

» 研究論文 «

## 人工제오라이트를 利用한 쓰레기 埋立地 侵出水 處理

이정환\* · 김동수\* · 이성오 · 신방섭

\*광주시 보건환경연구원 폐기물분석과

전남대학교 공과대학 자원공학과

## Treatment of Municipal Landfill Leachates Using Artificial Zeolite

Jeong-Hwan Lee\*, Dong-Soo Kim\*, Sung-Oh Lee and Bang-Sup Shin

\*Wasters Disposal Analysis Section, Kwangjucity Public Health and Envir Research Inst

Department of Mineral and Energy Engineering, Chonnam National University

### 요 약

국내 화력발전소에서 발생되는 석탄회를 물리·화학적인 방법으로 인공제오라이트를 제조하여 이를 합착제로 활용함으로써 환경오염을 방지함과 동시에 자원으로 재활용되어질 수 있다. 본 연구는 이렇게 제조된 인공제오라이트, 활성탄 및 인공제오라이트와 활성탄을 1:1로 혼합한 것을 흡착제로 이용하여 쓰레기 침출수중  $\text{NH}_4^+ \text{-N}$  및 중금속에 대한 흡착 제거율을 비교 분석하였다. 실험결과 3g/200ml, pH 6.4, 접촉시간 30분의 조건 하에서 인공제오라이트의 경우  $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 는 50% 이상 제거되었으며,  $\text{Cu}(\text{II})$ 와  $\text{Cr}(\text{VI})$ 을 제외한  $\text{Mn}(\text{II})$ ,  $\text{Zn}(\text{II})$ ,  $\text{Cd}(\text{II})$ ,  $\text{Pb}(\text{II})$  등의 중금속은 각각 85%, 95%, 95%, 96%의 제거율을 나타냈다. 또 활성탄의 경우  $\text{Cu}(\text{II})$ ,  $\text{Zn}(\text{II})$ ,  $\text{Pb}(\text{II})$ ,  $\text{Cr}(\text{VI})$ ,  $\text{Cd}(\text{II})$ ,  $\text{Mn}(\text{II})$  등의 제거율은 각각 97%, 83%, 81%, 76%, 61%, 51%로 나타났다. 인공제오라이트와 활성탄을 1:1로 혼합하여 최적의 흡착조건으로 흡착제거한 실험결과와 비교할 때 인공제오라이트만을 이용한 경우의  $\text{Cr}(\text{VI})$ 과  $\text{Cu}(\text{II})$ 의 제거율이 각각 24%, 52%였던 것이 혼합사용하였을 때 그 값이 각각 55%, 93%로 증가하였고, 그외 다른 중금속들은 80% 이상의 제거율을 나타냈다.

### ABSTRACT

Artificial zeolite was produced by physical and chemical methods from the coal fly ash which was generated from domestic power plants, and could be used as adsorbents to prevent environmental pollution. In this study, artificial zeolite activated carbon, and 1:1 mixture of artificial zeolite and activated carbon were used as adsorbents, and their adsorption removal rates of  $\text{NH}_4^+ \text{-N}$  and heavy metal ions from municipal landfill leachates were analyzed. Each of adsorbents(3g/200ml) was exposed to the test material for 30 min. at pH 6.4. The artificial zeolite was removed for more than 50% of  $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ . The removal of heavy metal ions was as follows: 85% of  $\text{Mn}(\text{II})$ , 95% of  $\text{Zn}(\text{II})$ , 95% of  $\text{Cd}(\text{II})$  and 96% of  $\text{Pb}(\text{II})$ , except  $\text{Cu}(\text{II})$  and  $\text{Cr}(\text{VI})$ . The activated carbon was removed of heavy metal ions as follows: 97% of  $\text{Cu}(\text{II})$ , 83% of  $\text{Zn}(\text{II})$ , 81% of  $\text{Pb}(\text{II})$ , 76% of  $\text{Cr}(\text{VI})$ , 61% of  $\text{Cd}(\text{II})$ , and 51% of  $\text{Mn}(\text{II})$ . 1:1 mixture of artificial zeolite and activated carbon showed optimistic adsorption 55% of  $\text{Cr}(\text{VI})$  and 93% of  $\text{Cu}(\text{II})$  were removed to 24% and 52%, respectively. More than 80% of the other heavy metal ions were removed.

## 1. 서론

최근 급속한 경제성장과 이에 따른 주거 형태의 도시화 및 소비형태의 변화와 상품의 수명 단축화로 인하여 많은 양의 폐기물이 발생하고 있으나, 이에 대응하는 처리시설의 부족과 기존 처리 시설의 관리 미흡으로 각종 환경오염문제가 발생하고 있다. 또한 폐기물 처리시설에 대한 잘못된 인식으로 인하여 새로운 처리시설의 확충 및 건설은 소위 NIMBY 현상에 의한 지역 주민의 반대여론과 과다한 재정적 부담 등으로 문제를 안고 있어 폐기물 처리는 사회적인 큰 문제로 제기되고 있는 실정이다.

