Journal of Korean Society of Water and Wastewater
Vol.25, No.5, pp.767-775, October, 2011

상하수도학회지, 논문
25권 5호, pp.767-775, 10월, 2011

전기응집을 이용한 소규모 수도시설의 질산성질소와 불소이온 제거

Fluoride and nitrate removal in small water treatment plants using electro-coagulation

한송희[1] · 장인성[2*]

Song-Hee Han[1] · In-Soung Chang[2*]

1 호서대학교 대학원 BK21 반도체디스플레이공학과, 2 호서대학교 환경공학과

(2011년 8월 8일 접수 ; 2011년 10월 12일 수정 ; 2011년 10월 14일 채택)

Abstract

In this study we verified if the electro-coagulation process can treat properly the nitrate and fluoride that are not removed well in the conventional small water treatment plants which usually employ chlorination and filtration only. As we gave a change of electrode material and gap-distance between electrodes, removal efficiency of the nitrate and fluoride was determined by electro-coagulation process which were equipped with aluminum and stainless steel (SUS304) electrodes. In addition, electrode durability was investigated by determination of electrodes mass change during the repetitive experiments. Removal efficiency was great when aluminum was used as an anode material. Nitrate removals increased as electric density and number of electrodes increased, but fluoride removal was less sensitive to both parameters than nitrate. After 10 minutes of contact time with the current density from 1×10^{-3} to 3×10^{-3}A/cm^2, nitrate and fluoride concentration ranged from 9.2 to 1.2mg/L and from 0.02 to 0.01mg/L, which satisfied the regulation limits. Regardless of the repeating number of experiments, removal efficiency of both ions were almost similar and the change of electrode mass ranged within $\pm$0.5%, indicating that the loss of the electrode mass is not so much great under the limited circumstances.

Key words : Electro-coagulation, Fluoride, Nitrate, Small water treatment plant

주제어 : 전기응집, 불소, 질산성질소, 소규모 수도시설

1. 서 론

소규모 수도시설의 대부분은 농·어촌 지역에 위치하고 있어서 비료와 가축분뇨 등 비점오염원에 의한 수질오염이 심각한 곳이 많다. (환경부, 2008(1): 환경부, 2008(3)) 또한 소규모 수도시설은 지하수나 계곡수를 취수원으로 하여 여과나 염소소독만을 거쳐 식수로 이용하는 공정으로 구성되어 있어서 수인성 전염병, 중금속 및 무기이온 등 각종 오염물질에 노출되었을 때 능동적으로 대처할 수 있는 능력이 부족하다. 더구나 소규모 수도시설은 광역상수도와 달리 전문능력을 갖춘 관리자가 없이 마을에 거주하는 현지인으로 하여 관리하게끔 하고 있어 유지관리가 매우 어려운 실정이다. (김 등, 2007)

2008년 시행된 소규모 정수시설의 법정 수질검사에서

* Corresponding author Tel:+82-41-540-5744, Fax:+82-41-540-5748, E-mail: cis@hoseo.edu(Chang, I.)

수질기준을 초과하는 항목 중 가장 문제시 되는 것은 질산성질소 (NO_3^-)이며 다음으로는 세균과 탁도 그리고 불소 (F^-) 순으로 나타났다. (환경부, 2008(2)) 대부분의 소규모 정수시설이 간단한 소독공정만으로 이루어진 사실을 상기한다면 질산성 질소나 불소와 같은 무기이온 들의 수질기준 초과가 빈번한 것은 어떻게 보면 당연한 결과이기도 하다. 염소를 이용한 소독공정만 제대로 수행된다면 세균의 수질기준 초과는 해결될 수 있는 문제이기 때문에 소규모 수도시설에서 가장 중요하게 고려해야할 수질항목은 질산성질소 (NO_3^-)와 불소 (F^-)이다.

이런 소규모 급수시설에서 무기이온들을 제거하기 위해서 역삼투 (reverse osmosis) 원리를 이용한 막분리 (membrane separation) 공정과 이온교환 (ion exchange) 공정이 적용되고 있다. 그러나 역삼투 공정은 에너지 사용량이 많은 단점이 있으며, 이온교환 수지 (ion exchange resin)는 비전문가에 의한 재생 (regeneration) 과정에 어려움이 많기 때문에 대안이 요구되고 있다.

최근에는 전기화학적 원리를 적용하여 수중의 무기이온을 제거하기 위한 연구가 보고되고 있다. (강 등, 2000)은 전기분해를 이용하여 전자부품 세척수로 배출되는 폐수의 불소를 제거하는 보고가 있었으며, (심 등, 2008)은 연속다단계 전기화학적 공정을 적용하여 질산성질소를 효과적으로 제거하는 방안에 대한 연구결과를 보고하였다. 또한 (하 등, 2007)은 입자상 알루미늄을 충전한 복극 전해조에 전위를 인가하여 수용액 중에 존재하는 불소를 제거하는 연구를 수행하기도 하였다. 그러나 이러한 연구결과는 대부분 폐수처리를 위한 공정이었으며, 급수시설의 정수처리 공정에 전기화학 기술을 적용한 연구는 아직 미흡한 실정이다.

