

Surface Complexation Model을 이용한 양이온 중금속(Pb, Cd) 흡착반응의 모델화 연구

신 용 일 · 박 상 원
계명대학교 환경과학대학
(1998년 9월 21일 접수)

Studies on the Adsorption Modeling of Cationic Heavy Metals(Pb, Cd) by the Surface Complexation Model

Yong-il Shin and Sang-Won Park

Faculty of Environmental Sci. & Eng., Keimyung University, Taegu, Korea

(Manuscript received 21 September, 1998)

Surface complexation models(SCMs) have been performed to predict metal ion adsorption behavior onto the mineral surface. Application of SCMs, however, requires a self-consistent approach to determine model parameter values.

In this paper, in order to determine the metal ion adsorption parameters for the triple layer model(TLM) version of the SCM, we used the zeta potential data for Zeolite and Kaolinite, and the metal ion adsorption data for Pb(II) and Cd(II).

Fitting parameters determined for the modeling were as follows ; total site concentration, site density, specific surface area, surface acidity constants, etc. Zeta potential as a new approach other than the acidic-alkalimetric titration method was adopted for simulation of adsorption phenomena. Some fitting parameters were determined by the trial and error method. Modeling approach was successful in quantitatively simulating adsorption behavior under various geochemical conditions.

Key words : surface complexation models, TLM, adsorption modeling, zeta potential

1. 서 론

흡착현상을 이해하기 위한 노력으로 제일 먼저 시도된 것이 분배계수(K_d)의 결정이었다. 이후 흡착 등온선의 유형에 대한 고찰을 통하여 흡착현상을 설명하였다. 그러나 이들 경험적 접근방식은 고체/기체상간에 일어나는 흡착 기구는 설명할 수 있었으나, 수질관리 등에 있어서 중요한 고체/액체간의 계면에서 일어나는 흡착현상을 모사하거나 예측하는데 많은 제약이 있었다. 그 이유는 고체/액체간의 흡착현상이란 고체 또는 고체표면의 물리/화학적 특성과 수용액 내의 흡착질의 용액론적 특성이 고려되어야 하는데, 종래의 경험적 방식은 단순히 특정조건에서 수용액상의 잔존농도와 고체상에 흡착된 농도를 실험적으로 결정하였다. 따라서 관련조건이 바뀔 때마다 K_d 또는 흡착등온계수가 달라지므로 보다 광범위한 지화학적 또는 수처리 조건에서의 응용이 가능하지 못하였다.

이러한 문제점을 보완하여 선진 외국에서는 특정조건에서의 실험결과로 관련인자를 결정하여 흡착현상을 모사하고 또한 다른 조건에서의 흡착결과를 예측할 수 있는

소위 SCM(surface complexation model)이 최근 많은 주목을 받고 있으며, 흡착현상의 예측을 통한 실험시간 및 오차율을 단축할 수 있어 관련분야에서 이 접근방식을 많이 채택하고 있다.¹⁾

따라서 본 연구에서는 표면특성 변수 중 표면산도를 결정함에 있어서 기존의 적정 방법이 아닌 zeta potential 자료를 이용한 새로운 접근법을 제시하였다. 그리고 SCM (surface complexation model) 중 최근에 가장 많이 이용되고 있는 TLM(triple layer model)을 바탕으로 흡착실험자료와 표면특성 자료로부터 결정된 변수와 지화학평형 프로그램인 HydraQL²⁾을 이용하여 흡착현상의 모사 및 정량적 예측을 수행하였다.

2. TLM(triple layer model)

Davis와 Leckie^{3,4)}가 발표한 TLM(triple layer model)은 Yates *et al.*⁵⁾의 자리결합모델과 Davis *et al.*⁶⁾의 전해질결합모델을 종합한 모델이다. 이 일반적인 Model은 흡착질이 주위의 전해이온과 양이온, 음이온 또는 중성의 흡착

을 표현할 수 있다. 현재 토양이나 퇴적층을 포함하는 불균일한 물질에서도 흡착실험이 행해지고 있다.⁷⁾ TLM(triple layer model)은 전기이중층의 Stern-Grahame 모델을 가진 표면자리에서 이온화와 이온결합을 나타내는식을 조합하였으며⁸⁾, 그 자세한 도해는 Fig. 1에 나타내었다.⁹⁾

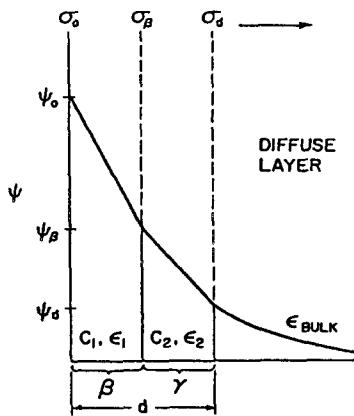


Fig. 1. Diagram of EDL model used in TLM, showing Surface (\circ), β , and Diffuse Layers, and Electrical Potentials(ψ), Charge Densities(σ) ; Capacitances(C_i), Dielectric Constants(ϵ_i), and Distances(β , γ , d) associated with these layers.

