

변형 알루미나를 이용한 저농도 불소이온 제거 연구

김소영[†] · 김주희 · 김현자 · 조영상

한국과학기술연구원 청정기술연구센터

(2004년 4월 22일 접수, 2005년 2월 12일 채택)

A Study on the Removal of Low-concentration Fluoride-ion by Modified Alumina

So-Young Kim[†] · Ju Hee Kim · Hyoun-Ja Kim · Young-Sang Cho

Clean Technology Research Center, Korea Institute Science and Technology, Department of Chemical Engineering

ABSTRACT : The typical treatment method for fluoride polluted water is the flocculation and precipitation method which usually is capable of reducing the fluoride concentration down to the level of about 10 ppm. However, this method is no longer effective for the treatment of contaminated water having less than 10 ppm of fluorides.

To remove fluorides in polluted water from the fluoride concentration between 1 to 10 ppm, several adsorbents were prepared mainly based on an activated alumina and the fluoride removal efficiencies of the adsorbents were analyzed.

The best fluoride removal efficiency was obtained when the activated alumina treated by sulfuric acid was used as the adsorbent. A proper calcination temperature for the sulfuric acid contained activated alumina was found to be about 500°C.

An adsorption isotherm for the adsorbent was also obtained by using Freundlich model. The values of the constants in Freundlich isotherm model were calculated to be $K=6.63$ and $1/n=0.29$ based on the results obtained from the series of batch type adsorption experiments.

Key Words : Modified Alumina, Fluoride-Ion, Isotherm of Freundlich

요약 : 불소는 화학활성이 높아 반도체, 유리, 금속가공 등의 표면처리 및 세정제로 넓게 사용되고 있으며, 배출에 관해서는 수질환경보전법에 기준이 정해져 있다. 따라서 불소폐수는 일정한 수준 이하까지 불소를 제거하여 방출하여야 하며 일반적으로 고농도의 불소를 함유한 폐수처리에는 응집 침전법이 사용되어왔다. 그러나 이 방법은 10 ppm 이하의 저농도 불소 제거에는 효과가 없었다. 본 연구에서는 수용성 산을 함침시켜 소성한 변형 알루미나를 이용하여 저농도 제거가 어려운 불소 이온을 흡착에 의해 제거하는 기술을 개발하고자 하였다. 저농도 불소 이온을 제거하기 위해서 변형 알루미나를 이용하여 회분식 실험을 실행하였고, 흡착제 조성, 소성 온도, 흡착제의 투입량과 교반시간에 따른 제거효율을 조사하였다. 불소 이온의 가장 좋은 제거율은 황산으로 처리된 변형 알루미나에서 얻을 수 있었으며, 변형 알루미나 제조시의 적절한 소성온도는 500°C였다.

또한 본 연구에서는 흡착등온식으로 널리 알려진 Freundlich식을 이용하여 흡착등온식을 구하였다. 회분식 실험을 통해 얻은 결과를 Freundlich 흡착 등온식에 적용한 결과 Freundlich 흡착 등온식의 상수 K 값은 6.63이었고, $1/n$ 은 0.29을 얻을 수 있었다.

주제어 : 변형 알루미나, 불소이온, Freundlich 흡착 등온식

1. 서 론

무기 오염 물질 중 하나인 불소는 주기율표에 존재하는 원소들 중 가장 반응성이 좋아 대부분의 유기물 및 무기물과 쉽게 반응하는 성질이 있다. 이러한 불소의 특성으로 인하여 불소는 철 또는 비철 제조 및 제련, 요업, 전기도금, 전자 관련 공정 부분에서 사용되고 있으며 따라서 다양한 산업 폐수 내에 함유되어 있다고 볼 수 있다. 특히 근래에는 전자 및 반도체 공업의 급격한 발전으로 인하여, 강화된 환경 규제치를 상회하는 불소 화합물의 배출을 효율적으로 처리하는 문제가 심각하게 대두되고 있는 실정이다.