현재 매립이 진행되는 쓰레기 매립장 뿐만 아니라 특히 기존에 매립이 완료된 쓰레기 매립장에서는 강우, 지하수, 쓰레기의 자체 분해수 등에 의해서 침출수가 발생하게 된다. 일반적으로 쓰레기 매립장에서 발생하는 침출수는 유기물의 농도가 대단히 높을 뿐만 아니라 특히, 암모니아성 질소 및 질산성 질소가 많이 함유되어 있으며, 중금속이온 성분함량은 특정 성분을 제외하고는 대체로 낮은 함유량을 나타내고 있다. 하지만 이들을 배출시 인근 지표수와 지하수를 오염시킬 우려가 있어 적절히 처리하여 방류하는 것이 절실히 요구된다.<sup>1)</sup>

폐수중의 암모니아성 질소를 제거하기 위해서는 침전법, 질산화, 탈질소화법, Ammonia stripping, 이온교환수지법, 산화지법, 비연속점 염소처리법 및 흡착제에 의한 흡착법 등<sup>2~3)</sup>이 있으며, 침출수 중의 중금속을 포함한 무기이온들을 제거하는 방법으로는 lime, alumina, ferric chloride, ferrosulfate, ozonation, zeolite, 활성탄 등에 의한 흡착 및 이온교환법, 역삼투법 등이 있다.<sup>4~7)</sup>

이와 같이 암모니아성 질소 및 중금속이온을 제거하고자 하는 많은 연구가 진행되고 있지만 쓰레기 침출수중의 중금속이온 및 암모니아성 질소를 동시에 효과적으로 제거하는 방법들이 아직까지 명확하지 않은 실정으로 이에 대한 폭넓은 연구가 요구되고 있다. 따라서 본 연구에서는 쓰레기 침출수 중의 암모니아성 질소 및 중금속이온의 제거 반응특성을 조사하기 위하여, 신방법 등<sup>8)</sup>이 제안한 인공제오라이트 시료와 활성탄을 이용하여 침출수 중의 각종 중금속이온 및 암모니아성 질소에 대한 흡착제거 특성실험을 수행함으로써 침출수처리의 가능성을 검토하고자 하였으며, 또한 환경오염을 극소화시키는데 기초적인 자료를 제공하고자 한다.

## 2. 실험 재료 및 방법

### 2.1. 침출수 시료채취

본 실험에 사용된 침출수 시료에 위생 매립지(광주광역시 운정동 산 104번지 소재)에서 발생되는 침출수로서 처리전 원수는 침사지에서 3회('93.11, '94.5, '94.8)에 걸쳐 시료채취를 하였으며, 중금속 이온 및 암모니아 제거 실험에 사용된 침출수는 Fig. 1과 같은 공정으로 처리되는 폭기식 라군조와 회전원관접촉조를 거쳐 약품용접처리( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 + \text{NaOH}$ )를 거친 침출수의 2차 처리수를 1회('94.8)에 20 l 플라스틱 용기에 채취한 후 냉장고에 보관하여 실험에 사용하였다. 침출수의 수질분석은 수질오염 풍정시험방법<sup>9)</sup> 및 Standard method<sup>10)</sup>에 준하여 실현하였다.

### 2.2. 실험시료 및 침출수 처리

본 연구에 사용된 흡착제로는 인공제오라이트(artificial zeolite)<sup>7)</sup>와 시판중인 활성탄(activated carbon: (주)순정화학)을 각각 사용하고 또한 이들을 1:1로 혼합하여 흡착특성을 규명하였다. 시료로 사용된 인공제오라이트와 활성탄의 평균입도는 각각 9 μm, 38 μm으로 입도분포 결과를 Fig. 2에 나타났다. 시료로 사용한 침출수 중에는 많은 종질소와 유기물을 함유하는 반면에 중금속은 대체로 낮은 함유량을 나타내고 있다. 따라서 본 실험을 효과적이고 폭넓게 응용하고자 침출수 용액에 일정한 중금속 농도가 되도록  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  in 0.02N HCl,  $\text{CdCl}_2$  in 1N HCl,  $\text{Zn}(\text{ON}_3)_2$  in 1N  $\text{NHNO}_3$ ,  $\text{CuCl}_2$  in 1N HCl,  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$  in 1N  $\text{HNO}_3$  등의 시약을 첨가함으로서  $\text{Cr}(\text{VI})$ ,  $\text{Cd}(\text{II})$ ,  $\text{Pb}(\text{II})$ ,  $\text{Zn}(\text{II})$ ,  $\text{Cu}(\text{II})$  등의 이온농도가 약 10 mg/l의 용액이 되도록 Table 2과 같이 혼합용액을 만들기 실현을 실시하였다.

Table 1. Composition of leachates used in this study.

	$\text{NH}_4\text{-N}$	$\text{Cu}(\text{II})$	$\text{Zn}(\text{II})$	$\text{Pb}(\text{II})$	$\text{Cr}(\text{VI})$	$\text{Cd}(\text{II})$	$\text{Mn}(\text{II})$
Concentration (mg/l)	228.16	9.40	9.82	10.10	10.50	9.18	1.51

### 2.3. 실험방법 및 분석

#### 2.3.1. 흡착실험

회분식 흡착실험에 사용된 Jar-Tester는 YuYu Scientific M.F.G를 사용하였으며, 시료용액 200ml를 500ml 빅이커에 취한 후 흡착제를 주입하여 300rpm으로 2분간 급속 교반시킨 다음, 150rpm으로 28분간 교반시켜 2시간 정치한 후 상등액을 분석하였다. 흡착제의 사용량 및 혼합량, 흡착반응시간, pH의 변화를 주면서 암모니아성 질소 및 중금속 제거효율을 고찰하였다.