H^+ 는 표면(Fig. 1안의 \circ -평면)에 결합하고, 전해이온들은 β -평면에 결합한다. 표면이온화식과 전해질결합식은 아래의 Table 1에 나타내었다.²⁾

용질의 흡착은 표면자리와 흡착질이 착물을 형성한다는 가정으로 설명할 수 있다. TLM(triple layer model)에 대해서 설명한 최초의 논문에서는 흡착된 종은 β -평면에 위치한다고 설명하고 있지만, 지금은 TLM(triple layer model)의 이용이 크게 확장되어 β -평면뿐만 아니라 \circ -평면에서도 흡착이 가능하다고 보고되고 있다.¹⁰⁾

흡착의 모사에서 고려하여야 할 흡착된 종의 형태는 양성자의 화학약론식, 즉 흡착된 용질당 흡착된 또는 탈착된 양성자의 수에 의해 설명되어질 수 있다.^{11,12)} HydraQL이 계산을 수행함에 있어 첫 번째 단계는 열역학적 자료를 완전하게 조사하는 것으로, 이것은 착물과 관련된 계산을 함께 있어 매우 중요한 일이다. HydraQL의 계산에서 이온강도제한식은 Davis 식으로 하였고, 활동도 계수를 계산하기 위하여 사용되었다.²⁾ 이 식¹³⁾은 이온세기가 약 0.5M 이하일 때 적용이 가능하며 그 식은 아래와 같다.

$$\log f_i = -A \cdot Z_i^2 \cdot \left(\frac{\sqrt{I}}{1 + \sqrt{I}} - 0.3I \right) \quad (1)$$

f_i : 종 i의 활동도 계수

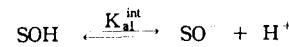
Z_i : 종 i의 원자가

I : 이온세기

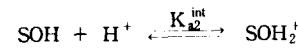
A : Debye-Hückel 변수(25°C에서 0.5116 mol/dm³)

Table 1. TLM reactions and equilibrium expressions

• Surface protolysis reactions

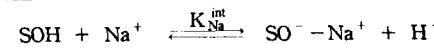


$$K_{a1}^{int} = \frac{[SO^-][H^+]}{[SOH]} \exp\left(-\frac{F\psi_0}{RT}\right)$$



$$K_{a2}^{int} = \frac{[SOH_2^+]}{[SOH][H^+]} \exp\left(-\frac{F\psi_0}{RT}\right)$$

• Electrolyte surface reactions

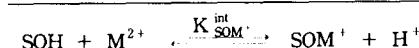


$$K_{Na}^{int} = \frac{[SO^- - Na^+][H^+]}{[SOH][Na^+]} \exp\left(-\frac{F(\psi_\beta - \psi_0)}{RT}\right)$$



$$K_{Cl}^{int} = \frac{[SOH_2^+ - Cl^-]}{[SOH][H^+][Cl^-]} \exp\left(-\frac{F(\psi_0 - \psi_\beta)}{RT}\right)$$

• Inner-sphere surface reactions



$$K_{SOM}^{int} = \frac{[SOM^+][H^+]}{[SOH][M^{2+}]} \exp\left(-\frac{F\psi_0}{RT}\right)$$



$$K_{SOMOH}^{int} = \frac{[SOMOH][H^+]^2}{[SOH][M^{2+}]} \exp\left(-\frac{F\psi_0}{RT}\right)$$



$$K_{SOMCl}^{int} = \frac{[SOM^+ - Cl^-][H^+]}{[SOH][M^{2+}][Cl^-]} \exp\left(-\frac{F(\psi_0 - \psi_\beta)}{RT}\right)$$

3. 실험재료 및 방법

SCM(surface complexation model) 모델링에 사용된 흡착제는 Zeolite 2종(Zeolite I, Zeolite II)과 Kaolinite 2종(Kaolinite I, Kaolinite II)으로 크기는 200mesh로 하였으며, 각각의 농도는 1g/l를 사용하였다. 흡착질로는 양이온 중금속 2종인 Pb(II)와 Cd(II)를 사용하였으며, 그 농도는 각각 4×10^{-5} M, 3×10^{-5} M로 하였다. Zeta Potential 측정에 사용된 흡착질의 양은 0.2g/l, 이온세기는 0.01M로 하였다.

회분식 흡착 데이터 및 흡착제의 표면특성으로부터 얻어진 변수들(site 밀도(N_s), 비표면적, K_{a1}^{int})과 시행착오법으로부터 구해진 Fitting 변수(C_1 , C_2 , K_{Na}^{int} , K_{Cl}^{int} , K_{SOM}^{int} , K_{SOMOH}^{int} , K_{SOMCl}^{int})를 지화학평형 프로그램인 HydraQL의 입력자료로 하여 흡착현상의 모사와 흡착제의 농도에 따른 흡착결과를 예측하였다.

본 연구에 사용된 실험조건과 SCM(surface complexation model) 모델링 방법은 아래의 Table 2와 Fig. 2에 나타내

었다.

Table 2. The experimental conditions used for the SCM modeling

Classification	Experimental conditions
Kind of adsorbents	Zeolite I, Zeolite II, Kaolinite I, Kaolinite II
Amount of adsorbents	1 g/L
Ionic strength	0.01M
Concentrations of adsorbate	Pb(II) 4×10^{-5} M Cd(II) 3×10^{-5} M
Computer code	HydraQL
Determination of surface parameters (site density, specific surface area, K_{al}^{int})	
Determination of fitting parameters(trial and error) (C_1 , C_2 , K_{Na}^{int} , K_{Cl}^{int} , K_{SOM}^{int} , K_{SOMOH}^{int} , K_{SOMCl}^{int})	
Simulation of adsorption reaction	
Prediction of adsorption reaction	

Fig. 2. SCM modeling strategy.

4. 결과 및 고찰

본 연구에서는 흡착제의 표면특성에 의해 결정된 변수와 Zeta potential 자료를 바탕으로 얻어진 K_{al}^{int} 와 시행착오법으로 구해진 Fitting 변수를 이용하여 흡착현상의 모사 및 흡착현상의 예측을 수행하였다.

