나타내었다. 흡착제의 투여량은 2.5g이다. 산 처리 참나무 탄화물에 흡착되는 NO₃-N의 양은 초기에는 NO₃-N의 평형농도의 증가에 따라 증가하였으나 평형농도 22~32 mg/L 부근에서 일정한 값에 도달하였다. 평형상태에서 온도에 따른 흡착량을 보면 10℃, 20℃, 30℃, 50℃일 때 각각 2.4, 2.8, 3.1 및 3.3 mg/g로써 온도가 높을수록 참나무 탄화물 단위 무게 당 흡착량이 큼을 알 수 있

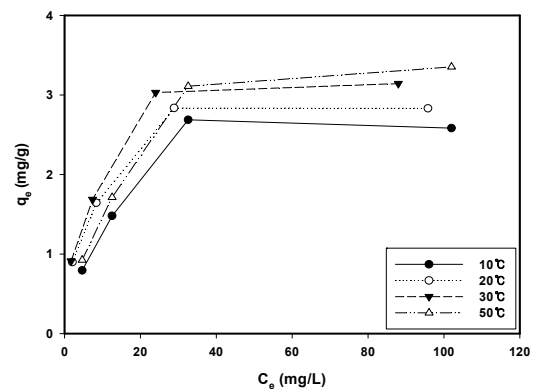


Fig. 1. Adsorption isotherms of NO₃-N onto oak char at different temperatures.

다. 따라서 Yokoyama 등(2008)이 보고한 바와 같이 참나무 탄화물에 대한 NO₃-N의 흡착은 온도에 따라 차이가 나며 온도가 높을수록 흡착량이 증가하는 것으로 볼 때 온도가 증가하면 NO₃-N와 참나무 탄화물의 표면사이에 작용하는 인력이 증가하기 때문에 흡착이 증가하는 것으로 사료되었다.

3.2. 흡착 등은

Fig. 1의 결과를 Langmuir와 Freundlich 흡착 등온식에 적용시켜보았다. Langmuir식은 균일 표면인 흡착체에 흡착질이 단분자층 흡착을 가정한 이론식이다. 그러나 Langmuir의 흡착이론에 엄밀히 따르는 흡착체는 적으며, 또한 명확한 흡착 사이트가 존재하지 않을 뿐 만 아니라, 각각의 흡착 사이트가 같은 흡착 에너지를 갖지 않은 불균일 표면인 경우에는 주의가 필요하다.

Langmuir식은 다음과 같이 표현된다.

$$q_e = \frac{abC_e}{1+bC_e} \tag{1}$$

식(1)을 선형화하면 식(2)와 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{ab} + \frac{C_e}{a} \tag{2}$$

여기에서 C_e는 평형상태에서의 농도(mg/L)이며, 상수 a는 이론적인 단분자층 흡착 용량(mg/g), b는 흡착 에너지(또는 평형정수)와 관계되는 상수(L/mg)로써 각각 C_e/q_e vs C_e 그래프의 절편과 기울기로부터 구할 수 있다.

한편, Freundlich식은 다층 흡착모델로 다음과 같이 표현된다.

$$q_e = k_f C_e^{\frac{1}{n}} \tag{3}$$

마찬가지로 식(3)을 선형화 하면 식(4)와 같이 나타낼 수 있다.

$$\ln q_e = \frac{1}{n} \ln C_e + \ln k_f \tag{4}$$

여기에서 k_f와 1/n은 Freundlich의 isotherm 상수이다. 1/n과 k_f 값은 lnq_e vs lnC_e 그래프의 기울기와 절편으로부터 구할 수 있다.

Fig. 2와 3에는 각각 Langmuir와 Freundlich의 흡착 등온선을 나타내었으며, Table 1에는 각각의 모델에 있어서의 흡착용량과 흡착 평형정수를 나타내었다. Langmuir 식을 적용하였을 때 10℃, 20℃, 30℃, 50℃에서 Langmuir 상수 a와 b는 각각 2.67, 2.99, 2.94 및 3.21 mg/g과 0.126, 0.113, 0.114, 및 0.105 L/mg이었다. 또한 Freundlich 상수 1/n은 10℃, 20℃, 30℃, 50℃에서 각각 0.377, 0.316, 0.311 및 0.296으로 대개 0.2-0.5 사이에 들어오는 것으로 나타났다. Freundlich 상수 1/n 값이 0.2-0.5 사이에 들어오면 흡착이 용이한 것으로 알려져 있듯이 본 실험의 결과는 Freundlich model에도 잘 적용되는 것으로 사료된다.

