

염화아연으로 표면개질된 입상활성탄의 질산성질소 흡착속도의 모델링 연구

지민규 · 정우식 · Amit Bhatnagar · 전병훈*

연세대학교 환경공학부

Modeling of the Nitrate Adsorption Kinetics onto ZnCl₂ Treated Granular Activated Carbon

Min-Kyu Ji · Woo-Sik Jung · Amit Bhatnagar · Byong-Hun Jeon*

Department of Environmental Engineering, Yonsei University

ABSTRACT

Nitrate adsorption from aqueous solutions onto zinc chloride (ZnCl₂) treated coconut Granular Activated Carbon (GAC) was studied in a batch mode at two different initial nitrate concentrations (25 and 50 mg/L). The rate of nitrate uptake on prepared media was fast in the beginning, and 50% of adsorption was occurred within 10 min. The adsorption equilibrium was achieved within one hour. The mechanism of adsorption of nitrate on ZnCl₂ treated coconut GAC was investigated using four simplified kinetic models : the rate parameters were calculated for each model. The kinetic analysis indicated that pseudo-second-order kinetic with pore-diffusion-controlled was the best correlation of the experimental kinetic data in the present adsorption study.

Key words : Nitrate pollution, Adsorption, ZnCl₂ treated activated carbon, Kinetic modeling.

요 약 문

염화아연(ZnCl₂)으로 표면개질된 코코넛 입상활성탄(Granular Activated Carbon, GAC)의 질산성질소 제거제로서의 적용가능성을 알아보기 위해 두 가지 질산성질소 농도(25 mg/L, 50 mg/L) 조건에서 수중에서의 질산성질소 흡착능력을 평가하였다. 표면개질된 코코넛 입상활성탄의 질산성질소 흡착은 반응초기에 빠르게 진행되어 10분 이내에 흡착율이 50%에 이르렀고 흡착평형에 소요된 시간은 1시간 이내였다. 염화아연으로 표면개질된 코코넛 입상활성탄의 질산성질소 흡착 원리를 조사하기 위해 네 가지 속도 모델들(유사 일차 모델, 유사 이차 모델, Weber & Morris의 입자내 확산 모델, 그리고 Bangham의 공극 확산 모델)을 각 모델의 속도 상수(k)에 따라 적용하였다. 그 결과, 본 연구의 흡착속도는 공극 확산 단계에 의하여 결정되는 것으로 사료되며 유사 이차 모델을 따르는 것으로 나타났다.

주제어 : 질산성질소 오염, 흡착, 염화아연으로 개질된 활성탄, 속도론적 모델링

1. 서 론

현재 우리나라는 지역과 계절별로 강수량이 편중되어 물부족 국가로 분류되어 있으며 2011년에는 물 부족량이 20억 m³에 달할 것으로 보고되었다(국제인구행동연구소(PAD), 1993). 또한, 최근 물 소비량은 생활수준의 향상으

로 인해 더욱 증가되고 있으나, 상수원의 대부분을 지표수에 의존하고 있어 물 부족의 심각성이 더욱 부각되고 있다. 이에 지하수가 대체 상수원으로 이용되고 있으며 사용지역은 날로 증가하는 추세이다(김택수 등, 2004).

2006년 환경부 수질측정망 모니터링 결과, 질산성질소가 일반세균과 대장균군 다음으로 많이 초과된 것으로 보

*Corresponding author : bhjeon@yonsei.ac.kr

원고접수일 : 2007. 10. 31 심사일 : 2008. 5. 19 게재승인일 : 2008. 5. 26
질의 및 토의 : 2008. 8. 31 까지

고되었다(환경부, 2007). 지하수 내 질산성질소의 원인물질은 주로 토양내의 농약, 질소비료, 축산폐기물 등이며 그 외에 산업폐수 및 생활하수 등이 있다. 질산성질소 오염물질들은 하천이나 바다로 유입되어 부영양화를 일으키거나 녹조 및 적조현상의 원인이 된다(환경부, 2003).

