

야자계 활성탄에 의한 Brilliant Blue FCF 염료의 흡착 동역학 및 열역학에 관한 연구

이종집†

공주대학교 화학공학부
331-717 충남 천안시 서북구 부대동 275
(2015년 2월 2일 접수, 2015년 2월 26일 수정본 접수, 2015년 3월 3일 채택)

Adsorption Kinetics and Thermodynamics of Brilliant Blue FCF Dye onto Coconut Shell Based Activated Carbon

Jong Jib Lee†

Division of chemical Engineering, Kongju National University, 275 Budae-dong, Seobuk-gu, Cheonan, Chungnam 331-717, Korea
(Received 2 February 2015; Received in revised form 26 February 2015; accepted 3 March 2015)

요 약

야자계 활성탄을 사용하여 수용액으로부터 brilliant blue FCF 염료의 흡착에 대해 조사하였다. 회분식 실험은 흡착제의 양, 초기농도와 접촉시간과 온도를 흡착변수로 사용하여 수행하였다. 흡착평형자료는 Langmuir와 Freundlich 식을 사용하여 해석하였으며, Freundlich 식이 더 좋은 일치도를 나타냈다. 평가된 Freundlich 상수($1/n=0.129\sim 0.212$)로부터 활성탄에 의한 brilliant blue FCF의 흡착조작이 적절한 처리방법이 될 수 있음을 알았다. 흡착속도실험자료들을 유사일차반응속도식과 유사이차반응속도식에 적용해 본 결과, 흡착동역학은 유사이차반응속도식에 잘 맞는 것으로 나타났다. 흡수값의 Gibbs 자유에너지(-4.81~-10.33 kJ/mol)와 양수값의 엔탈피(+78.59 kJ/mol)는 흡착이 자발적이고 흡열과정으로 진행된다는 것을 나타낸다.

Abstract – Adsorption of brilliant blue FCF dye from aqueous solution using coconut shell based activated carbon was investigated. Batch experiments were carried out as function of adsorbent dose, initial concentration, contact time and temperature. The equilibrium adsorption data were analyzed by Langmuir and Freundlich model. The results indicate that Freundlich model provides the best correlation of the experimental data. Base on the estimated Freundlich constant ($1/n=0.129\sim 0.212$), this process could be employed as effective treatment method. Adsorption kinetics experimental data were modeled using the pseudo-first-order and pseudo-second-order kinetic equation. It was shown that pseudo-second-order kinetic equation could best describe the adsorption kinetics. Base on the negative Gibbs free energy value (-4.81~-10.33 kJ/mol) and positive enthalpy value (+78.59 kJ/mol) indicate that the adsorption is spontaneous and endothermic process.

Key words: Brilliant Blue FCF, Dye Adsorption, Adsorption Kinetic, Adsorption, Dye

1. 서 론

합성색소는 타르계와 비타르계로 나뉘며, 합성착색료로 많이 사용하고 있는 타르색소는 석탄 타르 중에 함유된 벤젠핵이나 나프탈렌핵으로부터 합성된 물질이다. 현재 식품첨가물로 허용되고 있는 것은 모두 산성 타르색소로써 화학구조에 따라 아조계(azo type), 크산틴계(xanthene type), 트리페닐메탄계(triphenylmethane type), 및

인디고계(sulfonated indigo type)로 분류되고 있다[1].

국내에서 사용을 허가하고 있는 식용색소 중에서 청색 1호로 알려진 brilliant blue FCF은 식품뿐만 아니라 의약, 염색분야에도 많이 사용되고 있는 트리페닐메탄계 타르계 색소의 일종으로 1일 허용 섭취 수준은 12.5 mg/kg·bw이다[2]. 그런데 타르계 색소는 아토피성 피부염과 알레르기성 비염, 결막염, 천식 등에 영향을 주며 과다 섭취하면 발암물질로 작용할 뿐만 아니라 최근에 와서 타르계 색소는 카테일 효과에 의해 주의력 결핍과 과잉행동장애(ADHD)를 유발하고, 황색 4호와 청색1호의 병용 조합한 경우에 신경세포에 미치는 흥분 독성실험에서 현저한 세포독성으로 신경세포의 신경돌기(neurite)의 발아(outgrowth)가 현저하게 억제되면서 신경세포가 분화되지 못하고 세포사멸을 하는 것으로 관측되어 신경세포 분화과정

†To whom correspondence should be addressed.

E-mail: jjlee@kongju.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

에 치명적인 위해성을 가할 수 있다는 가능성이 제기되고 있다[1,3].