다. 외국에서 조사된 바에 따르면 많은 산업 폐수들 내에 불소의 함유량은 40~100,000 ppm으로 알려져 있으며, 국내의 경우에도 연간 수질에서의 배출량이 약 33,000 kg인 것으로 보고되고 있다.^{1,2)}

불소 화합물은 일부 식수원에서 천연적으로 발생하지만, 지난 50년 동안 인간이 만들어내어 물과 공기 속으로 방출한 불화물들의 양도 극적으로 증가하였다. 수돗물에 불화물을 투입하는 문제는 50년 동안 논쟁과 반대운동을 불러일으켜 왔다.^{3,4)} 그러나 세계 전역의 수많은 산업시설로부터 배출되는 불소 오염은 거의 주목을 받지 못했다.

불소는 치아 및 뼈의 구성 요소이나 적정량 이상이 존재하는 경우 불소 침착증을 나타내기 때문에 음용수에서의 불소 제거에 대한 연구는 오랫동안 진행되어왔다. 불소의 독성은 납보다 더 높은 것으로 분류돼 있음에도 불구하고,

[†] Corresponding author
E-mail: cow01215@hanmail.net
Tel: 02-958-5270

Fax: 02-958-5205

미국 환경청이 먹는 물 속의 납에 대해 제시하는 최대허용치가 15 ppb인데, 반해 불소에 대한 허용치는 4,000 ppb로 되어있다. 1 ppm이라는 수돗물의 불소권장기준은 1945년에 정해진 것이다. 그 이후로 오늘날 치약, 치과 용품, 양치용액, 가공식품, 비타민제, 청량음료 등 추가적 원천으로부터 불소를 섭취하고 있음에도 불구하고 이 기준은 바뀌지 않았다.⁵⁾

불소는 기본적으로 효소 활동을 저해하고, 백혈구 활동을 둔화시키며, 따라서 면역 체계에 손상을 초래하는 독성물질이라는 것은 과학적으로 증명된 사실이다. 그러므로 비록 저농도라 할지라도 극히 다루기 조심스러운 물질을 장기적으로 섭취할 때 건강상 장애가 우려된다고 보는 것은 매우 당연하다고 할 수 있다.^{6,7)}

불소는 화학활성이 높아 반도체, 유리, 금속가공 등의 표면처리 및 세정제로 많이 사용되고 있으며, 배출에 관해서는 수질환경보전법에 기준이 정해져 있다. 청정지역의 경우 3 ppm 이하이며, 다른 지역의 경우는 15 ppm이다. 또한 음용수의 농도 기준을 1.5 ppm으로 하고 있다.

불소를 함유하는 폐수는 배출사업장에 따라 SiF_6^{2-} , AlF_6^{3-} , BF_4^{-} 등의 착이온 상태로 용해되어 있는 경우도 있어 원활한 불소 처리를 위해서는 불소 화합물의 형성 방지뿐만 아니라, 형성된 불소 화합물의 처리도 고려되어야만 한다.⁸⁾

일반적으로 고농도의 불소를 함유한 폐수처리는 대부분이 화학응집 처리에 의하며, 응집제로는 주로 소석회와 같은 칼슘 화합물을 첨가해 칼슘 화합물인 CaF_2 형태로 결합시켜 처리하는 화학응집 침전법이 사용되고 있다. 또한 이온교환수지와 활성알루미나를 사용하는 방법, 희토류 수산화물을 불소이온 흡착제로 사용하는 방법, 역삼투압을 이용한 막공정 등이 알려져 있다. 이 중에서도 Ca 화합물을 사용하여 처리하는 것이 주된 방법으로 사용되고 있지만 이 방법은 약품이 이른 당량비에 대한 양의 수배 이상 과량 투입되어야 하기 때문에 처리 후 잔사(Sludge)라 다량 발생하며 불소이온이 용액 중에 잔류하므로 불소를 저농도 제거하는 부적합하다.^{9~11)} 또한 이온교환수지법은 재생과정에서 불소 이온을 제거하는 확실한 기술이 아직까지 개발되지 않은 실정이다. 본 연구에서는 수용성 산을 함침시킨 활성 알루미나를 소성 처리한 흡착제를 이용하여, 저농도 불소 이온을 제거하는 기술을 개발하고자 하였으며, 기초 실험을 통해 그 가능성을 타진하였다.

