

활성탄에 의한 에리스로신 염료수용액의 흡착특성에 관한 연구

이종집

공주대학교 화학공학부
(2011년 1월 27일 접수, 2011년 2월 21일 채택)

Study on Adsorption Characteristics of Erythrosine Dye from Aqueous Solution Using Activated Carbon

Jong-Jib Lee

School of Chemical Engineering, Kongju National University, Chungnam 331-717, Korea
(Received January 27, 2011; Accepted February 21, 2011)

입상활성탄에 대한 erythrosine의 흡착특성을 초기농도, 접촉시간 및 흡착온도를 변수로 하여 회분식실험을 통하여 조사하였다. Erythrosine에 대한 흡착동력학적 연구는 298 K에서 초기농도가 100, 250, 500 mg/L인 에리스로신 수용액에 대해 수행하였다. 흡착공정은 유사이차속도식에 잘 맞았으며 유사이차속도상수(k_2)는 에리스로신의 초기농도가 높을수록 감소하였다. 에리스로신의 평형흡착관계는 298~318 K의 온도범위에서 Freundlich 등온식이 잘 적용되었다. 흡착자유에너지변화(ΔG°), 엔탈피변화(ΔH°), 엔트로피변화(ΔS°)를 계산하여 본 결과, 표준자유에너지 변화량이 -3.72 ~ -9.62 kJ/mol로 자발적인 공정임을 알았다. 엔탈피변화량이 양의 값을 나타내어 활성탄에 대한 에리스로신 염료의 흡착이 흡열반응임을 알 수 있었다.

Adsorption characteristics of erythrosine dye onto the activated carbon has been investigated in a batch system with respect to initial concentration, contact time and temperature. Kinetic studies of the adsorption of erythrosine were carried out at 298 K, using aqueous solutions with 100, 250 and 500 mg/L concentration of erythrosine. The adsorption process followed a pseudo second order model, and the adsorption rate constant (k_2) decreased with increasing the initial concentration of erythrosine. The equilibrium process can be well described by Freundlich isotherm in the temperature range from 298 to 318 K. Free energy of adsorption (ΔG°), enthalpy (ΔH°), and entropy (ΔS°) change were calculated to predict the nature the adsorption. The estimated values for ΔG° were -3.72 ~ -9.62 kJ/mol over the activated carbon at 250 mg/L, indicated toward a spontaneous process. The positive value for ΔH° indicates that the adsorption of erythrosine dye on activated carbon is an endothermic process.

Keywords: erythrosine, activated carbon, adsorption, adsorption kinetics, equilibrium process

1. 서 론

산업폐수 중에 포함된 염료는 환경에 배출되면 염료가 가지고 있는 독성이나 착색력 때문에 우리 생활에 여러 가지 문제를 일으킨다. 염료폐수의 배출원은 주로 섬유, 피혁, 제지, 플라스틱 산업 등이다. 염색과 관련된 우리나라의 섬유산업 업체수는 전체 폐수배출업체의 3~4%에 불과하지만 폐수배출량으로는 20~30%에 해당한다. 또한 배출되는 유기물질의 부하량도 전체의 24.3%에 달하여 폐수발생 및 폐수의 특성면에서 대표적인 오염산업으로 분류되고 있다. 일반적으로 염색폐수에는 색도로 인한 불쾌감 유발과 각종 염료성분과 조염제, 호제, 계면활성제 및 휘발성 유기용제 등의 난분해성 물질이 다량 함유되어 폐수처리에 어려움을 가중시키고 있다[1].

에리스로신(erythrosine)은 적색의 방향족화합물로 직물의 염색 및

식품착색제(Food Red No. 3)로 매우 많이 사용되고 있는 타르계 색소의 일종이며 serotonin의 분비에 장애를 일으켜 자율신경계에 영향을 주며 우울증, 성격장애 등과 같은 문제를 일으킨다[2]. 단일성분일 때의 치사량(LD₅₀)은 6.7~7.4 g/kg이지만 최근에 와서 밝혀진 것처럼 에리스로신과 같은 타르계 색소는 칵테일 효과에 의해 예상치 못한 유해성이 발생되는 것이 밝혀졌다[3,4]. 장기간 섭취시에는 인체 내에 흡수되어 에리스로신 구성성분 중의 요오드가 생체 내에서 떨어져나가 이것이 갑상선의 기능에 이상을 주어 갑상선암을 일으키며, 간암 발생도 우려되는 유해물질이다[5].