Brilliant blue FCF의 흡착에 대한 선행연구를 살펴보면 Ketelsen과 Windel은 soil을 사용하여 brilliant blue FCF를 흡착하는 실험에서 pH가 증가할수록 최대흡착량이 커졌으며, soil의 유기탄소 함량이 많을수록 최대흡착량이 작아지지만 철과 수산화 알루미늄 함량은 흡착에 영향을 주지 않는다고 하였다[4]. Germán-Heins와 Flury는 soil의 점토성분이 많아지거나 또는 이온강도가 높아지거나 pH가 낮아질수록 brilliant blue FCF의 흡착량이 커지며, 흡착평형관계는 Langmuir식에 잘 맞는다고 하였다[5]. Gupta 등은 농산폐기물인 대두박(de-oiled soya)과 발전소 폐기물인 bottom ash를 사용하여 brilliant blue FCF를 흡착한 결과, 흡착속도는 대두박이 약 2배 빠르며, 초기농도의 약 95% 이상을 제거하여 흡착공정이 효과적이라는 것과 함께 pH 3이 최적 흡착영역이며, 흡착평형관계는 Freundlich식에 잘 맞았고, 자발적인 흡열반응이라고 발표하였다[6]. Wu 등은 mesoporous hybrid xerogel을 사용하여 brilliant blue FCF를 흡착한 결과, 흡착동력학은 유사이차반응속도식에 잘 맞았으며, 초기농도와 흡착온도가 상승할수록 흡착속도가 증가하였다. 내부확산단계가 총괄흡착속도의 율속단계이며, 평형흡착량은 초기농도, 온도, 용액의 산성도 및 이온강도가 커질수록 많아졌다고 발표하였다[7]. Mittal은 hen feather를 사용하여 brilliant blue FCF를 흡착한 결과, 30 °C, PH 2에서 용액에 대해 흡착제의 양 조절에 의해 초기농도(1×10^{-4} M)의 70~100%를 제거할 수 있고, 온도가 올라가면 흡착량이 증가하며, 경막확산기구가 흡착속도를 결정한다고 하였다[8].

이와 같은 연구에도 불구하고 아직까지 우수한 흡착능력을 가지고 있는 활성탄을 흡착제로 사용하여 타르색소인 brilliant blue FCF를 흡착한 연구는 이루어지지 않았다. 따라서 본 연구에서는 야자계 활성탄을 흡착제로 사용하여 brilliant blue FCF를 흡착제거하는 연구를 수행하여 흡착공정에 대한 기초자료를 얻고자 하였다. 먼저 등온흡착실험을 통해 흡착평형인자를 평가하여 흡착조각의 타당성을 판단해 보고, 흡착속도 실험을 통하여 초기농도와 흡착온도 등이 흡착 반응에 미치는 영향과 함께 열역학 파라미터를 평가하여 흡착공정에 대한 해석을 해보았다.

2. 실험

2-1. 실험재료

흡착제로 사용한 야자계 입상활성탄(DY Carbon Co.)은 전처리 과정으로 순수로 수회 세척한 후 건조기로 378±1 K에서 12시간 건조한 것을 필요한 양만큼 취하여, 373 K의 순수로 2시간 동안 침지시킨 후 사용하였다(이하 침지활성탄). 실험에 사용한 활성탄의 물리적 특성을 Table 1에 나타내었다. brilliant blue FCF는 $C_{37}H_{31}O_9N_2S_3Na_2$ (M.W. 792.88 g/mol)의 분자식을 가지며, 오정상사(주)의

Table 1. Physical properties of coconut shell based activated Carbon

| Properties | Unit | Value |
|---------------------------------|-------------------|---------|
| Average particle size | mm | 1.638 |
| Specific surface area | m ² /g | 1,735 |
| Density (at 25 °C) | (g/mL) | 0.48 |
| Iodine adsorption value | mg/g | 1,000 |
| Methylene blue adsorption value | mL/g | 180 |
| Ash | % | <10 |
| Hardness | % | 90 Min. |

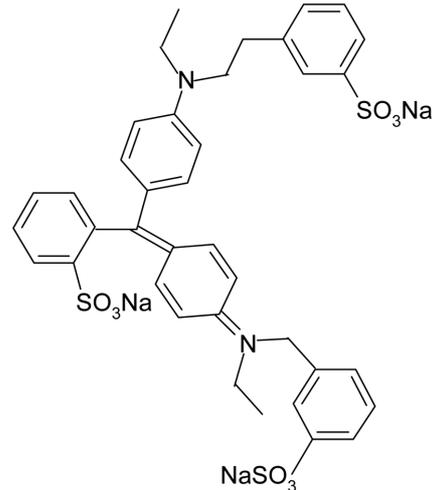


Fig. 1. Molecular structure of brilliant blue FCF.