흡착제를 이용한 화합물의 흡착에 관한 연구는 흡착평형에 대한 정보를 제공하는데 매우 중요하므로 지금까지 많은 연구가 진행되어 오고 있다. 단일 성분의 흡착평형에 관한 연구는 그동안 많은 발전을 하였으며 여러 종류의 흡착평형식들이 소개되었다. 대부분의 경우 Freundlich 등온식을 따르는 것으로 알려져 있으며 이에 기초한 등온식들이 많이 연구되고 있다.^{12~14)} 따라서 본 연구에서는 자체 개발한 변형 알루미나를 이용한 불소 흡착 실험을 통하여 흡착평형에 관한 정보를 얻기 위해서 흡착 등온식으로 널리 알려진 Freundlich식을 이용하여 흡착 등온식을 구하였다.

2. 실험

자체 개발한 변형 알루미나를 이용하여 폐수 중에 함유되어 있는 저농도 불소 제어 실험에 관한 효능을 확인하기 위하여 우선적으로 변형 알루미나에 대한 흡착능이나 제거 효율에 대한 검토가 선행되어야 한다. 흡착능은 일정량의 저농도 불소 오염수에 변형 알루미나를 첨가하여 일정시간 경과 후 오염수 중 불소의 잔류 농도를 측정하는 방법으로 비교하였으며 이를 위하여 인공적으로 저농도 불소 오염수를 제조하여 폐수처리 실험을 실시하였다.

2.1. 흡착제 제조

본 실험은 불산을 이용해서 오염수를 제조하였기 때문에 일반적으로 널리 쓰이는 세라믹계 흡착제 중에서 불산에 가장 안정한 알루미나를 기본 흡착제로 선정하였다.

흡착제로 이용되는 알루미나는 크게 일반 알루미나와 활성 알루미나로 구분할 수 있으며, 활성 알루미나의 경우에는 산성, 중성, 알칼리성으로 구분이 된다. 각각의 알루미나들의 특성을 파악하기 위해서 XRD(Rigaku Miniflex)와 BET(Micromeritics, ASAP 2010)를 사용하여 조사하였으며 알루미나 흡착제 중에서 가장 표면적이 넓은 중성 알루미나를 선택하여 주입량에 따른 영향을 조사하였다.

활성 알루미나의 불소 흡착성을 증대시키기 위해서 산성 용액을 알루미나에 함침시켜 소성하는 방법으로 변형 알루미나를 제조하였다. 최종적으로 제조된 변형 알루미나를 가지고 제조 과정에서 산의 종류와 소결온도에 따른 흡착능의 차이를 비교하기 위한 실험을 하였다. 실험은 불소농도 10 ppm의 인공 오염수를 불산으로 제조하여 수행하였다.

2.2. 불소 제어

10 ppm의 인공 불소 오염수(HF 48.0~51.0% BAKER, A.C.S Reagent)를 제조하여 회분식으로 불소 제어 실험을 수행하였다. 불소 인공 오염수 300 mL에 자체 개발한 변형 알루미나를 사용하여 교반 침전 시간에 따른 영향과 변형 알루미나의 양에 따른 변화에 따른 저농도 불소 제어 실험을 수행하였다. 또한 일반적으로 저농도 불소 이온 제어에 가장 많이 쓰이는 음이온 교환수지를 이용하여 비교 실험을 수행하였다. 실험은 상온에서 진행하였고, 수온 평균은 26.5°C였다.

