Journal of the Korea Academia-Industrial cooperation Society
Vol. 12, No. 6 pp. 2904-2912, 2011

DOI : 10.5762/KAIS.2011.12.6.2904

소규모 급수 시설의 불소 및 질산성질소 이온 제거를 위한 탄소나노튜브 전극을 활용한 전기흡착 연구

한송희[1], 장인성[2*], 채기웅[3], 정선용[4], 이철구[4]
[1]호서대학교 대학원 BK21 반도체디스플레이공학과, [2]호서대학교 환경공학과,
[3]호서대학교 신소재공학과, [4](주)금강엔지니어링

Fluoride and nitrate removal in the decentralized water treatment plants by electroadsorption using carbon nano-tube electrodes

Song-Hee Han[1], In-Soung Chang[2*], Ki-Woong Chae[3], Seun-Young Joung[4] and Cheol-Ku Lee[4]

[1]**Department of Semiconductor & Display Engineering, Graduate School of BK21, Hoseo University**
[2]**Department of Environmental Engineering, Hoseo University**
[3]**Department of Materials Science & Engineering, Hoseo University**
[4]**KumKang Engineering Corporation**

요 약 본 연구에서는 소규모 수도시설에서 수질기준을 자주 초과하는 항목으로 지적되고 있는 불소와 질산성질소를 효과적으로 제거하기 위하여, 탄소나노튜브를 이용한 전극을 제작하여 전기흡착 공정에 적용함으로써 두 종류의 무기이온 제거 가능성을 평가하였다. 탄소나노튜브를 활용한 전극을 제작하기 위해 코팅 (coating)법과 소결(sintering)법을 이용하여 전극을 제작하였다. 코팅전극은 바인더의 종류, 소결전극은 소결온도를 변화시켜 각각의 전극을 제작하였다. 제작된 전극을 이용하여 전류밀도 및 반응시간 등을 변화시켜가며 전기흡착 실험을 진행한 결과 유기바인더를 이용해 제작된 전극의 이온제거율은 불소 46%, 질산성질소 99.9%로 무기바인더를 이용하여 제작된 전극보다 제거효율이 우수하였다. 또한 소결하여 제작된 탄소나노튜브 중 1000℃ 고온에서 제작한 전극은 불소 77%, 질산성질소 87%의 제거율을 보여 850℃ 저온에서 제작한 전극보다 더 높은 제거효율을 보임을 확인하였다. 적당한 전류밀도 및 반응시간 하에서 모두 먹는 물 수질 기준에 적합한 농도로 처리될 수 있음을 보임으로써, 탄소나노튜브를 활용하여 제작한 전극을 채택한 전기흡착 공정이 소규모 수도시설에 적합한 공정으로 평가받을 수 있을 것으로 판단된다.

Abstract Water qualities in the decentralized water treatment plants do not frequently satisfy the water standard limit, in particular, fluoride and nitrate are notorious for the poor removal. In this study, an electro-adsorption equipped with carbon nonotube (CNT) electrodes were carried out to effectively remove the nitrate and fluoride in the decentralized water treatment plants. Two types of CNT electrodes, coating and sintering electrodes were applied. Coating electrodes were made based on different kinds of binder and sintering electrodes were made based on different sintering temperature. Removal of fluoride and nitrate when the coated electrodes with organic binder were used for electro-adsorption were 46 and 99.9% respectively, which were better performances than the coated electrodes with inorganic binder were used. On the other hand, removal of fluoride and nitrate when the electrodes sintered at higher temperature (1,000℃) were 77 and 87% respectively, which were better performances than the electrodes sintered at lower temperature (850℃). As a consequences, the electro-adsorption equipped with a CNT electrodes could be an potential alternative process for the removal of fluoride and nitrate in a decentralized water treatment plants if proper current density and contact time were applied.

Key Words : Decentralized water treatment plants, Electroadsorption, Carbon Nano-Tube, Fluoride, Nitrate

본 연구는 교육과학기술부와 한국산업기술진흥원의 지역혁신인력양성사업으로 수행된 연구결과임.
*교신저자 : 장인성(cis@hoseo.edu)
접수일 11년 04월 26일 수정일 11년 06월 08일 게재확정일 11년 06월 09일

1. 서론

상수를 공급하는 방법은 광역상수도와 소규모 수도시설 두 가지로 구분할 수 있다. 광역 상수도의 경우에는 수자원공사, 지자체 및 지방상수도 사업자들에 의해 비교적 체계적으로 관리되어 큰 문제가 없으나, 소규모 수도시설의 경우에는 마을의 대표자 등 전문능력을 갖춘 관리자가 아닌 이들에 의해 관리되는 경우가 빈번하여 유지 관리의 어려움 및 양호하지 않은 수질 문제가 자주 제기되고 있다[1].

이러한 소규모 급수시설의 경우 특히 취수원으로 지하수나 계곡수를 이용하여 여과나 염소소독만 거쳐 음용수로 이용함에 따라 중금속 및 무기이온 등 각종 오염물질이 효과적으로 제거되지 않아 이를 사용하는 주민들이 불편함을 겪고 있는 실정이다. 환경부의 2008년 먹는 물 법정수질검사 실시 결과 약 2500건 정도가 기준을 초과하였으며 그 중 대부분이 마을 상수도 및 소규모 급수시설인 것으로 나타났다. 초과 항목으로는 질산성질소, 일반세균, 총대장균, 탁도, 불소 등이 있으며 무기이온 중 특히 질산성질소와 불소에 따른 오염이 심각한 것으로 나타났다 [2].