Table 1. Langmuir and Freundlich constants for the adsorption of NO₃-N onto oak char

| Temperature | Langmuir isotherm | | | Freundlich isotherm | | |
|-------------|-------------------|-------|-------|---------------------|-------|-------|
| | a | b | R | k | 1/n | R |
| 10℃ | 2.865 | 0.107 | 0.988 | 0.742 | 0.395 | 0.842 |
| 20℃ | 2.991 | 0.113 | 0.997 | 0.903 | 0.317 | 0.902 |
| 30℃ | 3.338 | 0.201 | 0.998 | 0.923 | 0.334 | 0.910 |
| 50℃ | 3.561 | 0.095 | 0.998 | 0.954 | 0.332 | 0.931 |

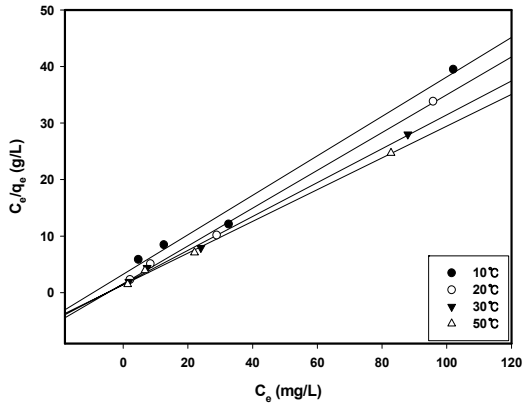


Fig. 2. Langmuir isotherm plots for the adsorption of NO₃-N onto oak char.

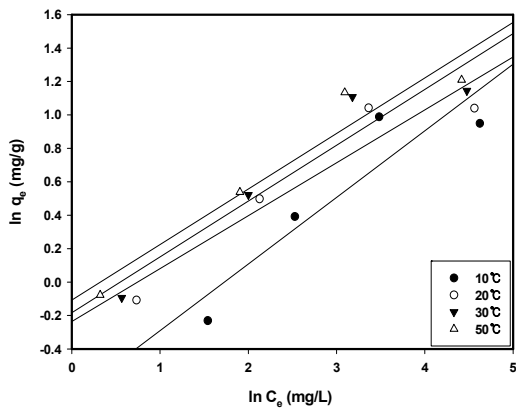


Fig. 3. Freundlich isotherm plots for the adsorption of NO₃-N onto oak char.

한편, Table 1에서 보듯이 Langmuir식과 Freundlich 식을 적용하였을 때의 상관관계를 보면 Langmuir식의 경우 0.988-0.998이며, Freundlich식의 경우에는 0.842-0.931로써 Langmuir식을 적용시켰을 때 다소 상관관계가 높았다. 이와 같이 산 처리 참나무 탄화물을 사용하여 NO₃-N를 흡착시킬 때 Freundlich 모델에도 잘 맞지만 이보다 Langmuir 모델에 더 적합한 것으로 판단된다. 이것은 활성탄과 같이 불균일한 표면을 갖는 흡착제는 Freundlich 모델에 잘 맞는 것임에도 불구하고 Langmuir 모델이 더 적합한 것은 Banno 등 (2009)이 보고한 바와 같이 본 실험에 사용한 참나무

탄화물에 NO₃-N가 흡착할 수 있는 특정 site가 존재할 가능성이 있기 때문인 것으로 사료된다.