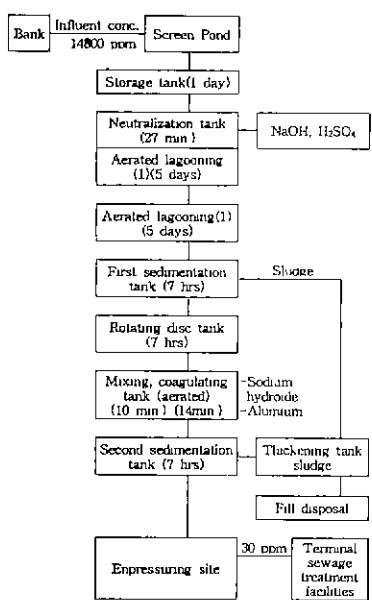


Fig 1. Processing flow of leachate treatment in Kwangju city.

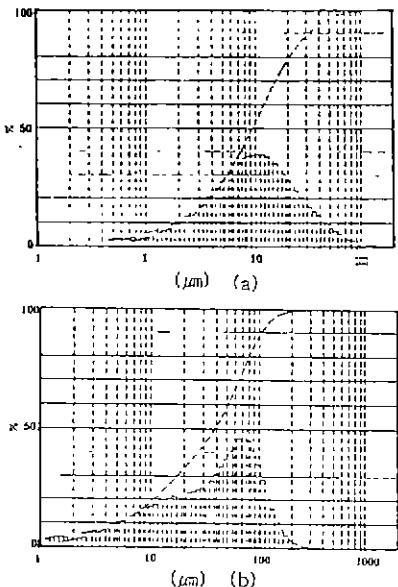


Fig 2. Particle size distribution of (a) artificial zeolite and (b) activated carbon

### 2.3.2. 암모니아성 질소 분석

암모니아성 질소 분석에 사용된 기기는 UV-Vis Spectrophotometer (SHIMADZU UV-1201 Japan)를 사용하여 시료수를 암모니아 증류장치에서 증류하고 이를 적당량

취하여 나트륨 헤놀라이트액 100ml와 나트로프루치트나트륨 1ml, 치아염소산나트륨 5ml를 침가하여 서서히 섞은 다음 30분간 방치 후 640nm에서 검색의 흡광도를 측정하였다.

### 2.3.3. 중금속 분석

중금속 분석을 위해 사용된 기기는 Atomic absorption spectrophotometer (Varian spectra AA-300, Australiz)를 사용하였으며, 각 시료용액 100ml에 질산 10ml를 넣어 Kjeldahl 분해장치를 이용하여 분해, 증류하고 황산 10ml를 넣어 백연이 발생할 때까지 분해한 다음, 냉각 후 염산 15ml와 증류수 35ml를 넣어 침전물을 녹인 후 다시 가열하여 냉각, 전처리액을 100ml 메스플라스크의 표선까지 증류수를 넣은 후 증금속이온의 농도를 각각 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 침출수 분석

침출수는 매립산물 및 계절등에 따라 많은 영향을 받으므로 성분의 함량이 대체로 상이한 결과를 나타낸다. 침출수 원수인 시료 I, II, III, IV를 각각의 성분에 따라 분석하여 그 결과를 Table 2에 나타냈다. 침출수 원수인 시료 I~IV는 상당히 높은 암모니아성 질소와 BOD, COD 및 중금속을 함유하고 있으며, 침출수 중 질소의 대부분이 암모니아성 질소로 그 농도는 401.47~1209.51mg/l로 아주 높은 결과를 나타냈다. 이는 생물학적 처리시 암모니아 특성을 나타내며 충분한 폭기시간으로 질산화처리를 하지 않고 방류할 경우 배출수체의 산소가 다량 소비되어 수질오염을 유발하는 원인이 된다. 특히 중금속 성분으로는 Mn, Fe, Zn가 높게 나타났으며, T-P 또한 높은 수치를 나타냈다.

### 3.2. 흡착제의 양

Fig. 3은 인공제오라이트에 의한 암모니아성 질소의 제거율을 나타낸 것으로 인공제오라이트 1g일때 32%, 11g일때 72%의 제거율을 보이는데, 이는 인공제오라이트의 사용량을 증가시킬수록 흡착제거율이 증가하나 그 사용량에 비례하여 증가하지는 않았다.

Fig. 4는 인공제오라이트에 의한 각 중금속 이온 제거율을 나타낸 것으로 시료 침가량이 증가할수록 중금속의 흡착량은 증가하는 경향을 나타내는 반면에 Cu(II)는 시료량의 증가에 따라 완만한 제거율을 나타내며, 시료량 7g일 때 약 70%의 제거율을 나타냈다. 김덕수<sup>(1)</sup> 등에 의하면 제오라이트 구조가 Cr(VI)의 양이온을 수용하기에는 충분한 음전학적 성질을 띠지 못하기 때문에 그 제거율은 약 15% 정도라고

보고하였는데, 본 실험에서도 인공제오라이트는 약 30%의 낮은 제거율을 나타냈다.