이러한 문제점을 해결하기 위한 방안으로 오존처리 [3], 막여과 [4,5], 활성탄흡착, 이온교환수지 [6] 등 다양한 고도정수처리 기술이 소규모 급수시설에 적용되고 있으나 실질적으로는 경제적 측면에서 볼 때 여러 가지 한계점을 지니고 있다.

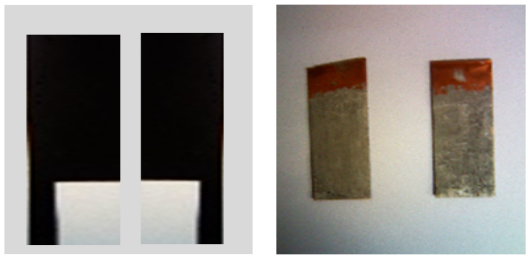
최근 수중의 이온성 물질을 제거하기 위해 전기화학적인 공정을 수처리에 적용하는 연구가 활발히 진행되고 있다[7-11]. 그 중에서 전기흡착 (Electrosorption)은 이온성 물질을 전극 표면 에 흡착하여 제거하는 공정으로 낮은 전위에서 운전이 가능하며, 흡착 전극의 극성을 단순히 변경하여 탈착 전극으로 작용하게 하는 것이 가능하여 에너지 소비가 적은 장점을 지니고 있다. 전기흡착 기술에서 가장 중요한 요소는 전극의 특성이다. 효율적인 전극이 지녀야 할 조건으로는 높은 전기전도도와 큰 비표면적을 지녀야 한다. 수처리에 사용되는 보편적인 전기흡착용 전극으로는 다공성 탄소전극[12], 탄소에어로젤 [13,14] 등 다양한 탄소계 전극이 활용되고 있다.

따라서 본 연구에서는 전기전도도와 비표면적이 높은 탄소나노튜브 (Carbon nano Tube, 이하 CNT)를 사용한 전기흡착용 전극을 제작하여 소규모 수처리 시설의 핵심 공정으로 응용하고자 하였다. 결국 제작된 CNT 활용전극을 이용한 전기흡착 공정을 적용하여 음용수 기준을 초과하는 무기이온 중 불소와 질산성질소를 효과적으로 제거할 수 있는지 그 가능성을 타진해 보는 것이 본 연구의 목적이라 할 수 있다.

2. 실험재료 및 방법

2.1 탄소나노튜브(CNT) 전극 제작

전기흡착용 전극에 코팅할 CNT는 다중벽탄소나노튜브 (Multiwall CNT, 이하 MWCNT, diameter~20㎚, length~10㎛, 카본나노텍, 한국) 또는 Cu-CNT composite (Cu-MWCNT, 10 wt%, 카본나노텍, 한국) 복합체를 이용하였으며 코팅전극의 기판으로 티타늄 (Ti)과 구리 (Cu)를 사용하였다. 탄소나노튜브 전극의 제작은 크게 코팅과 소결 두 가지 방법을 이용하였다. 코팅전극은 전극의 안정성 및 무기이온 제거효율을 알아보기 위하여 유/무기 바인더를 사용하여 탄소나노튜브 코팅 전극을 제작하였다. 즉, 고분자 유기바인더를 탄소나노튜브와 혼합하여 티타늄 전극판에 코팅하여 전극을 제작하였다. 전극의 크기는 폭 7.5cm, 길이 26.5cm이었다.

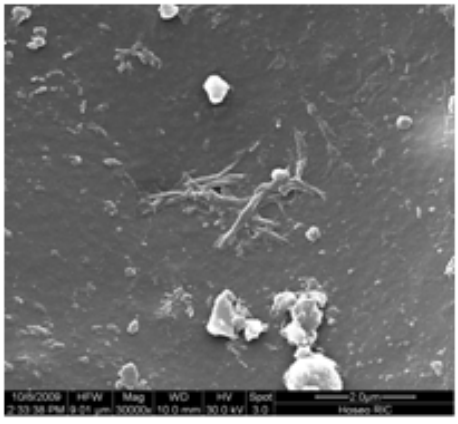


(a) (b)

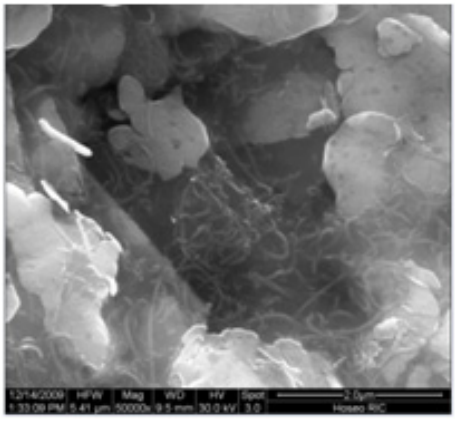
[그림 1] 탄소나노튜브(CNT) 코팅전극 사진 (a) Ti/CNT+유기바인더 (b) Cu/CNT+무기바인더

[Fig. 1] Pictures of the coated electrodes, (a) Ti/CNT+ organic binder (b) Cu/CNT+ inorganic binder

또한 구리판에 탄소나노튜브와 무기바인더인 은 (Ag)을 혼합하여 한쪽 면은 탄소나노튜브와 은을 혼합한 물질로 코팅하고 반대쪽은 전류가 통하지 못하도록 유기접착제를 코팅하여 구리에 의한 전도성 영향을 최소화하여 제작하였다. 전극의 크기는 폭 2.5cm, 길이 7cm이며 이상에서 설명한 코팅 방법으로 제작된 전극의 사진을 그림 1에 제시하였다.