한편, 참나무 탄화물의 질산성질소 제거 특성을 알아보기 위하여 흡착평형 실험결과를 Dubinin-Radushkevich(D-R) 흡착 등온식에 적용시켜 보았다. D-R 모델의 직선식은 (5)와 같이 표현된다.

$$\ln q = \ln q_m - k\epsilon^2 \tag{5}$$

여기서 q_m 은 최대 흡착량(mol/g), k 는 흡착에너지 상수(mol²/kJ²), ϵ 은 포텐셜 에너지[RT ln(1+1/C₀)], R은 기체상수(kJ/mol K), T는 절대온도(K)를 의미한다. 평균 흡착에너지(E)는 $E = (-2k)^{0.5}$ 의 식으로 구할 수 있다. E 값은 흡착반응의 메커니즘을 평가하는데 유용하다. E 값이 8 kJ/mol이하이면 물리흡착, 8-16 kJ/mol이면 주로 이온교환반응, 16 kJ/mol이상이면 화학흡착반응에 의해 흡착이 이루어진다고 알려져 있다(Ho와 Mckay, 1998; Sari 등, 2007). Fig. 4에는 10-50°C의 온도에서 흡착실험을 수행한 결과를 D-R 등온식에 적용한 결과를 나타내었다. D-R 등온식으로 부터 구한 흡착 에너지는 10°C, 20°C, 30°C, 50°C일 때 각각 9.36, 11.3, 11.4, 12.5 kJ/mol로 모두 이온교환반응을 나타내는 에너지 값 범위에 들어와 참나무 탄화물에 의한 질산성질소의 흡착과정은 주로 이온교환 반응에 의해 이루어졌음을 시사했다. Banno 등 (2009)은 죽탄에 있어서의 질산이온 흡착능을 검토한

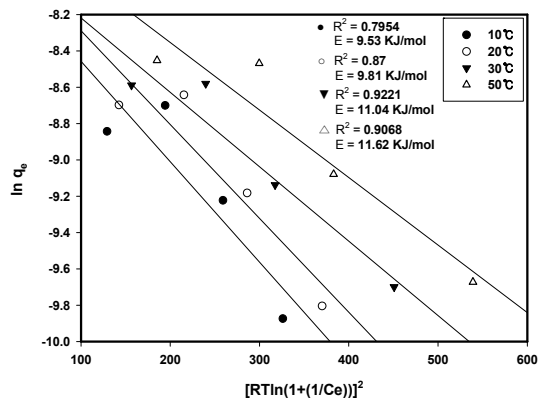


Fig. 4. D-R isotherm Plots of nitrate nitrogen adsorption on oak char.

연구에서 질산이온이 이온교환성 흡착이 일어남을 보고한 바 있으며, Yokoyama 등(2008)도 Ca을 도입한 목질 탄화물을 이용하여 질산성질소의 흡착특성을 검토한 결과 질산성질소의 흡착은 이온교환에 이루어짐을 보고한 바 있다.

3.3. 흡착 속도

Fig. 5와 6은 참나무 탄화물을 사용하였을 때의 NO₃-N 흡착에 대한 kinetic analysis로써 pseudo first-order와 pseudo second-order에 대한 plot을 나타낸 것이다. 회분 반응기에서 흡착제의 내부로 물질의 이동을 설명하기 위해서 homogeneous surface diffusion model, pore diffusion model 및 heterogeneous diffusion model과 같은 많은 model이 적용되어 왔지만 이러한 model들은 수학적 복잡성 때문에 실질적으로 사용하기에는 불편한 것으로 알려졌다. 탄소 표면에 있어서의 많은 여러 관능기(carboxylic, carbonyl, hydroxyl, ether, quinone, lactone, anhydride) 및 배열 때문에 흡착제와 흡착질 사이에 여러 상호작용이 일어날 것으

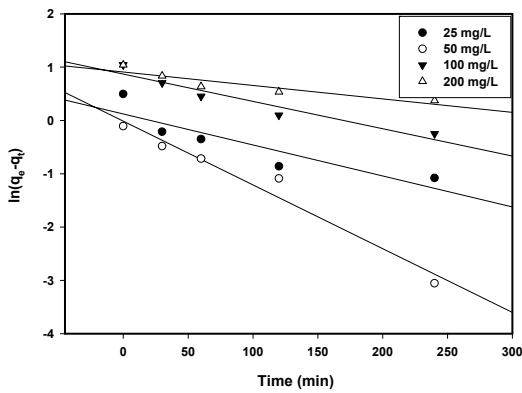


Fig. 5. Pseudo first-order kinetic plots for the adsorption of NO₃-N onto oak char.