전기응집 (electro-coagulation) 공정은 알루미늄(Al), 철(Fe)과 같은 재료를 전극으로 활용하고 이에 전위를 인가하면 양극 (anode)에서는 Al^{3+}, Fe^{2+}와 같은 금속이온이 산화되어 용출되게 되고, 이로 인해 $Al(OH)_3$, $Fe(OH)_3$와 같은 불용성 금속수산화물이 형성되어 수중의 오염물질을 응집시켜 제거하는 원리이다. 알루미늄 (Al) 전극을 이용한 전기응집을 가정한다면 양극과 음극에서는 다음과 같은 화학반응식을 따라 전기응집이 수행되는 것으로 알려져 있다. (Zuo et al., 2008: Ghosh et al., 2008)

Anode:

$$Al \rightarrow Al^{3+} + 3e^- \quad (1)$$

Cathode:

$$3H_2O + 3e^- \rightarrow \frac{2}{3}H_2 + 3OH^- \quad (2)$$

Bulk:

$$Al^{3+} + 3H_2O \rightarrow Al(OH)_3 + 3H^+ \quad (3)$$

소규모 급수시설에서는 화학약품을 첨가하여 응집을 유도하는 화학응집의 적용이 어렵다. 왜냐하면 시설이 대부분 비숙련 관리자에 의해 운영되기 때문에 화학약품의 보관, 취급, 사용이 용이하지 않고 한계점이 존재한다. 따라서 소규모 급수시설에 전기응집 공정을 적용한다면 비교적 수월하게 공정의 자동화를 보장할 수 있으며, 화학약품을 이용한 응집공정과 비교하여 슬러지 발생량이 적은 장점이 있다. (한 등, 2004) 따라서 본 연구에서는 소규모 수도시설에서 문제시되고 있는 무기이온 중 특히 질산성질소와 불소를 효과적으로 제거할 목적으로 전기응집 공정을 적용하였고, 전극의 재질, 전극의 개수, 전극 간격 등의 변화에 따른 무기이온의 제거효율과 최적 운전조건을 모색하고자 하였다.

2. 실험장치 및 방법

2.1 시료

본 연구에 사용된 시료는 $NaNO_3$, NaF를 이용하여 초기농도가 질산성질소는 17mg/L, 불소는 1.5mg/L가 되게끔 제조하여 사용하였다. 초기농도는 마을상수도와 소규모 수도시설의 수질기준 초과 내역을 참고하여 질산성질소와 불소의 농도를 결정하였다. (환경부, 2008(1): 환경부, 2009)

2.2 전기응집 실험장치

본 연구에 사용된 전기응집 장치는 **Fig.1**과 같으며 직류전원 공급장치 (DC power supply, PAP-3030 파워트론), 응집 반응조와 전극으로 구성되었다. 직류전원 공급장치는 최대전압 30V, 최대전류 30A까지 조절 가능한 것을 사용하였으며, 응집 반응조는 아크릴을 이용하여 14.5cm(W)×9cm(L)×22cm(H)의 크기로 제작하였다.

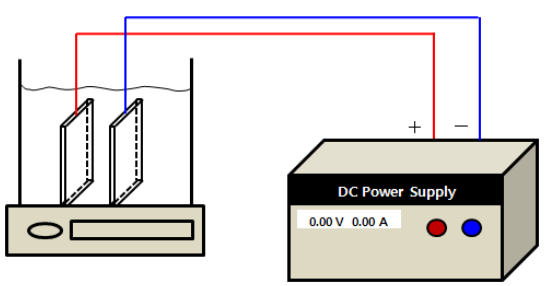


Fig. 1. Schematic of the electro-coagulation apparatus

상하수도학회지, 논문
25권 5호, pp.767-775, 10월, 2011

실용적은 1.5L이었고 전극을 상부에 고정시키고 전극의 간격 변화를 용이하게 하기 위하여 반응조 상부에 0.5cm 간격의 홈을 만들어 전극을 거치할 수 있도록 제작하였다. 사용된 전극 재료는 알루미늄 (Al)과 스테인레스스틸 (SUS304)을 사용하였고 크기는 7.5cm(W)× 16.5cm(L)×0.1cm(H)로 제작하였다.

전기화학적 공정에서 전극간의 연결방법은 크게 Monopolar와 Bipolar 형식으로 구분할 수 있다. **Fig. 2**처럼 Monopolar 연결법은 각각의 전극에 모두 전위를 인가시켜 주는 방법이라면 Bipolar 연결법은 양 쪽 끝에 위치하는 전극에만 전위를 인가시켜주는 방법이다. Monopolar는 각 전극에 인가되는 전압이 동일하고($U_0=U_T$), 총 전류는 각각의 전극에 인가되는 전류의 합($I_T=I_{01}+I_{02}+.....+I_{0n}$)으로 표현할 수 있으므로 병렬연결로 볼 수 있다. 반면에 Bipolar는 각 전극에 인가되는 전류가 동일하며($I_T=I_0$) 총 전압이 각각의 전극에 인가되는 전압의 합($U_T=U_{01}+U_{02}+....+U_{0n}$)으로 표현되기 때문에 직렬연결로 규정지을 수 있다. (Emamjomeh et al., 2009; Jiang et al., 2002; Golder et al., 2007) 전류의 흐름이 양극에서 음극으로 흐르는 것을 상기하면 **Fig. 2**의 화살표 방향과 같이 Monopolar는 양극(anode)을 중심으로 양 쪽으로 전류가 흐르는 반면 Bipolar는 한 쪽 방향으로만 전류가 흐른다는 차이가 있다. 본 연구에서는 2~12개의 전극을 Monopolar 형태로 연결하여 전기응집 실험을 수행하였다.