함량 85% 시판용 식용색소를 시료로 사용하였다. 3,000 mg/L의 표준원액을 만들어 두고 어두운 곳에 보관한 후 필요시 희석하여 사용하였다. 화학구조는 Fig. 1과 같다.

2-2. 흡착실험

등온흡착실험은 303, 313, 323 K에서 초기농도 30 mg/L인 brilliant blue FCF 용액 50 mL에 침지 활성탄을 100~1,000 mg(이하 건조기준질량)의 범위에서 각각 유리병에 넣고 왕복식 항온수조(Jeiotec, BS-21)에서 100 rpm의 속도로 24시간 동안 흡착시켰다. 흡착이 끝나면 여과분리하여 여액의 농도를 UV-Vis 흡수분광기(Shimadzu, UV-1800)를 이용하여 최대흡수파장 630 nm에서 흡광도를 측정하여 결정하였다. 또한 흡착전과 후의 표면활성기의 특성변화를 조사하기 위하여 FT-IR (Thermo Scientific Co. Nicolet 6700)을 사용하여 분석하였다.

농도별 흡착속도실험은 brilliant blue FCF의 초기농도를 10, 20, 30 mg/L로 조정된 상태에서 100 rpm으로 24시간 흡착을 실시하고 1시간 간격으로 농도를 측정하였다. 등온흡착속도실험은 313, 323 K에서 초기농도 30 mg/L의 용액 50 mL에 침지활성탄 500 mg을 첨가하여 같은 방법으로 흡착시킨 후 매시간별로 흡착속도를 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 활성탄 첨가량의 영향

298 K에서 초기농도 30 mg/L의 brilliant blue FCF 용액 50 mL에 대하여 침지활성탄을 100~1,000 mg(건조기준질량) 범위에서 서로 다르게 첨가하고 24시간 항온진탕한 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 그림을 보면 활성탄의 투입량 증가에 따라 brilliant blue FCF의 흡착율도 증가하는데, 야자계 활성탄의 투입량이 100 mg에서 1,000 mg으로 증가함에 따라 흡착률은 18.67%에서 100%의 흡착율을 나타냈다. 실험결과에 의하면 활성탄을 900 mg 투입시 brilliant blue FCF를 100% 제거할 수 있지만 활성탄 첨가량 대비 흡착량 증가효과는 500 mg(흡착률 81.4%)까지는 직선적으로 가파른 기울기를 보이지만 그 이후의 기울기가 완만해져서 첨가량 대비 흡착률은 감소하는 것으로 나타났다. 또한 석탄계 활성탄 단위질량당의 흡착량은 활성탄의 투입량이 100 mg에서 500 mg으로 증가함에 따라 2.80

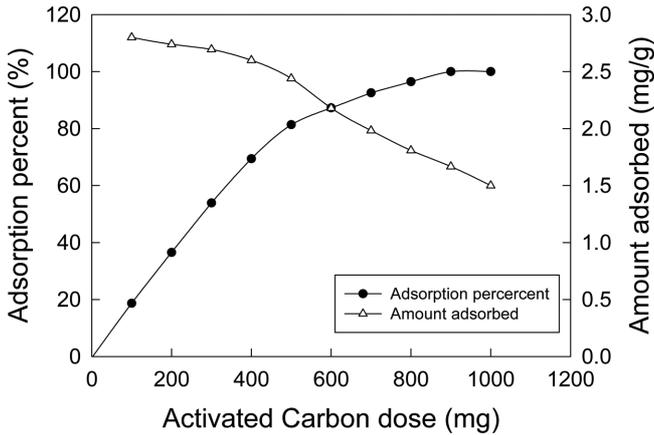


Fig. 2. Effect of coconut shell based activated carbon dose on adsorption of brilliant blue FCF (C_0 : 30 mg/L, 303 K).

mg/g에서 2.61 mg으로 완만하게 감소하지만 600 mg 이상이 되면 2.42 mg에서 1.5 mg으로 급격하게 감소한다. 활성탄의 투입량이 적을 때 단위질량당 흡착량은 크지만 흡착율이 낮기 때문에 효율적인 측면을 고려하여 최적활성탄 첨가량을 500 mg으로 선정하고 후속 실험을 수행하였다.