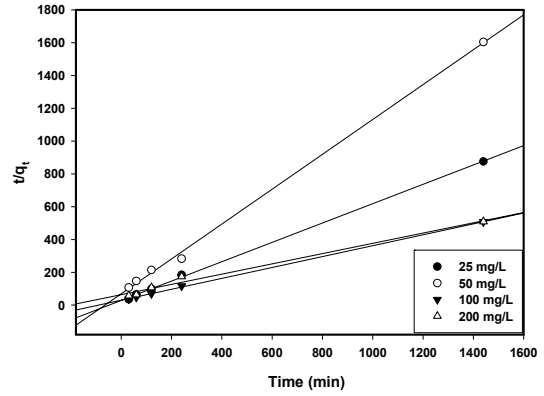


Fig. 6. Pseudo second-order kinetic plots for the adsorption of NO₃-N onto oak char.

로 예측되기도 한다(Chatzopoulos 등, 1993; Zhou와 Martin, 1995).

흡착에 대한 간단한 kinetic analysis는 pseudo first-order와 pseudo second-order이며 이들의 반응 동역학은 시간에 따른 NO₃-N의 흡착으로부터 Lagergren first-order(Namasivayam와 Sangeetha, 2008)식으로 구할 수 있다.

Pseudo first-order식과 pseudo second-order 식은 식 (6), (7)과 같다.

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \tag{6}$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \tag{7}$$

여기에서 q_e 와 q_t 는 평형흡착량과 시간 t (min)에서 흡착제에 흡착된 NO₃-N의 양이며(mg/g), k_1 은 pseudo first-order 흡착(1/min)의 속도정수이고, k_2 는

Table 2. Parameters and correlation coefficients on different two kinetic models

| parameter | | Pseudo first-order | | | Pseudo second-order | | |
|-----------|----------------------|--------------------|----------------------|----------------|---------------------|----------------------|----------------|
| C(mg/L) | q _e (exp) | k ₁ | q _e (cal) | R ² | k ₂ | q _e (cal) | R ² |
| 25 | 0.897 | 0.012 | 0.986 | 0.9662 | 0.0164 | 0.941 | 0.9986 |
| 50 | 1.644 | 0.0058 | 1.128 | 0.8007 | 0.0121 | 1.696 | 0.9994 |
| 100 | 2.835 | 0.0051 | 2.387 | 0.9233 | 0.0037 | 3.010 | 0.9996 |
| 200 | 2.830 | 0.0025 | 2.485 | 0.8448 | 0.0015 | 3.2 | 0.9866 |

pseudo second-order 정수(g/mg · mim)이다. 흡착 속도정수(k_1)은 $\ln(q_e - q_t)$ vs t 의 직선 plot의 기울기로부터 구할 수 있으며(Fig. 4), k_2 는 t/q_t vs t 의 plot(Fig. 5)의 기울기와 절편으로부터 구할 수 있다. k_1 과 k_2 의 값과 상관계수 R^2 는 Table 2에 나타내었다.

Pseudo first-order kinetic model인 경우 계산된 q_e 값은 실험 q_t 값과 일치하지 않았으며 이것으로부터 $\text{NO}_3\text{-N}$ 의 흡착은 pseudo first-order kinetic model에 따르지 않음을 알 수 있다. 그러나 pseudo second-order kinetic model을 사용한 경우에는 그림에서 보듯이 매우 직선적이며 R^2 값 역시 pseudo first-order kinetic model 보다 높았고 계산된 q_e 값과 실험 q_e 값이 근접하고 있는 것으로부터 본 실험의 $\text{NO}_3\text{-N}$ 의 흡착은 pseudo second-order kinetic model에 잘 따르는 것을 알 수 있었다.

