

論 文

황산염환원균을 이용한 폐광폐수의 중금속 제거

Removal of Heavy Metals from Acid Mine Drainage Using Sulfate Reducing Bacteria

백병천 · 김광복

Byeong Cheon Paik · Kwang Bok Kim

Abstract

SRB(Sulfate Reducing Bacteria) converts sulfate into sulfide using an organic carbon source as the electron donor. The sulfide formed precipitates the various metals present in the AMD (Acid Mine Drainage). This study is the fundamental research on heavy metal removal from AMD using SRB. Two completely mixed anaerobic reactors were operated for cultivation of SRB at the temperature of 30°C and anaerobic batch reactors were used to evaluate the effects of carbon source, COD/sulfate(SO_4^{2-}) ratio and alkalinity on sulfate reduction rate and heavy metal removal efficiency. AMD used in this study was characterized by low pH 3.0 and 1000 mg/l of sulfate and dissolved high concentration of heavy metals such as iron, cadmium, copper, zinc and lead. It was found that glucose was an organic carbon source better than acetate as the electron donor of SRB for sulfate reduction in AMD. Amount of sulfate reduction maximized at the COD(glucose)/sulfate ratio of 0.5 in the influent and then removal efficiencies of heavy metals were 97.5% of Cu, 100% of Pb, 100% of Cr, 49% of Mn, 98% of Zn, 100% Cd and 92.4% of Fe. Although sulfate reduction results in an increase in the alkalinity of the reactor, alkalinity of 1000mg/l (as CaCO_3) should be added continuously to the anaerobic reactor in order to remove heavy metals from AMD.

1. 서 론

지하수와 산화광물의 산화작용에 의해 발생
하는 폐광폐수는 낮은 pH, 높은 황산염(SO_4^{2-})

농도 및 철, 망간, 아연, 구리 등의 중금속을
고농도로 함유하고 있어 주변 수계를 산성화시
키고 수중에 서식하는 미생물, 조류, 어류를
사멸시킨다. 또한 암석, 광산폐기물, 콘크리트
등과 반응하여 구조물을 침식시키며, 인체 및
유기체(동물, 식물, 미생물 등)에 유해한 독성금
속(구리, 아연, 카드뮴, 망간, 납 등)을 용해

*여수대학교 환경공학과

시켜 주변 환경에 심각한 피해를 가져오는 등 생태계의 파괴를 야기하므로 이에 대한 적절한 대책이 필요한 실정이다.^{1,2)}

폐수로부터 중금속을 제거하기 위해 물리적, 화학적 공정들이 사용되고 있으나 제거효율, 경제성 및 폐수량 등에 따라 제한적으로 사용되고 있는 실정이다.³⁻⁵⁾ 이에 따라 중금속 제거기술 개발에 대한 연구가 여러 방면에서 진행되면서 근래에 와서 생물학적인 중금속 제거기술에 관한 연구가 점차로 관심을 모으고 있는데, 특히 이들 중 혐기성 처리 공정인 황산염환원균(Sulfate Reducing Bacteria, SRB)을 이용한 중금속 제거 공정은, 복미를 중심으로 폐광폐수 등을 처리할 목적으로 활발히 연구되고 있으며, SRB의 능력을 극대화시키기 위한 연구들이 아직까지 부족함에도 불구하고, 이타물리·화학적 처리 방법들에 비하여 효율성이 뛰어난 것으로 평가되고 있다.⁶⁻⁸⁾

SRB를 이용한 중금속 제거공정은 SRB가 유기물을 전자공여체로 이용하여 황산염을 황화물로 환원시킬 때 생성되는 황화합물이 폐수 내에 존재하는 여러 중금속과 반응하여 황화물 침전을 형성하는 기작을 이용한 것이다. 이는 폐수로부터 중금속의 제거 뿐만 아니라 폐수의 특성에 따라 폐수로부터 중금속의 회수 가능성도 시사해 준다. 이와 같은 방법으로 제거되는 중금속 황화물은 재용출의 우려가 적고 혐기성 소화조에서 유기탄소원을 이산화탄소와 중탄산염으로 전환시켜 결과적으로 알칼리도를 증가시키게 되므로 다량의 황산염을 함유하고 있는 폐광폐수로부터 중금속을 제거하는 효과적인 방법으로 인식되고 있다.^{6,7,9,10)}

따라서 본 연구에서는 다량의 중금속과 고농도의 황산염(SO₄²⁻)이 함유된 폐광폐수로부터 중금속을 제거하기 위해 혐기성 생물학적 공정을 적용하고자 하며, 이에 효율적인 중금속 제거를 위한 적절한 탄소원의 선정, SRB의 최적 생육조건 및 반응조의 최적 운전 조건을 조사하였다.