(a)



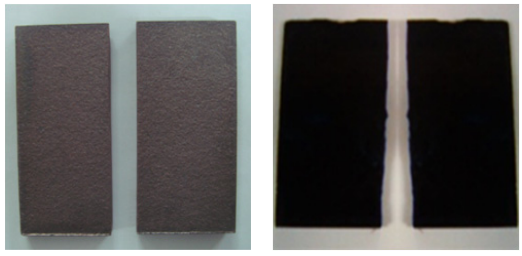
(b)

[그림 2] 탄소나노튜브(CNT) SEM 사진 (a) Ti/CNT+유기 바인더 (b) Cu/CNT+무기바인더

[Fig. 2] SEM images of the coated electrodes (a) Ti/CNT+ organic binder (b) Cu/CNT+ inorganic binder

그림 2는 각 전극의 SEM 사진으로 가는 실 모양으로 보이는 것이 탄소나노튜브이다. 그림 2(a)는 롤링 방법으로 제작한 것으로 전극의 표면으로 노출된 탄소나노튜브가 관찰된다. 그림 2(b)의 경우 바인더가 탄소나노튜브를 감싸고 있는 형태를 보이고 있다. 이를 통해 각각의 방법으로 제작된 전극에 탄소나노튜브가 코팅된 형태는 다르나 바인더의 종류와 상관없이 탄소나노튜브가 효과적으로 코팅된 전극이 제작된 것으로 판단된다.

한편, 소결 방법을 이용하여 제작한 전극은 소결 온도에 따른 전극의 내구성을 평가하기 위해 모든 제작 조건은 동일하게 하고 소결온도만을 다르게 하여 제작하였다. 소결 전극의 경우 탄소나노튜브만을 이용하여 전극을 제작할 시 무르게 소결되어 부서지는 현상이 발생함에 따라 이러한 문제점을 보완하고자 탄소나노튜브 10Wt%가 함유된 Cu-MWCNT Composite을 이용하여 전극을 소결 제작하였다. 소결조건은 20Mpa, 2시간 동안 850℃와 1000℃에서 소결하였으며, 전극의 크기는 폭 2.5cm 길이 5cm로 제작하였다. 소결하여 제작된 전극의 사진을 그림 3에 나타내었다. 그림 3(a)는 약간 갈색을 띄는 반면, 3(b)의 전극은 검은 색을 보이는 것을 알 수 있다. 또한 그림 3(a)의 전극은 그림 3(b)의 전극보다 더 단단한 특징을 지니고 있었다. 이는 850℃와 비교하여 1000℃에서 소결된 전극은 더 높은 온도에서 제작됨에 따라 소결되는 동안 Cu-MW CNT Composite에 함유된 구리가 용출되어 탄소나노튜브의 함량이 더 높아지고 그에 따라 850℃에서 제작한 전극보다 더 어두운색으로 보이게 되고 무른 성질을 나타내는 것으로 판단된다.

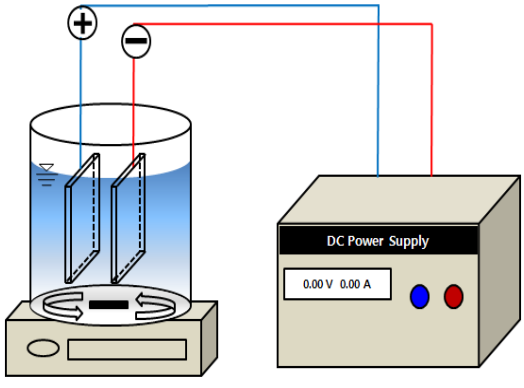


(a) (b)

[그림 3] 탄소나노튜브(CNT) 소결 전극
(a) 소결온도 850℃ (b) 소결온도 1000℃

[Fig. 3] Pictures of the sintered electrodes
(a) sintering temperature at 850℃
(b) sintering temperature at 1000℃

2.2 전기흡착 실험장치



[그림 4] 전기흡착 실험 장치의 개략도

[Fig. 4] Schematic of the electroadsorption apparatus

전기흡착 실험에 사용된 장치 그림 4는 직류전원 공급

장치 (DC power supply, PAP-3030 파워트론, 한국), 흡착 반응조, 전극, 교반장치로 구성되었다. 직류전원 공급 장치는 최대전압 30V, 최대전류 30A까지 조절 가능하였으며, 흡착 반응조는 아크릴을 이용하여 14.5cm(W) × 9cm(L) × 22cm(H)의 크기로 제작하였다. 실용적은 1.5L 이었고, 상부에 전극이 고정될 수 있도록 0.5cm 간격의 홈을 만들어 제작하였다. 작은 크기로 제작된 전극을 사용하여 흡착 실험을 할 때에는 200ml 비이커를 이용하여 상부에서 전극 간격을 고정시킬 수 있도록 만들어 전극을 침지하여 사용하였다. 전극은 i) 탄소나노튜브와 유기바인더를 혼합하여 티타늄판에 코팅한 전극, ii) 탄소나노튜브와 무기바인더를 혼합하여 구리판에 코팅한 전극, iii) Cu-CNT composite을 이용하여 1000℃에서 소결한 전극, iv) 850℃에서 소결한 전극 이렇게 총 4가지 전극을 이용하여 실험을 수행하였다.

