

부영양화 방지를 위하여 느릅나무 수피를 활용한 수중에서 질산성질소의 제거능 향상

최석순[†] · 최정훈 · 김민지* · 이영석^{*,†} · 하정협^{**} · 차형준^{**}

세명대학교 바이오환경공학과, *충남대학교 바이오응용화학과, **포항공과대학교 화학공학과
(2015년 8월 11일 접수, 2015년 8월 18일 심사, 2015년 8월 19일 채택)

Enhancement of Nitrate Removal Ability in Aqueous Phase Using *Ulmus davidiana* Bark for Preventing Eutrophication

Suk Soon Choi[†], Jung Hoon Choi, Min-Ji Kim*, Young-Seak Lee^{*,†}, Jeong Hyub Ha^{**}, and Hyung Joon Cha^{**}

Department of Biological and Environmental Engineering, Semyung University, Jecheon 27136, Korea

*Department of Applied Chemistry and Biological Engineering, Chungnam National University, Daejeon 34134, Korea

**Department of Chemical Engineering, Pohang University of Science and Technology, Pohang 37673, Korea

(Received August 11, 2015; Revised August 18, 2015; Accepted August 19, 2015)

초 록

본 연구에서는 부영양화 문제를 해결하기 위하여 강원 지역에서 발생하는 느릅나무 수피를 사용하여 질산성질소 제거능 향상에 대하여 고찰하였다. 회분식 실험에 의하여 수용액의 초기 pH가 3.5로 조절되었을 때, 10, 20 mg/L 질산성질소의 제거효율은 각각 43, 37%까지 증가하였다. 또한, 1.0 g/100 mL 느릅나무 수피를 8 h 사용하였을 때, 20 mg/L 질산성질소 제거효율은 68%를 나타내었다. 그리고 환산화 조건에서 느릅나무 수피의 개질 반응이 수행되었을 때, 질산성질소 흡착능 향상을 위한 최적의 불소와 산소 분압비가 1 : 9임을 도출하였다. 최적의 환산화 조건에서 개질된 느릅나무 수피를 사용하여 8 h 운전이 이루어졌을 때, 10, 20, 40 mg/L 질산성질소 제거효율은 각각 96, 95, 59%를 나타내었다. 따라서, 이러한 결과들은 수체에 함유된 고농도 질산성질소를 효과적으로 처리하는 수처리 기술로 사용될 수 있을 것이다.

Abstract

In the present work, the improvement of nitrate removal ability was investigated to resolve a eutrophication problem by using *Ulmus davidiana* (*U. davidiana*) bark generated from Gangwon province. When the initial pH of aqueous solution was adjusted to 3.5 in batch experiments, the removal efficiencies for 10 and 20 mg/L nitrate increased up to 43 and 37%, respectively. In addition, when *U. davidiana* bark of 1.0 g/100 mL was used for 8 h, the removal efficiency for 20 mg/L nitrate was 68%. Moreover, when reforming reaction of *U. davidiana* bark was performed under oxyfluorination conditions, the optimal ratio of partial pressure between fluorine and oxygen was 1 : 9 for an enhanced nitrate adsorption amount. When reformed *U. davidiana* bark was used for 8 h operation under the optimal oxyfluorination condition, removal efficiencies for 10, 20 and 40 mg/L nitrate were found to be 96, 95 and 59%, respectively. Collectively, these results suggest that our water treatment technology can be effectively utilized to treat high concentrations of nitrate in water bodies.

Keywords: *Ulmus davidiana* bark, removal efficiency for nitrate, oxyfluorination

1. 서 론

질산성질소는 질소 순환과정에서 NO₃⁻로서 자연계에 존재하며 무기비료, 부패한 동식물, 분변, 생활하수, 공장폐수 등으로부터 환경에

배출된다고 알려졌다[1]. 또한 질산성 질소는 호수, 만, 바다, 못과 같은 수체(water body)에서 부영양화를 일으킨다고 밝혀졌다[2]. 그리고 질산성질소는 체내에서 발암물질인 nitrosamine로 환원되어 암을 유발시킬 수 있으며, 영유아에게는 산소 전달을 방해하는 청색증의 원인 물질로 알려졌다[3,4].