3.4. 흡착 열역학

산 처리 참나무 탄화물의 질산성 질소 흡착반응에 대한 열역학적 정보를 얻기 위해 10-50°C에서 흡착평형 실험을 실시하고 그 결과를 Van't Hoff식에 적용시켜 보았다. 자유에너지 변화 (ΔG°), 엔탈피 변화 (ΔH°) 및 엔트로피 변화 (ΔS°)와 같은 열역학적 파라미터는 다음과 같다.

$$\Delta G^\circ = \Delta H^\circ - T\Delta S \quad (6)$$

$$\Delta G^\circ = -RT \ln b \quad (7)$$

$$\ln b = \frac{\Delta S^\circ}{R} - \frac{\Delta H^\circ}{T} \quad (8)$$

여기에서 ΔG° 의 단위는 [kJ/mol], ΔH° 는 [kJ/mol],

ΔS° 는 [J/K mol]이며, T 는 절대온도 [°K] 이고, R 은 gas 상수로 [J/k · mol]이며, b 는 Langmuir 상수 [L/mol]이다.

Fig. 7은 흡착 온도에 따른 $\ln b$ 의 변화를 나타낸 것이다. Figure에서 20°C 기준일 때 기울기와 절편은 각각 0.0624와 0.0657로 이 값을 식 (8)에 대입하면 ΔH° 와 ΔS° 및 ΔG° 를 구할 수 있으며 Table 3에 이들의 값을 나타내었다.

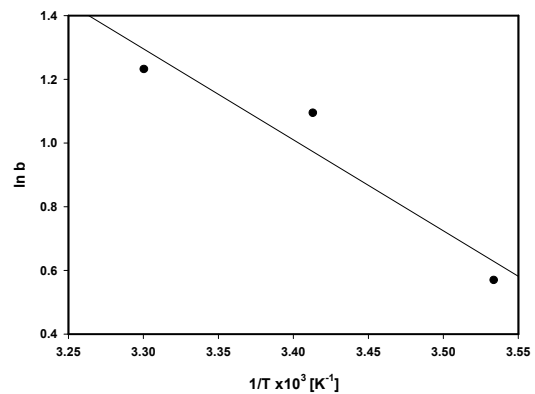


Fig. 7. Plots of $\ln b$ versus $1/T$ for the adsorption of $\text{NO}_3\text{-N}$ onto oak char.

ΔH° (26.1 kJ/mol)가 positive 값을 보이는 것은 본 실험의 흡착반응이 흡열반응임을 나타내는 것으로 추측할 수 있으며, ΔG° (-23.76 kJ/mol)가 negative 값을 보이는 것은 자발적으로 흡착이 일어나는 것으로 추측할 수 있다.

또한 ΔS° (89.7 J/K·mol)가 positive이므로 $\text{NO}_3\text{-N}$ 흡착이 일어나는 동안 solid /solution 계면에서 무질서도가 증가하는 것으로 예상할 수 있다(Namasivayam 와 Sangeetha, 2008; Vinod와 Anirudhan, 2001; Ohe 등, 2003).

Table 3. Thermodynamic parameters in the adsorption of $\text{NO}_3\text{-N}$ onto oak char

| Temperature (°C) | ΔG° (kJ/mol) | ΔH° (kJ/mol) | ΔS° (J/K·mol) |
|------------------|---------------------------|---------------------------|----------------------------|
| 10°C | -23.76 | 25.21 | 89.7 |
| 20°C | -23.76 | 26.1 | 89.7 |
| 30°C | -23.76 | 27.0 | 89.7 |
| 50°C | -23.76 | 28.8 | 89.7 |

한편 Fig. 1에서 보는 바와 같이 목탄을 산 처리하여 NO₃-N를 흡착시킬 때 온도가 증가함에 따라서 제거효율이 증가하는 것과 엔탈피 변화가 positive인 것으로 볼 때 본 실험에서의 산 처리한 목탄에의 NO₃-N의 흡착은 chemical adsorption인 것으로 사료된다. Ohe 등(2003)은 Bamboo와 Coconut shell 탄화물을 사용한 NO₃ 제거에서 엔탈피 변화 ΔH°가 negative 값을 가질 때 physical adsorption에 의해 NO₃⁻이 제거됨을 나타낸 바 있고, Vinod와 Anirudom(2001) 역시 Zirconium pillared clay를 사용한 tannic acid의 sorption에서 ΔH°가 negative 값을 나타낼 때 물리적 흡착으로 규정하고 있다.