2.3 실험 및 분석방법

전기응집 공정을 이용하여 질산성질소와 불소의 제거 효율을 파악하기 위하여 전극종류, 전류밀도, 전극간격, 전류개수 등에 변화를 주어 실험을 진행하면서 시료를 분취하여 농도를 측정하였다. 전극은 알루미늄(Al), 스테인레스스틸 (SUS304) 두 가지 재료를 이용하였으며 양극과 음극재료를 각각 Al(+)/Al(−), Al(+)/SUS(−), SUS(+)/Al(−), SUSl(+)/SUS(−) 총 4가지로 구성하였다. 인가된 전류밀도는 1×10^{-3}A/cm^2 ~ 3×10^{-3}A/cm^{2}의 범위에서 변화를 주어 전류밀도에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화를 살펴보았다. 또한 1.5cm, 0.5cm로 전극간격을 변화하여 실험을 진행하였고, 전극개수는 양극 음극 각각 1~6개로 하였다.

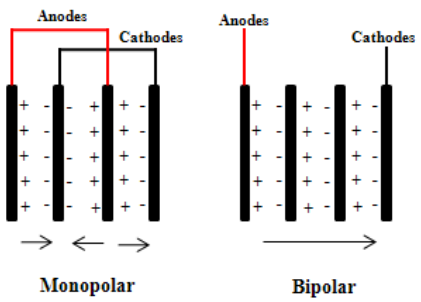


Fig. 2. Monopolar and bipolar electrode connections in the electro-coagulation process

전극의 재생 가능성 및 경제성을 평가하기 위해 실험의 반복횟수에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화와 전극의 질량변화를 측정하였다. 실험은 총 4회에 걸쳐 반복 진행하였고 전극의 질량변화는 전기응집 실험 후 증류수와 스폰지로 전극을 세척하고 50℃에서 1시간 이상 건조하여 수분을 제거한 후 저울 (Sareorius micro balance, MC210P)을 이용하여 질량을 측정하여 전기응집 전 · 후 전극의 질량 변화를 파악하였다.

전기응집 공정은 **Table 1**에 제시된 각 운전변수를 변화시켜가며 반응시간에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화를 살펴보았다. 질산성질소와 불소의 분석방법은 **Table 2**에 나타내었다. 질산성질소와 불소의 농도는 Standard method (APHA, 1995)에 준하여 측정하였다.

Table 1. Operating condition and specification of the electro-coagulation reactor

parameters	Unit	Value
Material of electrodes	-	Al, SUS304
Working volume	mL	1000
Initial concentration of NO_3^-	mg/L	17
Initial concentration of F^-	mg/L	1.5
Number of electrodes	ea	2~12
Distance between electrodes	cm	0.5~1.5
Current density	A/cm^2	1×10^{-3}–3×10^{-3}
Contact time	min	0-120

Table 2. Analytical methods

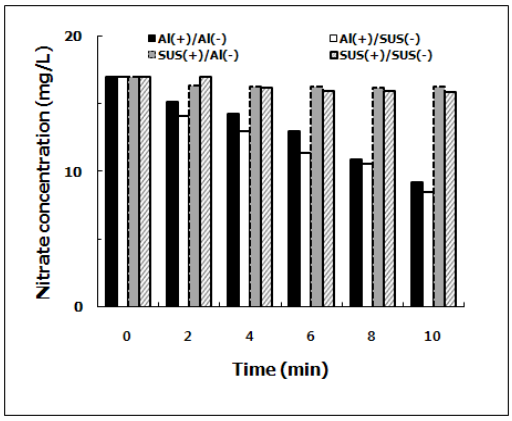
Components	Analytical methods & (Instruments)
F^- (mg/L)	SPADNS Method, (DR/4000, Hach, USA)
NO_3- N(mg/L)	Cadmium Reduction Method, (DR/4000, Hach, USA)

3. 결과 및 고찰

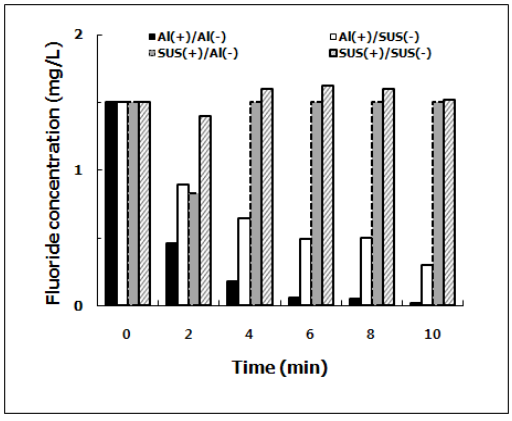
3.1 전극 재질 및 구성

전극 재질에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화를 알아보기 위해 전기응집 공정에 많이 사용되고 있는 알루미늄(Al)과 스테인레스스틸 (SUS304)을 이용하여 이온의 제거효과를 관찰하였다. (Idil et al., 2008) 실험조건은 양극, 음극 각각 5개를 사용하여 전극간격 0.5cm, 전류밀도 1×10^{-3}A/cm^2, 반응시간은 10분이었고, 2분 간격으로 시료를 채취하여 농도를 측정하였다.