2.3. 흡착평형등온실험

변형 알루미나의 제조방법에 따른 저농도 불소 이온 제거 흡착능력을 비교하기 위하여 변형 알루미나의 양은 고정하고, 불산(Hydrofluoric Acid, 48.0~51.0% BAKER, A.C.S Reagent) 시약을 이용하여 10~100 ppm의 불산 오염수를 만들어 불소 이온 제어 실험을 하였다.

흡착실험은 상온에서 연속교반 회분식으로 수행하였다. 각 농도의 불소 이온 오염수 300 mL를 1 L 비이커에 취하고 변형 알루미나를 0.5 g씩 첨가하였다. 그리고 평형에

도달할 때까지 교반 시켜서 흡착시킨 후 30분 동안 침전시켰다. 이 용액의 상등수를 떠서 여과지로 여과하여 흡착 전후의 불소 이온 잔류농도를 오린은 이온 메타(Nodel 720A)를 이용하여 측정하였다. 측정된 농도를 기반으로 하여 흡착제의 단위 무게 당(g) 흡착된 불소의 양(mg/L)은 다음 식을 이용하여 계산하였다.

$$Q = \frac{V}{m}(C - C_e)$$

- 여기서 Q : 단위 질량당 흡착량 (mg/L)
- V : 용액의 부피(L)
- m : 흡착제의 양 (g)
- C, C_e : 용액의 초기 및 평형 농도 (mg/L)

그리고 흡착제에 따른 불소의 흡착 특성을 평가하기 위하여 그 결과를 Freundlich 흡착 등온식을 사용하여 해석하였다. 단일 성분의 Freundlich 흡착 등온식은 다음과 같다.

$$q = KC \frac{1}{n}$$

- 여기서 q : 단위 질량당 흡착량 (mg/L)
- K, 1/n : 흡착상수
- C : 흡착 평형시 용액 농도(mg/L)

3. 결과 및 고찰

3.1. 흡착제

원하는 물성을 지닌 흡착제를 제조하기 위해서 다양한 알루미나 흡착제들의 기본 물성을 파악하였다. XRD(Rigaku Miniflex)와 BET(Micromeritics, ASAP 2010)를 이용하여 얻은 실험 결과를 Table 1에 나타내었다. 그 결과 알루미나 종류에 따라 조금씩은 다르지만 대부분의 경우 수나노미터의 기공을 갖는다는 것을 확인할 수 있었다. 그 중 일반 알루미나 보다는 활성 알루미나의 표면적이 더 넓었으며, 활성 알루미나에서도 중성이 가장 표면적도 크고 기공이 작은 것을 알 수 있었다. 이러한 표면적과 기공 크기가 불소 이온의 흡착 제거에 영향을 미치는 것으로 사료되었다.

Table 1. Physical properties of various aluminas

Adsorbent	Surface Area (m ² /g)	Av. Pore Volume (cc/g)	Av. Pore Diameter (nm)
Alumina	102.0777	0.195996	53.2966
Activated alumina (neutral)	357.5020	0.446306	46.4332
Activated alumina (basic)	96.5696	0.190196	56.5824
Activated alumina (acidic)	103.0664	0.204965	54.0504

Table 2. Removal efficiencies for various quantities of adsorbent input

Adsorbent	Input (g)	Residual F ⁻ (10 ppm)
Activated alumina	1	7.33
Activated alumina	2	2.37
Activated alumina	3	2.11
Activated alumina	5	1.49
Activated alumina	10	0.61

Table 3. Removal efficiencies for various water soluble acids

Water soluble acid	Residual F ⁻ (10 ppm)
Nitric acid	3.473
Hydrochloric acid	0.594
Sulfuric acid	0.504
Acetic acid	4.675