Fig. 5는 활성탄에 의한 각 중금속 이온의 흡착제거 결과를 나타낸 것으로, 인공제오라이트에 의해 제거율이 낮게 나타나던 Cr(VI)이 활성탄 흡착에서는 85% 이상의 제거율을 나타냈다. 김덕수등<sup>11)</sup>, 정진화<sup>12)</sup>에 의하면 Cd(II)와 Zn(II)의 경우 활성탄에 유리이온 상태로서는 전혀 흡착이 일어나지 않고 Cd(II)은 NaI나 NaBr이 공존시에는 Cd<sup>2+</sup>의 착음이온으로 용이하게 흡착되고 Zn(II)는 시안이온이나 할로겐이온 등으로 Zn(CN)<sub>4</sub><sup>2-</sup>와 Zn(X<sub>4</sub>)<sup>2-</sup>의 형으로 용이하게 흡착된다고 하였는데, 본 실험에서는 Cd(II) 57%, Zn(II) 85% 이상의 제거율을 나타냈다.

Table 2. The results of the leachates analyses(mg/l)

Sample items	I (93.11)	II (94.2)	III (94.5)	IV (94.8)	V (94.8) (Effluent)
pH	5.2	5.5	6.1	5.9	8.0
COD	4604.6	5130.1	4904.0	6540.0	460.2
BOD	9990.0	12300.0	13500.0	31959.0	517.5
SS	204.0	122.0	180.0	490.0	525.0
NH4 <sup>+</sup> -N	540.14	640.72	401.47	1029.51	233.15
T-P	36.458	9.598	4.820	9.440	3.474
CN	0.050	0.750	0.017	0.037	ND
Cr	0.280	0.278	0.106	0.145	0.048
Cd	0.039	0.012	0.016	0.027	ND
As	ND	0.162	0.056	0.088	0.045
Zn	11.70	8.89	2.51	2.78	0.31
Pb	0.18	0.03	ND	ND	ND
Cu	0.08	0.05	0.04	0.05	0.02
Mn	158.60	68.10	93.40	40.80	1.39
Phenol	1145	1805	1860	8308	ND
Fe	49.00	73.10	151.17	184.00	2.70
Cr <sup>6+</sup>	0.13	0.06	0.06	0.07	ND
Hg	ND	ND	ND	0.010	ND
Organic phosphorus comp	ND	ND	ND	ND	ND
TCE	ND	ND	ND	ND	ND
TeC <sub>E</sub>	0.002	0.004	ND	ND	ND
ABS	0.080	1.690	1.023	3.403	0.842
n-Hexane	7.2	130.7	26.0	110.0	42.6
Fluore	0.80	0.91	0.12	0.12	ND

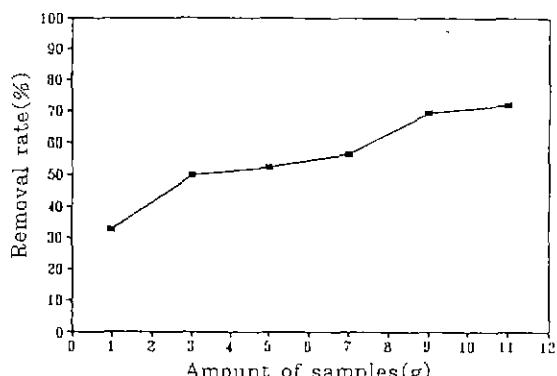


Fig. 3. The removal rate of ammonia using artificial zeolite.

- contact time: 300min      • pH: 6.4
- solution volume: 200ml
- mixing velocity: 150rpm

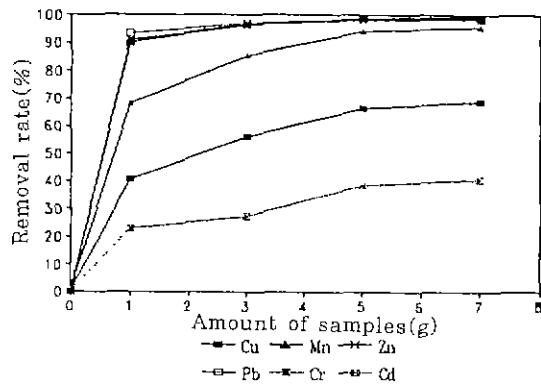


Fig. 4. The removal rate of heavy metal ions using artificial zeolite.

- contact time: 30min      • pH: 6.4
- solution volume: 200ml
- mixing velocity: 150rpm

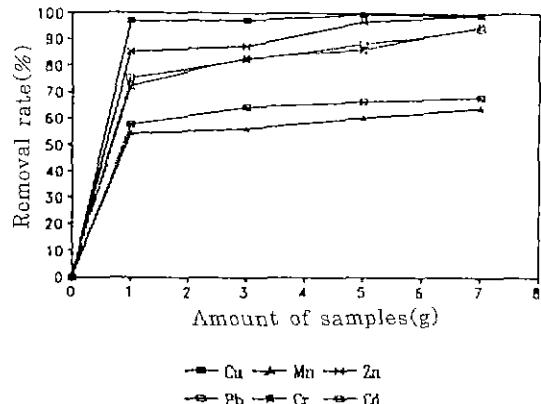


Fig. 5. The removal rate of heavy metal ions using activated carbon.