이와 같은 유해성에도 불구하고 식품 및 염색폐수 중의 에리스로신을 효과적으로 제거하기 위한 연구는 거의 이루어지지 않았다. Gupta 등[6]이 닭날개(hen feather)를 흡착제로 이용하여 농도와 온도 및 pH가 흡착에 미치는 영향을 조사하였고, Jain 등[7]이 탈유한 겨자(mustard)로부터 제조한 활성탄으로 에리스로신을 효과적으로 제거할 수 있으며 흡착평형관계는 Freundlich식이 성립한다고 발표한 정도에

Table 1. Physical Properties of Granular Activated Carbon

Properties	Unit	Value
Average particle size	mm	1.638
Specific surface area	m ² /g	1520
Density (at 25 °C)	(g/mL)	0.48~0.55
Iodine adsorption value	mg/g	1000
Methylene blue adsorption value	mL/g	180
ash	%	< 10

Table 2. Langmuir and Freundlich Isotherm Model Parameters and Correlation Coefficients for Adsorption of Erythrosine on Activated Carbon

Isotherm	Adsorption temperature (K)	Parameters		r ²
		Q ₀ (mg/g)	b (L/mg)	
Langmuir	298	364.24	3.77 × 10 ⁻³	0.993
	308	296.30	4.87 × 10 ⁻³	0.989
	318	257.91	4.30 × 10 ⁻³	0.989
Freundlich		K _F (mg/g)(L/mg) ^{1/n}		1/n
Freundlich	298	18.41	0.409	0.999
	308	10.66	0.475	0.999
	318	6.78	0.514	0.998

그치고 있다. 본 연구에서는 에리스로신을 입상활성탄으로 흡착제거하여, 흡착처리의 타당성과 설계인자들에 대해 연구한 전보[8]에 이어 등온흡착 및 흡착속도 실험을 통하여 에리스로신의 초기농도와 흡착 온도 등이 흡착반응에 미치는 영향을 검토하여 흡착평형과 반응속도론적인 해석 및 열역학적 자료를 평가하여 염색폐수에 포함된 에리스로신이 활성탄에 흡착되는 기구에 대해 알아보하고자 하였다.

2. 실험

2.1. 실험재료

에리스로신(C₂₀H₆I₄Na₂O₅, MW : 879.86 g/mol)의 정식명칭은 2-(6-hydroxy-2,4,5,7-tetraiodo-3-oxo-xanthen-9-yl)benzoic acid이며, Figure 1과 같은 구조를 가지고 있다. Sigma Aldrich사의 특급시약을 순수를 사용하여 10000 mg/L의 원용액(stock solution)을 만들어 두고 필요한 농도로 희석하여 이용하였다. 흡착제로 사용한 활성탄은 DY Carbon Co.에서 제공한 8 × 30 mesh 크기의 입상활성탄으로, 순수로 수회 세척한 후 건조기에서 105 ± 1 °C로 3 h 건조하여 사용하였다. Table 1에 시료활성탄의 물리적 특성을 종합하여 나타냈다.

2.2. 실험 방법

2.2.1. 흡착실험

100 mL PE 병에 초기농도 100~1000 mg/L의 에리스로신 용액 50 mL를 넣고, 침지된 활성탄을 건조기준질량으로 0.5 g 투입한 다음, 298 K에서 온도조절이 가능한 왕복식 항온진탕기로 진탕속도를 120 rpm의 속도로 흡착평형에 도달할 때까지 교반하였다. 일정시간별로 용액을 채취하여 활성탄을 제거한 여액의 흡광도를 자외선/가시광선 흡수분광기(UV-Visible spectrophotometer, Shimadzu, UV-160A)를 사용하여 측정하고 검량선을 이용하여 용액내의 잔존농도를 구하였다.