음용수에 존재하는 고농도의 질산성질소는 유아기때 산소전달을 방해하여 청색증(Blue-baby syndrome)을 유발하며, 밤암물질로 알려진 니트로사민이란(Nitrosamine) 화합물을 형성할 수 있는 잠재력을 가지고 있다(Chiu et al., 2007). 이에 따라 미국환경청은 음용수의 질산성질소 농도기준을 10 mg NO₃⁻-N/L로 정하였고(US EPA, 2000) 우리나라에서는 NO₃⁻-N을 10 mg/L로 규정하고 있다.

현재 수중의 질산성질소 제거를 위한 기술로는 영가철(Fe⁰)(연경호 등, 2007; Huang and Zhang, 2004)과 영가마그네슘(Mg⁰)(Kumar and Chakraborty, 2006)을 이용한 화학적 탈질법, 이온교환법(이용주 등, 2006; Dore et al., 1986), 역삼투법(Schoeman and Steyn, 2003), 전기투석법(연경호·문승현, 1999), 촉매에 의한 탈질법(Pintar et al., 2001) 그리고 생물학적 탈질법(Soares, 2000) 등과 같은 물리화학적, 생물학적 방법이 있다. 그러나 현재 이용 가능한 기술들은 고비용, 저효율, 부산물 발생 등의 문제를 가지고 있으므로 저비용, 고효율의 수중 질산성질소 제거기술의 개발이 필요하다.

일반적으로 흡착기술은 저가의 경비, 간단한 디자인의 시스템 그리고 운전의 용이성 등의 이유로 다른 폐수처리 기술들에 비해 더 많이 적용된다. 또한, 입상활성탄은 수용액의 다양한 오염물질 제거를 위한 흡착제로 그 성능이 입증된 바 있다. 이전의 연구결과(Kaustubha et al., 2005; Mohanty et al., 2005)에 따르면 입상활성탄의 흡착력을 더 향상시키기 위해 입상활성탄의 표면을 염화아연을 이용하여 개질 후 질산성질소 흡착실험을 수행한 결과 그 효능이 뛰어난 것으로 나타났다.

본 연구에서는 입상활성탄의 질산성질소 흡착과정을 설명하기 위해 평형 연구와 속도론적 연구를 수행하였다. 입상활성탄에 대한 질산성질소의 흡착에 미치는 여러가지 운전변수들의 영향을 접촉시간과 초기 질산성질소 농도의 함수에 따라 조사하였다. 흡착 메커니즘을 규명하기 위해 회분식 실험자료를 일반적인 네 종류의 흡착속도 모델에 적용하였다. 흡착속도 모델링 결과는 입상활성탄의 수처리 현장 적용 시 (i) 원수의 체류시간 및 흡착매질의 포화상태(파괴곡선), (ii) 수처리 흡착설비 작동과 시스템 디자인의 기초적인 정보 제공에 도움을 줄 것이다.

2. 실험재료 및 방법

질산성질소(1000 mg/L) 표준용액은 탈이온수(De-ionized Water)에 NaNO₃(Oriental Chemical Industries, South Korea)를 용해시켜 준비하였다. 실험에 사용된 질산성질소 초기농도는 25 mg/L와 50 mg/L이며 질산성질소 표준용액을 탈이온수로 희석시켜 준비하였다. 코코넛 입상활성탄은 자연과학산업(주)으로부터 구입하였다. 염화아연으로 표면개질된 활성탄은 코코넛 입상활성탄(Granular Activated Carbon, GAC)과 염화아연(ZnCl₂) 용액을 200%의 화학적 무게비율(wt%)로 반응시킨 후 500°C에서의 소성을 통해 준비하였다(지민규 등, 2007).