2.3 실험방법 및 분석

제작된 탄소나노튜브 전극의 무기이온 제거 능력을 평가하기 위하여 불소와 질산성질소의 제거효율을 파악하였다. 또한 반응시간에 따라 pH를 측정하였다. 시료는 NaF, $NaNO_3$를 이용하여 초기 불소(F^-)의 농도 2.3～14mg/L, 질산성질소 (NO_3^-)의 농도는 0.2～17mg/L로 제조한 인공시료와 A시에 소재한 소규모 수도시설의 원수를 취수하여 각각 시료로 사용하였다.

불소와 질산성질소에 대한 전기흡착의 최적운전조건을 파악하기 위하여 전류밀도를 고정시키거나 변화시켜가며 실험을 진행하였다. 반응시간은 0～60분으로 하여 초기농도와 전기흡착 후 시료를 분취하여 불소와 질산성질소의 농도를 비교하였다. 각 실험의 운전조건을 요약하여 표 1에 나타내었다.

[표 1] 전기흡착 운전조건
[Table 1] Operating conditions of the electroadsorption

Operating condition		
parameters	Unit	Value
Working volume	mL	200～1000
Initial concentration of NO_3^-	mg/L	0.2～17
Initial concentration of F^-	mg/L	2.3～14
Number of electrodes	ea	2～10
Distance between electrodes	cm	0.5～0.8
Current density	A/cm^2	5×10^{-4}～1×10^{-2}
Contact time	min	0～60

각 항목의 분석 방법과 사용된 분석기기를 표 2에 정리하였다.[15] pH는 pH meter (HQ 11d, HACH)를 이용하였으며 불소와 질산성질소는 Standard Method (APHA, 1995)에 준하여 측정하였다.

[표 2] 분석 방법 및 장치
[Table 2] Analytical methods and instruments

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)
pH	pH Meter (HQ 11d, HACH)

3. 결과 및 고찰

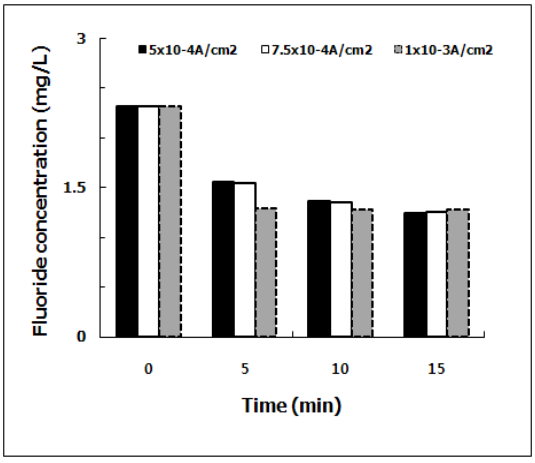
3.1 탄소나노튜브 코팅전극의 전기흡착 효율

유기바인더를 이용하여 제작한 전극을 이용하여 전기흡착 시 불소와 질산성질소의 제거효율에 미치는 영향을 살펴보기 위해 초기 불소농도 2.3mg/L, 질산성질소 농도 0.2mg/L의 소규모 수도시설의 원수를 취수하여 전극개수 10개, 전극간격 0.8cm의 조건에서 전류밀도를 5×10^{-4}, 7.5×10^{-4}, 1×10^{-3}A/cm^2 로 변화시켜가며 불소와 질산성질소의 제거효율과 전류밀도의 상관관계를 살펴보았다.

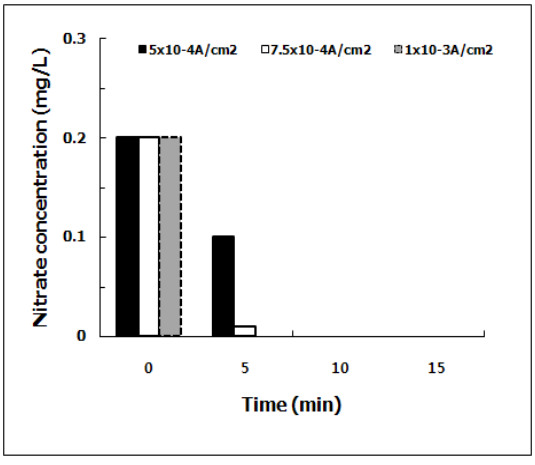
그림 5는 전류밀도의 변화와 반응시간에 따른 불소와 질산성질소의 농도변화를 나타내었다. 그림 5(a)는 불소의 농도변화를 나타낸 것으로 전류밀도 5×10^{-4}A/cm^2 에서 5분 후 1.5mg/L, 15분 후 1.24mg/L로 나타났으며, 전류밀도 7.5×10^{-4}A/cm^{2}에서는 5분과 15분 후에 각각 1.5mg/L, 1.26mg/L이었으며, 전류밀도1×10^{-3}A/cm^{2}에서는 1.2mg/L, 1.27mg/L의 농도로 감소함으로써 반응시간 5분과 15분 사이에서는 불소의 농도변화가 최대 0.25mg/L로 크지 않음을 알 수 있다. 전류밀도가 농도변화에 미치는 영향을 살펴보면 반응시간 5분과 15분 후 5×10^{-4}, 7.5×10^{-4}A/cm^{2}의 전류밀도에서 불소의 제거율은 33～46%의 범위에 있는 반면, 1×10^{-3} A/cm^{2}에서는 44～45%로 전류밀도에 따른 불소의 제거효율은 큰 차이를 보이지 않는 것으로 나타났다. 즉, MWCNT를 유기바인더로 코팅한 전극의 경우, 반응초기에 대부분의 불소이온이 제거되며 제거효율은 전류밀도와 반응시간에 큰 영향을 받지 않는 것으로 나타났다.