수중에서의 질산성질소 제거에는 역삼투, 이온교환, 전기투석, 화학적 처리와 같은 물리적 또는 화학적 공정들이 사용되었다[5-9]. 그러나 이러한 기술들은 오염된 물로부터 질소 제거에 효과적이었으나, 실제적인 pilot 규모의 운전이 이루어질 경우 매우 비경제적이라고 보고되었다[10]. 또한, 화학적 처리는 화학 약품 사용의 추가적 사용으로 인하여 독성 물질이 방출된다고 알려졌다[11]. 그리고 생물학적 탈질 처리는 효과적이라고 입증되었으나, 생물학적 제거에서는 유기탄

[†] Corresponding Author: S. S. Choi, Semyung University, Department of Biological and Environmental Engineering, Jecheon 27136, Korea / Y.-S. Lee, Chungnam National University, Department of Applied Chemistry and Biological Engineering, Daejeon 34134, Korea
Tel: +82-43-649-1337, +82-42-821-7007
e-mail: sschoi@semyung.ac.kr, youngslee@cnu.ac.kr

소, 영양 염류 및 병원균을 제거하는 추가적인 처리가 요구되며 낮은 제거속도와 pH, 온도, 염분 변화에 매우 민감하다고 밝혀졌다[11]. 따라서, 이러한 단점들을 해결할 수 있는 새로운 처리 기술의 개발이 필요하게 되었다.

최근 들어 질산성 질소제거를 위한 흡착 기술은 경제적이고 운전이 쉽다고 알려졌으며, 또한 대부분의 흡착제는 재활용할 수 있으며 결과적으로 폐기물 발생량을 줄일 수 있다고 보고되었다[12]. 이에 본 연구에서는 수중에 함유된 질산성 질소를 효과적으로 처리하는 기술로서 강원 지역에서 쉽게 구할 수 있는 느릅나무 수피를 흡착제로 사용하였다. 이 느릅나무 수피는 플라보노이드, 사포닌, 탄닌질 등 많은 양의 점액질 성분이 함유되었다고 밝혀졌다[13]. 특히, 느릅나무 수피는 다른 나무 수피와 비교하여 점액질 성분이 높기 때문에 수중에 함유된 오염물질의 흡착 능력을 증가시킬 수 있다고 판단되었다. 그리고 현재까지 느릅나무 수피를 사용하여 수중에 함유된 질산성질소 제거효율에 관한 실험적 고찰이 이루어지지 않았다. 따라서, 본 연구에서는 느릅나무 수피를 이용하여 고농도 질산성질소를 효과적으로 제거하는 수처리 기술로 개발함으로써 수체의 부영양화 방지 대책으로 활용하고자 하였다.

2. 실험재료 및 방법

2.1. 재료 및 실험방법

본 실험에서는 강원 지역에서 발생하는 느릅나무 수피를 활용하여 수중에 함유된 질산성질소를 효과적으로 처리하고자 하였다. 느릅나무 수피는 목재 표면에서 2 mm에 존재하는 부분에서 채취하였으며, 여기서 얻어진 시료는 믹서기(FM-909T, Hanil Co., Korea)를 사용하여 분쇄 공정을 2 h 동안 수행하였다. 그리고 시료는 체진동기(Analysette 3, Fritsch Co., Germany)를 사용하여 입자를 분리하였다. 또한 분리된 시료는 건조기(J-DSA1, Jisico Co., Korea)를 이용하여 45 °C 조건에서 24 h 건조한 후 실험에 이용하였다.

수중에 함유된 질산성질소를 제조하고자 KNO₃ (Samchun Chemical Co., Korea)를 이용하였다. 이때 표준 용액 100 mg/L을 제조한 후 10, 20, 40 mg/L 질산성 질소로 희석하여 실험에 사용하였다. 또한 일정량의 느릅나무 수피를 250 mL 삼각플라스크에 주입하여 130 rpm의 교반속도가 유지되는 shaking incubator (IS-971R, Jeiotech Co. Korea)에서 실험이 이루어졌다.

그리고, 수중에 존재하는 질산성질소의 흡착량을 향상하고자, 흡산소불화 반응을 수행하였다. 이 흡산소불화 반응은 상온에서 2 g 느릅나무 수피에 질소가스를 사용하여 2회 배기하고, 총 반응압력이 0.05 MPa에서 불소가스와 산소가스의 분압비가 각각 1 : 9, 2 : 8, 3 : 7이 되도록 주입하였으며 10 min 동안 반응이 이루어졌다. 이 흡산소불화 처리에 의하여 물리적으로 개질된 느릅나무 수피를 이용하여 수중에 함유된 질산성 질소 제거능력 향상에 관한 실험을 수행하였다.