SCM(surface complexation model) 모델링의 Fitting을 결정하는 Fitting 변수로서는 총 site 농도(g/l), Site 밀도($sites/nm^2$), 비표면적(m^2/g), $\log K_{al}^{int}$, $\log K_{Na}^{int}$, $\log K_{Cl}^{int}$, $\log K_{SOM}^{int}$, $\log K_{SOMOH}^{int}$, $\log K_{SOMCl}^{int}$ 가 있음을 알 수 있었으며, 몇몇 Fitting 변수는 시행착오법의 방법으로 조합한 결과 최적 Fitting 변수를 결정할 수 있었다.

본 연구에서 사용된 Fitting 변수 자료의 변화에 따라 SCM(surface complexation model) 모델링 결과에 큰 차이가 있음을 알 수 있었다.

아래의 Table 3은 본 연구에 사용된 변수 및 평형상수 값을 나타낸 것이다.

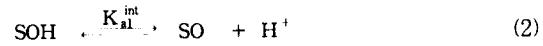
4.1. 표면산도의 결정

본 연구에서 결정한 여러 변수들 중 하나인 표면양성자이전반응의 평형상수 값인 K_{al}^{int} , K_{a2}^{int} 는 기존의 적정방법이 아닌 Zeta Potential 자료로부터 구하였다.¹⁴⁾

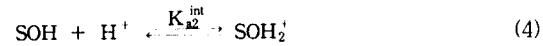
아래의 반응식 (2), (4)는 표면양성자방응을 나타내며, 식 (3), (5)는 각각의 평형상수 값을 나타낸다. N_s 는 총자리밀도를 나타내며, 식 (6)과 같이 나타낼 수 있다.

Table 3. Surface parameters and constants for adsorbents

Parameters and constants	Adsorbents				
	Zeolite I	Zeolite II	Kaolinite I	Kaolinite II	
Total site concentration (mol/l)	1.7334×10^{-4}	2.3113×10^{-4}	4.5336×10^{-5}	8.9895×10^{-5}	
Site density ($sites/nm^2$)	2.0877	2.3113	1.82	6.7753	
Specific surface area (m^2/g)	50	50	15	7.99	
Capacitance C_1 ($\mu C/cm^2$)	1.2	1.2	1.2	1.2	
Capacitance C_2 ($\mu C/cm^2$)	0.2	0.2	0.2	0.2	
$\log K_{al}^{int}$	Pb(II) Cd(II)	-3.56 -3.56	-2.09 -2.09	-4.62 -4.62	-6.15 -6.15
$\log K_{Na}^{int}$	Pb(II) Cd(II)	-9.0 -7.0	-9.0 -7.0	-9.0 -9.0	-9.0 -4.8
$\log K_{Cl}^{int}$	Pb(II) Cd(II)	-0.2 -5.2	-1.0 5.5	-1.2 -0.2	0.2 -8.2
$\log K_{SOM}^{int}$	Pb(II) Cd(II)	-5.5 -15.5	-5.8 -13.5	-5.5 -13.5	-4.5 -15.5
$\log K_{SOMOH}^{int}$	Pb(II) Cd(II)	-7.88 -14.8	-9.5 -13.8	-6.1 -13.0	-7.5 -15.5
$\log K_{SOMCl}^{int}$	Pb(II) Cd(II)	1.8 -1.5	2.35 -1.5	2.2 -0.6	1.0 -2.8



$$K_{al}^{int} = \frac{[SO] \cdot [H^+]}{[SOH]} \quad (3)$$



$$K_{a2}^{int} = \frac{[SOH_2^+]}{[SOH] \cdot [H^+]} \quad (5)$$

$$N_s = [SOH^+] + [SOH] + [SO^-] \quad (6)$$

먼저 Zeta Potential의 0값을 나타내는 pH_{ZPC}를 기준으로 나누어 보면 다음의 2가지 경우로 나타낼 수 있다. 그러나 본 연구에서 사용한 흡착제의 Zeta Potential을 측정한 결과 Fig. 2에서 나타낸 바와 같이 모두 음전하를 가짐을 알 수 있었다. 따라서 본 연구에서 사용된 흡착제는 pH > pH_{ZPC}인 경우를 따른다.

Case 1) pH > pH_{ZPC} (표면이 음전하) :

$$N_s \approx [SOH] + [SO^-]$$

Case 2) pH < pH_{ZPC} (표면이 양전하) :

$$N_s \approx [SOH_2^+] + [SOH]$$

알칼리적정에 의하면 $[SOH_2^+]$, $[SOH]$, $[SO^-]$ 는 다음과 같이 표현되어질 수 있다.⁶⁾

$$[\text{SOH}_2^+] = \frac{\sigma_+}{B} \quad [\text{SOH}] = \frac{(N_S - \sigma_+)}{B}$$

$$[\text{SO}^-] = \frac{\sigma_-}{B} \quad B = \frac{10^6 \cdot F}{A}, \quad A = \text{표면적}$$

이 값을 K_{a1}^{int} , K_{a2}^{int} 식에 대입하면 아래의 식 (10), (15)와 같은 1차 방정식을 얻을 수 있다.