- contact time: 30min      • pH: 6.4
- solution volume: 200ml
- mixing velocity: 150rpm

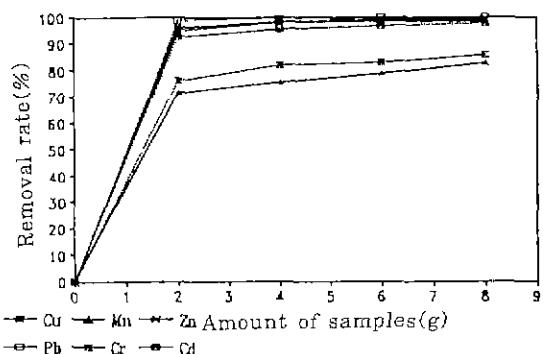


Fig. 6. • The removal rate of heavy metal ions using 1:1 mixture of artificial zeolite and activated carbon.  
 • contact time 30min    • pH: 6.4  
 • solution volume: 200ml  
 • mixing velocity: 150rpm

Fig. 6은 인공제오라이트와 활성탄을 1:1로 혼합하여 흡착 실험을 한 경우 중금속이온의 흡착제거율이 매우 양호한 것을 보여주고 있다. Cr(VI)의 경우 인공제오라이트를 1g 사용했을 때 20%의 제거율을 나타냈는데, 시료를 1:1로 혼합한 경우에는 75%의 제거율을 나타냈다. 또 Cd(II)의 경우 활성탄을 1g 사용했을 때 60%의 제거율을 보이는데 반해 1:1로 혼합한 경우에는 90%의 제거율을 나타냈다. 이는 인공제오라이트와 활성탄을 혼합하여 사용할 경우 선택적인 이온흡착반응이 일어나기 때문으로 사료된다.

### 3.3. 반응시간에 따른 흡착속도

Fig. 7은 인공제오라이트에 의한 암모니아성 질소의 반응 시간에 따른 흡착속도를 나타낸 것이다. 시료에 의한 암모니아성 질소의 흡착량은 반응시간 10분에서 40%의 제거율을 나타냈으며, 30분으로 반응시간이 증가함으로써 50%의 제거율을 나타냈다. 하지만 반응시간이 지속적으로 증가함에도 제거율은 크게 증가하지 않는 결과를 나타냈다.

Fig. 8은 인공제오라이트에 의한 중금속 이온들의 흡착속도를 나타낸 것으로, Mn(II), Zn(II), Cd(II), Pb(II)는 인공제오라이트 시료를 첨가한 후 약 10분 정도에서 흡착량이 급격히 증가하여 각각 85%, 95%, 95%, 96%의 제거율을 나타내는 것으로 보아 거의 흡착평형에 도달함을 알 수 있었다. 하지만 Cu(II)는 약 52%, Cr(VI)은 24%의 제거율을 반응시간 10분에서 나타내는 것으로 보아 다른 이온들에 비하여 흡착반응이 다소 떨어지며, 또한 Cr(VI)은 반응시간이 증가함으로 흡착반응이 조금씩 증가하는 결과가 나타났다. 이는 다른 이온들에 비하여 반응시간이 많이 필요함을 알 수 있다. Cray 등<sup>13)</sup>의 금속이온의 교환속도에 의하면 Cu(II)가

Zn(II), Mn(II)보다 교환속도가 훨씬 빠르나 다른 이온들보다 흡착 제거율이 떨어지는 것은 흡착제는 흡착제의 공극으로 들어가 흡착하는데 흡착제의 크기가 공극의 크기보다 크면 공극이 막혀서 흡착이 방해받을 수도 있는데, Cu(II)이온의 크기가 다른 이온들보다 크므로 해서 인공제오라이트에 의해 흡착이 잘 이루어지지 않은 것으로 사료된다.

Fig. 9은 활성탄에 대한 중금속의 반응시간에 따른 흡착률을 나타낸 결과이다. Cu(II)이온의 경우 10분까지 흡착량이 급격히 증가하여 약 97% 제거율을 나타내며, 이는 다른 중금속보다 흡착능이 좋아 Gray 등<sup>13)</sup>의 교환속도에 비례함을 알 수 있다. 접촉시간 10분일 때 활성탄에 의한 중금속이온의 제거율은 Cu(II) > Zn(II) > Pb(II) > Cr(VI) > Cd(II) > Mn(II) 순으로, 제거율은 각각 97%, 83%, 81%, 76%, 61%, 51% 이였다. 또한 접촉반응시간이 지속적으로 증가하여도 제거율의 크기는 크게 증가하지 않을 것을 알 수 있

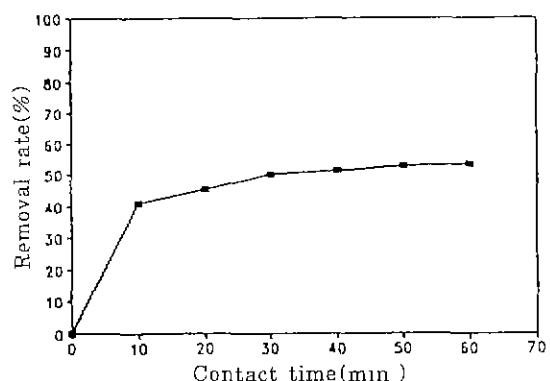


Fig. 7. The removed rate of ammonia using artificial zeolite  
 • mixing velocity: 150rpm    • pH: 6.4  
 • dosage of adsorbent: 3g/200ml