3-2. 활성탄의 표면특성변화

Brilliant blue FCF 흡착에 영향을 주는 야자계 활성탄의 표면 작용기에 대하여 알아보기 위해 FT-IR 분석을 실시하였으며, 그 결과를 Fig. 3에 제시하였다. 흡착 전과 후의 FT-IR 분석결과를 비교해 본 결과, brilliant blue FCF를 흡착하기 전에는 1055 cm^{-1} (피크 7)에서 carbon-oxygen group(C-O), 1600 cm^{-1} (피크 6)에서 carbonyl group (C=O), 1760 cm^{-1} (피크 5)에서 carboxy group(O=C-O), 2400 cm^{-1} (피크 4)에서 hydroxyl group(O-H), 2800 cm^{-1} (피크 3) 및 2900 cm^{-1} (피크 2)에서 hydrocarbon group(C-H) 및 3500 cm^{-1} 이상(피크 1)에서 나타난 hydroxyl group이 표면활성기로 존재함을 확인하였다. 흡착 후에는 피크 2(2800 cm^{-1})와 3(2900 cm^{-1})의 hydrocarbon group (C-H)이 소멸한 대신 피크 1(3500 cm^{-1} 이상)의 hydroxyl group과 피크 5(1600 cm^{-1})의 carbonyl group(C=O) 및 피크 6(1760 cm^{-1})의 carboxy group(O=C-O)이 아주 큰 변화를 나타내었다. 그 중 brilliant blue FCF의 흡착에 주로 관여하는 것은 carbonyl group(C=O)과 carboxy group(C=O, O=C-O)으로 보이며, hydroxyl group의 큰 변화는 활성탄의 표면에 물리 흡착된 수분 때문인 것으로 판단된다[9].

3-3. 등온흡착평형 해석

등온흡착평형실험은 303, 313, 323 K의 세 가지 온도에서 각각 실행하였다. brilliant blue FCF의 흡착공정에 대한 유효성과 메커니즘에 대한 정보를 얻기 위하여 실험값들을 Langmuir 와 Freundlich 등온흡착식에 적용한 결과는 각각 Fig. 4와 Fig. 5에 나타냈으며, 평가된 상수 값들은 Table 2에 종합하였다.

3-1-1. Langmuir 등온흡착식

Langmuir는 균일한 흡착제 표면에 있는 한정된 숫자의 흡착부위에 흡착질이 단분자층을 형성하는 것에 의해 흡착이 일어난다고 가정하였으며, 다음과 같은 식을 제시하였다.

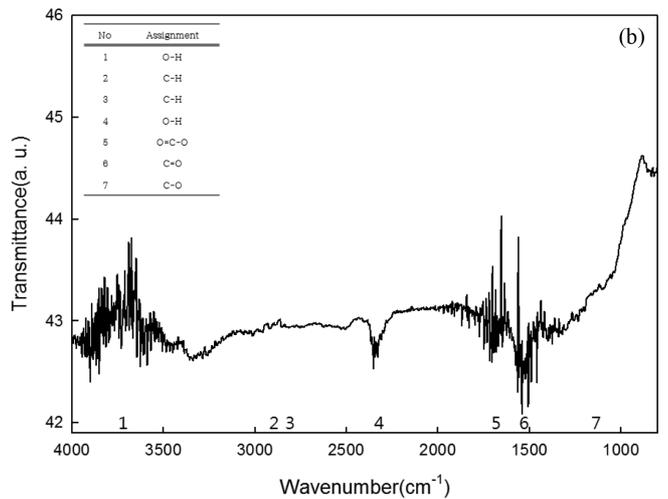
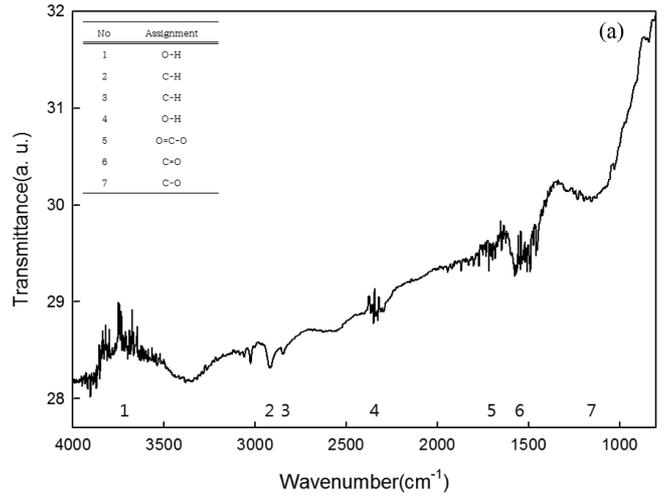


Fig. 3. FT-IR spectra for adsorption of coconut shell based activated carbon. (a) before adsorption, (b) after adsorption of brilliant blue FCF.