염화아연으로 표면개질된 입상활성탄에 대한 질산성질소 흡착 실험은 실내온도(25 ± 2°C)에서 회분식 실험의 형태로 연구되었다. 흡착제로 인한 시간에 따른 질산성질소의 흡착량을 알기 위해 마개로 닫혀진 50 mL 용량의 유리관 안에 두 가지 초기 농도(25 mg/L, 50 mg/L)의 질산성질소 용액 10 mL와 코코넛 입상활성탄의 0.1 g을 넣은 뒤 온도가 조절되는 교반기(Jeio Tech Co., SWB-20 Shaking Water Bath)에서 시간을 달리하여 교반시켰다. 이후 0.2 μm 크기의 필터(Versapor, Pall Co., USA)로 여과한 뒤 여과액의 질산성질소 농도는 이온크로마토그래피(Ion Chromatography, Dionex, DX-120)를 이용하여 분석하였다. 시료의 pH는 실험 전과 후에 각각 측정되었는데, 두 질산성질소 용액(25 mg/L, 50 mg/L)의 초기 pH는 6.3 ± 0.5였으나 염화아연으로 개질된 활성탄 첨가 후에 pH 5.5로 약간 감소하였다. 입상활성탄에 흡착된 질산성질소의 양은 식 (1)과 같이 정의할 수 있다.

$$\frac{q_e}{M_w} = (C_o - C_f)V/m \quad (1)$$

여기서 q_e 는 흡착된 질산성질소의 양(mmol/g)이고, M_w 는 질산성질소(NO₃⁻)의 분자량이다. C_o 와 C_f 는 각각 질산성질소의 초기농도(mg/L)와 마지막 농도(mg/L)이며, V 는 질산성질소 용액의 부피(L)이고 m 은 흡착제(염화아연으로 표면개질된 입상활성탄)의 양(g)이다. 흡착능에 대해서는 접촉시간과 질산성질소의 초기농도에 따른 상관관계를 분석하였다. 분석자료는 모든 그림에서 X축은 시간(t), Y축은 흡착량(q_e , mmol/g)의 관계로 나타내었다.

3. 접촉 시간과 농도의 영향

질산성질소의 최대 흡착량에 이르는 평형시간을 확인하

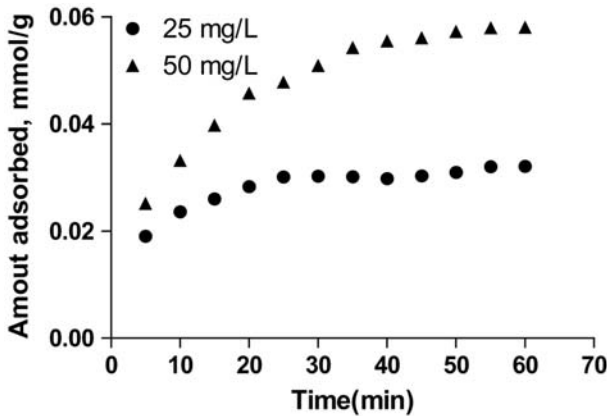


Fig. 1. Effect of contact time and concentration on adsorption of nitrate on ZnCl₂ treated coconut GAC (temperature = 25°C, GAC dosage = 0.1 g/10 mL, pH = 5.5).

고 흡착과정에서의 반응속도를 알기 위해 염화이연으로 표면개질된 코코넛 입상활성탄에의 질산성질소의 흡착량을 접촉시간에 따라 측정하였으며, 그 결과는 Fig. 1과 같다. 실험에 적용된 조건은 질산성질소 용액의 초기농도 25 mg/L, 50 mg/L, 흡착제(염화이연으로 표면개질된 코코넛 입상활성탄) 0.1 g, 온도 25 ± 2°C, pH 6.3 ± 0.5이다. Fig. 1에서 나타나듯이 질산성질소의 흡착은 반응초기에 빠르게 진행되어 10분 이내에 흡착율이 50%에 이르렀고, 흡착평형에 소요된 시간은 1시간 이내였다. 평형시간에 있어 농도의 영향은 두 가지 다른 농도(25 mg/L, 50 mg/L)에서 조사되었고 그 결과는 Fig. 1과 같다. 질산성질소의 초기 농도가 25 mg/L와 50 mg/L일 때 평형상태의 흡착량은 각각 0.0339 mmol/g과 0.0548 mmol/g으로 나타났다. 질산성질소의 초기농도가 증가함에 따라 평형상태의 질산성질소 흡착량이 증가하였다.