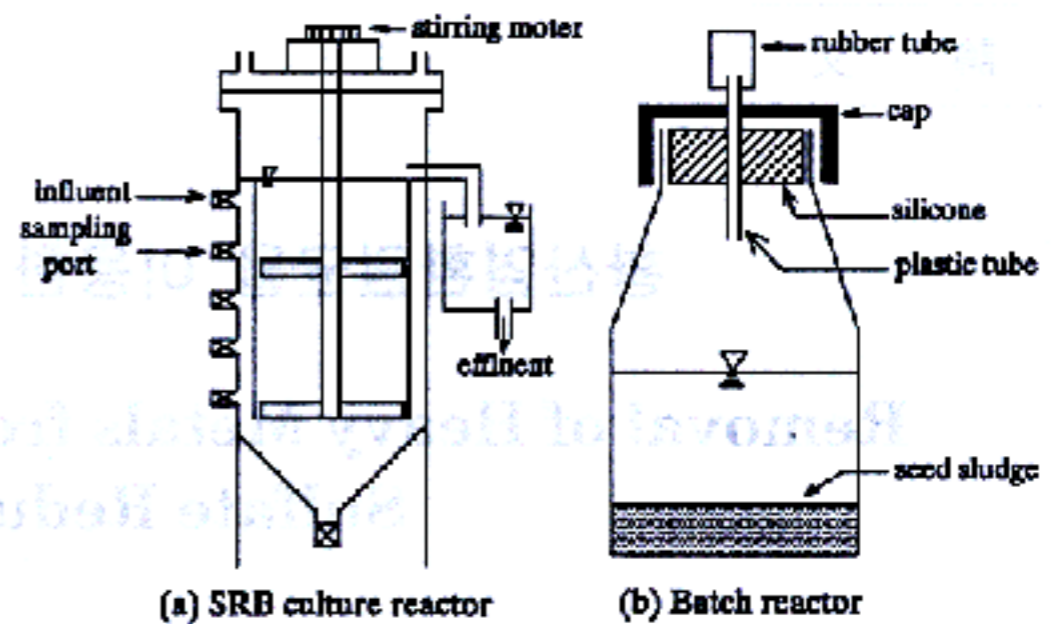


그림 1. 실험장치 구성도

2. 실험 장치 및 방법

1. 실험 장치

SRB 배양을 위해 각각 glucose와 acetate 기질이 각각 공급되는 2개의 반응조는 아크릴 수지로 제작되었으며 5.2l(높이 20cm, 내부직경 20cm)의 유효용량을 갖고 있다(그림 1(a)). Feed solution은 유기물의 변성을 방지하기 위하여 4°C에 저장되어 반응조에 주입되었으며, 각 반응조의 운전 온도는 30°C, 혼합기의 혼합속도는 50rpm이었다. 유출수 분석을 위한 시료 채취는 유출수면에서 2cm 아래 측벽에 설치된 시료채취구를 이용하였다. 그림 1(b)는 회분식 실험에서는 250ml 용량의 반응조로 인공 합성된 폐광폐수 130ml(혐기성 배지 포함)을 넣고 N₂ gas로 purging 시킨 후, 배양된 SRB 반응조에서 채취한 식종 슬러지 20ml을 첨가하고 pH를 7.0으로 조절한 뒤, 반응조 상단을 실리콘 마개로 밀봉하여 혐기성 상태를 유지시켰다. 반응조의 운전조건은 30°C, 150rpm이었다.

2. 실험 방법

SRB의 배양을 위해 식종물질로 사용된 슬러지는 K하수처리장 혐기성 소화조의 슬러지와 D백주공장에서 채취한 소화 슬러지를 3:1의 비율로 혼합시킨 것으로서, 소화 슬러지에 포함된 이물질 제거하기 위해 No. 16(1.18mm) 체로 거른 후 사용하였다. 각 반응조에 식종된 슬러지의 체적은 4.5l였으며 초기 TS(Total Solid) 농도는 약 900mg/l였다. 황산균환원균

표 1. SRB 배양에 사용된 feed solution의 조성

Substrate	Glucose	1,000
	Acetate	1,000
sulfate	Na ₂ SO ₄ -SO ₄ ²⁻	1,000
alkalinity (as CaCO ₃)	NaHCO ₃	2,000
	NH ₄ Cl	170
Nutrient	K ₂ HPO ₄	50
	KH ₂ PO ₄	50
	MgCl ₂ · 6H ₂ O	40
	KCl	50
	FeCl ₂ · nH ₂ O	2
	ZnCl ₂	0.05
	CuCl ₂ · 2H ₂ O	0.03
Trace element	MnCl ₂ · 4H ₂ O	0.5
	H ₃ BO ₃	0.05
	NiCl ₂ · 6H ₂ O	0.05
	CoCl ₂ · 6H ₂ O	0.05
	Biotin	0.0312
	Cyanocobalamin	0.0016
	Folic acid	0.0312
Vitamin	Nicotinic acid	0.08
	Ca-Pantothenate	0.08
	Pyridoxin-HCl	0.16
	Riboflavin	0.08
pH	Thiamin-HCl	0.08
	7.0-7.2	

(단위: mg/l except pH)

배양에 사용된 feed solution의 조성은 표 1과 같으며, 반연속식 운전으로 약 90일간 배양을 실시하였다.

폐광폐수의 조제를 위해 국내의 폐탄광 및 폐금속광산폐수의 특성을 현장조사를 통하여 분석하였다. 현장조사 및 시료 채취를 실시한 곳은 전남 화순군 한천면 오음리에 위치한 폐탄광인 호남광업 부근의 하천과 현재 가행 중인 대한석탄공사 화순광업소 그리고 부산 광역시 기장군에 위치한 폐금속광인 일광광산 일대이다. 이러한 지점들에서 채취한 폐수에 함유된 중금속의 조성과 각각의 농도, 폐수의 pH, COD, 황산염 농도 등을 파악한 결과 탄광폐수

표 2. 제조된 폐광폐수의 조성

항 목	농도(mg/l)	사용 시약
SO ₄	1,000	Na ₂ SO ₄
Fe	250	FeCl ₂ · nH ₂ O
Mn	20	MnCl ₂ · 4H ₂ O
Zn	10	ZnCl ₂
Cd	10	Cd(NO ₃) ₂ · 4H ₂ O
Pb	2	PbCl ₂
Cu	8	CuCl ₂ · 2H ₂ O
Cr	1	CrCl ₃ · 6H ₂ O
pH	3.0	

와 금속폐광폐수는 공통적으로 고농도의 황산염과 Fe를 함유하고 있었으며, 금속폐광폐수의 경우는 3 이하의 낮은 pH와 카드뮴, 구리, 아연, 납 등의 중금속을 다량 함유하고 있었다. 국내 폐광폐수 현장조사 자료를 바탕으로 하여 표 2와 같이 연구에 사용될 인공 합성 폐광폐수를 제조하였다.