2.2. 분석방법

본 연구에서는 Shaking incubator를 사용하여 일정한 시간 동안 흡착 반응이 이루어진 후 시료를 채취하였다. 여기서 채취한 시료는 5000 rpm에서 15 min 동안 원심분리기(Micro-12 Hanil, Korea)를 사용하여 고액 분리가 이루어졌다. 이때 얻어진 상등액은 0.45 µm micro filter (MFS, Japan)를 이용하여 여과하였으며, UV/VIS Spectro-photometer (UV-1601PC Shimadzu, Japan)를 사용하여 410 nm 파장에서 수중에 존재하는 질산성 질소의 농도를 분석하였다. 그리고 미처리 및 흡산소

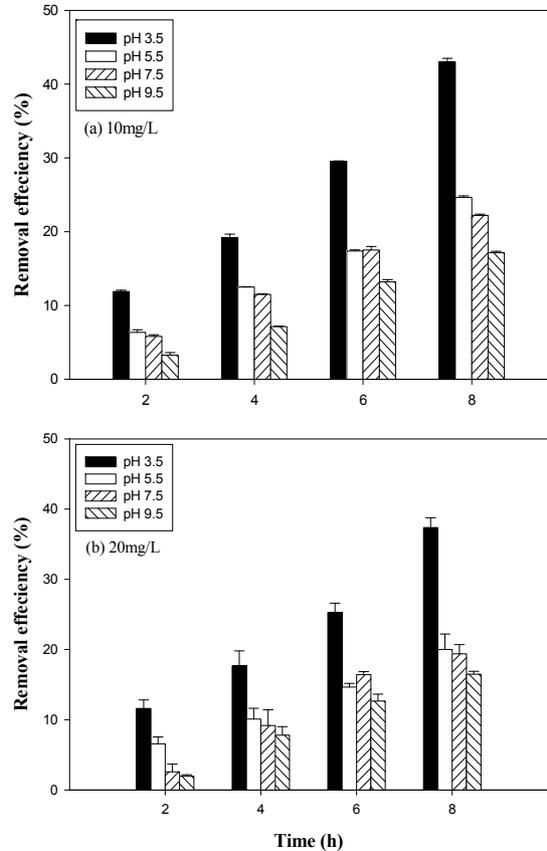


Figure 1. Effect of initial pH on the removal of 10 and 20 mg/L nitrate. Experimental Condition : 25 °C temperature, 0.2 g/100 mL *U. davidiana* Bark, 8 h reaction time.

불화 처리된 느릅나무 수피 비표면적과 기공 특성 변화는 ASAP 2020 (Micromeritics Ins. Corp., US)를 이용하였으며, 77 K에서 질소기체 흡·탈착에 의하여 분석이 이루어졌다[14]. 모든 시료는 423 K에서 6 h 동안 전처리를 실시하였고 비표면적과 총기공은 각각 Brunauer-Emmett-Teller (BET), Density-Functional Theory (DFT) 방법을 사용하여 계산하였다[15].

3. 결과 및 고찰

본 연구에서는 강원 지역에서 발생하는 느릅나무 수피를 사용하여 수중에 함유된 질산성질소의 제거효율에 대하여 살펴보았다. 또한 느릅나무 수피의 흡산소불화 처리에 의하여 질산성질소의 흡착량과 수중에 함유된 10, 20, 40 mg/L 질산성질소의 제거능 향상에 대한 실험적 고찰이 이루어졌다.

수용액의 pH는 오염물질들의 이온화 정도와 흡착제 표면 전하에 영향을 미치고, 수소 이온과 수산 이온은 흡착제에 강하게 흡착 현상을 나타낸다고 밝혀졌으며, 그 결과 수용액의 pH는 다른 이온들의 흡착에 영향을 미친다고 보고되었다[16]. 따라서, 본 실험에서는 초기 pH 변화(3.5, 5.5, 7.5, 9.5)에 따른 수중에 함유된 10, 20 mg/L 질산성 질소의 제거효율을 고찰하였다. Figure 1(a)에 나타난 것과 같이, 10 mg/L 질산성질소는 8 h 흡착 반응 기준으로 초기 pH를 3.5로 조절할 경우 43%의 가장 높은 제거효율을 나타내었으며, 초기 pH를 9.5로 조절할 경우 17%의 가장 낮은 제거효율을 구하였다. 또한, 운전 시간이