4. 흡착속도에 대한 속도론적 모델링 (Kinetic Modeling)

흡착속도는 흡착효율을 평가하는데 있어 중요한 특성 중 하나이다. 이는 흡착과정의 메커니즘 조사에 도움을 주며 수처리 흡착설비의 디자인 설계에 기초적인 정보를 제공한다. 지금까지 다양한 흡착속도 모델들은 많은 연구자들에 의해 제시되어 왔다. 본 연구에서는 염화이연으로 표면개질된 입상활성탄의 질산성질소 흡착 메커니즘을 조사하기 위해 회분식 실험결과를 여러 모델들 중 일반적인 모델로 알려진 유사 일차 모델(pseudo-first-order), 유사 이차 모델(pseudo-second-order), Weber & Morris 모델,

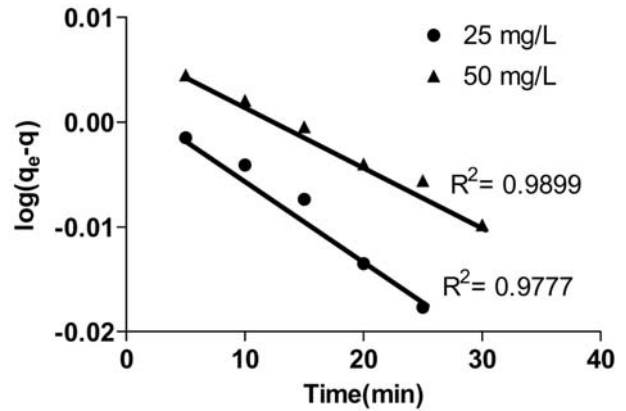


Fig. 2. Pseudo-first-order kinetic plots of adsorption of nitrate on ZnCl₂ treated coconut GAC.

그리고 Bangham의 모델 등 네 가지 모델에 적용하였다.

4.1. 유사 일차 모델(Pseudo-First-Order Model)

다양한 보고서에서(Tutem et al., 1998; Ho, and McKay, 1999) 흡착을 유사 일차 모델로 고려한 바 있다. Lagergren의 속도 방정식(Lagergren, 1898)은 액체 용액에서 용질의 수착에 대해 널리 사용된다(Panday et al., 1985; Haribabu et al., 1993; Periasamy and Namasivayam, 1994) 일차 방정식으로 식 (2)와 같다.

$$\log(q_e - q) = \log q_e - \frac{k_f}{2.303} \cdot t \quad (2)$$

여기서 'q_e'와 'q'는 각각 시간 t와 평형농도에 이르는 시간 동안 흡착된 질산성질소의 양(mmol/g)이고, k_f는 유사 일차 속도상수로 본 연구의 질산성질소 흡착에 적용되었다. 두 가지 질산성질소 초기농도(25 mg/L, 50 mg/L)를 이용한 회분식 실험결과를 유사 일차 모델에 적용한 후 Fig. 2에 선형화하여 나타내었다. 시간(t)에 대한 log(q_e - q) 곡선의 기울기와 절편은 유사 일차 속도상수(k_f)와 모델을 이용하여 평형상태의 흡착된 질산성질소 양에 대한 계산 값(q_{e(cal)})을 결정하기 위해 사용되었으며 상관계수(R²)와 함께 Table 1에 나타내었다. 두 초기농도의 연구결과에 대한 유사 일차 속도 모델의 상관계수는 모두 0.99보다 낮고, 또한 유사 일차 모델로 계산된 q_e 값은 회분식 실험의 q_e 값과 많은 차이를 보였다. 이러한 결과는 본 연구의 흡착시스템이 유사 일차 속도모델을 따르지 않음을 의미한다. 이와 유사한 결과들이 활성탄, 해포석, 염산과 슬래그에 의해 활성화된 해포석 그리고 염화이연으로 개질된 코코넛 껍질 등을 이용한 질산성질소 흡착 연구들

Table 1. Comparison of pseudo-first-order, pseudo-second-order, Weber & Morris and Bangham's models parameters using Eqs. 2-5, and calculated $q_{e(cal)}$ values using Eqs. 2 and 3, and experimental $q_{e(exp)}$ values calculated using Eq. 1 for different initial nitrate concentrations