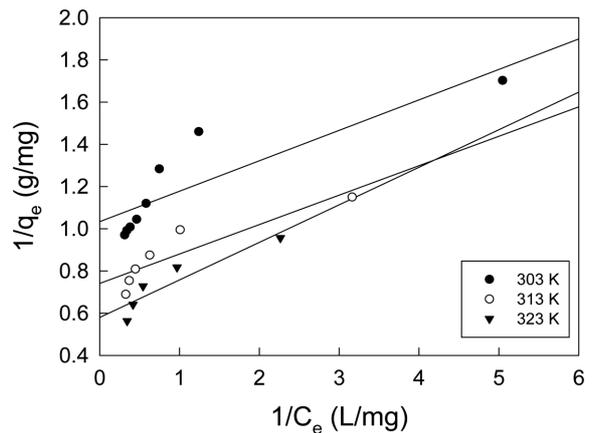


Fig. 4. Langmuir isotherms for brilliant blue FCF adsorption onto coconut shell based activated carbon at different temperatures.

$$\frac{1}{q_e} = \frac{1}{Q_o K_L C_e} + \frac{1}{Q_o} \quad (1)$$

여기서 q_e 는 흡착제 단위질량당 흡착된 흡착질의 양(mg/g), C_e 는 흡

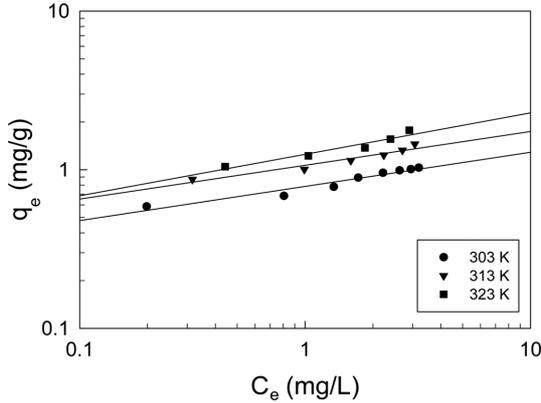


Fig. 5. Freundlich isotherms for brilliant blue FCF adsorption onto coconut shell based activated carbon at different temperatures.

Table 2. Langmuir and Freundlich isotherm constants for adsorption of brilliant blue FCF on coconut shell based activated Carbon

| Isotherms | Parameters | Temperature (K) | | |
|------------|-----------------------------------|-----------------|-------|-------|
| | | 303 | 313 | 323 |
| Langmuir | Q_o (mg/g) | 6.932 | 7.168 | 5.620 |
| | K_L (L/mg) | 0.020 | 0.026 | 0.055 |
| | r^2 | 0.876 | 0.901 | 0.923 |
| Freundlich | K_F (mg/g)(L/mg) ^{1/n} | 1.78 | 2.13 | 2.52 |
| | 1/n | 0.153 | 0.223 | 0.274 |
| | r^2 | 0.964 | 0.997 | 0.994 |

착질의 평형농도(mg/L), Q_o 와 K_L 은 이론최대흡착용량과 흡착속도와 관련된 Langmuir 상수이다. Table 2를 보면, 온도가 증가하면 Q_o 는 6.932, 7.168, 5.620 mg/g, K_L 은 0.020~0.055 L/mg 이었다. 그러나 흡착등온식과 흡착데이터의 일치도를 나타내는 r^2 값이 0.876~0.923으로 Langmuir식에 잘 맞지 않는 것으로 나타났기 때문에 흡착메카니즘은 단분자층 흡착이 아닐 가능성이 많다고 판단되었다[10].

3-1-2. Freundlich 등온흡착식

Freundlich는 흡착제의 표면은 불균일하며, 흡착은 다분자층을 형성한다고 보고 다음 식을 제시하였다.

$$\log q_e = \log K_F + \frac{1}{n} \log C_e \tag{2}$$

여기서 C_e 는 흡착질의 평형농도(mg/L), q_e 는 흡착제의 평형흡착량(mg/g)이고, Freundlich 상수인 K_F 는 흡착제의 흡착용량, n 은 흡착강도를 나타낸다. Table 2로부터, r^2 값이 0.964~0.997로 식에 대한 일치도가 Langmuir 식보다 아주 높아서 다분자층흡착이 일어나는 것으로 판단할 수 있다[10]. K_F 는 온도가 증가할수록 1.78<2.13<2.52 순으로 증가하였다. 분리계수(1/n)는 흡착조작의 유효성 판단에 사용하고 있는데, 적합한 흡착조작범위는 1/n = 0~1이고, 우수한 흡착조작범위는 1/n = 0.1~0.5 라고 하였다. 본 실험에서 평가된 분리계수(1/n) 값은 0.153~0.274로 아주 효과적인 흡착조작이 가능하다는 사실을 알 수 있었다[11].