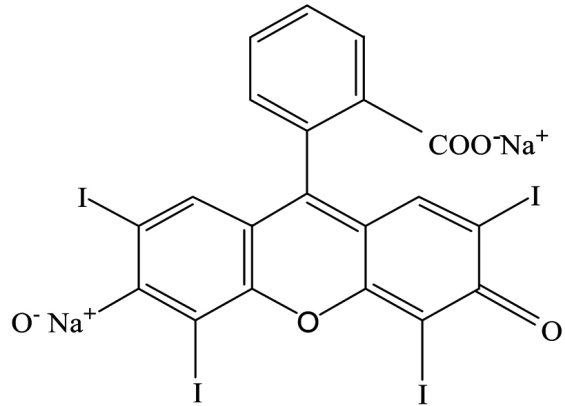


Figure 1. Molecular structure of erythrosine.

흡착온도에 따른 영향을 알아보기 위한 온도별 흡착실험은 298, 308, 318 K에서 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 흡착평형 해석

에리스로신의 초기농도를 100, 250, 500 mg/L로 달리한 용액 50 mL에 시료활성탄 0.5 g을 넣고, 흡착실험을 수행하였다. 각각의 평형 농도를 분석한 결과로부터 흡착등온선을 구하였다. 평형흡착량, q_e (mg/g)는 다음 식에 의해 구해진다.

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{W} \quad (1)$$

여기서 C₀와 C_e (mg/L)는 각각 흡착질의 초기농도와 평형농도를 나타낸다. V는 용액의 부피(L)이고, W는 흡착제의 건조질량(g)이다. 본 연구에서는 에리스로신의 흡착반응기구를 규명하기 위해 흡착평형값을 각각 Langmuir식과 Freundlich식에 적용하여 보았다.

먼저 Langmuir는 흡착질이 흡착제의 표면에 있는 한정된 수의 흡착 부위에 단분자층을 형성하는 것에 의해 일어난다고 가정하여 다음과 같은 식을 제안하였다.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{Q_0 b} + \frac{1}{Q_0} C_e \quad (2)$$

여기서 C_e는 흡착질의 평형농도(mg/L), q_e는 흡착제 단위질량당 흡착된 흡착질의 양(mg/g), Q₀와 b는 흡착용량과 흡착속도와 관련된 Langmuir 상수이다.

Freundlich의 흡착등온식은 흡착제의 표면이 불균일한 표면에너지를 갖는다고 가정된 식으로 다음과 같은 직선식이 잘 알려져 있다.

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln C_e \quad (3)$$

여기서 C_e는 흡착질의 평형농도(mg/L), q_e는 흡착제 단위질량당 흡착된 흡착질의 양(mg/g), K_F와 n은 흡착공정이 얼마나 알맞은가를 나타내는 지표로 사용되는 Freundlich 상수로 K_F는 흡착용량을 나타내며 분배계수로도 정의된다. 1/n의 기울기 값은 0~1의 값을 가지며,

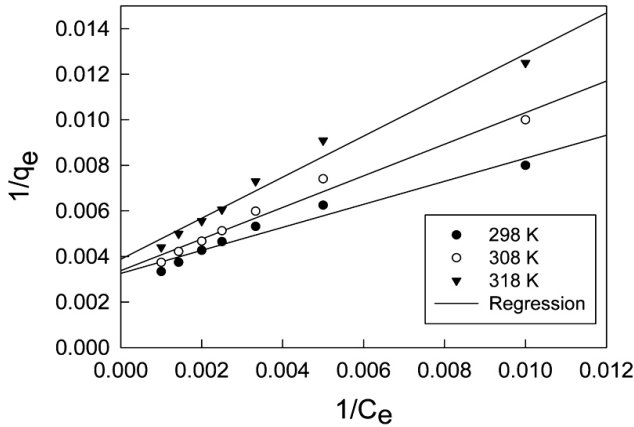


Figure 2. Langmuir isotherms of erythrosine on activated carbon at different temperature.