		Pseudo-first-order model			Pseudo-second-order model			Weber and Morris model		Bangham's model		
C_i (mg/L)	$q_{e(exp)}$ (mmol/g)	$k_f \times 10^{-1}$ (1/min)	$q_{e(cal)}$ (mmol/g)	R^2	$k_s \times 10^{-2}$ (g/mmol min)	$q_{e(cal)}$ (mmol/g)	R^2	k_{ip} (mmol/g min ^{1/2})	R^2	k_o	α	R^2
25	0.0339	1.19	0.0273	0.9777	0.1276	0.0374	0.9938	0.0043	0.9864	14.05	0.52	0.9989
50	0.0548	0.80	0.0468	0.9899	0.0419	0.0661	0.9962	0.0082	0.9846	28.10	0.58	0.9960

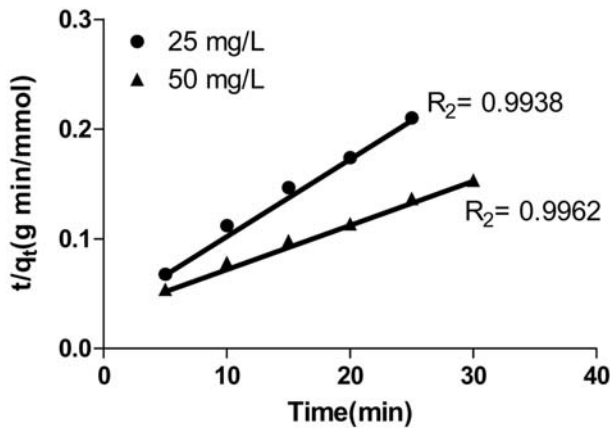


Fig. 3. Pseudo-second-order kinetic plots of adsorption of nitrate on ZnCl₂ treated coconut GAC.

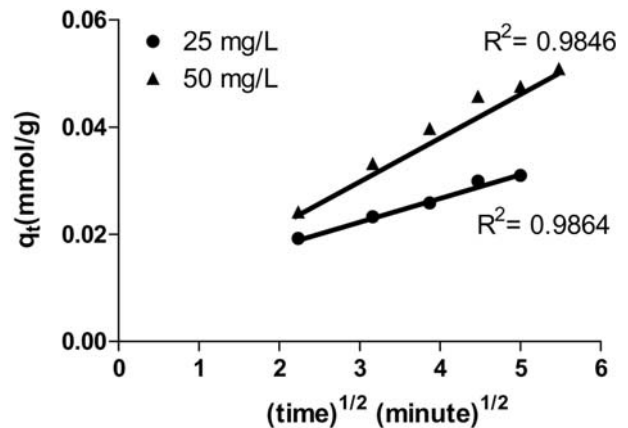


Fig. 4. Weber & Morris intra-particle diffusion plots of adsorption of nitrate on ZnCl₂ treated coconut GAC.

(Öztürk and Bektaş, 2004; Namasivayam and Sangeetha, 2005)에서도 보고된 바 있으며, 본 연구의 유사 일차 속도상수 값과 비교시 유사한 수치를 나타낸다.

4.2. 유사 이차 모델(Pseudo-Second-Order Model)

흡착속도는 유사 이차 모델로도 설명된 바 있다(Ho et al., 2001a; Ho and Chiang, 2001b; Ho and McKay, 1999). 유사 이차 모델의 방정식은 식 (3)과 같다.

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_s q_e^2} + \frac{1}{q_e} \cdot t \tag{3}$$

여기서 ‘ q_e ’와 ‘ q_t ’는 각각 시간 t 와 평형농도에 이르는 시간 동안 흡착된 질산성질소의 양(mmol/g)이고, k_s 는 유사 이차 흡착의 속도상수이다. t 에 대한 t/q_t 의 값을 Fig. 3에 나타내었다. t 에 관한 t/q_t 곡선의 기울기와 절편은 유사 이차 속도상수(k_s)와 모델을 이용하여 계산된 평형상태에서의 흡착량($q_{e(cal)}$)을 결정하기 위해 사용되었으며 상관 계수(R^2)와 함께 Table 1에 나타내었다. 실험결과를 적용한 결과, 유사 이차 속도모델의 상관계수는 0.99보다 높았으며, 모델에 의해 계산된 $q_{e(cal)}$ 값이 회분식 실험의 $q_{e(exp)}$ 값과 잘 맞았다. 이와 유사한 결과들이 활성탄, 해포