Fig. 8에서는 좀 더 확실한 흡착 메카니즘을 추정하기 위하여 산 처리 목탄을 사용하여 NO₃-N를 흡착할 때 여러 surface loading에서 온도에 따른 평형농도의 변화를 나타내었다. 즉, 일정한 흡착질 양에서 흡착의 엔탈피는 흡착의 isosteric 엔탈피로써 알려져 있으며 이것은 Clausius-clapeyron식을 이용하여 계산할 수 있다. Clausius-clapeyron은 다음과 같이 쓸 수 있다.

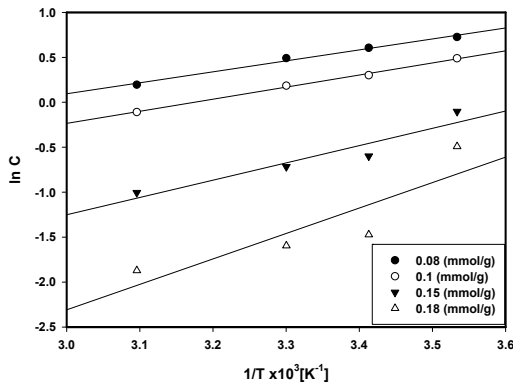


Fig. 8. Plots of ln C versus 1/T for the adsorption of NO₃-N onto oak char at different surface loadings.

$$\ln\left(\frac{C_1}{C_2}\right) = -\frac{\Delta H}{R}\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right) \quad (9)$$

여기에서 C₁과 C₂는 흡착된 같은 양의 NO₃-N에 대해서 다른 온도 T₁과 T₂에 해당하는 NO₃-N의 농도이다. Fig. 8에서 보며 여러 surface loading에서 ln C와

1/T의 그림은 직선적으로 나타났으며 이 직선의 기울기와 절편으로부터 식 (8)을 사용하면 ΔH_x를 구할 수 있다. 계산된 -ΔH_x는 10.11 -23.52 (kJ/mol)이다.

일반적으로 물리적 흡착의 -ΔH° 값은 20 kJ/mol이 하이고 화학적 흡착은 40 kJ/mol 이상으로 알려져 있다(Ohki 등, 1994). 또한 다른 연구자는 화학흡착에 기인하는 엔탈피 변화 값은 40 kJ/mol 이상이며 물리적 흡착인 경우에는 40 kJ/mol 이하로 보고하고 있다(Vinod와 Anirudhan, 2001).

본 실험에서 엔탈피 변화 값은 40 kJ/mol 이하로 물리적 흡착으로 보아야 하나 20 kJ/mol 이상이고 온도가 증가함에 따라 NO₃-N 흡착량이 증가하는 것으로 볼 때 산 처리 목탄에 NO₃-N가 흡착하는 것은 이온교환 반응인 동시에 physical adsorption과 chemical adsorption의 혼합일 가능성이 있는 것으로 사료된다.

4. 결론

본 연구에서는 소규모의 용수를 필요로 하는 지역의 지하수내의 주 오염물질인 질산성 질소(NO₃-N)를 처리대상으로, 산 처리 참나무 탄화물을 사용하여 질산성 질소의 흡착, 제거에 관련되는 흡착 등온식, 흡착 속도식 및 흡착 열역학을 비교 검토하였다.

참나무 탄화물을 사용하여 질산성질소를 흡착 제거할 때 반응온도가 높을수록 흡착 제거율이 증가하였다. 질산성질소 흡착평형은 Langmuir와 Freundlich 흡착등온모델 모두와 일치하는 거동을 보여 단일층 흡착과 불균질 표면 조건이 공존하는 특성을 나타내었다. D-R 모델로부터 구한 흡착에너지는 20°C에서 11.3 kJ/mol로 이온교환 메카니즘을 나타내는 흡착에너지 8-16 kJ/mol의 범위에 들었다. 흡착속도는 2차 흡착 속도식에 의해 설명할 수 있었다. 흡착반응의 열역학 상수(ΔH° 26.1 kJ/mol, ΔG° -23.76 kJ/mol, ΔS° 89.7 kJ/mol)들은 산 처리 참나무 탄화물에 의한 질산성질소 흡착과정이 흡열반응이며 또한 자발적 반응을 나타내었다.