선정된 활성 알루미나를 이용하여 불소 이온 제어 실험을 행한 결과를 Table 2에 비교하여 나타내었다. 실험은 10 ppm 불소 용액 300 mL에 활성 알루미나의 양을 2~10 g 까지 늘려가며 수행하였다. 결과에서 볼 수 있는 것처럼 활성 알루미나의 양을 늘리면 불소이온의 제거가 잘 되는 것을 확인할 수 있었다. 그러나 많은 양의 불소 이온을 제거하기 위해 주입량을 늘리는 것은 경제적이지 못하므로 흡착제의 효능을 보다 우수하게 만들기 위해서 수용성 산을 활성 알루미나에 함침시켜 소성시키는 실험을 실시하였다. 질산, 황산, 염산, 아세트산 등의 수용성 산을 활성 알루미나에 함침시켜 변형 알루미나를 제조하였다. 변형 알루미나를 1 g씩 첨가하여 저농도 불소 이온 제거 실험을 하였고, 결과를 Table 3에 나타내었다. 결과를 보면 수용성 산을 함침시켜 소성시켰을 때 전보다 불소 제거 효율이 더 좋아진 것을 확인할 수 있었고, 그 중에서도 황산을 주입한 변형 알루미나가 가장 좋은 제거 효율을 보여주었다. 이는 재소성된 활성 알루미나의 물리적 구조 및 불소 이온과의 친화도 등 화학적 특성이 달라져 불소 이온의 제거 효율에 영향을 미쳤기 때문인 것으로 생각된다. 따라서 황산을 주입한 변형 알루미나를 흡착제로 선정하고 황산의 주입량에 따른 불소 제어에 영향을 살펴보았다. 황산의 주입량을 0.2~5.0 무게%까지 변화시켜 제조한 변형 알루미나를 1 g씩 넣고 실험한 결과를 Table 4에 나타내었다. 결과를 보면 황산 1.0 무게%를 함유한 변형 알루미나의 결과가 0.504 ppm를 나타내었고, 그 이상을 주입하여도 불소 제어에 커다란 차이를 나타내지는 않았다.

Table 4. Removal efficiencies for various quantities of sulfuric acid input into the alumina

Sulfuric acid (wt%)	5%	3%	1%	0.8%	0.6%	0.4%	0.2%
Residual F ⁻ (10 ppm)	0.472	0.498	0.504	0.688	1.060	1.310	2.580

Table 5. Removal efficiencies for various calcination temperatures

Calcination Temperature(°C)	Residual F ⁻ (10 ppm)
700	0.14
500	0.19
425	0.27
350	0.31

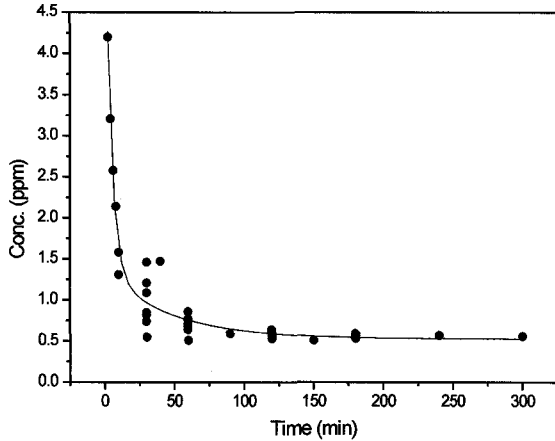


Fig. 1. Removal efficiencies for varying agitation time.

최종적으로 저농도 불소 이온 제거를 위해서 1.0 무게% 황산을 주입한 변형 흡착제를 선정하였고, 최적의 소성 조건을 찾아보기로 하였다. Table 5는 흡착제를 제조하는 과정에서 소성 할 때의 적정 온도에 따른 결과를 나타내었다. 결과를 보면 변형 알루미나 제조 시 소성온도에 따라 불소 이온 제거 효율에 커다란 차이는 없었다. 특히 500°C 이상에서는 오차 범위 내의 매우 비슷한 제거 효율을 보였다. 따라서 변형 알루미나의 최적 소성 온도를 500°C로 하여 실험을 진행하였다.