전극 재질의 변화와 반응시간에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화를 Fig. 3에 나타내었다. Fig. 3(a)는 질산성질소의 농도변화를 나타낸 것으로 질산성질소의 초기농도 17mg/L에서 반응시간이 증가함에 따라 농도가 감소하는 경향을 나타내고 있다. Al(+)/Al(−)의 전극구성에서 반응시간 10분 후 질산성질소의 제거율은 46%이었다. Al(+)/SUS(−), SUS(+)/Al(−), SUS(+)/SUS(−)의 전극 구성에서는 반응시간 10분 후 질산성질소의 제거율은 각각 50%, 4%, 6%로 나타났다. 양극으로 알루미늄(Al)을 사용한 경우 반응시간 10분 후 약 50%의 제거효율을 나타내었다. 반면 양극을 스테인레스스틸로 사용한 경우의 제거효율은 약 5%로 나타나 전기응집에서는 양극의 재료가 중요한 변수임을 알 수 있었다. 이는 양극에서 전자를 내주는 산화반응이 일어나야 하므로 불용성이 강한 스테인레스스틸보다는 알루미늄 재질이 산화반응에 유리하기 때문이다.



(a)



(b)

Fig. 3. (a) Variation of nitrate concentration as a kind of electrode (b) Variation of fluoride concentration as a kind of electrode

Fig. 3(b)를 살펴보면 Al(+)/Al(−), Al(+)/SUS(−)의 구성에서는 불소의 농도가 감소하고 있으나 SUS(+)/Al(−)의 경우에는 반응시간 2분 후 조금 감소하는 경향을 보이다가 4분 이후에는 초기농도와 거의 동일한 값을 나타내었다. SUS(+)/SUS(−)의 경우에는 반응시간이 증가하여도 불소의 농도가 전혀 감소하지 않는 것으로 나타났다. 반면 Al(+)/Al(−), Al(+)/SUS(−) 전극구성의 경우 10분 후 불소의 제거효율은 각각 99%, 80%로 나타났다. 질산성질소의 경우 양극과 음극 모두 알루미늄(Al)을 사용하였을 때와 양극은 알루미늄(Al)을 음극은 스테인레스스틸을 사용하였을 때 가장 높은 제거효율을 얻었고 두 전극 구성에서 제거효율은 유사하였다. 반면, 불소의 경우에는 양극, 음극 모두 알루미늄 전극을 사용하였을 때 제거효율이 가장 높은 것으로 나타났다.

이를 통해 스테인레스스틸 보다 용해성이 좋은 알루미늄 전극을 사용하는 것이 무기이온 제거에 긍정적임을 알 수 있었고, 동일한 조건에서는 질산성질소보다는 불소의 제거효율이 우수함을 알 수 있었다.

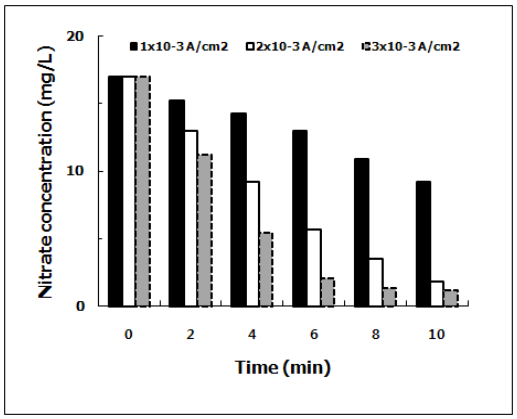
3.2 전류밀도

전류밀도 변화에 따른 질산성질소와 불소의 제거효율을 알아보기 위해 전류밀도를 1×10^{-3}, 2×10^{-3}, 3×10^{-3} A/cm^{2}로 변화시켜 가며 전기응집 실험을 진행하였다. 양극 5개 음극 5개를 사용하였으며 전극의 종류는 Al(+)/Al(−)으로 구성하였고 전극의 간격은 0.5cm로 고정하였다.

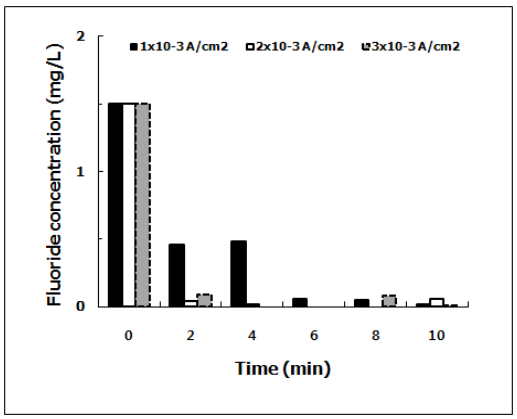
전류밀도 변화와 반응시간에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화를 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4(a)의 전류밀도에 따른 질산성질소의 제거효율을 살펴보면 반응시간 10분 후 1×10^{-3}, 2×10^{-3}, 3×10^{-3} A/cm^{2}일 때 각각 46, 89, 93%를 나타내었다. 질산성질소의 농도는 반응시간과 전류밀도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다.

Fig. 4(b)의 불소 제거효율을 살펴보면 1×10^{-3}~3×10^{-3} A/cm^{2}의 전류밀도 범위에서 반응시간 10분 후 96~99%의 제거효율을 나타내었다. 불소는 반응시간 2분

상하수도학회지, 논문
25권 5호, pp.767-775, 10월, 2011

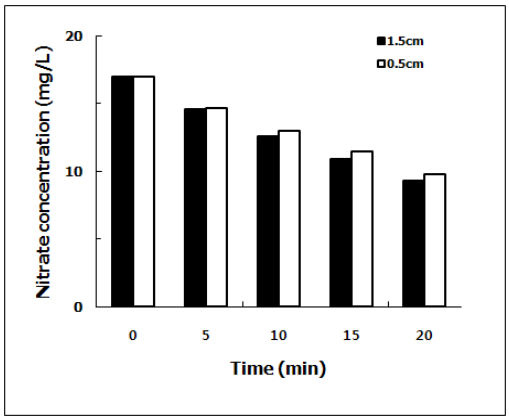


(a)