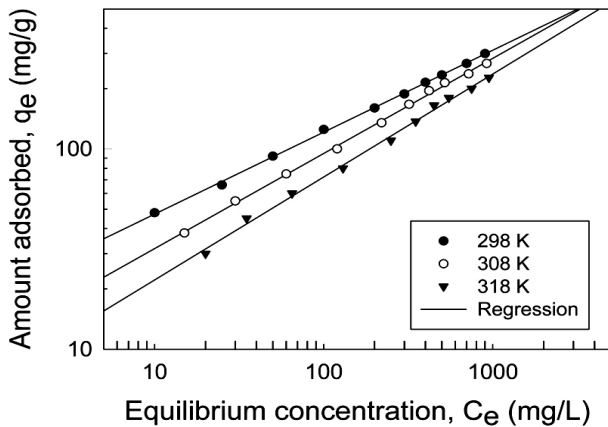


Figure 3. Freundlich isotherms of erythrosine on activated carbon at different temperature.

흡착강도 또는 표면 불균일성을 나타내는데 불균일성이 높을수록 0에 가까워진다[9].

Figures 2와 3은 각각 Langmuir 흡착등온선과 Freundlich 흡착등온선을 나타낸 것이며, 회귀계산에 의해 구한 두식의 상수 값들을 Table 2에 나타냈다.

두 식에 대한 적합성을 비교해 본 결과, Langmuir식에 대한 상관계수는 0.989~0.993이고 Freundlich 식에 대한 상관계수는 0.998~0.999로 활성탄에 의한 에리스로신의 흡착반응은 Freundlich 등온식을 더 잘 따르는 것으로 나타났다. 따라서 활성탄에 의한 에리스로신의 흡착은 흡착질이 단일층을 형성하여 흡착되는 것이 아니라 활성탄의 흡착표면이 불균일한 에너지에 의해 선택적으로 흡착되는 것으로 생각할 수 있다. 또한 Fukukawa[10]는 1/n값이 0.1~0.5일 때 효과적인 흡착처리가 가능하다고 하였다. Table 2에서 보듯이 본 연구에서 조사된 1/n 값은 0.409~0.514로 약간의 표면불균일성을 가지는 것과 함께 흡착공정이 효과적인 처리가 가능한 수준임을 알 수 있다. 한편 Langmuir형 흡착공정에서는 다음 식으로 정의되는 무차원 분리계수 R_L 에 의해 등온선의 모양이 흡착에 적합(favourable)한지 부적합(unfavourable)한지 구분할 수가 있는데, $R_L > 1$ 은 부적합, $R = 1$ 은 선형(linear), $R_L = 0$ 은 비가역(irreversible), $0 < R_L < 1$ 은 적합하다고 알려져 있다[11].

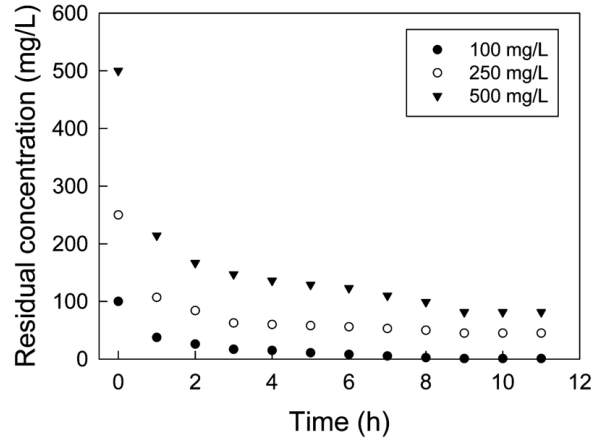


Figure 4. Adsorption kinetic curves of erythrosine at different initial concentration.

$$R_L = \frac{1}{(1 + bC_0)} \tag{4}$$

Table 2의 값을 이용하여 Langmuir식의 분리계수 R_L 을 계산 해 본 결과, 298, 308, 318 K에서 각각 0.2096, 0.1704, 0.1887로 조사되었다. 따라서 Langmuir식에 의한 해석에 의해서도 본 연구에서 사용한 조건 하에서 활성탄에 의한 에리스로신의 흡착이 적합하다는 것을 확인할 수 있었다.

3.2. 흡착속도론적 해석

에리스로신의 초기농도를 변화시켰을 때의 흡착량 변화를 알아내기 위해 에리스로신의 초기농도를 100, 250, 500, 1000 mg/L으로 하고 활성탄을 0.5 g 투입한 다음 120 rpm의 속도로 흡착평형에 도달할 때까지 교반하면서 일정시간대별로 잔존농도를 분석한 결과 Figure 4와 같은 결과를 얻었다. 에리스로신의 흡착은 초기농도에 관계없이 약 9 h 후에 평형상태에 도달하는 것으로 나타났다.