Fig. 1은 교반 시간에 따른 불소이온 흡착의 경향을 살펴본 것이다. 10 ppm 오염수 300 mL에 흡착제의 양을 각각 0.5 g씩 첨가하여 교반 후, 30분을 침전시켜 상등수의 농도를 측정하였다. 그 결과 교반 시간이 증가할수록 불소이온의 농도가 급속히 감소하였다. 교반시간이 3시간 일 때 불소이온의 제거율이 94.4%에 도달하였고, 그 이후부터는 불소이온 제거율의 변화에 커다란 차이가 나타나지 않았다.

Table 6은 저농도 불소이온 제거에 일반적으로 가장 많이 사용되고 있는 음이온 교환수지와 본 연구에서 가장 우수한 것으로 나타난 변형 알루미나의 주입량의 변화에 따른 결과를 비교한 것이다. 그 결과 동일한 양을 주입하였을 때 음이온 교환수지 보다 제조된 변형 알루미나가 저농도 불소 이온 제거에 더 탁월한 효과를 나타내었다. 두 물질이 같은 제거율을 나타낼 때의 투입되는 양을 비교해 보면 음이온 교환 수지가 변형 알루미나의 대략 10배 이상 소요되는 것을 확인할 수 있었다. 음이온 교환 수지의 저농도 불소 이온의 제어는 흡착에 의한 것이며, 본 연구에서 제조하여 사용한 변형 알루미나 역시 흡착에 의한 불소

Table 6. Comparison of the adsorption capabilities between modified alumina and ion exchange resin

Modified alumina	Residual F ⁻ (10 ppm)	(-) Ion-exchange resin	Residual F ⁻ (10 ppm)
0.3 g	1.19	1 g	6.17
0.4 g	1.45	5 g	1.12
0.5 g	0.74	6 g	0.69
1 g	0.42	8 g	0.39
5 g	0.19	10 g	0.31

Table 7. Adsorption results obtained from batch tests

Adsorbent weight (g)	Initial concentration (mg/L)	Equilibrium concentration (mg/L)	Adsorption quantity (mg/g)
0.5	10	0.55	5.64
0.5	30	8.23	11.86
0.5	50	17.10	14.58
0.5	70	36.50	19.68
0.5	100	50.20	21.48

이온 제거라고 할 수 있다. 그러므로 오염수에 투입된 흡착제의 소요 비용 및 회수 방법 등을 고려할 때 본 변형 알루미나의 사용은 경제적으로 상당한 이득이 있을 것으로 기대 할 수 있다.

본 연구에서는 기존 흡착제의 물성 개선을 위해 다양한 수용성 산을 함침시켜 소성한 변형 알루미나를 제조하였고, 제조된 변형 알루미나를 이용하여 저농도의 불소 제어를 가능케 할 수 있었다. 이 결과에 기초하여 향후에는 복합 오염수에서의 저농도 불소 제어를 위한 최적화 연구를 수행하여 흡착제 제조 기술 및 최적화 조건 확립 연구를 수행할 예정이다.

3.2. 흡착 등온식

황산에 함침시켜 소성한 변형 알루미나를 사용하여 불소 이온의 흡착 특성을 살펴보았다. 불소이온 오염수 300 mL에 변형 알루미나를 0.5 g씩 넣고, 오염수의 농도를 10~100 ppm까지 변화시키며 반응시간 3시간, 침전시간 30분 후 얻은 실험 결과를 Table 7에 나타내었다.

