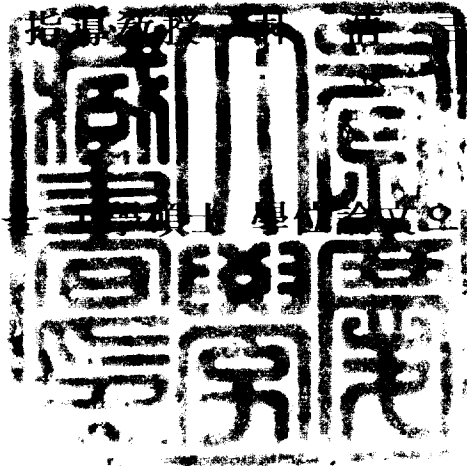


工学碩士 學位論文

# 생물활성탄 공정에서의 부착미생물 군집특성

이 論文은 工学碩士學位論文으로 提出함



2006年 2月

釜慶大學校 産業大學院

環境工學科

李 洙 愛

# 李洙愛 工學碩士 學位論文을 認准함

2005年 12月

主 審 工學博士 李 柄 憲



委 員 工學博士 姜 壬 錫



委 員 理學博士 朴 清 吉



# < 목 차 >

|                                                                      |        |
|----------------------------------------------------------------------|--------|
| List of Table .....                                                  | iii    |
| List of Figures .....                                                | iv     |
| Abstract .....                                                       | v      |
| 제 1 장 서 론 .....                                                      | 1      |
| <br>제 2 장 문 헌 연 구 .....                                              | <br>3  |
| 2.1 자연생태계에서의 미생물 분포 및 군집동태 .....                                     | 3      |
| 2.2 현장조건에서 형광 연계 잡종화(Fluorescent <i>in situ</i> hybridization) ..... | 9      |
| 2.3 천연유기물질 (NOM) .....                                               | 11     |
| 2.3.1 천연유기물질의 생물학적 분해도에 따른 분류 .....                                  | 12     |
| 2.3.2 오존처리에 의한 천연유기물질의 생분해능 변화 .....                                 | 17     |
| 2.1.3.2 분자량 분포특성에 의한 분류 .....                                        | 11     |
| 2.1.3.3 UV흡광도에 의한 분류 .....                                           | 13     |
| 2.1.3.4 생물학적 분해도에 따른 분류 .....                                        | 15     |
| 2.4 입상활성탄 공정 .....                                                   | 20     |
| 2.4.1 입상활성탄 흡착 .....                                                 | 20     |
| 2.4.1.1 흡착 메카니즘 .....                                                | 20     |
| 2.4.2 파과 곡선 (breakthrough curve) .....                               | 23     |
| 2.4.3 공탑체류시간 (EBCT) .....                                            | 26     |
| 2.5 생물여과 공정 .....                                                    | 28     |
| 2.5.1 생물여과 공정에서 오존처리의 영향 .....                                       | 31     |
| 2.5.2 생물여과 공정에서 여재의 영향 .....                                         | 32     |
| 2.5.3 생물여과 공정에서 접촉시간의 영향 .....                                       | 34     |
| 2.5.4 생물여과 공정에서 역세척의 영향 .....                                        | 35     |
| 2.5.5 생물여과 공정에서 수온의 영향 .....                                         | 36     |
| <br>제 3 장 재 료 및 방 법 .....                                            | <br>38 |
| 3.1 실험재료 .....                                                       | 37     |
| 3.1.1 Pilot-plant 실험장치 .....                                         | 38     |

|                                                                          |    |
|--------------------------------------------------------------------------|----|
| 3.2 실험방법 .....                                                           | 39 |
| 3.2.1 수질항목 분석 .....                                                      | 39 |
| 3.2.2 세균 생체량 .....                                                       | 40 |
| 3.2.3 세균 생산력 .....                                                       | 41 |
| 3.2.4 세균 동정 .....                                                        | 41 |
| 3.2.5 세균 군집구조 .....                                                      | 41 |
| 3.2.5.1 시료 전처리 .....                                                     | 41 |
| 3.2.5.2 유전자 탐침(Gene probe) .....                                         | 42 |
| 3.2.5.3 현장조건에서 형광 연계 잡종화(Fluorescent <i>in situ</i> hybridization) ..... | 42 |
| <br>제 4 장 결과 및 고찰 .....                                                  | 44 |
| 4.1 활성탄 재질별 운전기간에 따른 용존유기물질 제거능 .....                                    | 44 |
| 4.2 활성탄 재질별 운전기간에 따른 부착세균의 생체량과 군집구조 변화 .....                            | 47 |
| 4.3 활성탄 재질별 AOC 제거율과 부착세균 생체량과의 관계 .....                                 | 56 |
| <br>제 5 장 결 론 .....                                                      | 60 |
| <br>참 고 문 헌 .....                                                        | 63 |