3-4. 동력학적 해석

3-4-1. 반응속도식

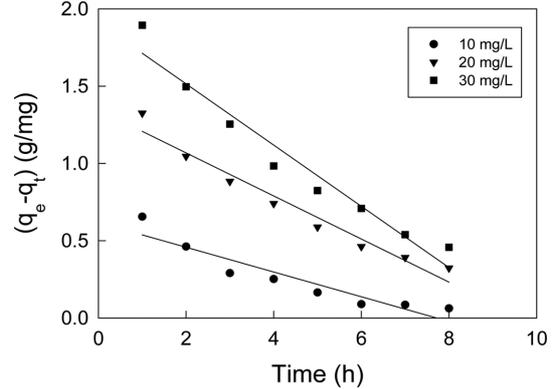


Fig. 6. Pseudo first order kinetics plots for brilliant blue FCF adsorption on coconut shell based activated carbon at different initial concentrations (AC dose : 500 mg, 303 K).

유사일차와 유사이차 반응속도식은 각각 다음과 같이 주어진다.

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \tag{3}$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \tag{4}$$

여기서 q_e 와 q_t 는 각각 평형상태와 t 시간에서 흡착된 brilliant blue FCF의 양(mg/g)이며, k_1 은 유사일차반응속도상수(1/h), k_2 는 유사이차반응속도상수(g/mg h)이다. q_t 는 시간당 흡착량으로 다음 식으로 나타낸다.

$$q_t = \frac{(C_o - C_t)V}{W} \tag{5}$$

실험값들을 유사일차 반응속도식에 적용한 결과는 Fig. 5에, 유사이차 반응속도식에 적용한 결과는 Fig. 6에 각각 나타냈다. 이들 그래프로부터 속도식의 파라미터 값들을 계산한 결과를 Table 3에 나타냈다. 속도식에 대한 일치도를 나타내는 r^2 값은 유사일차반응속도식(0.880~0.960)<유사이차반응속도식(0.993~0.995)로 야자계 활성탄에 의한 brilliant blue FCF의 흡착공정은 유사이차반응속도식에 더 잘 맞는 것으로 나타났다. 또한 (3)식의 절편값과 (4)식의 기울기로부터 계산한 평형흡착량($q_{e,cal}$) 값들을 실험값($q_{e,exp}$)들과 비교해 보기 위해 (6)식을 사용하여 오차백분율(error percent)을 구하였다.

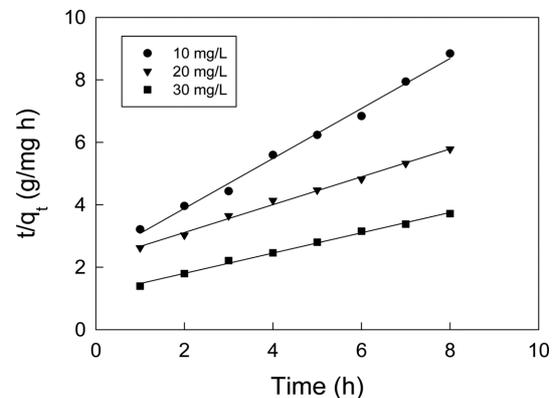


Fig. 7. Pseudo second order kinetics plots for brilliant blue FCF adsorption onto coconut shell based activated carbon at different initial concentrations (AC dose : 500 mg, 303 K).

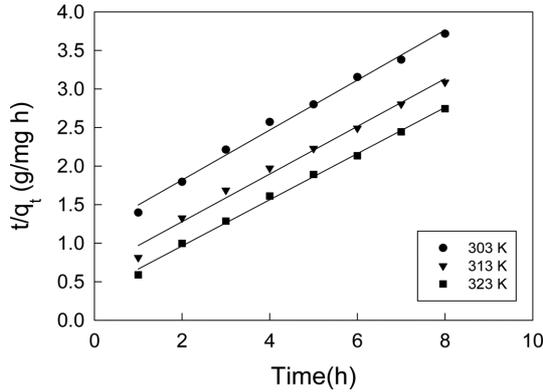


Fig. 8. Pseudo second order kinetics of brilliant blue FCF on coconut shell based activated carbon at different temperature (AC dose : 500 mg, 303 K).

$$\text{Error percent} = \frac{q_{e,cal} - q_{e,exp}}{q_{e,exp}} \times 100 \quad (6)$$

Table 3에서 알 수 있듯이 brilliant blue FCF의 초기농도가 10, 20, 30 mg/L일 때 유사일차반응속도식에 의해 계산한 평형흡착량과 실험값에 대한 오차율은 각각 42.48%, 125.31%, 159.94%이었고, 유사일차반응속도식에 의해 계산한 평형흡착량은 17.15%, 12.27%, 18.15%로 나타났다. 따라서 본 실험조건에서는 오차율 20% 이내를 나타낸 유사일차반응속도식이 유사일차반응속도식보다 더 적합하다 것을 알 수 있었다.