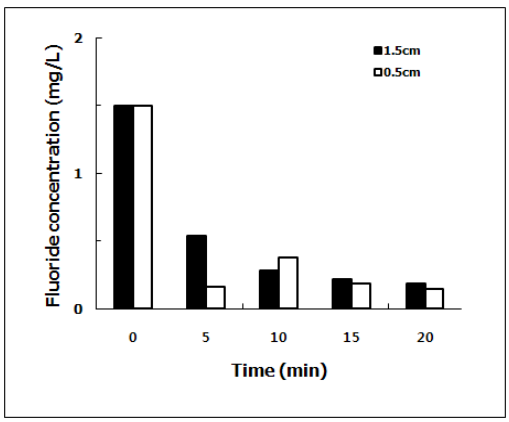


(b)

Fig. 4. (a) Variation of nitrate concentration as a current density (b) Variation of fluoride concentration as a current density



(a)



(b)

Fig. 5. (a) Variation of nitrate concentration as a electrode gap distance (b) Variation of fluoride concentration as a electrode gap distance

후 거의 모두 제거되었다. 이는 인가된 전류밀도 범위에서 불소는 반응초기에 충분히 제거되고 있음을 알 수 있으며, 1×10^{-3}A/cm^2 보다 적은 전류밀도에서도 제거가 가능할 수 있음을 시사하고 있다.

현재 질산성질소와 불소의 수질기준은 각각 10과 1.5mg/L로 본 연구에서 인가된 전류밀도 1×10^{-3}~3×10^{-3} A/cm^{2}의 범위에서 반응시간 10분 후 질산성질소 9.20~1.20mg/L, 불소 0.02~0.01mg/L의 농도를 나타냄으로써 법적 수질 기준을 만족하는 수치를 나타내고 있다. 전류밀도는 오염물질의 제거효율을 결정하는 중요한 인자 중 하나이며 전류밀도가 증가할수록 제거효율 또한 증가하는 경향이 있다. 그러나 일정한 전류밀도 이상에서는 제거효율의 차이가 크지 않으며 전류밀도가 증가 할수록 에너지 소비량이 증가하기 때문에 처리해야 할 오염물질의 특성을 고려하여 최적의 전류밀도를 찾는 것이 중요하다. (İrdemez et al., 2006; Un et al., 2009)

3.3 전극간격에 따른 영향

전극의 간격 변화에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화를 알아보기 위해 1.5cm, 0.5cm의 간격에서 실험을 진행하였다. 양극과 음극 모두 알루미늄으로 구성된 전극 2개를 이용하여 질산성질소와 불소의 농도변화를 **Fig. 5**에 나타내었다.

Fig. 5(a)를 살펴보면 전극간격이 1.5cm일 경우 반응시간 20분 후 질산성질소의 제거효율은 45%이며 0.5cm의 경우에는 42%로 나타나 전극간격에 의한 영향은 크지 않은 것으로 나타났다. **Fig. 5(b)**는 불소의 농도변화를 나타낸 것으로 전극간격 1.5cm의 경우 반응시간 20분 후 불소의 제거효율은 87%이었고, 0.5cm의 경우에는 90%로 나

타나 불소 역시 전극간격 변화에 의한 영향이 크지 않음을 알 수 있었다. 질산성질소와 불소 모두 0.5~1.5cm 전극간격 범위에서는 제거효율에 큰 차이를 보이지 않는 것으로 나타났다. 이후 전극간격을 1.5cm 이상으로 증가시켜 실험을 진행하였으나 전류가 흐르지 않았다. 이는 전극의 간격이 증가할수록 저항이 증가하여 특정한 임계 전극간격이 존재하고 있음을 시사하고 있다.

3.4 전극개수에 따른 영향

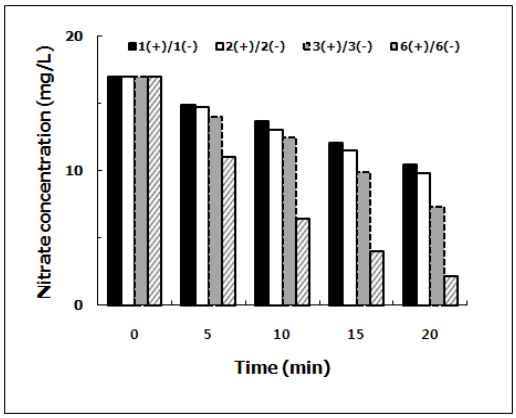
전극개수의 변화에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화를 알아보기 위해 양극과 음극을 구분하여 1(+)/1(−), 2(+)/2(−), 3(+)/3(−), 6(+)/6(−)으로 전극개수를 달리하여 실험을 수행하였다. 전극의 재질은 Al(+)/Al(−)을 사용하였으며 전극의 간격은 0.5cm으로 고정하였고 전류밀도는 동일하게 1×10^{-3}A/cm^{2}로 유지하였다. 질산성질소와 불소의 농도를 Fig. 6에 나타내었다.