## <List of Table>

|                                                                                                                                            |    |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Table 1 Characterized species of $\alpha$ -Proteobacteria .....                                                                            | 5  |
| Table 2 Characterized species of $\beta$ -Proteobacteria .....                                                                             | 6  |
| Table 3 Characterized species of $\gamma$ -Proteobacteria .....                                                                            | 7  |
| Table 4 Characterized species of C-F phylum .....                                                                                          | 7  |
| Table 5 Characterized species of gram (+) high content bacteria .....                                                                      | 8  |
| Table 6 The effect of ozonation on biodegradability in several drinking water<br>treatment plants .....                                    | 18 |
| Table 7 Effect of ozone dose on BDOC and bacterial growth kinetics .....                                                                   | 19 |
| Table 8 Composition of chemisorption and physisorption .....                                                                               | 21 |
| Table 9 Experience with biological processes in drinking water treatment for<br>organic carbon removal .....                               | 37 |
| Table 10 Characteristics of post-ozonated water .....                                                                                      | 38 |
| Table 11 The physical characteristics of GACs used in this study .....                                                                     | 38 |
| Table 12 Sequences, target sites specificities of rRNA-targeted oligonucleotide<br>probes used for fluorescent in situ hybridization ..... | 43 |
| Table 13 Distribution of bacteria isolated in different BAC types .....                                                                    | 53 |
| Table 14 Distribution of bacteria isolated in different BAC types .....                                                                    | 55 |

## <List of Figures>

|                                                                                                              |    |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Fig. 1. Principles of detection by FISH .....                                                                | 10 |
| Fig. 2. Fraction of dissolved organic matter .....                                                           | 14 |
| Fig. 3. Hypothetical fractionation of DOC according to biodegradable .....                                   | 15 |
| Fig. 4. Conceptual model for the utilization of BDOC in a GAC contactor .....                                | 16 |
| Fig. 5. Pore and surface diffusion .....                                                                     | 22 |
| Fig. 6. Typical adsorption column performance .....                                                          | 24 |
| Fig. 7. Theoretical breakthrough curve for TOC removal by GAC .....                                          | 25 |
| Fig. 8. Bed depth-service time and percent exhaustion at breakthrough versus<br>depth .....                  | 27 |
| Fig. 9. Schematic diagram illustrating the processes occurring in a drinking water<br>biofilter .....        | 29 |
| Fig. 10. Representation of biological filtration .....                                                       | 30 |
| Fig. 11. Distributions of desorption volume with pore size .....                                             | 39 |
| Fig. 12. DOC breakthrough curves for various GACs .....                                                      | 45 |
| Fig. 13. SEM photograph of attached bacteria on BAC .....                                                    | 46 |
| Fig. 14. Photograph of DAPI and EUB for attached bacteria on BAC .....                                       | 48 |
| Fig. 15. Variations of bacterial biomass according to bed volume .....                                       | 49 |
| Fig. 16. Variations of bacterial communities and bacterial production according to<br>bed volume .....       | 52 |
| Fig. 17. Correlation between AOC removal efficiency and HPC biomass in different<br>BAC types .....          | 57 |
| Fig. 18. Correlation between AOC removal efficiency and TDC biomass in different<br>BAC types .....          | 58 |
| Fig. 19. Correlation between AOC removal efficiency and bacterial production in<br>different BAC types ..... | 59 |

# **The Characteristics of Microbial Community for Biological Activated Carbon in Water Treatment Plant**

**Soo-Ae Lee**

*Department of Environmental Engineering, Graduate school of Industry,  
Pukyong National University*

## **Abstract**

This study used a pilot plant with a treatment capacity of 300 m<sup>3</sup>/day to examine the organic carbon removal efficiency with different activated carbon material and to investigate the microbial consortium in BAC by analyzing attached bacteria biomass, bacterial production, dominant species and by performing FISH analysis.