Case 1) $\text{pH} > \text{pHzpc}$ (- charge)

$$K_{a1}^{int} = \frac{[\text{SO}^-] \cdot [\text{H}^+]}{[\text{SOH}]} = \frac{\frac{\sigma_-}{B} \cdot [\text{H}^+]}{\frac{N_S - \sigma_+}{B}} \quad (7)$$

$$K_{a1}^{int} \cdot (N_S - \sigma_+) = \sigma_- \cdot [\text{H}^+] \quad (8)$$

$$[\text{H}^+] = \frac{K_{a1}^{int} \cdot N_S - K_{a1}^{int} \cdot \sigma_+}{\sigma_-} \quad (9)$$

$$\therefore [\text{H}^+] = K_{a1}^{int} \cdot N_S \cdot \frac{1}{\sigma_-} - K_{a1}^{int} \quad (10)$$

Case 2) $\text{pH} < \text{pHzpc}$ (+ charge)

$$K_{a2}^{int} = \frac{[\text{SOH}_2^+]}{[\text{SOH}] \cdot [\text{H}^+]} = \frac{\frac{\sigma_+}{B}}{\frac{N_S - \sigma_+}{B} \cdot [\text{H}^+]} \quad (11)$$

$$K_{a2}^{int} \cdot (N_S - \sigma_+) \cdot [\text{H}^+] = \sigma_+ \quad (12)$$

$$[\text{H}^+] = \frac{\sigma_+}{K_{a2}^{int} \cdot (N_S - \sigma_+)} \quad (13)$$

$$\frac{1}{[\text{H}^+]} = \frac{K_{a2}^{int} \cdot (N_S - \sigma_+)}{\sigma_+} = \frac{K_{a2}^{int} \cdot N_S - K_{a2}^{int} \cdot \sigma_+}{\sigma_+} \quad (14)$$

$$\therefore \frac{1}{[\text{H}^+]} = K_{a2}^{int} \cdot N_S \cdot \frac{1}{\sigma_+} - K_{a2}^{int} \quad (15)$$

Zeta potential 자료와 활동도의 관계로 나타낸 Boltzmann식과 Zeta potential 자료와 표면전하와의 관계를 나타낸 Gouy-Chapman 이론식을 이용하여 양성자의 활동도와 표면전하를 구하여 식 (10)과 (15)에 대입하면 기울기와 y절편을 구할 수 있으며, 이 기울기와 y절편으로부터 K_{a1}^{int} , K_{a2}^{int} , N_S 값을 각각 구할 수 있다. 그러나 본 연구에 사용된 흡착제는 Zeta potential이 전부 음전하를 나타내므로 case 1)의 경우만 해당된다.

따라서 본 연구에서는 K_{a1}^{int} 만을 구할 수 있었으며, 이 값을 표면양성자이전반응의 변수로 사용하여 HydraQL의 입력자료로 사용하였다.

• Boltzmann 식

$$\langle \text{H}^+ \rangle = [\text{H}^+] \cdot \exp\left(-\frac{F \cdot \psi_0}{R \cdot T}\right) \quad (16)$$

• Gouy-Chapman 이론식

$$\psi_0 = \frac{2 \cdot R \cdot T}{Z \cdot F} \cdot \sinh^{-1}\left(\frac{\sigma_0^2 \cdot \pi}{2 \cdot R \cdot T \cdot \epsilon \cdot I}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (17)$$

$$\sigma_0 = \left(\frac{2 \cdot R \cdot T \cdot \epsilon \cdot I}{\pi}\right)^{\frac{1}{2}} \cdot \sinh\left(\frac{Z \cdot F \cdot \psi_0}{2 \cdot R \cdot T}\right) \quad (18)$$

$$\text{Assumption : } \sigma_0 = \sigma_z, \quad \psi_0 = \psi_z$$

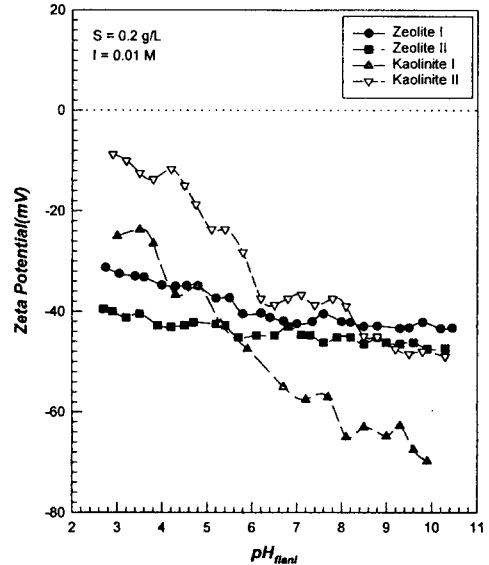


Fig. 3. The Zeta Potential of Zeolite(I, II) and Kaolinite(I, II) as a function of pH_{final} .

4.2. 흡착현상의 모사

Fig. 4~7은 표면특성 변수와 Fitting 변수를 이용하여 실험치를 최적 모사한 것으로 아래의 그림에 나타낸 바와 같이 모사자료와 실험자료가 전 pH 범위에서 좋은 일치를 보이고 있음을 알 수 있고, 전체적으로 Cd(II)보다 Pb(II)가 모사자료와 실험자료가 더 잘 일치함을 알 수 있었다.

기준의 양성자이전반응의 평형상수를 결정하는 방법(적정 자료로부터 구하는 방법)이 아닌 흡착제의 Zeta potential 자료를 바탕으로 구한 값으로도 흡착결과를 잘 모사할 수 있었다.

Table 3에 나타낸 바와 같이 Pb(II)의 경우는 각 흡착제에서 모두 $\log K_{\text{SOM}}^{int}$ 이 $\log K_{\text{SOMOH}}^{int}$ 보다 더 큰 값을 나타내고 있는데 반해, Cd(II)의 경우는 두 값이 비슷하거나 $\log K_{\text{SOMOH}}^{int}$ 이 $\log K_{\text{SOM}}^{int}$ 보다 조금 크게 나타났다. 이는 Pb(II)의 모사에서는 $\log K_{\text{SOMOH}}^{int}$ 보다 $\log K_{\text{SOM}}^{int}$ 가 더 많은 영향을 끼쳤을 수 있으며, Cd(II)의 경우 $\log K_{\text{SOMOH}}^{int}$ 와 $\log K_{\text{SOM}}^{int}$ 가 비슷하게 나타나 Fitting에 미치는 정도가 아주 유사함을 알 수 있다.