Fig. 6(a)는 전극개수에 따른 질산성질소의 농도변화를 나타낸 것으로 반응시간 20분후 제거효율을 비교한 결과 각각 38, 42, 57, 88%로 전극의 개수가 증가함에 따라 제거효율도 함께 증가하는 것을 알 수 있었다. 모두 동일한 전류밀도가 인가되었기 때문에 전극의 개수에 상관없이 동일한 제거율을 보여야 타당하나 전극의 개수가 증가할수록 제거효율이 증가하는 것은 반응조의 부피당 전극면적이 증가하기 때문에 용액 내 존재하는 이온과 전극 간 반응이 발생하는 실질 면적이 증가하여 제거율이 증가하는 것으로 판단된다. 즉, 반응조를 설계할 때 전류밀도가 중요한 인자이기는 하지만 가급적이면 반응조의 구석구석에 전극이 존재할 수 있는 구조 (configuration)로 반응조를 설계하여야 한다는 결론을 얻을 수 있다. 따라서 전극의 총면적 (A)을 반응조의 부피 (V)로 나눈 A/V값이 중요한 설계인자로 사용되어야 한다고 제안할 수 있다.

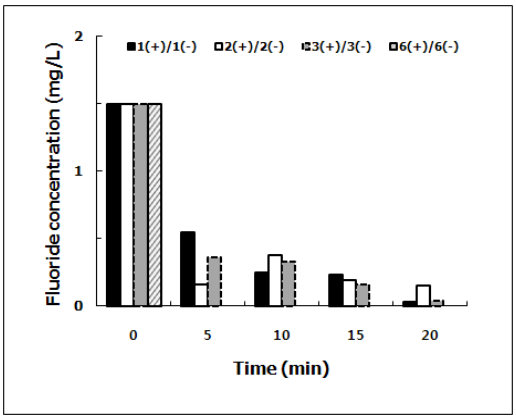
Fig. 6(b)는 불소의 경우로 전극개수의 영향을 크게 받지 않는 것으로 나타났다. 그러나 질산성질소의 농도와 비교해 볼 때 불소의 경우에는 불소의 초기농도가 낮기 때문에 충분히 제거되어 겉보기에 전극 개수의 영향을 받지 않은 것으로 판단된다.

3.5 실험 반복횟수에 따른 특성변화

실험의 반복에 따른 질산성질소와 불소의 농도변화 영향과 전극의 질량 변화를 관찰함으로써 전극의 재생 가능성 및 경제성을 평가하고자 하였다. 총 4회의 실험을 반복하였으며 실험조건은 양극 6개 음극 6개의 전극을 사용하였다. 전극의 재질은 Al(+)/Al(−)으로 구성하였으며 전극의 간격은 0.5cm, 전류밀도 1×10^{-3} A/cm^{2}로 고정하였다. 실험



(a)



(b)

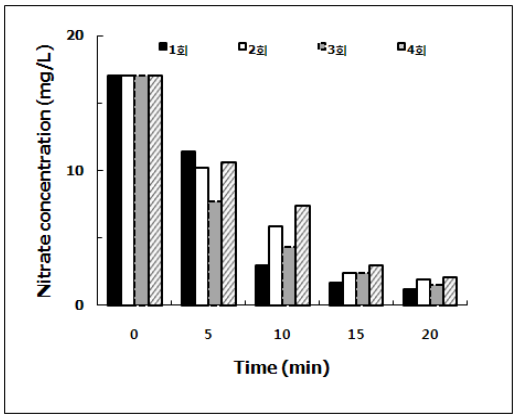
Fig. 6. (a) Variation of nitrate concentration as the number of electrode (b) Variation of fluoride concentration as the number of electrode

횟수에 따른 질산성질소와 불소의 농도를 **Fig. 7**에 나타내었다.

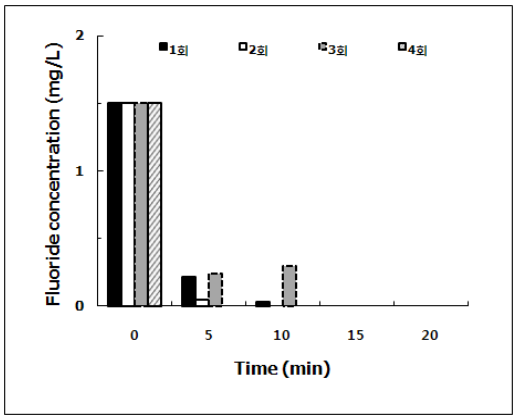
Fig. 7(a)는 질산성질소의 농도변화를 나타낸 것으로 반응시간 0~20분 후 1~4회 반복실험 시 질산성질소는 88~92%로 실험 반복횟수에 따른 제거 효율에는 큰 변화가 없음을 알 수 있었다. **Fig. 7(b)**는 불소의 농도변화로 초기 5분 동안에 불소가 85~100% 정도 제거되었고 반응시간 20분 후에는 실험의 반복횟수에 관계없이 모두 100%의 제거효율을 나타내었다. 따라서 불소 제거 시 경제적 측면을 고려할 때 반응시간을 감소시키는 것이 효과적이라 판단된다.

실험횟수 증가에 따른 전극의 질량 변화를 **Fig. 8**에 제시하였다. 이는 전극의 질량변화를 비율로 표현한 것으로 양극 4개, 음극 4개의 결과만을 그래프로 표현하였다. 반응시

상하수도학회지, 논문
25권 5호, pp.767-775, 10월, 2011

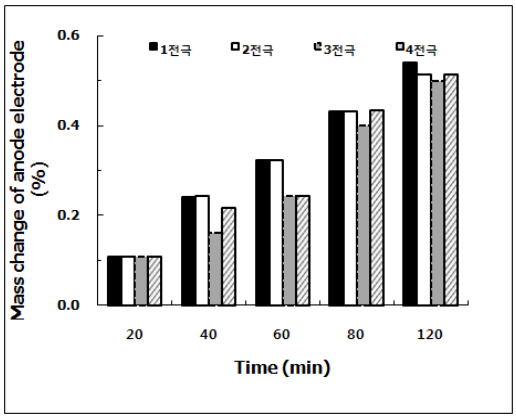


(a)