3-5. 열역학적 해석

흡착공정의 열역학적 파라미터 값들은 그 공정의 자발성을 평가하여 실제적인 공정운전에 필요한 중요한 지표로 사용될 수 있는데, 주로 Gibbs 자유에너지변화(ΔG), 엔탈피변화(ΔH) 및 엔트로피 변화(ΔS)와 같은 열역학적 파라미터들을 평가한다.

Gibbs 자유에너지변화는 다음 식으로 구할 수 있다.

$$\Delta G = -RT \ln K_d \quad (7)$$

$$K_d = \frac{q_e}{C_e} \quad (8)$$

여기서 K_d 는 분배계수이다. 흡착공정의 엔트로피와 엔탈피는 다음과 같은 Gibbs 자유에너지식으로부터 평가할 수 있다.

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (9)$$

K_d 값과 (7)과 (9) 식으로부터 구한 열역학적 파라미터 값들은 Table 4에 종합하여 나타냈다. Gibbs 자유에너지변화값은 자발성만을 나타내며 외부로부터 유입해야하는 열량을 나타내는 것은 아니다. 야자계 활성탄에 의한 brilliant blue FCF의 흡착공정은 흡착온도가 303,

Table 4. Pseudo second order kinetic model parameters of brilliant blue FCF on coconut shell based activated carbon at different temperature

| Temperature (K) | $q_{e,exp}$ (mg/g) | Pseudo second order kinetic model | | |
|-----------------|--------------------|-----------------------------------|----------------|-------|
| | | $q_{e,cal}$ (mg/g) | k_2 (g/mg h) | r^2 |
| 303 | 2.613 | 3.073 | 0.092 | 0.995 |
| 313 | 2.817 | 3.235 | 0.145 | 0.989 |
| 323 | 2.937 | 3.340 | 0.245 | 0.997 |

Table 5. Thermodynamic Parameters for Adsorption of brilliant blue FCF on coconut shell based activated carbon at different Temperature

| Temperature (K) | ΔH (kJ/mol) | ΔG (kJ/mol) | ΔS (J/mol K) |
|-----------------|-------------|-------------|--------------|
| 303 | | -4.81 | |
| 313 | 78.59 | -7.11 | 274.78 |
| 323 | | -10.33 | |

313, 323 K로 증가할수록 Gibbs 자유에너지변화값이 -4.81>-7.11>-10.33 kJ/mol 순으로 낮아졌기 때문에 흡착반응의 자발성은 온도가 올라 갈수록 더 높아진다는 것을 알 수 있었다. 또한 이 흡착공정은 일반적인 물리흡착의 자유에너지변화영역인 -20~0 kJ/mol 범위에 속하기 때문에 물리흡착공정으로 진행된다는 것도 확인하였다[12]. 엔탈피 변화값은 양의 값(+78.59 kJ/mol)으로 야자계 활성탄에 대한 brilliant blue FCF의 흡착공정이 흡열반응으로 진행되며 온도증가와 함께 흡착효율도 커지는 것을 설명해준다[13]. 엔트로피 변화값이 양의 값(+274.78 J/mol K)인 것은 야자계 활성탄에 대한 brilliant blue FCF의 친화력이 좋아서 흡착이 일어나는 동안 고액계면에서 무질서도가 증가하였기 때문이다[14].

4. 결 론

본 연구에서는 야자계 활성탄을 사용하여 brilliant blue FCF 염료를 흡착하는데 필요한 흡착평형과 흡착동역학 및 열역학 파라미터에 대하여 조사하였다.

- (1) 등온흡착평형관계를 검토한 결과 Langmuir 식보다 Freundlich 식이 더 잘 맞으며, Freundlich 식의 1/n 값(0.153~0.274)은 야자계 활성탄에 의한 흡착조작에 의해 brilliant blue FCF를 적절하게 처리할 수 있다는 것을 알려 주었다.
- (2) 흡착공정에 대한 동력학적 해석을 통해 반응속도식의 적용결과 유사일차반응속도식이 유사일차반응속도식에 비해 일치도가 높았으며, 계산된 평형흡착량은 실험값과 오차율 20% 이내로 잘 맞았다.
- (3) 야자계 활성탄에 대한 brilliant blue FCF의 흡착반응은 온도가 올라갈수록 Gibbs 자유에너지값이 감소하였기 때문에 자발성이 높