활성탄에 대한 에리스로신의 흡착반응을 속도론적으로 살펴보기 위해 다음과 같은 유사일차반응식(pseudo first order kinetics model) (5)와 유사이차반응식(pseudo second order kinetics model) (6)에 적용하여 보았다.

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \tag{5}$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \tag{6}$$

여기서 q_e 와 q_t 는 각각 평형상태와 t 시간에서 흡착된 에리스로신의 양(mg/g)이며, k_1 은 유사1차흡착반응속도상수(h^{-1}), k_2 는 유사2차흡착반응속도상수(g/mg h)이다. 흡착속도실험데이터를 위 식들에 적용하여 본 결과는 Figures 5와 6과 같이 직선으로 나타났다. 이들 그래프로부터 속도식의 파라미터 값들을 계산한 결과를 Table 3에 나타냈다.

Table 3에서 알 수 있듯이 속도식에 대한 일치도를 나타내는 상관계수 값을 비교해 보면 유사2차흡착반응속도식의 상관계수가 0.997~0.999로 유사1차흡착반응속도식의 상관계수 0.968~0.994 보다 크기 때문에 활성탄에 대한 에리스로신의 흡착반응은 유사2차흡착반응속도식

Table 3. Pseudo First Order and Pseudo Second Order Kinetic Model Parameters for Different Initial Erythrosine Concentration at 298 K

Initial erythrosine concentration (mg/L)	$q_{e,exp}$ (mg/g)	Pseudo first order kinetic model			Pseudo second order kinetic model		
		$q_{e,cal}$ (mg/g)	k_1 (h)	r^2	$q_{e,cal}$ (mg/g)	k_2 (g/mg h)	r^2
100	9.99	5.48	0.3658	0.991	10.81	0.1003	0.999
250	20.45	6.68	0.3224	0.968	21.51	0.0895	0.999
500	41.86	16.10	0.2750	0.994	43.01	0.0351	0.997

Table 4. Comparison of the Amount of Dye Adsorbed at Equilibrium on Various Adsorbent

Dye	Adsorbent	Amount of dye adsorbed at equilibrium (mg/g)	Reference
Erythrosine	Hen feather	0.85	[6]
AC Red 57	Surfactant-modified sepiolite	393.4	[12]
Amaranth	Bottom ash	0.20	[13]
Atrazine	De-oiled soya	0.32	[13]
Atrazine	Activated carbon	18.59	[14]
Methylene blue	Activated carbon	277.9	[9]
Methylene blue	Coir pitch carbon	5.87	[9]
BR 29	Activated carbon	47.62	[15]

Table 5. Pseudo Second Order Kinetic Model Parameters of Erythrosine onto Activated Carbon at Different Temperature

Temperature (K)	Calculated equilibrium capacity $q_{e,exp}$ (mg/g)	Pseudo second order kinetic model		
		Calculated equilibrium capacity $q_{e,cal}$ (mg/g)	Rate constant k_2 (g/mg h)	Correlation factor r^2
298	20.45	21.51	0.0895	0.999
308	22.53	23.22	0.0709	0.999
318	24.36	25.67	0.0470	0.999

을 더 잘 따르는 것을 알 수 있었다. 유사2차흡착반응속도식의 속도상수와 평형흡착량을 조사해 보면 초기농도가 증가할수록 속도상수 k_2 값은 감소하는 것으로 나타났고, 유사2차흡착반응속도식에 의해 구한 평형흡착량($q_{e,cal}$)의 값들은 실험값($q_{e,exp}$)들과 유사한 것으로 나타났다. 평형흡착량값은 같은 염료, 같은 흡착제라고 하더라도 각 실험 조건에 따라 천차만별이다. 상대비교를 하기는 어렵지만 Table 4에 여러 가지 흡착제에 대한 몇 가지 염료의 평형흡착량 자료를 나타냈다.