시료는 1시간 정도 침전시킨 후 상등액을 채취하여 0.2µm membrane filter로 여과한 후 COD_{Cr}은 Closed reflux titrimetric method, SO₄²⁻은 Barium chloride method, 중금속은 Atomic Absorption Spectrophotometer(AA-680, Shimadzu)을 이용하여 분석하였으며, SS와 VSS는 Standard Methods¹¹⁾에 준하여 분석하였다.

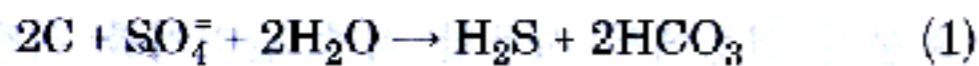
3. 결과 및 고찰

1. SRB의 배양 특성

회분식 실험에서 사용할 식종 슬리지를 위해 표 1에서 나타난 바와 같이 중금속이 존재하지 않고 단지 1,000mg SO₄²⁻/l의 고농도 황산염(SO₄²⁻)만이 존재하는 폐수에서 SRB 배양을 실시하였다. 5.2l의 유효용량을 갖는 두 개의 반응조에 유입기질로 glucose와 acetate를 각각 1,000mg/l의 농도로 반연속식으로 주입하였다. 그림 2는 두 반응조의 유출수 COD 농도를 보여 준다. 유입기질로 glucose를 사용하여 유입농도 1,000mg COD/l를 주입한 결과 운전

10일 만에 유출수의 COD는 160 mg/l의 농도를 나타내었고, 운전 30일 이후부터는 유출수의 COD 농도가 100mg/l 이하를 지속적으로 유지하였다. 반면에 유입기질로 acetate를 사용하여 유입농도 1,000mg COD/l를 주입한 결과 운전 10일에 유출수의 COD는 400mg/l의 농도를 나타내었고, 유출수의 COD 농도가 100mg/l 이하를 유지한 시기는 운전 70일 이후에 나타나 반응초기에 glucose의 감소속도가 acetate보다 빠르게 진행되었다. 한편, 그림 3은 반응조에서 유출 황산염(SO₄²⁻) 농도를 보여준다. glucose를 기질로 이용한 경우 20일에 황산염(SO₄²⁻) 농도는 320mg/l를 유지하였고, 운전 60일 후에는 평균 120mg/l 정도로 운전 90일 까지 이 수준을 일정하게 유지하였으며, acetate를 기질로 이용한 경우 20일에 황산염(SO₄²⁻) 농도는 654mg/l를 유지하였고, 운전 60일 이후에는 평균 180mg/l 정도로 운전 90일까지 이 수준을 일정하게 유지하였다. 이러한 결과는 glucose가 acetate에 비하여 SRB의 활성을 빠르게 증가시킬 수 있는 전자공여체로서의 역할을 하고 있음을 시사하며, 동시에 각 반응조에서 SRB에 의하여 glucose의 경우 약 88%, acetate의 경우 약 82% 정도의 황산염이 지속적으로 환원이 일어나고 있는 것은 슬러지 내에 좋은 활성을 갖는 SRB가 충분히 존재하고 있음을 시사해 주고 있다.

SRB에 의하여 황산염(SO₄²⁻) 단위 mg를 환원하는 데 요구되는 이론적인 COD값은 식 (1)에 의하면 0.67이다.



Anderson et al.과 Choi et al.은 황산염(SO₄²⁻) 단위 mg를 환원하는 데 필요한 COD 값은 사용된 탄소원과 반응조 시스템에 따라 0.7~1.5의 범위를 갖는다고 보고하였다.^{12,13)} 탄소원으로 glucose를 사용한 본 시스템에서 운전 70일 이후 안정된 상태에서 이값을 계산한 결과 황산염(SO₄²⁻) 단위 mg를 환원하는 데 필요한 COD 값은 1.06 값을 보였으며, acetate의 경