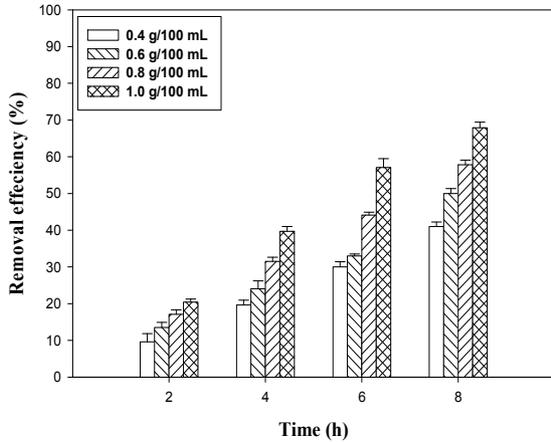


Figure 2. Effect of *U. davidiana* bark dosage on the removal of 20 mg/L nitrate. Experimental Condition : 25 °C temperature, 3.5 initial pH, 8 h reaction time.

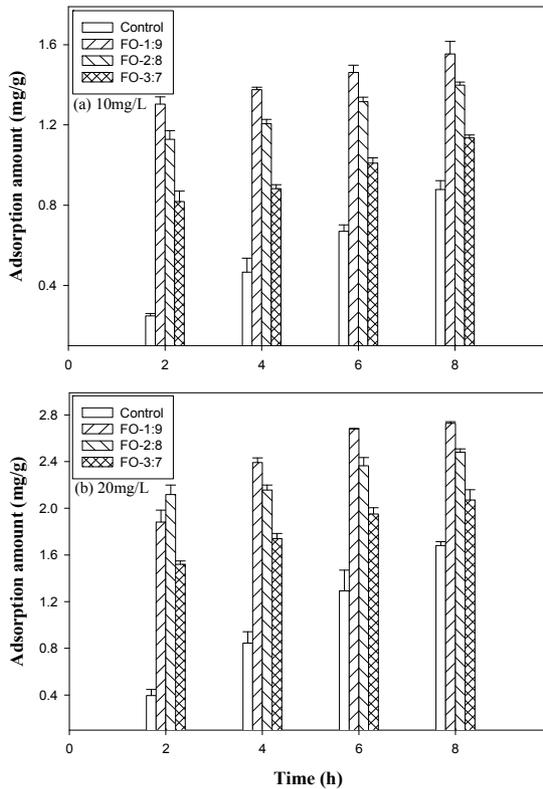


Figure 3. Comparisons of nitrate adsorption amount using various oxyfluorination condition. Experimental Condition : 25 °C temperature, 0.5 g/100 mL *U. davidiana* bark, 3.5 initial pH, 8 h reaction time.

증가할수록 질산성질소의 제거효율이 향상됨을 알 수 있었다. 그리고, 초기 pH에 변화에 의한 20 mg/L 질산성질소의 제거효율은 10 mg/L 질산성질소의 경우의 거의 유사한 제거 특성을 나타내었으며, 8 h 흡착 반응 기준으로 초기 pH를 3.5로 조절하였을 때 37%의 가장 높은 제거효율과 3.48 mg/g의 최대 흡착량을 구할 수 있었다. 그러나 Figure 1(b)에 보인 것과 같이, 초기 pH를 9.5로 조절하였을 때 17%의 가장 낮은 제거효율과 1.76 mg/g의 최소 흡착량을 얻을 수 있었다. 위의 실험결과로부터 수용액의 초기 pH가 3.5로 조절되었을 때, 10, 20

Table 1. Physical Characterization of Raw and Oxyfluorinated *U. davidiana* Bark

Sample	Specific surface area (m ² /g)	Total pore volume (cm ³ /g)
Control	3.17	0.0074
FO-1:9	4.45	0.0075
FO-2:8	3.40	0.0060
FO-3:7	4.54	0.0046

mg/L 질산성질소의 제거효율은 각각 43, 37%까지 증가하였다.