4.3. 흡착현상의 예측

Fig. 8~11은 $1g/l$ 의 흡착제 양과 0.01M 이온세기에 서의 실험결과를 최적모사하여 얻어진 변수를 바탕으로 흡착제의 양을 $2g/l$, $4g/l$ 로 하였을 경우 흡착실험의 예측결과를 나타낸 것이다.

아래의 그림에 나타낸 바와 같이 전 pH 범위에서 좋은 일치를 보임을 알 수 있었으며, 흡착제의 양이 증가될수록 더 높은 제거율을 나타내는 것을 알 수 있었다. 이는 중금속 흡착의 일반적인 제거형태와 일치한다.

Fig. 12~15는 Fig. 8~11에서 예측된 흡착결과 중 흡

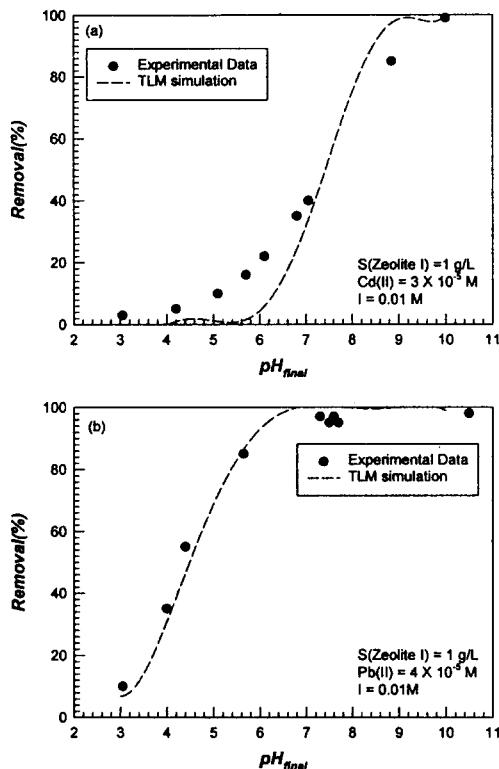


Fig. 4. TLM simulation of Cd(II) and Pb(II) adsorption of Zeolite I.

착제의 양이 $4\text{g}/\ell$ 에서의 모사결과자료를 실험결과치와 비교한 것이다. ●은 실험결과를 나타낸 것이며, 점선(--)은 SCM을 이용한 모사결과치를 최적화곡선으로 나타낸 것이다. 아래의 그림에 나타낸 바와 같이 모사치와 실험치가 전 pH 범위에서 좋은 일치를 보이고 있음을 알 수 있다. 따라서 원하는 pH에서 정량적으로 흡착이 얼마나 일어났는지를 HydraQL의 출력자료를 살펴보면 알 수 있으며, 실제 실험실에서 실험을 행하지 않더라도 같은 조건에서 모사된 모델을 바탕으로 다른 조건, 즉 이온세기, pH, 온도, 흡착질의 농도, 흡착제의 농도가 다른 경우에도 정량적으로 흡착율을 예측할 수 있게 된다.

흡착현상을 이해하기 위한 기존의 방법들, 즉 흡착등은 계수 및 분배계수의 결정에 의한 방법으로는 할 수 없었던 흡착현상의 정량적 예측이 SCM(surface complexation model) 모델링을 통해서는 가능함을 알 수 있었으며, 좀 더 정확한 흡착현상의 예측을 위해서는 SCM(surface complexation model) 모델링에 필요한 표면특성 변수 및 Fitting 변수를 좀 더 정확하게 구하는 방법이 연구되어져야 할 것으로 사료된다.

5. 결 론

특정조건에서의 실험결과로 관련인자를 결정하고, 결정된 인자를 SCM(Surface complexation model)에 적용시

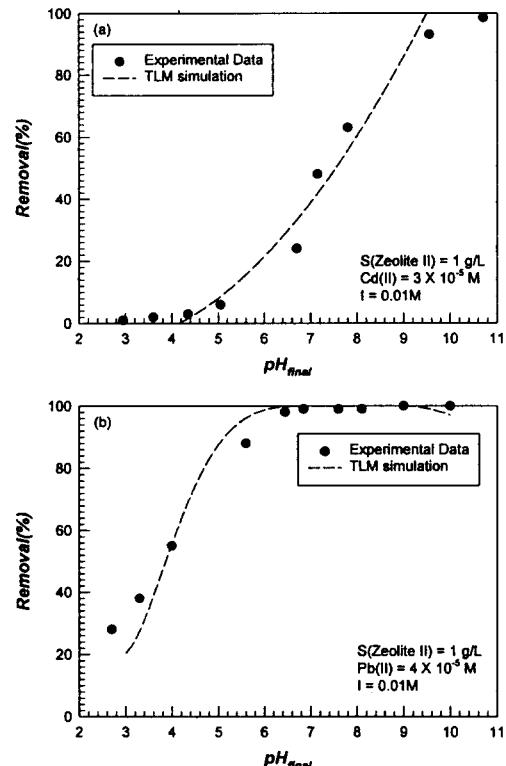


Fig. 5. TLM simulation of Cd(II) and Pb(II) adsorption of Zeolite II.

켜 흡착현상의 모사 및 예측을 행한 결과 다음의 5가지 결론을 얻을 수 있었다.