일반적으로 Freundlich의 흡착 등온식은 $q = KC^{1/n}$ 에서 $\log q = \log K + 1/n \log C$ 가 되는데 이 Freundlich 등온식의 상수 K는 흡착제의 흡착 용량을 나타내고, 기울기 1/n은 평형농도에 대한 흡착량의 의존성을 나타낸다.¹⁵⁾ 따라서 상수 K의 값이 클수록 그리고 상수 1/n은 작을수록 흡착성이 우수함을 의미한다.¹⁶⁾ 일반적으로 Freundlich 흡착 등온식에서 1/n 값이 0.1~0.5이면 흡착이 용이하게 일어나고, 2.0 이상이면 탈착이 어렵다고 알려져 있다.¹⁷⁾

흡착평형관계를 log 형태의 Freundlich 식으로 표시하여 Fig. 2와 같은 직선관계를 얻을 수 있었다. Fig. 2의 직선식에서 기울기와 절편으로부터 구한 상수 K와 1/n를 Table 8에 나타내었다. 1/n의 값이 0.29로 변형 알루미나는 불소 이온에 대해 Freundlich 흡착식을 잘 만족하는 것으로 나타났다.

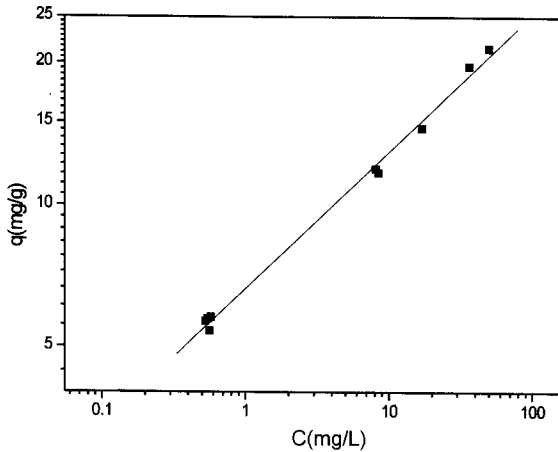


Fig. 2. Freundlich isotherm for fluoride-ion.

Table 8. Coefficients for Freundlich Isotherm

	Freundlich isotherms			Freundlich equation
	1/n	log K	K	
F	0.29	0.82	6.63	$Q = 6.63 C_e^{0.29}$

4. 결론

고농도의 불소를 함유한 폐수를 처리하는 방법으로는 화학적 침전법, 이온교환수지와 활성 알루미나를 이용하는 흡착방법, 역삼투압을 이용한 막공정 등 다양한 방법들이 있지만 이러한 방법은 활성이 커서 10 ppm 이하의 저농도 불소 제거에는 효과가 없는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서는 수용성 산을 함침시켜 소성된 변형 알루미나를 제조하여 유해 오염 무기물인 불소 이온을 제거하는 실험을 하였다.

세라믹계 기본 흡착제들의 다양한 조성과 성형 방법 및 소성온도에 따른 실험을 통하여 활성 알루미나를 수용성 산에 함침시켜 소성시키는 방법으로 변형 알루미나를 제조하였다. 대부분의 경우 비교적 큰 표면적과 수 나노미터의 매우 작은 기공을 갖는 것으로 나타났다.

제조된 변형 알루미나를 이용하여 저농도 불소 흡착실험은 회분식으로 상온에서 수행하였다. 다양한 수용성 산 중에서 황산을 주입하였을 때 가장 좋은 결과를 나타내었고, 황산의 함유량에 따른 결과를 살펴보면 1.0 무게% 황산을 함침하였을 때 불소 잔류농도가 0.504 ppm으로 가장 적절한 것으로 나타났다.

그리고 1.0 무게% 황산을 함침시켜 제조한 변형 알루미나의 소성온도에 따른 영향을 살펴본 결과 500℃에서 가장 좋은 결과를 나타냈다. 불소 제거에 가장 많이 사용되고 있는 음이온교환수지와 변형 알루미나를 비교한 결과 같은 양을 주입하였을 때에 약 10배 차이의 제거 효율을 나타내었다.

불소 이온 흡착 실험을 통하여 흡착평형에 관한 정보를 얻기 위해서 변형 알루미나와 불소 이온 사이의 흡착관계를 Freundlich 흡착 등온식으로 해석하였다. 회분식으로 얻

은 실험결과를 이용하여 계산한 결과 흡착 등온식이 $q = 6.63C^{0.29}$ 으로 K값은 6.63, 1/n값은 0.29로 Freundlich 흡착식에 잘 적용되었음을 알 수 있었다.