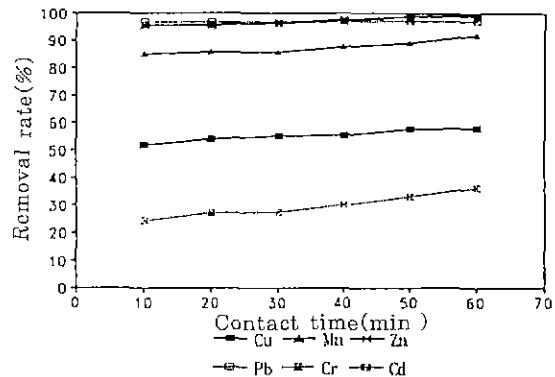


Fig. 8. The removed rate of heavy metal ions using artificial zeolite at various contact times    • pH: 6.4  
 • dosage of adsorbent: 3g/200ml  
 • mixing velocity 150rpm

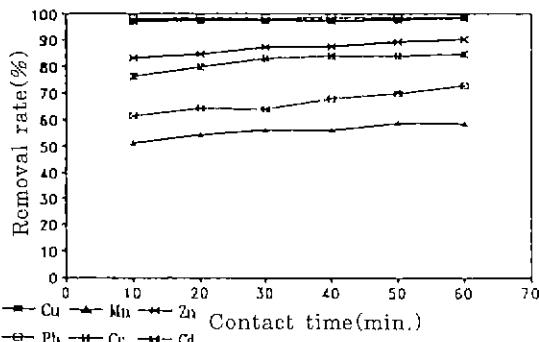


Fig. 9. The removed amount of heavy metal ions using activated carbon at various contact times. • pH: 6.4  
▪ dosage of adsorbent: 2g/200ml  
• mixing velocity: 150rpm

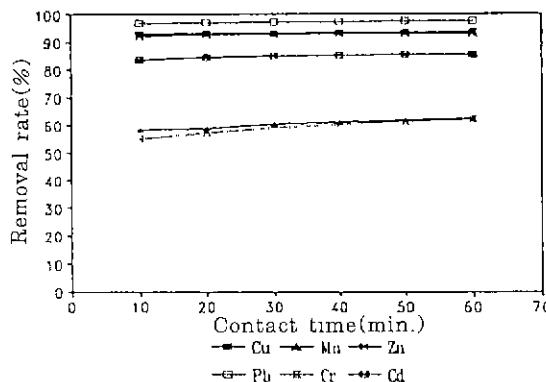


Fig. 10. The removed amount of heavy metal ions using 1:1 mixture of artificial zeolite and activated carbon  
▪ dosage of adsorbent: 2g/200ml  
• mixing velocity: 150rpm  
• contact time: 30min.

Fig. 10은 인공제오라이트와 활성탄을 1:1로 혼합한 시료의 반응시간에 따른 중금속 제거율을 나타낸 결과이다. 인공제오라이트를 흡착제로 사용하여 접촉시간 10분일 때 Cr(VI)의 제거율이 24%이었던 것이 55%로 향상되었으며, Cu(II)는 52%에서 93%로 증가하였다. 또한 같은 조건에서 활성탄을 흡착제로 사용하였을 때 보다 Mn(II)의 제거율이 51%에서 60%, Cd(II)는 62%에서 83%, Zn(II)는 83%에서 92%로, 혼합하여 사용한 경우 보다 향상된 제거효율을 나타내며, 흡착시간 30분까지는 지속적으로 서서히 증가하여 흡착 평형에 도달함을 알 수 있었다.

### 3.4. pH의 영향

용액중 여러가지 이온들이 공존할 경우 흡착시 이온 상호간에 경쟁흡착이 일어나고, 이때 흡착은 시료에 의한 이온

선택성과 이온의 이액순위(離液順位)에 의하여 영향을 받는 것으로 알려져 있다<sup>[4-15]</sup>.

Fig. 11~14는 반응용액의 pH가 암모니아성 질소 및 중금속에 미치는 영향을 조사하기 위해 용액의 pH를 3~9로 조절하면서 실험하였다. Fig 11은 인공제오라이트에 의한 암모니아성 질소의 pH에 따른 영향으로, 흡착량이 pH가 증가함에 따라 다소 증가하는 경향을 나타냈으며, 신방섭 등<sup>[7]</sup>과 김상수 등<sup>[16]</sup>과 같이 pH 9에서 흡착능이 제일 높았다. 이는 인공제오라이트에 포함된 활성 Fe, Al 및 무기물의 함량에 기인하는 pH 의존 부하량의 증감 때문으로 사료된다<sup>[17, 18]</sup>. 또한 산성영역에서는 용액중의 H<sup>+</sup>와 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 경쟁 흡착이 이루어지기 때문에 흡착량이 감소하는 것으로 생각된다. 또한 중금속 흡착에 대한 pH에 따른 영향을 Fig. 12에서 보여주고 있다. Cu(II)은 pH 3에서 약 65%의 제거율을 나타내는 반면에 pH가 증가할수록 흡착제거율이 감소하여 pH 9에서는 43%의 제거율을 나타냈다. 따라서, pH가 증가할수록 Cu(II)의 제거율이 좋아진다는 김상수<sup>[16]</sup>의 연구결과와는 다소 차이가 있었다. 뿐만아니라, Cr(VI)의 경우 pH 3에서 61%의 제거율을 보이나 pH가 증가할수록 제거율이 현저히 떨어져 pH 9에서 약 20%의 제거율을 보이다가 pH가 증가할수록 제거율이 조금씩 증가하는 결과는 다소 다른 결과를 나타냈다. Mn(II)의 경우 pH 3~5 일때는 흡착량이 완만히 증가하다가 pH 6에서 급격한 증가율을 나타냈으며, 또한 Zn(II), Pb(II), Cd(II)의 경우에는 pH 7에서 흡착이 아주 잘되는 경향을 나타내는 반면에 pH 9로 증가할 때 제거율이 조금씩 감소하는 경향을 나타냈다.