그림 5(b)는 질산성질소의 농도변화를 나타낸 것으로

전류밀도 5×10^{-4}A/cm^{2}에서 5분 후 0.1mg/L로 50%의 제거효율을 나타내었고, 7.5×10^{-4} ~ 1×10^{-3}A/cm^2 로 인가된 전류밀도에서는 5분 후 99.9%의 제거효율을 보였다. 반응시간 10분 후에는 인가된 모든 전류밀도에서 질산성질소 99.9%의 제거효율을 보였다. 질산성질소 또한 불소와 마찬가지로 높은 전류밀도를 인가 시 반응시간에 따른 영향이 크지 않았으며, 대부분 초기에 무기이온이 제거되는 것을 알 수 있었다. 따라서 반응시간과 전류밀도의 상관관계를 통해 경제적인 측면을 고려하여 최적의 운전조건을 모색하여야 할 것으로 판단된다.



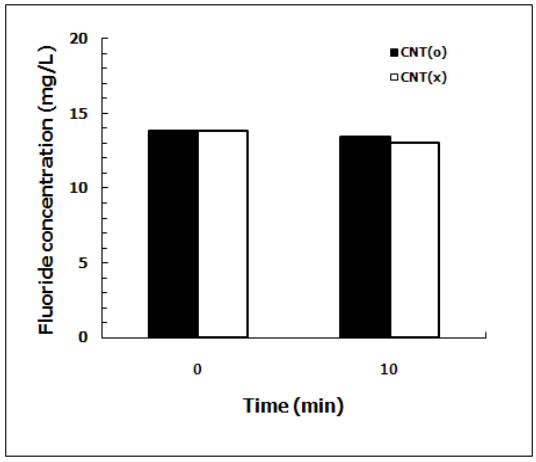
(a)



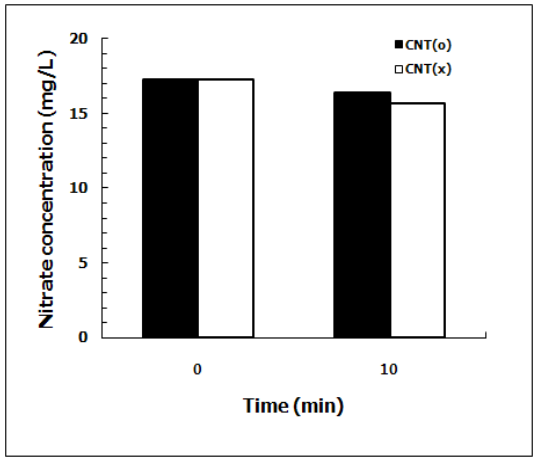
(b)

[그림 5] 탄소나노튜브(CNT) + 유기바인더 코팅전극의 전류밀도와 반응시간에 따른 전기흡착
(a) 불소의 농도변화 (b) 질산성질소의 농도변화

[Fig. 5] Variation of the fluoride (a) and nitrate (b) concentration as a function of current density and contact time with CNT + organic binder coated electrodes



(a)



(b)

[그림 6] 탄소나노튜브(CNT) + 무기바인더 코팅전극의 반응시간에 따른 전기흡착 (a) 탄소나노튜브 유/무에 따른 불소의 농도변화 (b) 탄소나노튜브 유/무에 따른 질산성질소의 농도변화

[Fig. 6] Variation of the fluoride (a) and nitrate (b) concentration as a function of contact time with and without CNT + inorganic binder coated electrodes

무기바인더를 이용하여 제작된 전극의 전기흡착 후 불소와 질산성질소의 농도변화는 그림 6과 같다. 탄소나노튜브를 첨가한 전극과 첨가하지 않은 대조전극으로 나누어 불소와 질산성질소의 농도변화를 비교하였다. 전극개수 2개, 전류밀도는 7.4×10^{-3}A/cm^{2}으로 고정하여 실험을 진행하였다. 그림 6(a)를 살펴보면 탄소나노튜브가 첨가된 전극의 경우, 불소의 초기농도 14mg/L에서 반응시간 10분 후에는 13.4mg/L로 감소하였으며, 대조전극은

14mg/L에서 반응시간 10분 후에 13mg/L로 감소하였다. 탄소나노튜브 첨가전극과 대조전극 모두 흡착효과가 거의 없는 것을 알 수 있다. 그림 6(b)의 질산성질소는 초기농도 17mg/L에서 탄소나노튜브 첨가전극의 경우 10분 후에 16.4mg/L로 감소하였으며, 대조 전극은 15.7mg/L로 감소하였다.

탄소나노튜브의 첨가 유/무에 따라 불소와 질산성질소 제거효율에 미치는 영향을 살펴보려 하였으나 불소와 질산성질소 모두 큰 농도 변화가 나타나지 않았다. 이를 통해 무기 바인더를 이용하여 탄소나노튜브 전극을 제작할 경우 불소와 질산성질소의 흡착 효과를 기대하기는 어려운 것으로 판단된다.