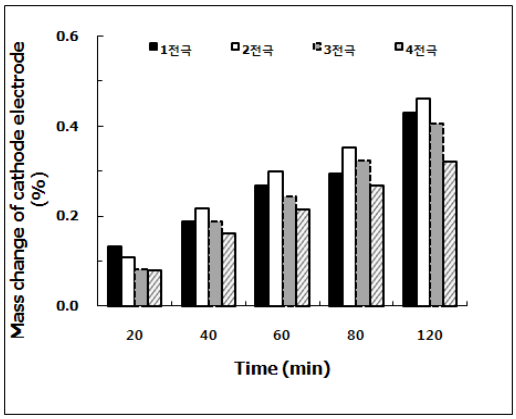


(b)

Fig. 7. (a) Variation of nitrate concentration along the repetitive number of experiments (b) Variation of fluoride concentration along the repetitive number of experiments



(a)



(b)

Fig. 8. (a) Mass change of anode electrode (b) Mass change of cathode electrode

간이 증가함에 따른 전극의 질량변화를 살펴보면 반응시간 120분 후 0.1~0.5%의 비율로 감소하였다. 또한 반응기에 전극을 고정시킬 때 양쪽 면이 마주보는 전극이 있는가 하면 양쪽 끝의 전극은 한쪽 면만을 마주보고 있기 때문에 이에 따른 영향을 알아보기 위해 전극의 고정 위치에 따른 질량변화를 살펴보았다. 양극 1전극과 음극 4전극은 반응조의 맨 끝에 위치하는 전극으로 실험결과 전극의 고정 위치와 관계없이 전극의 질량 변화는 비슷한 것으로 나타났다. Fig. 9는 전극의 질량 변화를 g 단위로 표현함으로써 시간 변화에 따른 양극과 음극의 질량 변화 차이를 관찰하고자 하였다. 전기응집 반응은 가용성 전극을 이용하여 실험을 진행하기 때문에 전극에 전위를 인가하면 전극은 용해된다.

즉, 양극의 경우 알루미늄 전극에 전위를 인가하면 양극에서는 Al^{3+}의 금속이온으로 산화되어 용출된다. 이러한 반응에 의해 질량의 변화가 발생하는 것이다. 또한 알루미늄을 양극으로 이용하여 전기응집 후 현미경으로 전극을 관찰한 결과 부식작용 (Corrosion)에 의해 구멍이 생겼다는 연구 결과도 보고되고 있다. (Mouedhen et al., 2008) 이를 통해 간접적으로 전극의 질량변화의 원인을 확인할 수 있다. 음극의 경우에는 물의 전기분해 반응만 일어나기 때문에 전극의 질량 변화가 관찰되지 않을 것이라 생각하였으나 양극과 비교 시 질량변화는 적으나 음극 또한 전극의 질량 감소가 관찰되었다. 그러나 반응시간 120분 후 최대 0.2g으로 크지 않은 것으로 나타났다. 따라서 실험이 반복됨에 따른 질량변화는 크지 않았으며 전극의 경제적 측면을 고려해 볼 때 제한된 범위 안에서 사용된 전극은 반복 재사용이 가능하다. 물론 전극의 수명 (life time)에 대한 정보를 얻기 위해서는 장기적인 실험을 통해 규명해야할 것으로 판단된다.

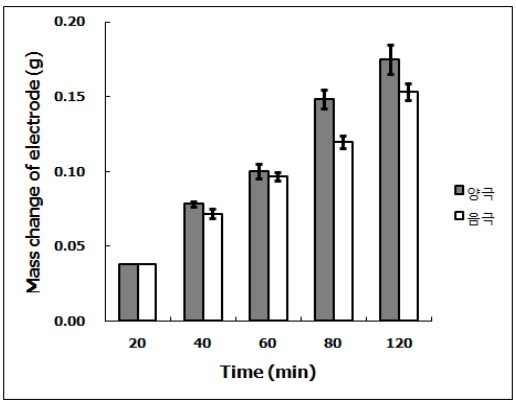


Fig. 9. The comparison of mass change of anode and cathode electrode

4. 결 론

본 연구에서는 전기응집 공정을 적용하여 소규모 수도시설에서 문제시되고 있는 오염물질 중 질산성질소와 불소 이온의 제거 가능성을 평가하였다. 또한 최적의 운전조건을 파악하기 위해 여러 변수를 두어 실험을 수행하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 전극 재질에 따른 질산성질소와 불소의 제거효율을 살펴보면 양극의 재질을 알루미늄으로 사용한 경우 질산성질소 46~50%, 불소 80~99%의 높은 제거효율을 보였다. 이는 전기응집 공정 적용 시 알루미늄과 같이 금속이온으로 산화되기 쉬운 재료의 전극을 이용하는 것이 효과적일 것으로 판단된다.

2) 전류밀도에 따른 질산성질소와 불소의 제거효율은 1×10^{-3}~3×10^{-3} A/cm^{2}의 전류밀도에서 각각 46~93%, 96~100%의 제거효율을 보였다. 질산성질소는 전류밀도를 증가시킴에 따라 제거효율이 증가하나, 불소의 경우에는 인가된 전류밀도 범위 내에서 100% 제거되었다. 불소의 경우 초기농도가 질산성질소 보다 낮아 이와 같은 결과가 나온 것으로 판단되며 추후 초기농도가 동일한 조건하에 질산성질소와 불소의 제거효율 평가가 요구된다.