3.3. 열역학적 해석

흡착공정에 있어서 에너지와 엔트로피를 둘 다 고려해 주어야만 흡착공정이 자발적으로 일어날지를 판단할 수 있다. 열역학적 파라미터의 값들은 실제적인 공정운전에 중요한 지표가 될 수 있다. 활성탄에 대한 에리스로신의 흡착에 있어서 반응온도가 미치는 영향을 조사하고자 에리스로신의 초기농도를 250 mg/L로 하고 반응온도를 25, 35, 45 °C로 변화시켜가면서 시간에 따른 흡착량의 변화를 알아보았다. Figure 7과 같이 반응온도가 증가할수록 평형흡착량은 증가하는 것으로 나타났으며, 이 결과를 식 (5)의 유사2차흡착반응속도식에 적용하

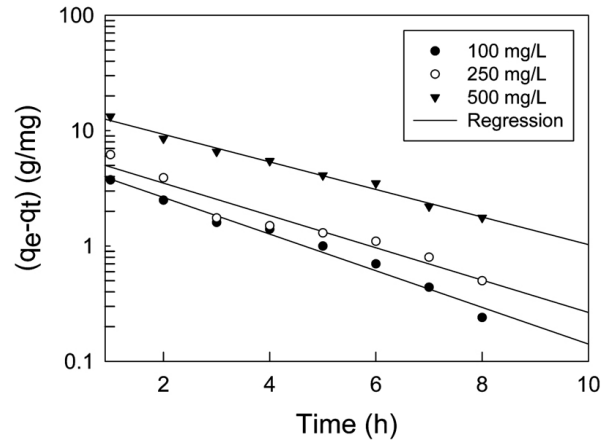


Figure 5. Pseudo first order kinetics of erythrosine onto activated carbon at different initial concentration.

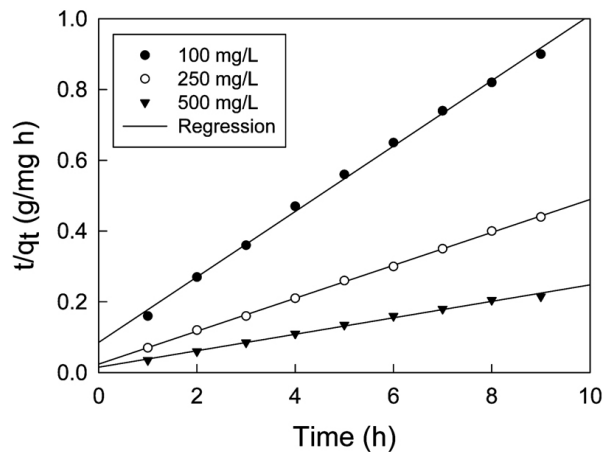


Figure 6. Pseudo second order kinetics of erythrosine onto activated carbon at different initial concentration.

여 각 반응온도에서의 속도상수 및 평형흡착량을 계산한 결과는 Table 5에 나타난 바와 같이 반응온도가 증가할수록 평형흡착량은 증가하지만 속도상수는 감소하는 것으로 나타났다.

염료흡착에서의 유사1차반응속도상수 k_2 는 다음과 같은 Arrhenius 형 관계식에 의해 온도의 함수로 나타낼 수 있다.

$$\ln k_2 = \ln A - \frac{E_a}{RT} \tag{7}$$

여기서 E_a 는 흡착반응의 Arrhenius 활성화에너지(kJ/mol), A 는 Arrhenius 인자, R 은 기체상수(8.314 J/mol K), T 는 흡착조작 온도(K)

Table 6. Thermodynamic Parameters Calculated with the Pseudo Second Order Rate Constant for Erythrosine onto Activated Carbon

Temperature (K)	K _d	ΔH° (kJ/mol)	ΔG° (kJ/mol)	ΔS° (J/mol K)
298	4.49		-3.72	
308	9.12	83.98	-5.66	293.24
318	38.1		-9.62	

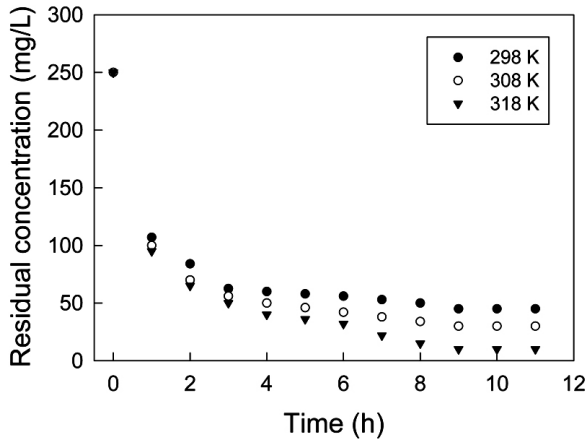


Figure 7. Adsorption kinetic curves of erythrosine at different temperature.