Figure 2에서는 느릅나무 수피 주입 농도 변화(0.4, 0.6, 0.8, 1.0 g/100 mL)에 의한 20 mg/L 질산성질소의 제거효율에 대하여 고찰하였다. 이 실험에서 느릅나무 수피의 농도가 높을수록 수중에 함유된 질산성질소 제거효율이 증가됨을 알 수 있었다. 또한 반응 시간이 증가할수록 모든 주입 농도에서 질산성질소의 제거능력이 향상되었으며, 1.0 g/100 mL 느릅나무 수피를 주입하여 8 h 흡착이 수행되었을 때 20 mg/L 질산성질소는 68%의 제거효율을 도출할 수 있었다. 그러나, 수중에 잔존하는 질산성질소의 높은 제거효율을 얻기 위해서는 흡착제의 물리적 또는 화학적 개질 공정이 필요함을 알 수 있었다.

그리고 수중에 함유된 10과 20 mg/L 질산성질소의 흡착능력 향상을 위하여 느릅나무 수피에 불소가스와 산소가스 분압비 변화(1 : 9, 2 : 8, 3 : 7)에 의한 함산소불화 처리 공정을 수행하였다. Figure 3(a)에 나타난 것과 같이, 10 mg/L 질산성질소를 처리한 경우 산소가스 분압비가 높을수록 수중에 함유된 질산성질소 흡착량이 증가되었으며, 또한 흡착 시간이 경과할수록 질산성질소 흡착량이 증가함을 알 수 있었다. 이 실험에서 불소가스와 산소가스 분압비가 1 : 9 조건에서 8 h 반응이 이루어졌을 때 1.55 mg/g의 질산성질소 흡착량을 구할 수 있었으며, 그 결과 물리적 개질이 수행되지 않은 느릅나무 수피(control)와 비교하여 질산성질소 흡착량이 77% 향상된 결과를 도출하였다. 또한 Figure 3(b)에 나타난 것과 같이, 20 mg/L 질산성질소를 처리한 경우 불소가스와 산소가스 분압비 1 : 9인 조건에서 4 h 반응 경과 후 비교적 높은 흡착량을 나타내었으며, 그 이후 지속적으로 흡착량이 증가됨을 알 수 있었다. 또한 이 조건(불소가스와 산소가스 분압비 1 : 9)에서 8 h 흡착이 이루어졌을 때, 2.73 mg/g의 최대 질산성질소 흡착량을 구할 수 있었다. 위의 실험 결과들로부터 수중에 함유된 10, 20 mg/L 질산성질소 제거효율 향상을 위한 최적의 불소가스와 산소가스 분압비가 1 : 9임을 알 수 있었다. 그리고 Table 1에 나타난 것과 같이, 함산소 불소관능기가 느릅나무 표면에 처리됨으로써 비표면적과 총 기공 부피의 세공구조 변화 및 관능기에 의한 흡착제의 표면 특성이 크게 영향을 미치는 것으로 판단되었다. 본 실험조건인 FO-1 : 9인 경우에서는 표면 식각(분해) 반응이 아닌 함산소 불소화 관능기의 표면 돌기(anchor) 구조 도입에 의하여 비표면적이 증가하였고 총 기공 부피는 Control과 비교하여 미미하게 증가하였다. 또한 FO-2 : 8 및 FO-3 : 7의 경우에는 함산소 불소관능기가 느릅나무 표면과 직접 반응하여 흡착제 표면에서 식각 반응을 일으킨 것으로 나타났다. 그리고 흡착제 표면의 식각 반응 정도에 따라 비표면적이 증가(FO-3 : 7)하거나 감소(FO-2 : 8)하였다. 즉, FO-2 : 8인 경우에는 식각 반응으로 인하여 세공구조가 크게 무너지게 되어 비표면적과 총기공 부피가 감소하게 되었다. 이와 비교하여 FO-3 : 7인 경우에는 표면에 다량의 함산소 불소관능기가 도입되기 때문에 표면 돌기 구조의 증가로 인하여 비표면적은 다시 증가하게 되었으나, 여전히 식각 반응에 의

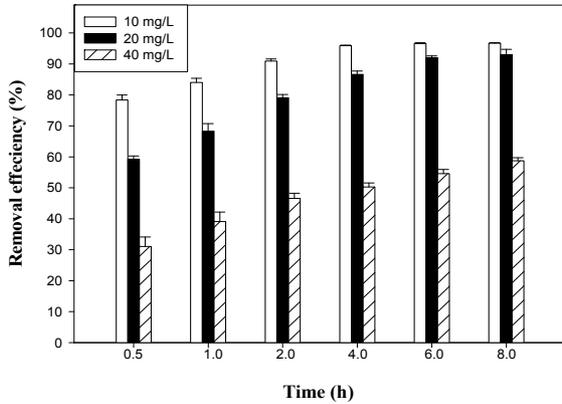


Figure 4. Removal of 10, 20 and 40 mg/L nitrate using modified *U. davidiana* bark. Experimental Condition : 25 °C temperature, 1.0 g/100 mL *U. davidiana* bark, 3.5 initial pH, 8 h reaction time.