석, 염산과 슬래그에 의해 활성화된 해포석 그리고 염화 이연으로 개질된 코코넛 껍질을 이용한 질산성질소 흡착 연구에서 다른 연구자들(Öztürk and Bektaş, 2004; Namasivayam and Sangeetha, 2005)에서도 보고된 바 있으며, 본 연구의 유사 이차 속도상수 값과 비교시 비슷한 수치를 나타낸다. 흡착제에 의한 용액으로부터 용질의 흡착과 관련하여 본질적으로 세 가지 연속적 물질전달 단계가 있다. 그것은 (i) 막 분산(film diffusion), (ii) 입자 내 또는 공극확산(intra-particle or pore-diffusion), (iii) 내부 위치로의 수착(sorption into interior sites)이다(Ho et al., 2001a; Ho and Chiang, 2001b; Ho and McKay, 1999). 이 중 마지막 단계의 반응은 매우 빠르게 일어나기 때문에 흡착속도 상수를 조절하는 주요단계는 막 분산과 입자내 또는 공극확산 단계이다. 이외에 확산 원리를 이해하기 위해 다른 확산모델들(Weber & Morris의 모델과 Bangham의 모델)을 본 연구에 적용하였다.

4.3. Weber & Morris Model

흡착속도 자료를 Weber & Morris에 의해 제안된 입자 내 확산 모델(intra-particle diffusion)(Weber and Morris, 1963)의 견지에서 분석하여 Fig. 4에 나타내었다. Weber

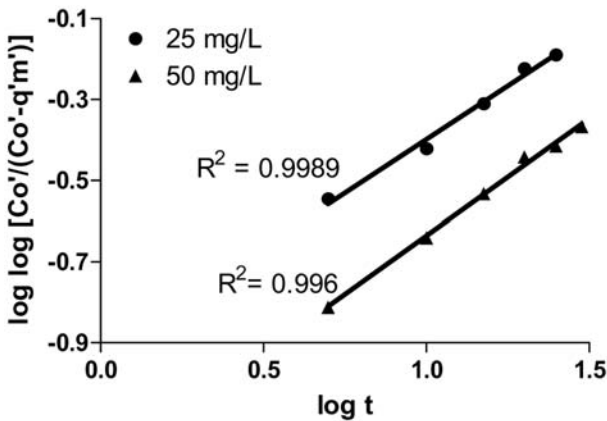


Fig. 5. Bangham's pore diffusion plots of adsorption of nitrate on ZnCl₂ treated coconut GAC.

& Morris 모델 방정식은 식 (4)와 같다.

$$q_t = k_{ip}t^{1/2} + C \tag{4}$$

여기서 C는 절편이고 k_{ip}는 입자내 확산의 속도상수이다. 식 (4)에 따라서 흡착 메커니즘이 입자내 확산과정을 따를 때, t의 제곱근(t^{1/2})에 대한 q_t 값의 관계는 선형이 될 것이다. Fig. 4는 입자내 확산모델의 선형화된 자료를 보여준다. 직선의 절편이 원점을 지나지 않고 상관계수(R²)가 0.99보다 낮게 나타났다. 이는 흡착제로 인한 질산성 질소 흡착 메커니즘이 Weber & Morris 모델을 따르지 않음을 의미한다. 속도변수 K_{ip}를 상관계수(R²)와 함께 계산하여 Table 1에 나타내었다.

4.4. Bangham's Model

흡착속도 자료를 Bangham 방정식의 견지에서 분석하였다. Bangham의 방정식은 식 (5)와 같다(Aharoni and Ungarish, 1977).

$$\log \log \left(\frac{C_o}{C_o - q'm'} \right) = \log \left(\frac{k_o m'}{2.303V} \right) + \alpha \log t \tag{5}$$

여기서 C_o는 용액 내 흡착물질의 초기농도(mmol/L), V는 용액의 부피(mL), m'은 용액 L당 사용된 흡착제 무게(g/L), q'(mmol/g)는 시간(t)에 따른 남은 흡착물질의 양, α (<1)와 k_o는 상수이다. log log [C_o' / (C_o' - q' m')]를 log t에 따라 그려서 Fig. 5에 나타내었다. 연구의 흡착속도 자료들을 적용한 결과 0.99 이상의 좋은 상관계수를 보였으며, 이러한 선형도는 본 흡착 연구에서 Bangham 모델의 적용력을 확인시켜 주며, 흡착제 공극 안으로의 확산이 흡착 과정을 조절한다는 것을 의미하는 결과이다.