3) 전극간격을 1.5와 0.5cm로 변화하여 질산성질소와 불소의 제거효율을 살펴본 결과 질산성질소는 각각 45, 42% 불소는 각각 87, 90%로 질산성질소와 불소 모두 전극간격에 따른 제거효율의 영향은 크지 않은 것으로 나타났다. 전극간격이 증가 할수록 저항이 커짐에 따라 이에 따른 제거효율을 살펴볼 수 있으리라 기대하였으나 제거효율에 큰 변화가 나타나지 않았다.

4) 전극 개수가 증가함에 따라 질산성질소는 제거효율이 증가하였고 불소는 큰 차이가 없는 것으로 나타났다.

5) 실험의 반복횟수에 따른 질산성질소와 불소의 제거효율은 각각 88~92%, 85~100%이고 전극의 질량변화는 0.1~0.4%로 나타났다. 이는 전기응집 반응이 반복적으로 진행된다 하더라도 제한된 범위 내에서 전극은 반복 재사용이 가능함을 알 수 있었다.

6) 전기응집 공정은 질산성질소와 불소의 제거에 효과적이었으나 금속 이온이 물속에 용해되어 무기이온들과 응집되어 발생하는 슬러지를 처리해야만 하는 단점이 있다. 따라서 슬러지 제거를 위한 추가공정에 관한 연구가 필요하다. 이러한 단점을 보완할 수 있는 공정으로 완성이 된다면 소규모 수도시설에 적합한 정수처리 공정으로 평가받을 수 있을 것으로 판단된다.

감사의 글

이 논문은 2010년도 호서대학교의 재원으로 학술연구비 지원을 받아 수행된 연구임 (과제번호: 2009-0687)

참고문헌

강광남, 김인환, 윤용수 (2000) “전기분해를 이용한 불소제거”, *대한위생학회지*, **15**(2), pp.41~48,

김홍태, 김경호 (2007) “소규모수도시설의 효율적 개선방안에 관한 연구”, *한국수처리학회지*, **15**(4), pp. 65-76

심주현, 강세한, 서형준 (2008) “전기화학적공정에서 질산성질소 제거효율 향상에 관한 연구”, *대한환경공학회지*, **30**(2), pp. 155-160

하지영, 박정훈, 우성훈, 박승조 (2007) “입자상 알루미늄 충전복극전해조에 의한 불소제거”, *대한환경공학회지*, **29**(6), pp. 684-688

한무영, 송재민, 박상철 (2004) “정수처리에서 전기응집과 화학응집의 처리효율 비교”, *상하수도학회지*, **18**(5), pp.689-695

환경부 (2008(1)), 08년 상반기 민관합동 수질검사결과

환경부 (2009), 09년 하반기 민관합동 수질검사결과

환경부 (2008(2)), 먹는 물 법정수질검사 결과

환경부 (2008(3)), 소규모수도시설 개량사업 추진

상하수도학회지, 논문
25권 5호, pp.767-775, 10월, 2011

APHA, AWWA, WEF (1995) *Standard method for the examination of water and wastewater*, 19th edition

Emamjomeh Mohammad. M., Muttucumaru. Sivakumar (2009) "Review of pollutants removed by electrocoagulation and electrocoagulation/flota tion processes", Journal of Environmental Management, **90**(5), pp. 1663-1679

Ghosh D., C.R. Medhia, M.K. Purkait (2008) "Treatment of fluoride containing drinking water by electrocoagulation using monopolar and bipolar electrode connections", *Chemosphere*, **73**(9), pp. 1393-1400

Golder A.K., A.N. Samanta, S. Ray (2007) "Removal of Cr^{3+} by electrocoagulation with multiple electrodes: Bipolar and monopolar configurations", *Journal of Hazardous Materials*, **141**(3), pp.653-661

Idil Arslan-Alaton, Iş ı k Kabdaşl ı , Deniz Hanbaba, Elif Kuybu (2008) "Electrocoagulation of a real reactive dyebath effluent using aluminum and stainless steel electrodes", *Journal of Hazardous Materials*, **150**(1), pp.166-173

İrdemez Şahset, Nuhi Demircioğlu, Yal ı n Şevki Y ı ld ı z, Z leyha Bing l (2006) "The effects of current density and phosphate concentration on phosphate removal from wastewater by electrocoagulation using aluminum and iron plate electrodes", *Separation and Purification Technology*, **52**(2), pp.218-223

Jiang Jia-Qian, Nigel Graham, Cecile Andr , Geoff H. Kelsall, Nigel Brandon (2002) "Laboratory study of electro-coagulation-flotation for water treatment", W*ater Research*, **36**(16), pp.4064-4078

Mouedhen G., M. Feki, M. De Petris Wery, H.F. Ayedi (2008) "Behavior of aluminum electrodes in electrocoagulation process", *Journal of Hazardous Materials*, **150**(1), 124-135

Un Umran Tezcan, A. Savas Koparal, Ulker Bakir Ogutveren (2009) "Electrocoagulation of vegetable oil refinery wastewater using aluminum electrodes", *Journal of Environmental Management*, **90**(1), pp.428-433

Zuo Qianha, Xueming Chena, Wei Lia, Guohua Chen, (2008) "Combined electrocoagulation and electroflotation for removal of fluoride from drinking water", *Journal of Hazardous Materials*, **159**(2-3), pp. 452-457