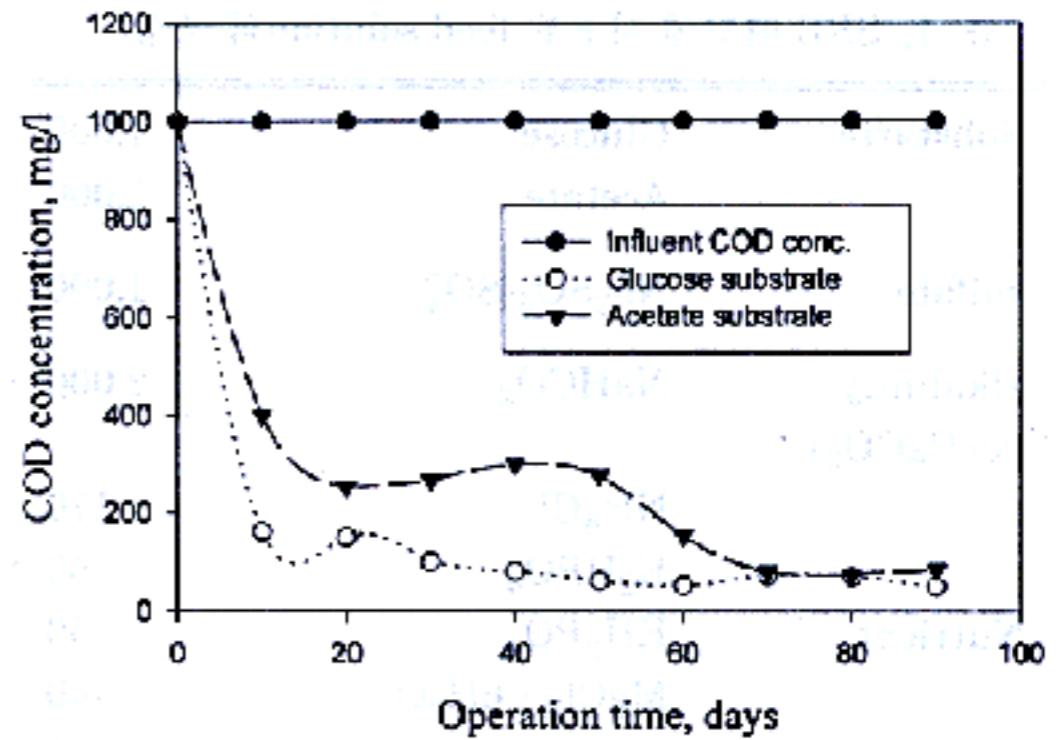


그림 2. SRB 배양 반응조에서 COD 농도 변화

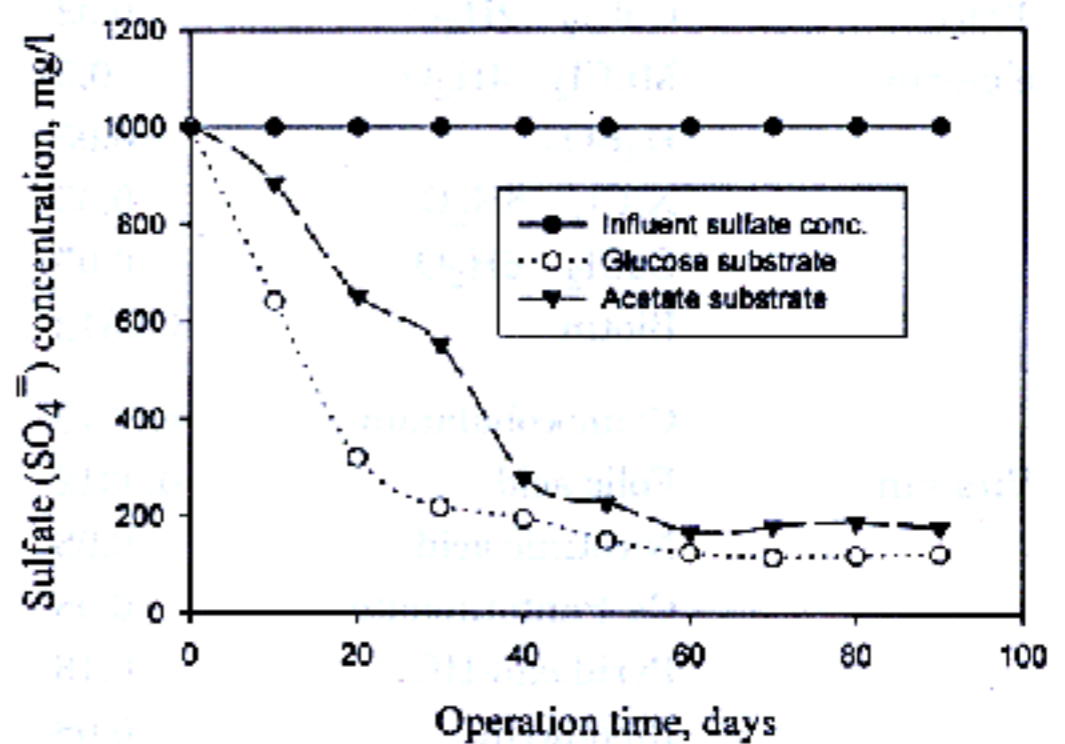


그림 3. SRB 배양 반응조에서 황산염(SO₄²⁻) 농도 변화

우 1.12 으로 나타났다.

2. 전자공여체의 영향

SRB 배양을 통해 활성이 확인된 미생물을 식종 슬러지로 사용하여 전자공여체의 영향에 대한 실험을 실시하였다. 표 2에 나타난 바와 같이 낮은 pH와 고농도의 황산염(SO₄²⁻), 그리고 높은 농도의 중금속이 함유되어 있는 인공 폐광폐수가 사용되었다. Glucose와 acetate가 SRB 공정에서 탄소원으로 사용되었을 때, 각 반응조에 유입된 COD 1mg 당 환원된 황산염(SO₄²⁻) 양(mg)을 환산한 결과를 그림 4에 나타내었다. 그림 4는 회분식 배양 10일째에 유입 sulfate에 대한 COD 비율에 따라 환원된 황산