이상과 같이 네 가지의 속도론적 모델링을 통하여 유사 이차 속도 모델의 값이 0.99 이상의 좋은 상관계수(R₂)와 실험 값(q_{e(exp)})에 잘 맞음을 알 수 있었고, 흡착확산 모델들을 적용한 결과 Bangham의 모델에서 0.99 이상의 좋은 상관계수(R₂)가 보여져 공극확산 모델을 따르는 것으로 나타났다. 따라서 본 연구의 흡착과정은 유사 이차 속도 모델과 Bangham의 모델에 의해 가장 잘 묘사되어질 수 있다.

5. 결 론

염화이연(ZnCl₂)으로 표면개질한 코코넛 입상활성탄을 이용하여 질산성 질소의 흡착에 관해 평형연구와 속도론적 모델링 연구를 수행한 결론은 다음과 같다.

◆ 실험결과, 코코넛 입상활성탄의 질산성 질소 흡착은 10분 이내에 흡착율이 50%에 이르렀고 흡착평형에 소요된 시간은 1시간 이내였다.

◆ 질산성 질소의 초기 농도가 25 mg/L와 50 mg/L 일 때, 염화이연으로 표면개질한 코코넛 입상활성탄의 흡착량은 각각 0.0339 mmol/g과 0.0548 mmol/g인 것으로 나타났다.

◆ 염화이연으로 개질된 활성탄의 질산성 질소 흡착 실험결과에 대해 여러가지 속도모델 들을 적용한 결과, 본 연구의 흡착시스템은 공극으로의 확산이 조절된 유사 이차 속도 모델을 따르는 것으로 나타났다.

사 사

우리는 21C 프론티어 연구개발 사업분야 중 수자원의 지속적 확보기술개발사업단의 연구비지원(과제번호: 3-4-3)과 Brain Korea 21(BK-21) 연구비지원에 감사 드립니다.

참 고 문 헌

국제연구행동연구소(PAI) : Sustaining Water(Population and the Future Renewable Water Supplies), 1993.
 김탁수, 이용미, 김문선, 김성연, 신해철, 최경호, 정문호, 2004, 일부 농촌지역의 오염원 현황과 먹는물 수질에 관한 조사연구, 한국환경위생학회지, 30(2), 98-103.
 연경호, 문승현, 1999, 전기투석과 전기탈이온법에 의한 음용수에서의 질산성 질소 제거, 대한환경공학회, 21(1), 87-99.
 연경호, 이승학, 이관용, 박용민, 강상운, 이재원, 최용수, 이상협, 2007, 메조기공 실리카에 부착된 영가철을 이용한 질산성 질소의 환원, 상하수도 학회지, 21(1), 139-147.