- 1) SCM(surface complexation model) 모델링의 Fitting을 결정하는 Fitting 변수로서는 총 site 농도(g/ℓ), site 밀도(sites/nm^2), 비표면적(m^2/g), $\log K_{\text{Al}}^{\text{int}}$, $\log K_{\text{Na}}^{\text{int}}$, $\log K_{\text{Cl}}^{\text{int}}$, $\log K_{\text{SOM}}$, $\log K_{\text{SOMO}}$, $\log K_{\text{SOMCl}}$ 가 있음을 알 수 있다.
- 2) 기존의 양성자 이전반응의 평형상수를 결정하는 방법(적정 자료로부터 구하는 방법)이 아닌 흡착제의 Zeta potential 자료를 바탕으로 구한 값으로도 흡착 결과를 잘 모사할 수 있다.
- 3) 각 Fitting 변수 값의 변화에 따라 SCM(surface complexation model) 모델링에 차이가 있었으며, 몇몇 Fitting 변수는 시행착오법으로 최적 Fitting 변수를 결정할 수 있다.
- 4) 회분식 흡착실험 결과를 SCM(surface complexation model)으로 모사한 결과 전 pH 구간에서 실험 결과치와 모사치가 좋은 일치를 보임을 알 수 있다.
- 5) 모델접근 방식은 최소의 실험으로 실험결과를 예측하는 것으로 보다 자연환경에 접근한 화학적 조건에서 중금속 오염에 대한 지표로서 모델을 통하여 정량적 오염도를 예측할 수 있다.

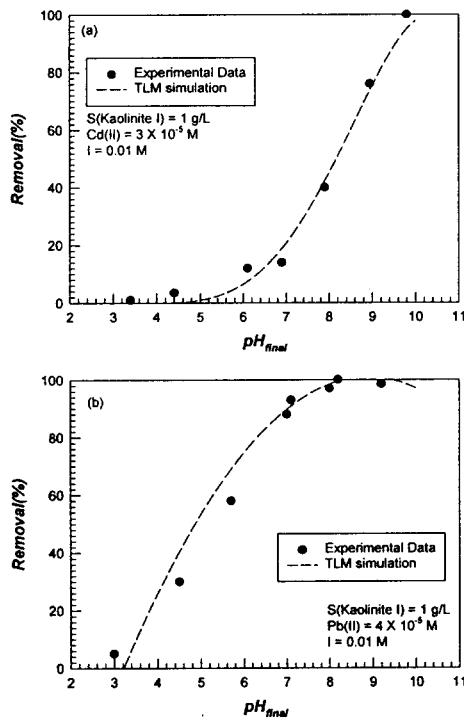


Fig. 6. TLM simulation of Cd(II) and Pb(II) adsorption on Kaolinite I.

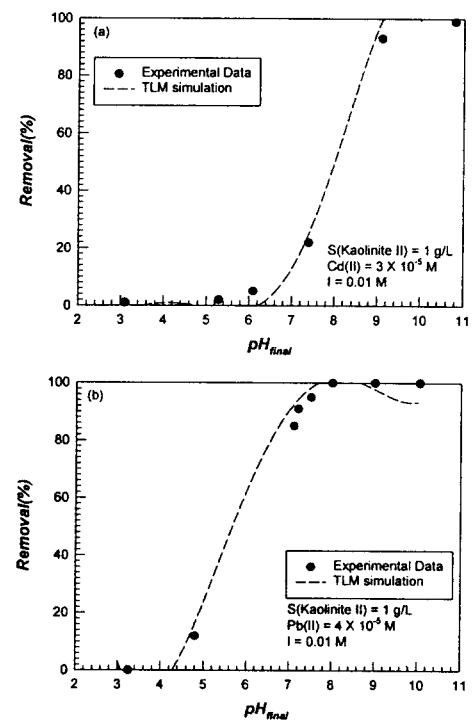


Fig. 7. TLM simulation of Cd(II) and Pb(II) adsorption on Kaolinite II.

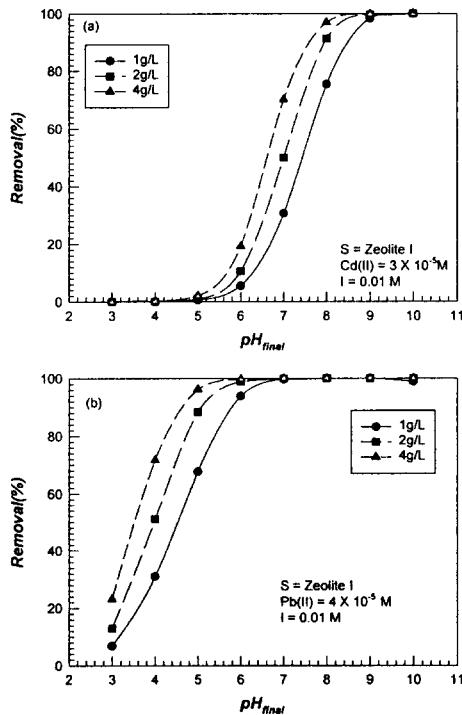


Fig. 8. Model prediction of Cd(II) and Pb(II) adsorption by Zeolite I at different amounts of the adsorbent.