이다. Figure 8과 같이 $\ln k_2$ 와 $1/T$ 의 관계를 나타내면 직선의 기울기 (E_a/R)로부터 얻은 에리스로신의 흡착반응의 활성화에너지는 25.29 kJ/mol인 것으로 조사되었다. 흡착에너지의 등급에 따라 물리흡착과 화학흡착으로 나누는 것이 가능한데, Nollet 등[16]은 낮은 활성화에너지(5~40 kJ/mol)은 물리흡착의 특성을 가지며 높은 활성화에너지(40~800 kJ/mol)은 화학흡착의 특성을 갖는다고 하였다. 본 연구에서 얻어진 활성화에너지를 보면 에리스로신의 흡착은 물리흡착의 특성을 갖는 것임을 알 수 있다.

다른 열역학적 파라미터들인 표준자유에너지(ΔG°), 엔탈피(ΔH°) 및 엔트로피(ΔS°)는 다음 식들을 이용하여 구하였다. 그 결과를 Table 6에 나타냈다.

$$K_d = \frac{q_e}{C_e} \tag{8}$$

$$\Delta G^\circ = -RT \ln K_d \tag{9}$$

$$\ln K_d = \frac{\Delta S^\circ}{R} - \frac{\Delta H^\circ}{R} \frac{1}{T} \tag{10}$$

흡착반응의 표준엔탈피변화가 양의 값(83.98 kJ/mol)을 갖는 것으로 볼 때 활성화탄에 대한 에리스로신의 흡착반응은 흡열반응임을 알 수 있다. 또한 실험조건에서 표준엔탈피 변화가 일정하다고 가정할 상태에서, 298, 308, 318 K에서의 표준자유에너지변화는 온도가 증가할수록 감소한 결과를 나타냈다. 이것은 온도가 증가할수록 활성화탄에 대한 에리스로신의 흡착이 자발적으로 일어나는 것을 의미한다. 일반적으로 물리흡착의 자유에너지 변화는 -20~0 kJ/mol이고, 화학흡착의 자유에너지변화는 -80~-400 kJ/mol로 알려져 있다[17]. 본 연구에서의 자유에너지 변화값은 -3.72~-9.62 kJ/mol로 흡착반응이 물리흡착이며 자발적으로 일어난다는 것을 나타내준다. 엔트로피 변화값이

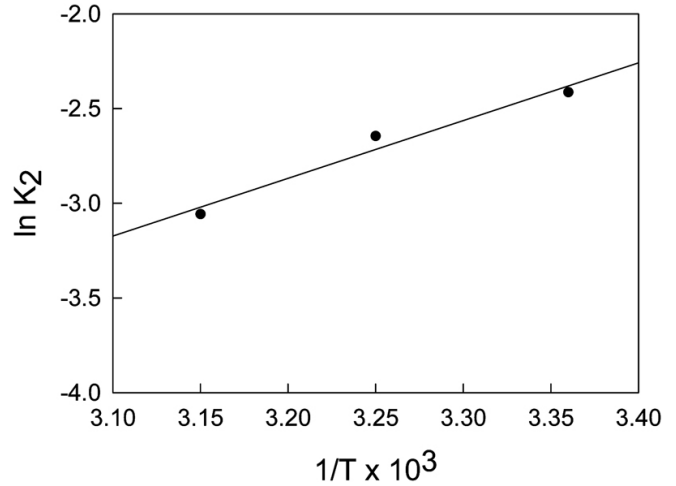


Figure 8. Plot of $\ln k_2$ vs. $1/T$ for estimation of thermodynamic parameters for adsorption of erythrosine onto activated carbon.