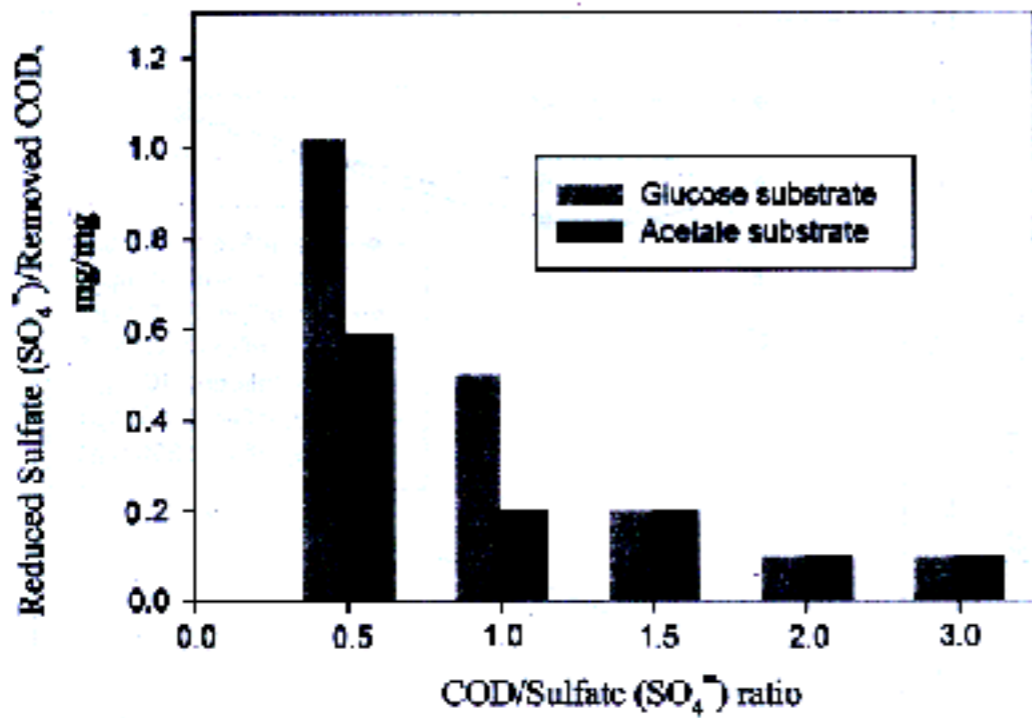


그림 4. 황산염(SO₄²⁻) 환원에 대한 전자공여체의 영향

염(SO₄²⁻) 양(mg)을 제거된 COD로 나눈 값을 보여 주고 있다. COD/sulfate ratio가 1.5~3.0의 범위에서는 glucose와 acetate가 전자공여체로서 황산염의 환원에 차이가 없는 것으로 나타났다. 그러나, COD/sulfate ratio가 0.5에서 glucose가 COD 1mg당 환원된 황산염(SO₄²⁻) 양(mg)이 1.02였으며, acetate의 경우는 0.59이었고, COD/sulfate ratio가 1.0에서는 glucose가 0.5, acetate가 0.2로 나타나 COD/sulfate ratio가 0.5~1.0의 범위에서는 glucose에 의한 COD 1mg 당 환원된 황산염(SO₄²⁻) 양이 acetate에 의해 환원된 양에 비하여 1.7~2.5 배 가량 높게 나타나 특히 이 범위에서 glucose가 acetate에 비하여 전자공여체로서의 효용성이 높은 것으로 조사되었다.

3. COD/Sulfate(SO₄²⁻) ratio 의 영향

각 전자공여체별로 COD/sulfate ratio를 조정하여 실시한 실험의 결과를 그림 5에 나타내었다. 그림에서 보듯이 반응 10일 후에 탄소원으로 glucose를 첨가한 반응조의 경우 COD/sulfate ratio가 0.5~3.0 사이에서 환원된 황산염(SO₄²⁻) 양(mg)은 250~510mg/l로 나타났다. COD/sulfate ratio가 1.5일 때 환원된 황산염(SO₄²⁻) 양(mg)은 250mg/l(환원율 25%)로 가장 낮았고, 0.5일 때 510mg/l(환원율 51%)의 황산염이 환원되어 가장 높은 황산염 환원율을