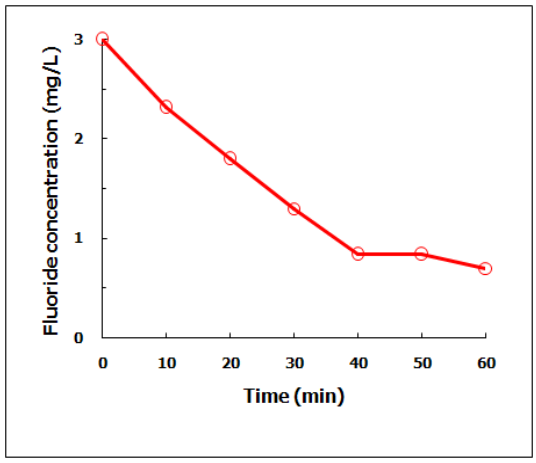
3.2 탄소노나튜브 소결전극의 전기흡착 효율

Cu-MWCNT 복합체를 이용하여 850, 1000℃에서 소결하여 제작한 전극의 전기흡착 효과를 살펴보기 위하여 전극개수 2개, 전류밀도 1×10^{-2}A/cm^2, 불소의 초기농도 3mg/L 질산성질소의 초기농도17mg/L의 인공시료를 이용하였다.

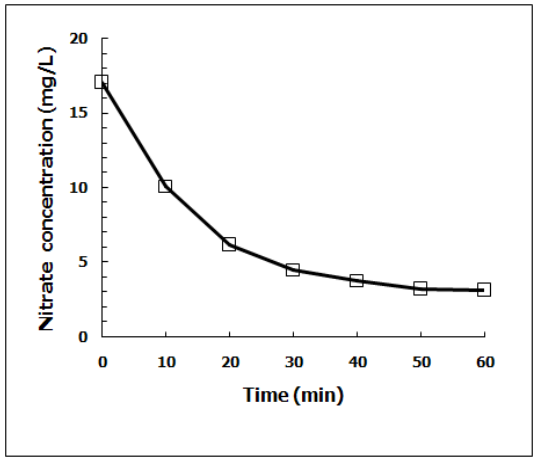
그림 7은 1000℃에서 소결한 전극을 이용한 흡착실험 결과로서 불소와 질산성질소의 농도변화를 나타내었다.

그림 7(a)는 1000℃로 소결한 전극의 60분간 불소농도의 변화를 나타내었다. 불소의 초기농도 3mg/L에서 반응시간 10, 20, 30, 40, 50, 60분 후 각각 2.3, 1.8, 1.3, 0.84, 0.84 0.7mg/L로 감소하였다. 반응시간 40분 까지는 큰 폭으로 불소의 농도가 감소하였으나 그 이후에는 전기흡착을 지속하여도 농도변화가 크지 않음을 알 수 있었다. 따라서 본 연구의 실험조건 하에 불소를 효과적으로 제거할 수 있는 최적의 반응시간은 40분인 것을 알 수 있었으며 제거효율은 72%로 나타났다.

그림 7(b)는 1000℃의 소결온도에서 제작한 전극을 이용하여 반응시간 60분간 질산성질소의 농도변화를 나타낸 것으로 초기농도 17mg/L에서 반응시간 10분 후 10mg/L, 30분 후 4.5mg/L, 60분 후에는 3.1 mg/L로 나타났다. 질산성질소의 경우에는 반응시간 30분 까지는 큰 폭으로 감소하였으나 그 이후에는 변화 폭이 크지 않았다. 30~60분 사이의 반응시간에 따른 제거효율을 살펴보면 각각 74, 78, 81, 82%로 반응시간 50분 과 60분 사이의 제거효율의 차이는 미미하였다. 따라서 1000℃ 소결전극은 불소와 질산성질소 모두 높은 제거효율을 나타내었으며 본 연구의 실험조건 하에서 질산성질소를 수질기준 이하로 제거하기 위한 최적 운전조건은 반응시간 50분 전 후인 것으로 판단된다.



(a)



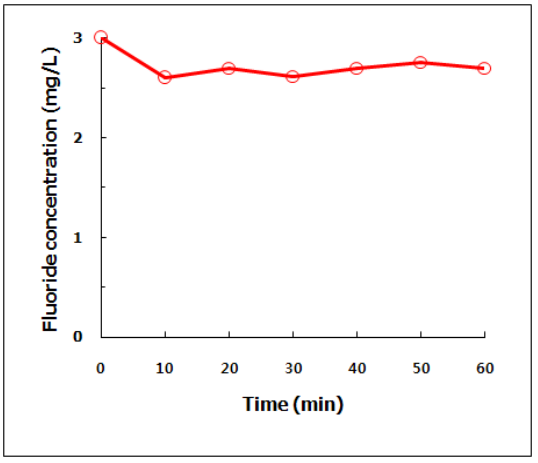
(b)

[그림 7] 탄소나노튜브(CNT) 1000℃ 소결전극의 전기흡착 (a) 불소의 농도변화 (b) 질산성질소의 농도변화

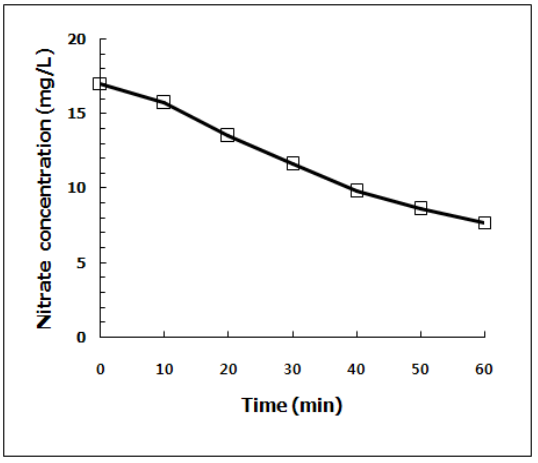
[Fig. 7] Variation of the fluoride (a) and nitrate (b) concentration as a function of contact time with the CNT electrodes sintered at 1000℃

그림 8은 850℃로 소결한 전극의 불소와 질산성질소의 농도변화를 나타낸 것으로 전기흡착 실험조건은 1000℃로 소결한 전극의 실험조건과 동일하다. 불소는 초기농도 3mg/L에서 반응시간 10분 후 2.6mg/L로 감소함으로써 13%의 제거효율을 나타내었고, 반응시간 60분 후 2.7mg/L로 10%의 제거효율을 나타내었다. 그림 8(a)에서 보는 바와 같이 반응시간이 계속 증가하여도 반응시간 10분에서의 농도와 큰 차이를 보이지 않는다. 따라서 850℃의 소결전극의 경우 반응시간에 관계없이 불소의 제거효율이 높지 않음을 알 수 있었다.