양의 값(293.24 J/mol K)을 갖는 것은 활성화탄에 에리스로신의 흡착이 진행됨에 따라 에리스로신의 주변에 고정되어 있던 물분자들이 용액 중으로 방출됨으로 인해 전체 흡착시스템의 자유도가 증가함에 따른 결과로 판단된다[18].

4. 결 론

본 연구에서 활성화탄에 대한 에리스로신의 흡착평형과 흡착역학에 대하여 조사하였다. 입상활성탄에 대한 에리스로신의 흡착속도는 약 3 h 정도면 평형흡착량의 80%까지 흡착되지만 최종 흡착평형 도달시 간까지 걸리는 시간은 약 9 h로 관찰되었다. 에리스로신의 초기농도가 증가할수록 활성화탄에 대한 흡착량이 증가하는 것으로 나타났다. 이 실험값들을 반응속도식에 적용하여 본 결과, 유사1차반응속도식에 대한 상관계수가 0.997~0.999로 유사1차흡착반응식의 상관계수 0.968~0.994로 컸으며, 실험으로 구한 평형흡착량과 유사1차반응속도식에 의해 구한 평형흡착량의 계산값이 일치도가 높아 본 흡착반응은 유사2차반응으로 진행됨을 알았다. 흡착평형관계는 등온흡착식에 적용하여 본 결과 Freundlich 등온식에 더 잘 맞는 것으로 나타났다. 또한 흡착반응온도가 높아질수록 평형흡착량이 증가하는 경향을 보여 흡열반응의 특성을 가지는 것으로 판단되었다. 유사1차반응속도 상수로부터 평가된 활성화에너지값은 25.29 kJ/mol로 물리흡착임을 알았다. 표준자유에너지가 -3.72~-9.62 kJ/mol로 흡착반응이 물리흡착이며 자발적으로 일어난다는 것을 알 수 있었다.

참 고 문 헌

1. Y. M. Kim, Characteristics and treatment method od dyestuff waste water, *Dicer Report, Topic Review*, **9**, 1 (2009).
2. S. L. Yankell and J. J. Loux, *J. Periodont*, **48**, 228 (1977).
3. T. F. X. Collins, T. N. Black, M. W. O-Donell, M. E. Shackelford, and P. Bulhack, *Food. Chem. Toxicol.*, **31**, 161 (1993).
4. Korea Food & Drug Administration, *Sindonga*. **590**, 198 (2008).
5. Y. Jheong, J. W. Kwon, and S. H. Min, *J. Pharmaceutical Investigation*, **14**, 50 (1984).
6. V. K. Gupta, A. Mittal, L. Kurup, and J. Mittal, *J. Colloid. Sci.*,

- 304, 52 (2006).
7. R. Jain and S. Sikarwar, *J. Hazard. Mater.*, **164**, 627 (2009).
 8. J. J. Lee and S. W. Yoon, *J. KSEE*, **31**, 499 (2009).
 9. I. A. W. Tan, A. L. Ahmad, and B. H. Hameed, *J. Hazard. Mater.*, **154**, 337 (2008).
 10. B. H. Fukukawa, *Activated carbon water treatment technology and management*, 63, Donghwa Technology, Seoul (2003).
 11. G. McKay, M. E. Guendi, and M. Nassar, *Water Res.*, **21**, 1513 (1987).
 12. A. Özcan and A. S. Özcan, *J. Harzad Mater.*, **B125**, 252 (2005).
 13. A. Mital, L. Kurup, and V. K. Gupta, *J. Harzad Mater.*, **B117**, 171 (2005).
 14. P. Chingombe, B. Saha, and R. J. Wakeman, *J. Colloid Interf. Sci.*, **302**, 408 (2006).
 15. P. Sivakumar and P. N. Palanisamy, *Int. J. Chem. Tech. Res.*, **1**, 502 (2009).
 16. H. Nollet, M. Roels, P. Lutgen, P. Van der Meeren, and W. Verstraete, *Chemosphere*, **53**, 655 (2003).
 17. M. J. Jaycock and G. D. Parfitt, *Chemistry of Interfaces*, Ellis Horwood Ltd., Chichester (1981).
 18. M. T. Sulak, E. Demirbas, and M. Kobya, *Biosource Technology*, **98**, 2590 (2007).