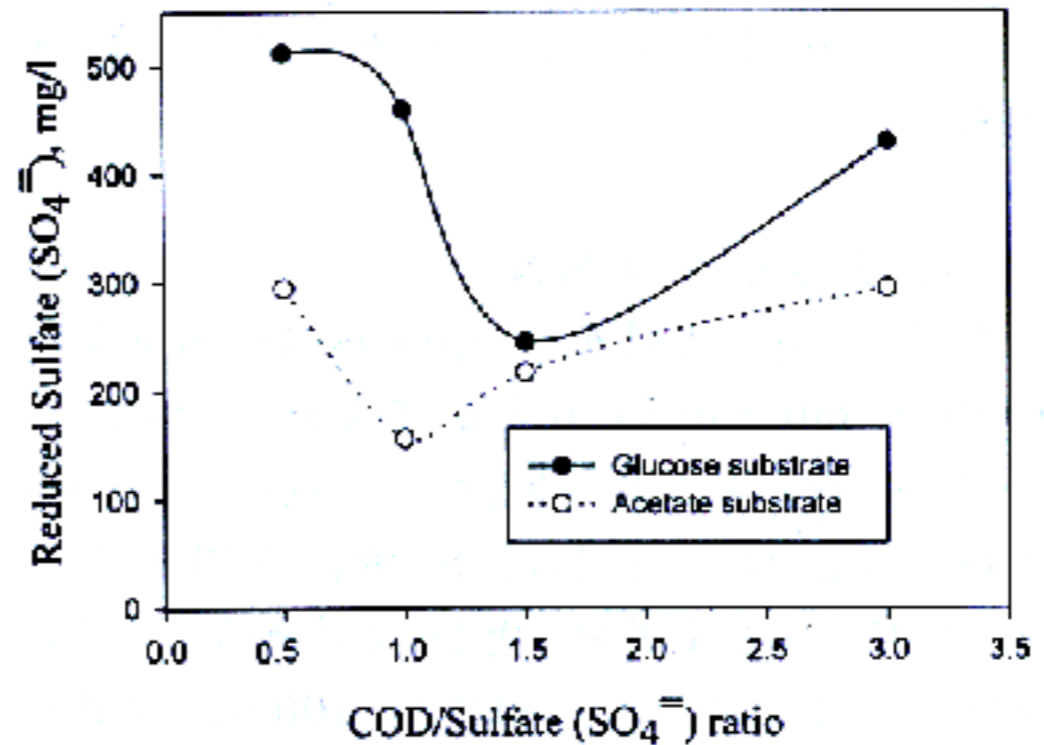


그림 5. 황산염(SO₄²⁻) 환원에 대한 COD/황산염(SO₄²⁻) 비의 영향

보였다. 탄소원으로 acetate를 첨가한 반응조의 경우, COD/sulfate ratio가 0.5~3.0 사이에서 환원된 황산염(SO₄²⁻) 양(mg)은 155~300mg/l(환원율 15.5~30%)로 glucose에 비하여 상당히 낮게 나타났으나, glucose의 경우와 마찬가지로 COD/sulfate ratio가 0.5에서 황산염 환원율이 30%로 가장 높은 값을 가졌다. Christensen 등은, SRB 공정을 이용하여 폐광폐수 내 중금속을 성공적으로 제거시켰음에도 불구하고 폐수 내의 황산염은 초기값에 비해 불과 27% 이하의 환원율을 보였다는 보고하였다.⁹⁾ 이와같이 COD/sulfate ratio에 따라 황산염(SO₄²⁻) 환원율이 다르게 나타났으나, glucose와 acetate를 사용한 반응조 모두에서 COD/sulfate ratio가 0.5인 경우에 SRB의 활성이 가장 높은 것으로 조사되었다.

회분식 실험에서 조사된 황산염(SO₄²⁻) 환원율은 연속반응조의 SRB 배양에서 얻어진 82% 이상의 황산염(SO₄²⁻) 환원율에 비하여 비교적 낮게 나타난 바, 이는 반응시간의 차이와 함께 연속반응조의 SRB 배양이 회분식 실험에 사용할 목적으로 SRB를 활성화 시키는 데 중점을 둔 반면, 회분식 실험은 같은 식종 슬러지를 사용하였더라도 고농도의 중금속이 함유된 인공 합성폐수를 첨가한 상태였기 때문에, 배양 초기에 반응조 내의 미생물들이 유해 중금속에 어느 정도 영향을 받아서 SRB의 활성이 상대

적으로 떨어지는 결과를 초래했을 가능성을 배제할 수 없다.

4. 중금속 제거 특성

선정된 전자공여체인 glucose를 사용하여 COD/sulfate ratio를 0.5로 조정한 후 배양 시간별 중금속 농도를 측정된 결과는 그림 6과 같다. 측정 대상 중금속들은 반응 초기에 급격히 농도가 감소하여 반응 2일째에 구리는 90%, 납은 70.5%, 크롬은 100%, 망간은 25%, 아연은 72%, 카드뮴은 83%, 철은 78.4%가 제거되었으며, 반응 5일째에는 구리는 85%, 납은 90%, 크롬은 100%, 망간은 40%, 아연은 85%, 카드뮴은 100%, 철은 89.6%가 제거되었고, 반응 10일째에는 구리는 97.5%, 납은 100%, 크롬은 100%, 망간은 49%, 아연은 98%, 카드뮴은 100%, 철은 92.4%의 제거율을 보여, 반응 2일째 이후에는 제거율의 큰 차이를 보이지 않았다. 이러한 결과는 중금속 제거를 위해 연속 반응조 운전시 반응조 수리학적 체류시간을 2일 정도로 운전하여도 중금속 제거가 가능하다는 것을 시사해 준다. 한편, 망간은 10일에 이르러서도 50% 정도만 제거되는 양상을 보였다. 이는 sulfide의 존재 하에서 중금속들의 용해도 값과 비교했을 때, 다른 중금속들에 비해 망간의 용해도 값이 25°C에서 $K_s = [Mn^{2+}][S^{2-}] = 10^{-13.5}$ 으로 가장 큰 것에 기인된 것으로 사료된다.

5. 알칼리도의 영향

국내 폐광폐수의 경우 폐수 내 알칼리도가 거의 없는 것으로 조사되었다. 일반적으로 정상적인 혐기성 반응조를 운전하기 위해서는 적절한 알칼리도가 유지되어야 하므로 인공으로 합성된 폐광폐수 내에 알칼리도가 첨가되어야 한다. 따라서 반응조의 연속운전이 가능한 최소량의 알칼리도를 유입수에 첨가하는 것이 경제적인을 감안하여, 본 실험에서는 유입수에 첨가하여야 할 적정 알칼리도를 조사하였다.