그림 8(b)는 850℃ 소결전극의 질산성질소 농도변화를 나타낸 것으로, 초기 17mg/L에서 10분 후 15.7mg/L, 30분 후 11.6mg/L, 60분 후 7.7mg/L로 최종 반응시간 후 질산성질소의 제거효율은 55%로 나타났다. 불소와는 달리 질산성질소의 경우에는 1000℃에서 소결한 전극과 마찬가지로 반응시간이 증가함에 따라 농도가 비교적 크게 감소하였다. 이를 통해 850℃에서 소결한 탄소나노튜브 전극은 불소의 제거효율은 크지 않으나 질산성질소의 경우에는 높은 제거효율을 나타내는 것으로 나타났다.



(a)



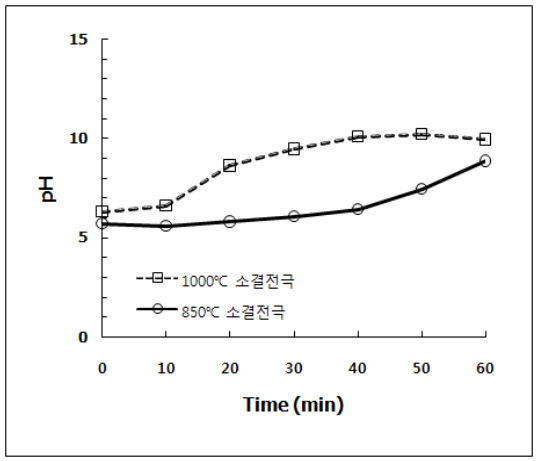
(b)

[그림 8] 탄소나노튜브(CNT) 850℃ 소결전극의 전기흡착 (a) 불소의 농도변화 (b) 질산성질소의 농도변화

[Fig. 8] Variation of the fluoride (a) and nitrate (b) concentration as a function of contact time with the CNT electrodes sintered at 850℃

3.3 탄소나노튜브 소결전극의 pH변화

전기흡착 반응이 일어나는 동안의 pH 변화는 그림 9와 같다.



[그림 9] 탄소나노튜브 소결전극의 pH 변화

[Fig. 9] pH variation during the electroadsorption with the CNT sintered electrodes

소결 온도 1000, 850℃로 나누어 살펴본 결과 초기 pH 6.3, 5.7에서 반응시간 60분 후 각각 10, 8.86으로 증가하였다. 즉 반응이 진행됨에 따라 두 전극 모두 pH가 증가하는 경향을 나타내었다. 한편 전기흡착 실험이 진행되는 동안 음극에서 기체가 발생되는 것이 관찰되었다. 이는 전기흡착과 동시에 물의 전기분해 반응이 일어나는 것을 간접적으로 보여주는 현상으로 다음 식 (1)에서 표현한 화학반응식과 같이 전기분해 반응에 의해 수소기체가 발생됨에 따라 수산화 이온 (OH^-)이 형성되어 pH가 증가되는 것으로 판단된다.

$$2H_2O + 2e^- \rightarrow H_2 + 2OH^- \quad (1)$$

두 전극의 pH 변화 범위는 약 3~4로 소결온도에 따른 pH 변화범위는 큰 차이가 없음을 알 수 있었다. 따라서 소결온도의 변화가 전기흡착 동안 pH에 미치는 영향은 크지 않으며 다만 전기흡착과 동시에 전기분해 반응이 발생하여 수산화 이온(OH^-)의 영향으로 pH가 증가된다는 결론을 얻었다.

4. 결론

본 연구에서는 소규모 급수시설에서 문제시 되고 있는

무기이온 중 불소 및 질산성질소이온을 효과적으로 제거하기 위한 방안으로 전기흡착 공정을 이용하였다. 전기흡착에 사용되는 전극을 탄소나노튜브를 이용하여 코팅과 소결 방법 등 서로 다른 방법으로 제작된 총 4가지 전극의 흡착효과를 평가한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 탄소나노튜브와 유기바인더, 무기 바인더를 이용하여 코팅법으로 제작한 전극의 불소 제거효율은 반응시간 15분 후 각각 46, 7%로 나타났으며 질산성질소의 제거효율은 각각 99.9%, 3.5%로 나타남에 따라 유기바인더를 이용하여 제작한 전극이 더 높은 흡착효과를 나타냄을 알 수 있었다.
2) 소결온도를 1000, 850℃로 나누어 제작한 탄소나노튜브 소결전극의 불소와 질산성질소의 제거효율은 반응시간 60분 후 불소는 각각 77, 10%이었고, 질산성질소는 각각 82, 55%의 제거효율을 보임으로써 1000℃에서 제작한 소결전극이 더 높은 흡착효과를 보임을 알 수 있었다.
3) 전기흡착 공정 중 pH는 1000℃ 소결전극과 850℃ 소결전극 모두 반응시간이 증가함에 따라 상승하는 경향을 나타냈다. 이는 전기흡착과 동시에 물의 전기분해반응이 발생하여 수산화이온(OH^-)의 영향으로 pH가 증가되는 것으로 판단된다.
4) 제작된 총 4가지의 전극 중 유기바인더를 이용하여 코팅한 탄소나노튜브 전극과 1000℃의 조건에서 소결한 탄소나노튜브 전극은 인가된 전류밀도와 각각의 실험 조건하에 불소와 질산성질소 모두 먹는 물 수질기준에 적합한 농도를 보임으로써 소규모 수도시설에 적합한 에너지 저소비형 처리공정으로 평가받을 수 있을 것으로 판단된다.