Clausius-clapeyron 식을 이용하여 구한 -ΔH_x는 10.11-23.52 (kJ/mol)로 산 처리 목탄에 NO₃-N가 흡착하는 것은 약한 Chemical adsorption인 동시에

physical adsorption과 chemical adsorption의 혼합일 가능성이 있는 것으로 사료되었다.

감사의 글

본 연구는 2009년도 조선대학교 학술 연구비의 지원에 의해 수행되었습니다. 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- 권순국, 유명진, 정태명, 김민석, 1997, 이온교환수지를 이용한 농·어촌 지하수중의 질산이온 제거, 한국환경농학회지, 16(1), 193-198.
- 김종택, 1999, 수질오염공정시험법 해설, 신광출판사, 264-268.
- 정경훈, 정오진, 최형일, 2001, 염화철 처리 활성탄에 의한 질산염 제거, 한국환경위생학회지, 27(1), 63-68.
- 정경훈, 정오진, 최형일, 박상일, 박대훈, 2005, 염화철코팅 활성탄을 이용한 지하수 중의 질산성질소 제거를 위한 연구, 한국환경위생학회지, 31(2), 165-171.
- Afkhami, A., Madrakian, T., Karimi, Z., 2007, The effect of acid treatment of carbon cloth on the adsorption of nitrite and nitrate ions, J. Hazardous Materials, 144, 427-431.
- Banno, M., Kuba, T., Sano, K., Kawamura, N., Ichigawa S., Sakai, Y., 2009, Capacity and mechanism of nitrate anion adsorption onto bamboo charcoal, Journal of Japan Society on Water Environment, 32(7), 369-374.
- Chatzopoulos, D., Varma, A., Irvine, RL, 1993, Activated carbon adsorption and desorption of toluene in the aqueous phase, AICHE, J, 39(20), 27-41.
- Ho, Y. S., McKay, G., 1998, A comparison of chemisorption kinetic models applied to pollutant removal on various sorbent, Trans IChemE, Part B, Process Saf. Environ. prot., 76, 332-340.
- Namasivayam, C., Sangeetha, D., 2008, Application of coconut coir pith for the removal of sulfate and other anions from water, Desalination, 219, 1-13.
- Ohe, K., Nagae, Y., Nakamura, S., Baba, Y., 2003, Removal of nitrate anion by carbonaceous materials prepared from bamboo and coconut shell. J. Chemical Engineering of Japan, 36(4), 511-515.
- Ohki, M., Ohsawa, T., Tanaka, M., Chihara, H., 1994, Kagakujiten, Tokyokagakudoujin, Tokyo, Japan, 342.
- Öztürk, N., Bektas, T. E., 2004, Nitrite removal from aqueous solution by adsorption onto various materials, J. Hazardous Materials, B112, 155-162.
- Sari, A., Tuzen, M., Citak, D., Soylyak, M., 2007, Adsorption characteristics of Cu(II) and pb(II) onto expanded perlite from aqueous solution, Journal of Hazardous materials, 148, 387-394.
- Van der Hoek, J. P., Klapwijk, A., 1987, Nitrate removal from ground water, Wat. Res., 21(8), 989-997.
- Vinod, V. P., Anirudhan, T. S., 2001, Sorption of tannic acid on Zirconium pillared clay, J. Chem. Technol and Biotechnol., 77, 92-101.
- Yokoyama, R., Hayashi, S., Nakanishi, M., Takada, J., 2008, NO₃-N adsorption property of Ca-containing charcoal, J. Japan society on water Environment, 31(1), 47-52.
- Zhou, M. L., Martin, G., 1995, Adsorption kinetics modeling in batch reactor onto activated carbon by the model HSDM, Environ. Technol., 16(8), 27-38.
- 森明憲, 小野信一, 1995, 木炭の鹽化鐵處理による硝酸イオン吸着能の發現, 日本土肥學會誌, 66(4), 415-417.
- 細見正明, 1996, 硝酸性窒素の除去技術, 水環境學會誌, 19(2), 969-972.