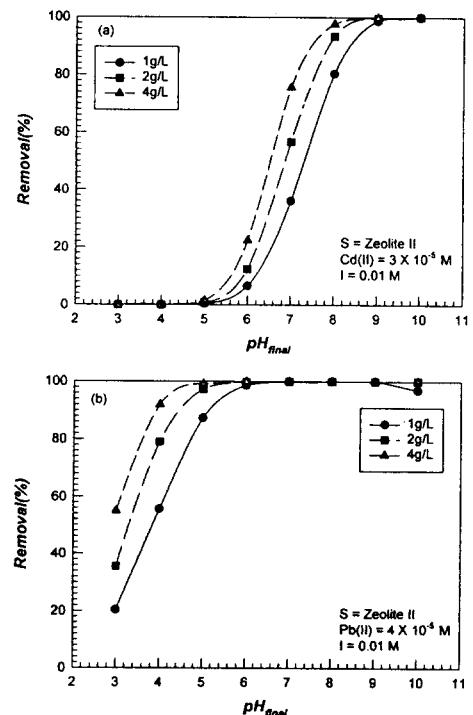


Fig. 9. Model prediction of Cd(II) and Pb(II) adsorption by Zeolite II at different amounts of the adsorbent.

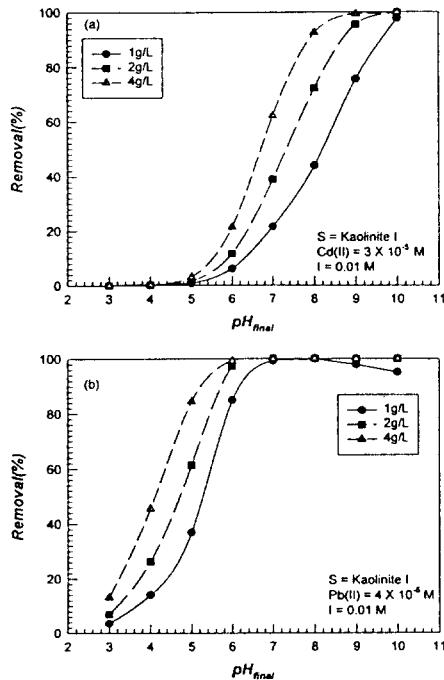


Fig. 10. Model prediction of Cd(II) and Pb(II) adsorption by Kaolinite I at different amounts of the adsorbent.

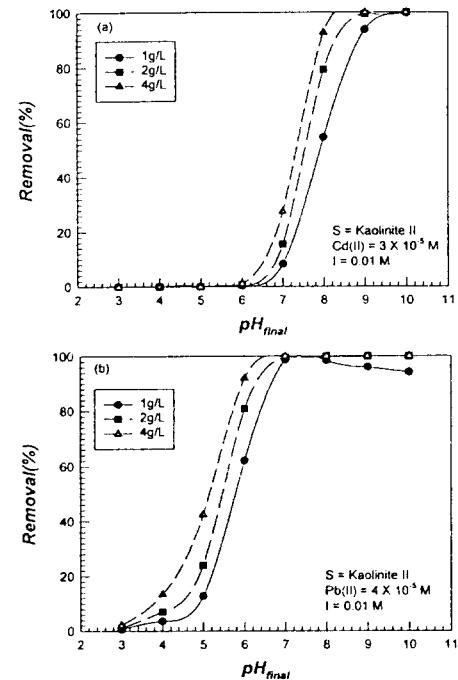


Fig. 11. Model prediction of Cd(II) and Pb(II) adsorption by Kaolinite II at different amounts of the adsorbent.

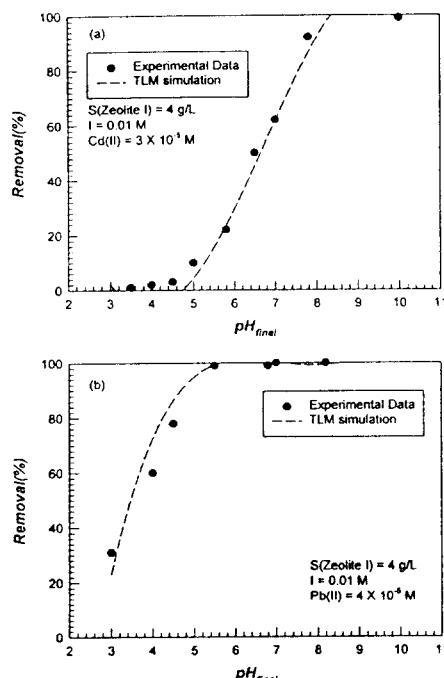


Fig. 12. Model prediction of Cd(II) and Pb(II) adsorption by Zeolite I at different amounts of the adsorbent.

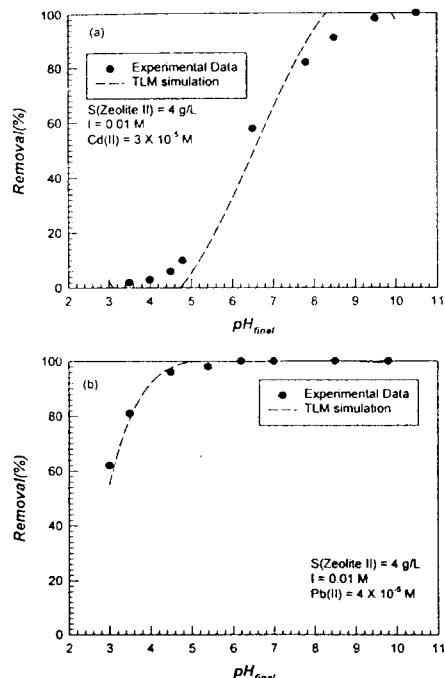


Fig. 13. Model prediction of Cd(II) and Pb(II) adsorption by Zeolite II at different amounts of the adsorbent.