COD(glucose)/sulfate ratio가 0.5인 경우에 가장 뛰어난 SRB 활성을 나타낸 결과를 바탕

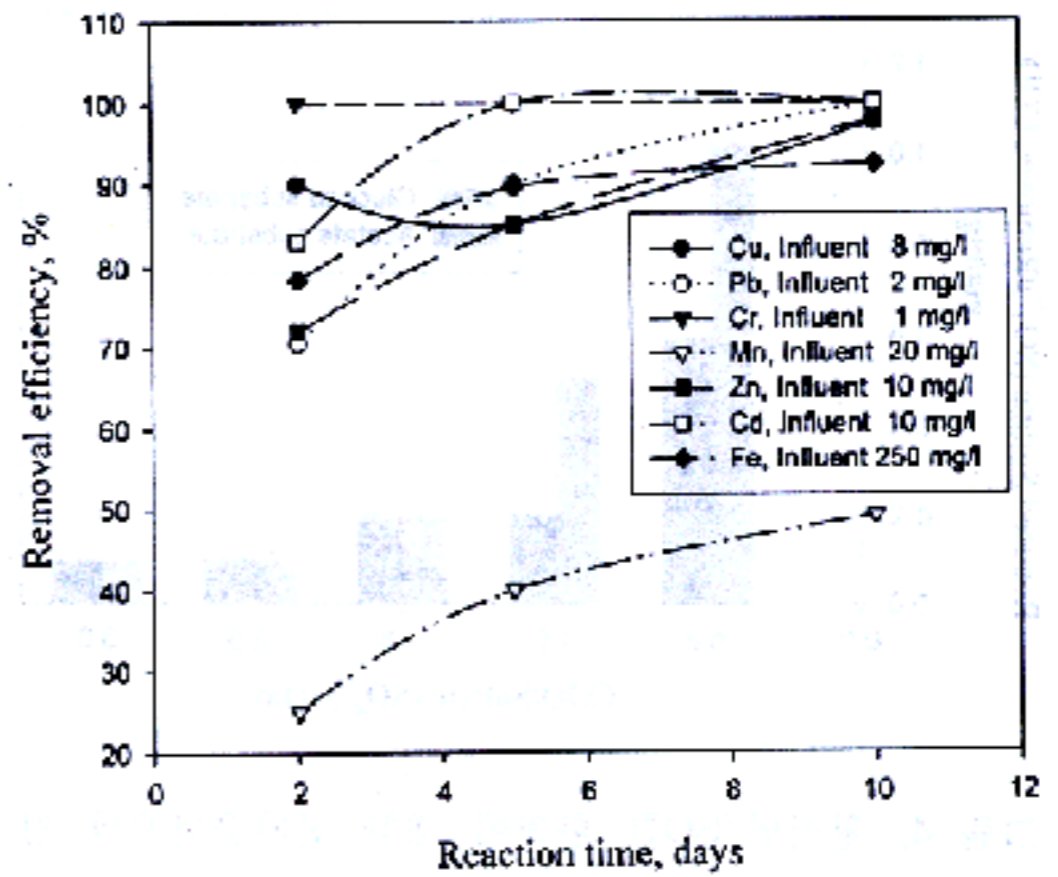


그림 6. COD/황산염(SO₄²⁻) 비가 0.5인 반응조에서 중금속 제거 효율

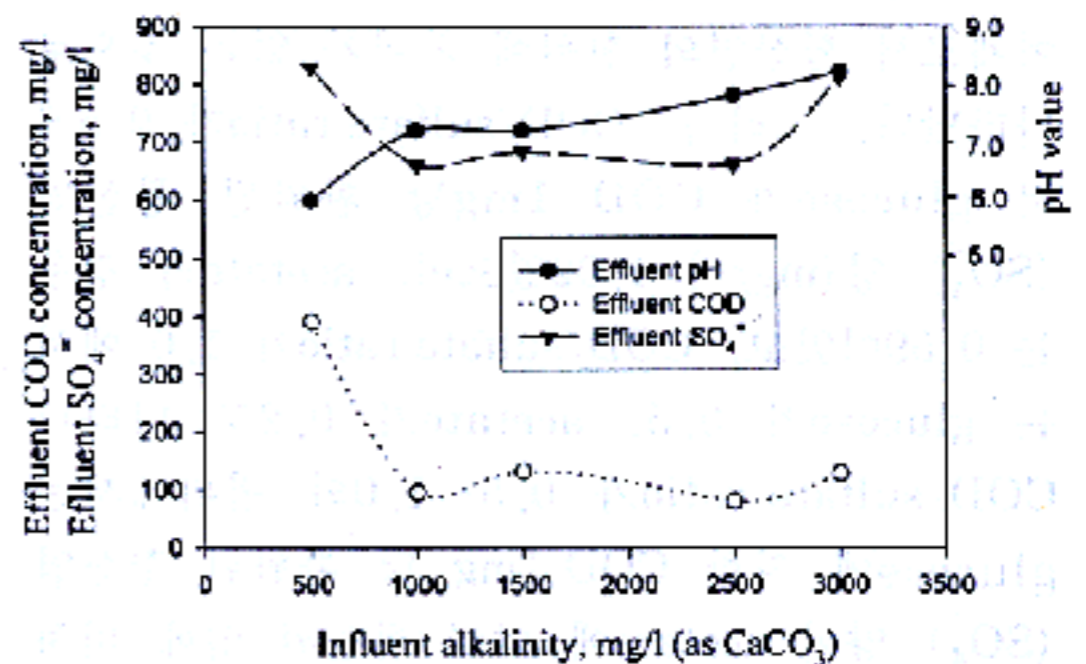


그림 7. 다양한 알칼리도를 갖는 반응조에서의 pH, COD, 황산염(SO₄²⁻)의 농도 변화

으로 하여, COD/sulfate ratio를 0.5로 고정시킨 상태에서 알칼리도 주입량에 따른 반응조 내 거동을 살펴 보았다. 그림 7은 초기 유입 알칼리도에 따른 반응 5일 후에 나타난 유출수의 pH, COD 및 SO₄²⁻ 농도 변화를 나타낸 것이다. 유입 알칼리도를 500mg/l로 하였을 때, 시간에 따라 pH가 점차 떨어져 pH 6 부근을 유지하였고, 1,000~3,000mg/l에서는 SRB 활성에 필요한 적정한 수준인 pH 7 부근으로 유지하는 데 큰 차이를 보이지 않았다. 반응조의 COD 농도는 1,000~3,000mg/l의 알칼리도를

주입한 반응조에서는 약 100mg/l을 유지하였다. 그러나, 500mg/l 알칼리도를 첨가한 반응조의 경우에는 각각 400mg/l의 COD를 유지하여 COD 제거율은 매우 낮게 나타났다. 또한, 500mg/l 알칼리도에서만 다른 반응조에 비해 황산염 환원이 느리게 진행되는 것으로 조사되었다. 따라서, 유입 알칼리도는 500mg/l을 유지할 경우에는 정상적인 반응조의 운전이 어려울 것으로 판단된다. 그림 7의 결과로 볼 때 반응조의 pH와 황산염 환원을 유지하는 정상적 운전이 가능한 최소 유입 알칼리도는 1,000mg/l로 나타났다.

4. 결 론

본 연구에서는 다량의 중금속과 고농도의 황산염(SO₄²⁻)이 함유된 폐광폐수로부터 황산염환원균을 이용하여 효율적으로 중금속을 제거하기 위한 연구로서 실험을 통하여 얻어진 결론은 다음과 같다.

1. 고농도의 황산염과 철, 카드뮴, 구리 아연, 납 등의 중금속을 다량 함유한 폐광폐수에서 황산염환원을 위한 전자공여체로 glucose를 첨가한 반응조가 acetate를 첨가한 반응조에 비하여 높은 SRB 활성을 보여 glucose가 황산염 환원을 위한 효율이 높은 전자공여체로 나타났다.

2. COD/sulfate(SO₄²⁻) 비를 0.5~3.0으로 각각 조정하여 유입기질별로 회분식 배양을 실시한 결과 COD(as glucose)/sulfate(SO₄²⁻) 비가 0.5일 때 가장 우수한 황산염환원율을 나타내었다.

3. COD(as glucose)/sulfate 비가 0.5인 반응조에서 반응 10일째에 구리 97.5%, 납 100%, 크롬 100%, 망간 49%, 아연 98%, 카드뮴 100%, 철 92.4%로 높은 중금속 제거율을 보였다.

4. 반응조 내의 적정 pH 유지와 SRB의 활성에 저해를 주지 않기 위해서 유입폐광폐수가 유지해야 할 최소 알칼리도는 1,000mg/l(as