Fig 13은 활성탄을 사용한 중금속 흡착에 대한 pH의 영향을 나타낸 것으로 Mn(II), Zn(II), Cd(II)은 pH 3에서의 각각 약 1%, 9%, 6%로 낮은 제거율을 보이는 반면에, pH가 증가할수록 급격히 증가하여 각각 약 75%, 87%, 86%의 제거율을 보였다. Cr(VI)의 경우 pH 3~5영역에서 제거율이 95%로 높은 효율을 나타내는 반면에 pH가 증가할수록 급격히 떨어져 pH 9에서는 약 9%의 흡착능을 나타냈다. 이의 결과로 부터 활성탄의 흡착능은 인공제오라이트보다 pH의 영향에 훨씬 더 민감한 반응결과를 보았다. 따라서 활성탄과 인공제오라이트를 혼합 사용함으로써 선택적인 흡착효율을 증가시키고자 인공제오라이트와 활성탄을 1:1로 혼합하여 중금속 흡착제거 결과를 Fig. 4에 나타냈다. Mn(II), Zn(II), Cd(II)는 pH의 변화에 따라 흡착능이 매우 민감하게 반응하였으며, Cu(II), Pb(II)의 경우는 pH변화에 큰 영향을 나타내지 않았다. 따라서 pH 5~6 영역에서 인공제오라이트 및 활성탄을 혼합하여 사용할 경우 중금속이온 제거에 매우 효과적이라 사료된다.

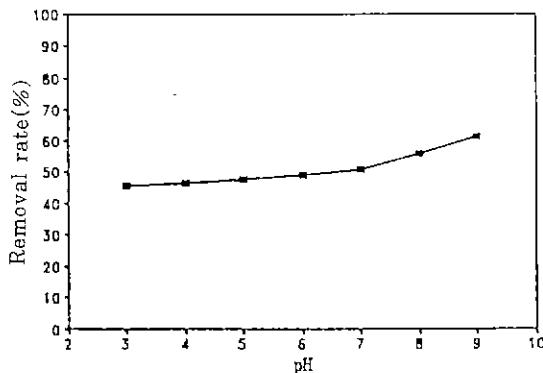


Fig. 11. The removal rate of ammonia using artificial zeolite under various pH.

- dosage of adsorbent: 3g/200ml
- mixing velocity: 150rpm
- contact time: 30min

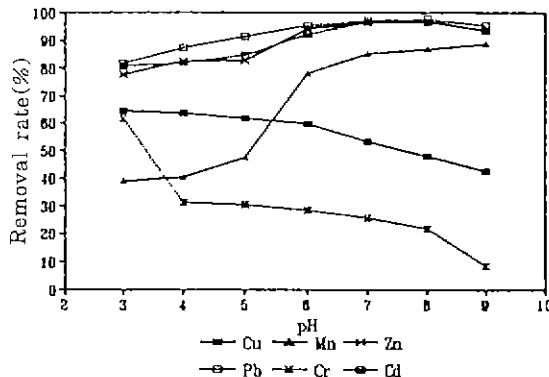


Fig. 12. The removal rate of heavy metal ions using artificial zeolite under various pH.

- dosage of adsorbent 3g/200ml
- mixing velocity 150rpm
- contact time: 30min

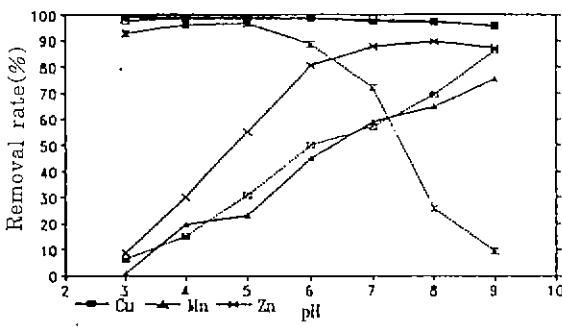


Fig. 13. The removal rate of heavy metal ions using activated carbon under various pH.

- dosage of adsorbent 2g/200ml
- contact time 30min
- mixing velocity: 150rpm

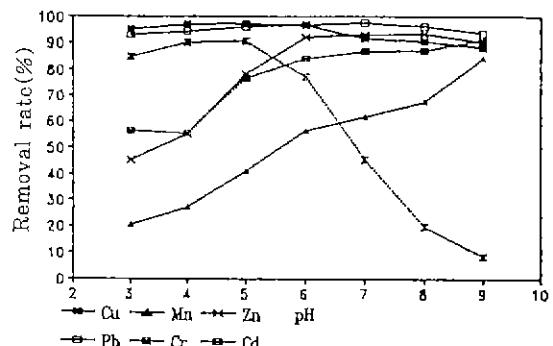


Fig. 14. The removal rate of ammonia using 1:1 mixture of artificial zeolite and activated carbon under various pH.