본 연구를 통해 제조된 변형 알루미나는 활성이 커서 제거가 어려웠던 저농도 불소 이온 제거에도 우수한 결과를 나타냈으므로 그 밖에 다른 유해 오염 무기물 제어에도 적용이 가능하리라 생각된다. 또한 단일 성분이 아닌 복합 오염물들의 동시 제어를 위한 향후 연구가 가능하리라 사료된다.

사용기호

- C : initial concentration of solution [mg/L]
- C_e : equilibrium concentration [mg/L]
- K : Freundlich constant(exchange capacity) [-]
- m : adsorbent weight [mg]
- n : Freundlich constant(exchange intensity) [-]
- q : amount of solute exchanged in equilibrium [mg/g]
- v : volume of solution [mL]

참고문헌

1. Kirk Othmer Encyclopaedia of Chemical Technology, third ed., vol. 10, Wiley-Interscience, New York(1980).
2. Yunus, C., Esengul, K., Mustafa, E., "Removal of Fluoride from Aqueous Solution by using Red Mud," *Separation & Purification Technology*, **28**, pp. 81~86 (2002).
3. Foulkes, R. G., "Fluoridation : Fraud of the Century," *Health Naturally*, June/July, pp. 7~11(1994).
4. Lee, J., "Fluoridation Follies : A Review of the Errors that Nullify Claims of Fluoride Benefits," Sebastopol, California 95472(1995).
5. Paul Connett, "Fluoride : A Statement of Concern," *Waste Not*, 459, 2(2000).
6. Villar, E., Soto, J. A., Quindos, L. S., Diazcaneja, N., Fernandes, E., Fernandez, P. L., "A study of the Impact of Industrial Fluoride Emissions on a Rural Environment," *JAPCA-the journal of the Air & Waste Management Association*, **39**(8), pp. 1098~1100(1989).
7. Helmer, R., *Environmentalist*, **19**, 11(1999).
8. 고종호, 지해성, "제관공정의 불소 폐수 처리공정 개선," *대한환경공학회지*, **20**(9), 1199~1205(1998).
9. 이종렬, 김상식, 강신현, "불소함유 폐수의 처리방법," 대한민국 특허공보 제3997호, 대한민국 특허청, 서울, pp. 67~72(1995).
10. 홍영호, 노재호, 이상모, 박상호, "불소가 함유된 폐수의 처리방법," 대한민국 특허공보 제1433호, 대한민국 특허청, 서울, pp. 22~24(1995).

11. 김진화, 신성혜, 송혜원, 김동수, 이상모, 권영식, "인산염 및 불소폐수 처리제로서의 희토류 화합물 적용에 관한 연구," 대한환경공학회지, **22**(6), 1127~1137(2000).
12. Shefndorf, C., Rebhun, M., "A Freundlich-Type Multi-component Isotherm," *J. Colloid Interface Sci.*, **79**(1), 136~142(1988).
13. Fritz, W., Shlunder, E. U., "Simultaneous Adsorption Equilibria of Organic Solutes in Dilute Aqueous Solution on Activated Carbon," *Chemical Engineering Science*, **29**, 1279~1282(1974).
14. 김동식, 임종주, 조영상, "활성탄을 이용한 트리할로메탄 혼합물의 제거," 대한환경공학회지, **16**(3), 371~379(1994).
15. Castellan, G.W., *Physical Chemistry*, 2nd ed.(1978).
16. McCabe, W.L., Smith, J.C. and Harriot, P., *Unit Operation of Chemical Engineering*, 5th ed., McGraw-Hill, USA(1993).
17. 박준범, 서민우, 오명학, "후렌드리히 등온시험을 통한 유기화합물의 탈착특성 조사," 한국지반공학회, 98가을 학술발표회, pp. 367~372(1998).