References

[1] Hong-Tae Kim et al., “The study on methods for effective improvement at the small water supply system”, Journal of Korean Society of Water Science and Technology, Vol. 15, No. 4, pp. 65-76, 2007.

[2] Ministry of Environment, Test results of the drinking water quality 2008.

[3] Mohamed S. Siddiqui et al.,, “Ozone enhanced removal of natural organic matter from drinking water sources”, Water Research, Vol. 31, No. 12, pp. 3098-3106, December 1997.

[4] R.S. Harisha et al., “Arsenic removal from drinking water using thin film composite nanofiltration membrane”, Desalination, Vol. 252, No. 1-3, pp. 75-80, March 2010.

[5] Shuji Nakatsuka et al., “Drinking water treatment by using ultrafiltration hollow fiber membranes", Desalination, Vol. 106, No. 1-3, pp. 55-61, August 1996.

[6] Byung-Uk Bae et al., “Improved brine recycling during nitrate removal using ion exchange", Water Research, Vol. 36, No. 13, pp. 3330-3340, July 2002.

[7] Jae-Jun Cho et al., “Nitrogen removal by electrochemical oxidation using the tube electrode”, Journal of Korean Society of Water and Wastewater, Vol. 18, No. 5, pp. 580-587, 2004.

[8] Joo-Hyun Sim et al., “Study on the improvement of nitrate removal efficiency in multi-step electro-chemical process”, Journal of Korean Society of Environmental Engineers, Vol. 30, No. 2, pp. 155-160, 2008.

[9] Hyun-Chul Yu et al., “Electrochemical treatment of wastewater containing fluoride”, Journal of Korean Society of Environmental Engineers, Vol. 29, No 10, pp. 1126-1130, 2007.

[10] Ji-Hee Min et al., “The removal of nitrate-nitrogen from ground water by electrodialysis", Journal of Korean Society of Water and Wastewater, Vol. 22, No. 3, pp. 307-314, 2008.

[11] Limda Zou et al., “Using mesoporous carbon electrodes for brackish water desalination", Water Research, Vol. 42, No. 8-9, pp. 2340-2348, April 2008.

[12] Nam-Soo Park et al., “Fabrication and characterization of porous carbon electrode for electrosorption ", Journal of Korean Society of Environmental Engineers, Vol. 30, No. 4, pp. 409-414, 2008.

[13] Chun-Mo Yang et al., “Capacitive deionization of NaCl solution with carbon aerogel-silica gel composite electrodes", Desalination, Vol. 174, No. 2, pp. 125-133, April 2005.

[14] Baizeng Fang et al., “A modified activated carbon aerogel for high-energy storage in electric double layer capacitors", Journal of Power Sources, Vol. 163, No. 1, pp. 616-622, December 2006.

[15] APHA, AWWA, WEF, Standard method for the examination of water and wastewater, 19th edition, USA 1995.

한 송 희(Song-Hee Han) **[준회원]**

- 2009년 2월 : 호서대학교 환경공학과 (공학사)
- 2009년 2월 ~ 현재 : 호서대학교 대학원 BK21 반도체/디스플레이공학과 석사과정

<관심분야>
정수처리, 하수처리, MBR, 전기화학 활용 수처리 기술

정 선 용(Seun-Young Joung) **[정회원]**

- 2006년 2월 : 호서대학교 환경공학과 (공학박사)
- 1997년 2월 ~ 현재 : 금강엔지니어링(주) 대표이사

<관심분야>
수처리, 수질오염, 환경오염 방지시설 설계, 시공

장 인 성(In-Soung Chang) **[정회원]**

- 1990년 2월 : 서울대학교 공업화학과 (공학사)
- 1992년 2월 : 서울대학교 공업화학과 (공학석사)
- 1996년 2월 : 서울대학교 공업화학과 (공학박사)
- 1997년 2월 ~ 현재 : 호서대학교 환경공학과 교수

<관심분야>
수처리, 수질오염, 분리막 기술, MBR, 청정기술,
반도체 관련 공정기술 및 반도체산업 폐수처리

이 철 구(Chul-Ku Lee) **[정회원]**

- 1998년 2월 : 건국대학교 환경공학과 (공학사)
- 2009년 2월 : 호서대학교 환경공학과 (공학석사)
- 1998년 2월 ~ 현재 : 금강엔지니어링(주) 환경연구소 차장

<관심분야>
하, 폐수처리, 오수처리 전기분해 이용 수처리 기술

채 기 웅(Ki-Woong Chae) **[정회원]**

- 1987년 2월 : 서울대학교 무기재료공학과 (공학사)
- 1989년 2월 : 서울대학교 무기재료공학과 (공학석사)
- 1993년 8월 : 서울대학교 무기재료공학과 (공학박사)
- 1995년 2월 ~ 현재 : 호서대학교 신소재공학과 교수

<관심분야>
세라믹 나노복합재료, 미세조직제어, 표면처리, 경질박막
재료 합성 및 응용