하여 총기공 부피가 계속해서 감소하게 되었다.

또한, 수중에 함유된 질산성질소의 제거효율은 비표면적과 총 기공 부피 모두 영향을 받지만, 더욱 크게 영향을 받는 것은 느릅나무 표면에 도입된 표면관능기의 불소와 산소 비율임을 알 수 있었다. 결과적으로 비표면적과 총 기공부피가 큰 조건에서 흡산소 불소화 반응에 의하여 도입된 관능기가 느릅나무 표면에 존재할 경우 수중에 함유된 질산성질소의 제거효율을 향상시킨 것으로 판단되었다.

Figure 4에 나타난 것과 같이, 최적의 흡산소불화 조건(불소가스와 산소가스 분압비가 1 : 9)에서 얻은 느릅나무 수피를 이용하여 수중에 함유된 10, 20, 40 mg/L 질산성질소 제거효율에 관하여 고찰하였다. 그 결과 10 mg/L 질산성질소는 4 h 반응이 이루어졌을 때 96%의 높은 제거효율을 얻을 수 있었으며, 그 이후 거의 일정한 제거효율을 나타내는 흡착 평형에 도달함을 알 수 있었다. 또한 20 mg/L 질산성질소의 경우에서도 반응 초기 단계부터 질산성질소의 높은 제거효율을 보였으며, 8 h 반응이 이루어졌을 때 95%의 제거효율을 나타내었다. 한편, 40 mg/L 질산성질소는 반응 30 min에 도달하였을 때 31%의 낮은 제거효율을 보였으며 그 이후 제거효율이 소폭 증가하였다. 그리고 40 mg/L 질산성질소의 경우 8 h 반응이 이루어졌을 때 59% 제거효율을 나타내었다. 따라서, 수중에 존재하는 40 mg/L 질산성 질소 제거효율을 향상시키기 위한 추가적 공정이 필요함을 알 수 있었다. 이를 위하여 향후, 느릅나무 수피에 산성 또는 염기성 약품 첨가에 의한 화학적 개질 반응에 관한 연구가 이루어져야 할 것이다. 이러한 화학적 개질 반응의 최적 조건이 도출되면 수중에 함유된 40 mg/L 이상 비교적 고농도 질산성질소의 흡착 능력이 증가되어서, 그 결과 질산성질소의 제거효율이 크게 향상될 수 있을 것으로 판단되었다. 최종적으로 위의 실험으로부터 얻은 결과들은 수중에 함유된 비교적 고농도인 10, 20, 40 mg/L의 질산성질소를 효과적으로 처리함으로써 수계의 부영양화 방지 기술로서 유용하게 사용될 수 있을 것이다.

4. 결 론

본 연구에서는 수체(water body)의 부영양화 문제를 해결하기 위하여 느릅나무 수피를 흡착제로 사용하여 수중에 함유된 질산성질소를 효과적으로 제거하였다. 회분식 실험을 통하여 수용액의 초기 pH가 3.5로 조절되었을 때, 10, 20 mg/L 질산성질소의 제거효율은 각각 43, 37%까지 증가하였다. 또한 느릅나무 수피 주입 농도와 흡착 시간을

증가하였을 때 질산성질소의 제거효율이 향상되었으며, 그 결과 1.0 g/100 mL 흡착제가 사용되었을 때 20 mg/L 질산성질소의 제거효율은 68%를 나타내었다. 그리고 수중에 잔존하는 질산성질소 제거효율 향상을 위하여 흡착제의 물리적 개질 공정이 필요함을 알 수 있었다. 이를 위하여 본 연구에서는 흡산소불화 조건에 의한 흡착제 개질 반응을 수행하였다. 이 흡산소불화 개질 반응에서 질산성질소의 흡착능 향상을 위한 최적의 불소와 산소 분압비가 1 : 9임을 알 수 있었다. 또한, 최적의 흡산소불화 조건에서 개질된 느릅나무 수피를 이용하여 8 h 운전이 이루어졌을 때, 10, 20, 40 mg/L 질산성질소 제거효율은 각각 96, 95, 59%를 나타내었다. 따라서, 본 실험에서 얻어진 결과들은 수중에 함유된 비교적 고농도 질산성질소를 효과적으로 제거하는 수처리 기술로서 충분히 활용될 수 있음을 보여주었다.