- dosage of adsorbent: 2g/200ml
- contact time, 30min
- mixing velocity: 150rpm

#### 4. 결론

침출수가 함유하고 있는 암모니아성 질소 및 각종 중금속 이온 흡착특성 실험결과, 인공제오라이트를 이용한 암모니아성 질소의 흡착 제거율은 사용량이 증가할수록 흡착 제거율도 증가하나 대수적으로 증가하지는 않았다. pH가 증가할수록 흡착 제거율이 증가하여 중성영역에서 보다 pH 9 영역에서 보다 높았으며, 접촉시간 10분이내에 흡착반응이 거의 이루어지면서 흡착평형에 도달하였다.

인공제오라이트 3g/200ml, pH 6.4, 접촉시간 10분에서 Zn(II), Pb(II), Cd(II), Mn(II)의 흡착력은 95%, 96%, 95%, 85%로 좋은 반면 Cu(II), Cr(VI)의 흡착력은 52%, 24%로 좋지 않았다. 또 활성탄 2g/200ml, pH 6.4, 접촉시간 10분 영역에서 중금속 제거효율은 Cu(II) > Zn(II) > Pb(II) > Cr(VI) > Cd(II) > Mn(II) 순으로 나타났으며, 그 각각의 제거율은 97%, 83%, 81%, 76%, 61%, 51%이었다. 인공제오라이트 및 활성탄의 Mn(II), Zn(II), Pb(II)의 흡착제거율은 pH가 증가할수록 증가하나 Cr(VI)은 pH가 증가할수록 급격히 낮아지며 pH 9에서는 각각 9%의 제거율을 보였으며, 활성탄의 흡착능은 인공제오라이트보다 pH의 영향에 훨씬 민감한 결과를 보였다. 인공제오라이트와 활성탄을 1:1로 혼합하여 흡착실험을 하였을 때 선택적인 흡착으로 인하여 단일 시료에 대한 흡착에서 보다 모든 중금속이온 및 암모니아 흡착에 높은 제거효율을 나타냈다.

#### 《서사》

본 연구는 한국과학재단의 연구비지원(NO. 93-08-00-10)에 의해 이루어진 일부 논문으로 이에 감사를 드립니다.

## 참고문헌

1. 최세영: “쓰레기 매립지의 침출수에 의한 지하수 오염에 관한 연구,” 서울대학교대학원 박사학위논문, (1992).
2. 양병수: “용수 및 폐수처리,” 동화기술 (1989).
3. S. Ho, W. C. Boyk, and R. K. Ham. “Chemical Treatment of Leachates from Sanitary Landfills,” J. WPCF, Vol. 46, No. 7, 1776~1791 (1974).
4. J. R. Carter: “A New Type of Anaerobic Design for Energy Recovery and Treatment of Leachate Waster.” Proc. of the 39th Ind Waste Conf., Purdue Univ 369~376 (1984).
5. E. H., Cook, and E. G Force: “Aerobic Biostabilization of Sanitary Landfill Leachate,” J WPCF, Vol. 46, No. 2, 380~392 (1974).
6. T. GEORGE: “Wastewater Engineering. Treatment Disposal Reuse”, 708~733, Second Edition Metcalf & Eddy, Inc.
7. 신방섭, 최경수, 김재욱: “Zeolite 광물에 의한 폐수중의 암모니아 제거에 관한 연구,” 대한광산학회지, Vol. 24, No. 3, 202~209 (1989).
8. B. S. Shin, S. O. Lee and N. P. Kook: “Preparation of Zeolitic Adsorbents from Waste Coal Fly Ash,” The Korean J. of Chemical Eng., Vol. 12, No. 3 (1995).
9. 수질오염공정시험방법, 환경처 (1991).
10. Standard Method for the Examination of Water and Wastewater, 17th Edition. American Public Health Association (1991).
11. 김덕수 외 5인: “국산 천연 제올라이트와 합성 제올라이트에 의한 중금속 이온 및 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 제거에 관한 연구,” 부산대학교 자연과학 논문집, Vol. 33, 169 (1982).
12. 정진희: “쓰레기 매립장 침출수중의 중금속류처리에 관한 연구,” 동아대학교 대학원 석사학위 논문 (1987).
13. H. B. Gray and C. H. Langford: “Chem Eng. News,” April 1, 68 (1968)
14. U C Shakla, S. B. Mittal, and R. K. Gupta: “Zinc Adsorption in Soil as affected by Exchangeable Cations,” Soil Sci. Am J., Vol. 129, 336~370 (1980).
15. R. D. Harter: “Adsorption of Copper and Lead by A and B<sup>2+</sup> Horizon of Several North Eastern United States Soils”, Soil Sci. Soc Am. J., Vol. 43, 679~683 (1980).
16. 김상수, 허남호, 최정: “NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 흡착제로서의 천연 Zeolite의 이용”, Korean K. Environ. Agric., Vol. 40, No 1, 27~31 (1991)
17. G. G. Galindo and F. T. Bingham: “Homovalent and Heterovalent Cation Exchange Equilibria in Soils with Variable Surface Charge”, Soil Sci. Soc. Am. J., Vol. 41, 883~886 (1977).
18. J. C. Parker, L. W. Zelazny, S. Sampath and W. G. Harris: “A Critical Evaluation of the Extent of Zero Point of Charge(ZPC) Theory to Soil Systems”. Soil Sci. Soc. Am. J., Vol. 43, 668~673 (1979).