CaCO₃)로 나타났다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 특정기초연구비(과제번호: 96-0601-07-01-3)의 지원에 의하여 수행되었습니다. 연구비를 지원해 주신 재단에 감사드립니다.

참고문헌

1. 석탄산업합리화사업단, 폐광에 따른 광산지역 환경개선 연구(폐수, 폐석), 기술업서 95-02, 267p., 석탄합리화사업단, 1995.
2. 대한자원환경지질학회, 대한지질학회, 폐광산 지역의 환경보존 및 활용방안, 제12회 공동학술강연회논문집, 2-5, 1996.
3. Dean, John G. et al., "Removing Heavy Metals from Wastewater", *Environ. Sci. Technol.*, Vol.6, No.6, 73-78, 1972
4. Maruyama, Toshiro et al., "Metal Removal by Physical and Chemical Treatment Processes". *Journal WPCF*, Vol.47, No.5, 47-56, 1975.
5. Peters, Robert W. and Ferg, Jeff, "The Dissolution/Leaching Behavior of Metal Hydroxide/Metal Sulfide Sludges from Plating Wastewater", *Hazardous Waste & Hazardous Materials*, Vol.4, No.4, 103-110, 1987.
6. Dvorak D.H. et al., "Treatment of metal contaminated water using sulfate reduction: Result from pilot-scale reactors", *Biotech. & Bioeng.*, Vol.40, 609-616, 1992.
7. James R. et al., "Demonstration of an innovative heavy metals removal process", *Environmental Progress*, Vol.14, No.1, 91-98, 1995.
8. Kuycak et al., "In situ Bacterial treatment of AMD in open pits", *2nd International Conf. on the Abatement of Acidic Drainage*, Montreal, Canada, 1991.
9. Christensen., B. M. Laake., and T. Lien., "Treatment of acid mine water by sulfate-reducing bacteria; Result from a bench scale experiment", *Water res.* vol. 30, No. 7, pp.1617-1624, 1996.
10. Wijaya, S., Henderson, W.D., Bewtra, J.K., and Biswas, N., "Optimization of dissolved heavy