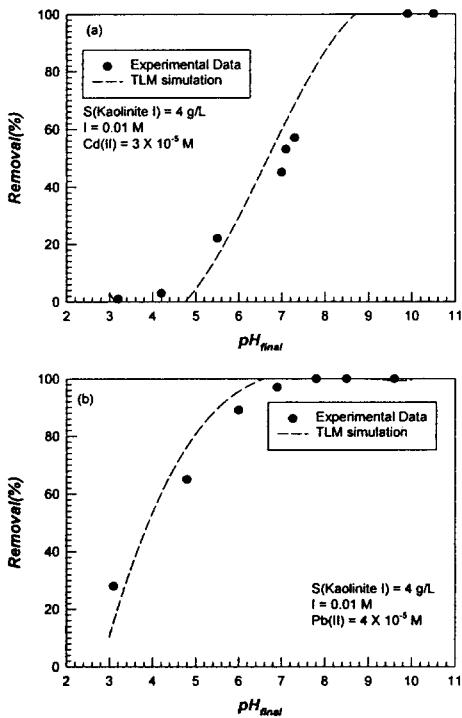


Fig. 14. Model prediction of Cd(II) and Pb(II) adsorption by Kaolinite I at different amounts of the adsorbent.

감사의 글

본 연구는 1998년도 1학기 계명대학교 대학원 학생학술연구장학금에 의하여 이루어졌음.

참 고 문 헌

- 1) 이성홍, 1994, 꽃개껍질에 의한 중금속의 흡착특성에 관한 연구, 호성여자대학교 박사학위논문.
- 2) Charalambos Papelis, Kim F. Hayes, and James O. Leckie, 1988, HYDRAQL : A Program for the Computation of Chemical Equilibrium Composition of Aqueous Batch Systems including Surface-Complexation Modeling of Ion Adsorption at the Oxide/Solution Interface, Technical Report No. 306, Stanford University, 14pp.
- 3) Davis, J. A. and J. O. Leckie, 1978a, Effect of Adsorbed Complexing Ligands on Trace Metal Uptake by Hydrous Oxides, Environ. Sci. Technol., 12, 1309-1315.
- 4) Davis, J. A. and J. O. Leckie, 1978b, Surface Ionization and Complexation at the Oxide/Water Interface II. Surface Properties of Amorphous Iron Oxyhydroxide and Adsorption of Metal Ions, J. Colloid Interface Sci., 67(1), 90-106.
- 5) Yates, D. L., S. Lerine, and Healy, 1974, T. W., J.

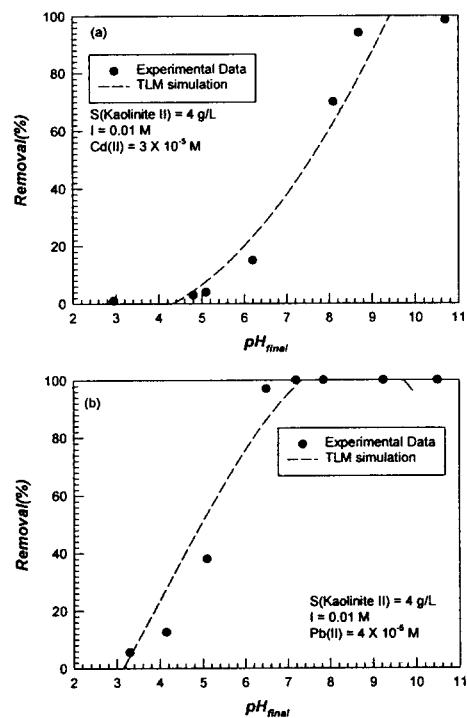


Fig. 15. Model prediction of Cd(II) and Pb(II) adsorption by Kaolinite II at different amounts of the adsorbent.

Chem. Soc. Faraday Trans., 70, 1807.

- 6) Davis, J. A., R. O. James, and J. O. Leckie, 1978c, Surface Ionization and Complexation at the Oxide/Water Interface : I. Computation of Electrical Double Layer Properties in Simple Electrolytes, J. Colloid Interface Sci., 63(3), 480-499.
- 7) Lion, L. W., R. S. Altmann, and J. O. Leckie, 1982, Trace-Metal Adsorption Characteristics of Estuarine Particulate Matter : Evaluation of Contributions of Fe/Mn Oxide and Organic Surface Coatings, Enviro. Sci. Technol., 16, 660-666.
- 8) Grahame, D. C., 1947, The Electrical Double Layer and the Theory of Electrocapillarity, Chem. Rev., 41, 441-501.
- 9) Douglas B. Kent, Vijay S. Tripathi, Nancy B. Ball, and James O. Leckie, 1986, Surface-Complexation Modeling of Radionuclide Adsorption in Sub-surface Environments, Technical Report No. 294, Stanford University, 8pp.
- 10) Hayes, K. F. and J. O. Leckie, 1986, Mechanism of Lead Ion Adsorption at the Goethite/Water Interface. In Chemical Reactions of Mineral Water Interfaces, J. Davis and K. Hayes(Eds.), American Chemical Society Symposium Series.

- 11) Perona, M. J., J. O. Leckie, 1985, Proton Stoichiometry for the Adsorption of Cation on Oxide Surfaces, *J. Colloid and Interface Sci.*, 106, 64-69.
- 12) Honeyman, B. D. and J. O. Leckie, 1986, Adsorption Stoichiometry under Variable pH and Surface Coverage : Comparison of Experimental Results with Theory. In *Chemical Reactions at Mineral Water Interfaces*, J. Davis and K. Hayes(Eds.), American Chemical Society Symposium Series.
- 13) Stumm, W., J. J. Morgan, 1981, *Aquatic Chemistry*, Second Edition, John Wiley & Sons, New York, 780pp.
- 14) Park, S. W., 1987, Specific Chemical Reactions at the Cadmium Sulfide-Water Interface, Ph.D Thesis, University of Delaware, 111pp.