References

1. J. Y. Jeong, J. H. Park, W. H. Choi, and J. Y. Park, Continuous removal of nitrate and coliform using bipolar ZVI packed bed electrolytic cell, *J. Kor. Soi. Water and Wastewater*, **25**(5), 651-658 (2011).
2. P. Loganathan, S. Vignewaran, and J. Kandasamy, Enhanced removal of nitrate from using surface modification of adsorbents-A review, *J. Environ. Manage.*, **131**, 363-374 (2013).
3. C. Duncan, H. Li, R. Dykhuizen, R. Frazer, P. Johnson, G. MacKnight, L. Smith, K. Lamza, H. McKenzie, L. Batt, D. Kelly, M. Golden, N. Benjamin, and C. Leifert, Protection against oral and gastrointestinal disease: Importance of dietary nitrate intake, oral nitrate reduction and enterosalivary nitrate circulation, *Comp. Biochem. Physiol.*, **118A**(4), 939-948 (1997).
4. K. O. Choi, S. J. Seo, and S. Ko, Nitrate nitrogen reduction technology for safe groundwater drinking, *Food Eng. Prog.*, **18**(1), 36-41 (2014).
5. P. M. Ayyasamy, K. Shanthi, P. Lakshmanaperumalsamy, S. J. Lee, N. C. Choi, and D. J. Kim, Two-stage removal of nitrate from groundwater using biological and chemical treatments, *J. Biosci. Bioeng.*, **104**(2), 129-134 (2007).
6. J. Bohdziewicz, M. Bodzek, and E. Wasik, The application of reverse osmosis and nanofiltration to the removal of nitrates from groundwater, *Desalination*, **121**, 139-147 (1999).
7. S. G. Lehman, M. badruzzaman, S. Adham, D. J. Roberts, and D. A Clifford, Perchlorate and nitrate treatment by ion exchange integrated with biological brine treatment, *Water Res.*, **42**, 969-976 (2008).
8. K. Kesore, F. Janowski, and V. A. Shaposhnik, Highly effective electrodialysis for selective elimination of nitrates from drinking water, *J. Memb. Sci.*, **127**, 17-24 (1997).
9. G. C. C. Yang and H. L. Lee, Chemical reduction of nitrate by nanosized iron: Kinetics and pathways, *Water Res.*, **39**, 884-894 (2005).
10. A. Kapoor and T. Viraraghavan, Nitrate removal from drinking water-Review, *J. Environ. Eng.*, **123**(4), 371-380 (1997).
11. X. Xu, B. Gao, Q. Yue, Q. Li, and Y. Wang, Nitrate adsorption by multiple biomaterial based resins: Application of pilot-scale and lab-scale products, *Chem. Eng. J.*, **234**, 397-405 (2013).
12. X. Xu, B. Gao, X. Tan, X. Zhang, Q. Yue, Y. Wang, and Q. Li, Nitrate adsorption by stratified straw resin in lab-scale columns, *Chem. Eng. J.*, **226**, 1-6 (2013).

13. H. J. Gwon, E. J. Park, J. B. Choi, J. Y. Lim, J. O. Jeong, Y. M. Shin, S. I. Jeong, J. S. Park, Y. M. Lim, Y. H. Choi, and S. S. Kim, Radiation synthesis and anti-inflammatory evaluation of polysaccharide hydrogels from *Ulmus Davidiana* Var. *Japonica*, *Polymer(korea)*, **38**(1), 69-73 (2014).
14. M. J. Kim, M. J. Jung, S. S. Choi, and Y. S. Lee, Effect of the fluorination of activated carbons on the chromium ion adsorption, *Appl. Chem. Eng.*, **26**(1), 92-98 (2015).
15. S. J. Gregg and K. S. W. Sing, *Adsorption surface and porosity*, Second ed., 195, Academy Press, London (1982).
16. M. N. Mohamad Ibrahim, W. S. Wan Ngah, M. S. Norliyana, W. R. Wan Daud, M. Rafatullah, O. Sulaiman, and R. Hashim, A novel agricultural waste adsorbent for the removal of Lead(II) ions from aqueous solution, *J. Hazard. Mater.*, **182**, 377-385 (2010).