- 이용주, 민지희, 김종호, 김현승, 2006, 이온교환수지와 나노여과막을 이용한 질산성질소의 제거특성 비교, 대한상하수도학회한국물환경학회 공동추계학술발표대회 논문집, 2006, pp. 171-176.
- 지민규, 최양훈, 정우식, 이상훈, 김신준, 민부기, 아밋바트나가, 김성현, 정형근, 전병훈, 강준원, 2007, 염화아연으로 표면개질된 입상활성탄의 질산성질소 흡착연구, 한국지구시스 템공학회지, **44**(6), 492-499.
- 환경부, 2007, 2006년 지하수 수질측정망 운영결과.
- 환경부, 환경백서, 452-458, 2003.
- Aharoni, C. and Ungarish, M., 1977, Kinetics of activated chemisorption Part 2.- Theoretical models, *J. Chem. Soc. Faraday I*, **73**, 456-464.
- Chiu, H.-F., Tsai, S.-S., and Yang, C.Y., 2007, Nitrate in drinking water and risk of death from bladder cancer: An ecological case-control study in Taiwan, *J. Toxicol. Environ. Hlth., Part A*, **70**, 1000-1004.
- Dore, M., Simon, Ph., Deguin, A., and Victot, J., 1986, Removal of nitrate in drinking water by ion exchange-Impact on the chemical quality of treated water, *Water Res.*, **20**, 221-232.
- Haribabu, E., Upadhyya, Y.D., and Upadhyay, S.N., 1993, Removal of phenols from effluents by fly ash, *Int. J. Environ. Studies*, **43**, 169-176.
- Ho, Y.S. and McKay, G., 1999, The sorption of lead(II) ions on peat, *Water Res.*, **33**, 578-584.
- Ho, Y.S., Ng, J.C.Y. and McKay, G., 2001a, Removal of lead(II) from effluents by sorption on peat using second-order kinetics, *Sep. Sci. Technol.*, **36**, 241-261.
- Ho, Y.S. and Chiang, C.C., 2001b, Sorption studies of acid dye by mixed sorbents, *Adsorption*, **7**, 139-147.
- Ho, Y.S. and McKay, G., 1999, Pseudo-second order model for sorption processes, *Process Biochem.*, **34**, 451-465.
- Huang, Y.H. and Zhang, T.C., 2004, Effects of low pH on nitrate reduction by iron powder, *Water Res.*, **38**, 2631-2642.
- Kumar, M. and Chakraborty, S., 2006, Chemical denitrification of water by zero-valent magnesium powder, *J. Hazard. Mater.*, **B135**, 112-121.
- Lagergren, S., 1898, About the theory of so-called adsorption of soluble substances, *K. Svenska Vetenskapsakad Handl.*, **24**, 1-39.
- Mohanty, K., Jha, M., Meikap, B.C., and Biswas, M.N., 2005, Preparation and characterization of activated carbons from terminalia arjuna nut with zinc chloride activation for the removal of phenol from wastewater, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **44**, 4128-4138.
- Mohanty, K., Jha, M., Meikap, B.C., and Biswas, M.N., 2005, Removal of chromium(VI) from dilute aqueous solutions by activated carbon developed from Terminalia arjuna nuts activated with zinc chloride, *Chem. Engg. Sci.*, **60**, 3049-3059.
- Namasivayam, C. and Sangeetha, D., 2005, Removal and recovery of nitrate from water by ZnCl₂ activated carbon from coir pith, an agricultural solid waste, *Ind. J. Chem. Technol.*, **12**, 513-521.
- Öztürk, N. and Bektaş, T.E., 2004, Nitrate removal from aqueous solution by adsorption onto various materials, *J. Hazardous Mat.*, **B112**, 155-162.
- Panday, K.K., Prasad, G., and Singh, V.N., 1985, Copper(II) removal from aqueous solutions by fly ash, *Water Res.*, **19**, 869-873.
- Pintar, A., Batista J., and Levec, J., 2001, Catalytic denitrification: direct and indirect removal of nitrates from potable water, *Catalysis Today*, **66**, 503-510.
- Periasamy, K. and Namasivayam, C., 1994, Process development for removal and recovery of cadmium from wastewater by a low-cost adsorbent: Adsorption rates and equilibrium studies, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **33**, 317-320.
- Schoeman, J.J. and Steyn, A., 2003, Nitrate removal with reverse osmosis in a rural area in South Africa, *Desalination*, **155**, 15-26.
- Soares, M.I.M., 2000, Biological denitrification of groundwater, *Water. Air. Soil Pollut.*, **123**, 183-193.
- Tutem, E., Apak, R., and Unal, C.F., 1998, Adsorptive removal of chlorophenols from water by bituminous shale, *Water Res.*, **32**, 2315-2324.
- US Environmental Protection Agency, 2000, *Drinking water standards and health advisories*, US Environmental Protection Agency, Office of Water, 822-B-00-001.
- Weber Jr., W.J. and Morris, J.C., 1963, Kinetics of adsorption on carbon from solution, *J. Sanit. Engg. Div., ASCE* 89 (SA2), pp. 31-59.