Table 3. Pseudo first order and pseudo second order kinetic model parameters of adsorption of brilliant blue FCF by coconut shell based activated carbon for different initial concentration at 303 K

| Initial concentration (mg/L) | $q_{e,exp}$ (mg/g) | Pseudo first order kinetic model | | | | Pseudo second order kinetic model | | | |
|------------------------------|--------------------|----------------------------------|-----------|-----------|-------|-----------------------------------|-----------|----------------|-------|
| | | $q_{e,cal}$ (mg/g) | error (%) | k_1 (h) | r^2 | $q_{e,cal}$ (mg/g) | error (%) | k_2 (g/mg·h) | r^2 |
| 10 | 1.067 | 1.855 | 42.48 | 0.080 | 0.880 | 1.250 | 17.15 | 1.314 | 0.993 |
| 20 | 1.997 | 3.846 | 125.31 | 0.139 | 0.960 | 2.242 | 12.27 | 1.010 | 0.995 |
| 30 | 2.601 | 6.761 | 159.94 | 0.199 | 0.953 | 3.073 | 18.15 | 1.029 | 0.995 |

아지는 것으로 나타났고, Gibbs 자유에너지값의 크기로 부터 물리흡착공정임을 알았다. 이 흡착공정은 양수 값의 엔탈피 변화(+78.59 kJ/mol)를 나타냈기 때문에 흡열반응으로 진행됨을 알았다.

References

1. Korea Food & Drug Administration, "Safety Assessment of Food Additives by Combined Exposure: Five Tar Food Colors," Seoul, pp.14-15(2007).
2. Korea Food & Drug Administration, "Dietary Intake of Food Additive by Korean Population-Coal Tar Dye, Combined Diet Intake," Hanhakmunhwa, Seoul, pp.120-131(2006).
3. Baek, H. H., Kwon, H. C., Choi, S. H. and Lee, K. W., "Safety of Food Additives," *Korean Food Safety Reserch Institute*, Seoul, pp. 47-84(2009).
4. Ketelsen, H. and Meyer-Windel, S., "Adsorption of Brilliant Blue FCF by Soils," *Geoderma*, **90**, 131-145(1999).
5. Germán-Heins, J. and Flury, M., "Sorption of Brilliant Blue FCF in Soils as Affected by pH and Ionic Strength," *Geoderma*, **97**, 87-101(2000).
6. Gupta, V. K., Mittal, A., Krishnan, L. and Mittal, J., "Adsorption Treatment and Recovery of the Hazardous Dye, Brilliant Blue FCF, over Bottom Ash and De-oiled Soya," *J. Colloid Interf. Sci.* **293**, 16-26(2006).
7. Wu, Z., Joo, H. and Lee, K., "Kinetics and Thermodynamics of the Organic Dye Adsorption on the Mesoporous Hybrid Xerogel," *Chem. Eng. J.*, **112**, 227-236(2005).
8. Mittal, A., "Use of Hen Feathers as Potential Adsorbent for the Removal of a Hazardous Dye, Brilliant Blue FCF, from Wastewater," *J. Hazard. Mater.*, **B128**, 233
9. Mahmoudi, K., Hosni, K., Hamdi, N. and Srasra, E., "Kinetics and Equilibrium Studies on Removal of Methylene Blue and Methyl Orange by Adsorption Onto Activated Carbon Prepared from Date Pits-A Comparative Study," *Korean J. Chem. Eng.*, **32**(2), 274-283(2015).
10. Lee, J. J., " Isotherm, Kinetic and Thermodynamic Characteristics for Adsorption of Congo Red by Activated Carbon," *Korean Chem. Eng. Res.*, **53**(1), 1-7(2015).
11. Sivakumar, P. and Palanisamy, P. N., "Adsorption Studies of Basic Red 29 by a Non Conventional Activated Carbon Prepared from Euphorbia Antiquorum L," *Int. J. Chem. Tech. Res.*, **1**(3), 502-510 (2009).
12. Monika, J., Garg, V. and Kadirvelu, D K., "Chromium (VI) Removal from Aqueous Solution, Using Sunflower Stem Waste," *J. Hazard. Mater.*, **162**, 365-372(2009).
13. Ngah, W. S. W. and Hanafiah, M. A. K. M., "Adsorption of Copper on Rubber (Hevea Brasiliensis) Leaf Powder: Kinetic, Equilibrium and Thermodynamic Studies," *Biochem. Eng. J.*, **39**, 521-530(2008).
14. Dorğan, M., Alkan, M., Demirbas, O., Özdemir, Y. and Özmetin, C., "Adsorption Kinetics of MaxilonBlue GRL onto Sepiolite from Aqueous Solutions," *Chem. Eng. J.*, **124**, 89-101(2006).