According to the experiment results, in the BAC process, HPC and bacterial production for each activated carbon material were  $0.5 \times 10^7$ – $55 \times 10^7$  CFU/g and 0.7–3.4 mgC/m<sup>3</sup>h, respectively. With respect to the correlations between the bacterial biomass for each activated carbon material (HPC, TDC, production) and the AOC removal rate, the activated carbon of coal-based material possessing a higher level of biomass showed a relatively higher correlation than the other activated carbon materials.

According to the results of identification of attached bacteria for each activated carbon material, genres were detected in the order of

*Pseudomonas* genus, *Flavobacterium* genus, *Alcaligenes* genus, *Acinetobacter* genus and *Spingomonas* genus. In addition, *Pseudomonas vesicularis* was the dominant species in the coconut- and coal-based materials and *Pseudomonas cepacia* was the dominant species in the wood-based material. The SEM observation of the activated carbon surface also found the widespread distribution of rod form and coccus.

The consortium of attached bacteria was investigated by performing FISH analysis. In the case of coal-based activated carbon material, a group was dominant in the initial stage of operating period, but with operating time passed, most of bacterial groups were evenly distributed. On the contrary, in the cases of the wood- and coconut-based materials, a group was mostly dominant throughout the operation time. These results led to the conclusion that the diversities of attached bacteria on the activated carbon were depending on the properties of activated carbon and environmental factors.



# 제 1 장 서 론

정수처리 공정에서 생물활성탄(biological activated carbon: BAC) 공정은 미생물의 유기물 제거능을 극대화시킨 일종의 생물여과 공정으로 이전부터 국내·외에서 널리 사용되고 있는 정수처리 기법이다 (Servais et al., 1992). BAC 공정은 일반적으로 오존과 함께 사용되며, 오존에 의해 생성된 생분해 가능한 유기물질(biodegradable organic matter: BOM)이 주로 BAC 공정에서 제거되며 (Carlson et al., 2001), 미생물 재생장능(microbial regrowth potential)과 소독부산물 생성능 저감에도 효과적인 공정으로 알려져 있고 (Langlais et al., 1991), 최근에는 멤브레인 공정과 조합하여 새로운 정수처리 공정으로 부각되고 있다 (Park et al., 2002).

BAC 공정은 그 수계에 존재하는 미생물들(indigenous microorganisms)이 활성탄에 부착·서식하며 수중의 천연유기물질(natural organic matter: NOM)을 기질로 이용하기 때문에 그 수계에 서식하는 미생물 종들에 매우 의존적이다. 또한, 수온, 유기물 종류 및 pH 등과 같은 유입수의 성상과 활성탄의 재질에 따라서도 부착미생물의 구성종 및 생체량에 많은 차이를 유발하여 BAC 공정의 효율에 많은 영향을 미친다고 알려져 있다 (Fonseca et al., 2001; Kihn et al., 2002; Melin et al., 2002). 따라서, BAC 공정을 최적으로 운영하고자 할 때 부착미생물의 구성종과 생체량 분석은 매우 중요한 요소이며, 여기에 대한 많은 연구결과가 보고되고 있다 (Moll et al., 1999; Långmark et al., 2004).

현재 미생물 분포 및 군집변화에 대한 연구에는 배양적 방법과 비배양적 방법이 사용되고 있다. 배양 가능한 박테리아와 균류를 배양하여 측정하는 heterotrophic plate count(HPC) 법은 수계 내에 배양 불가능한 세균(viable but unculturable bacteria)이 높은 비율로 존재하기 때문에 실제로 활성을 가진 미생물 개체수 보다 낮게 측정되는 등의 문제점이 있어 배양적 방법에 한계를 보이고 있다. 비배양적 방법으로는 직접 계수에 의한 총세균수의 측정방법인 DAPI 염색법과 형광물질로 표지된 rRNA-target oligonucleotide를 사용한 *in situ* hybridization 방법은 자연 상태의 세균 군집구조를 가장 정확하게 나타낼 수 있는 장점을 가지고 있다 (Kogure et al., 1979; Staley and Konopka, 1985; Amann et al., 1994, 1995; Yu et al., 1994; Långmark et al., 2004). 특히, Fluorescent *in situ* Hybridization(FISH) 법은 최근에 개발된 분자생물학적 monitoring 기법으로서 미생물 군집구조의 이해에 가장 적합한 방법으로 인식되고 있

다 (Amann et al., 1994; Alfreider et al., 1996; Falkentoft et al., 2002; Bouvier and Giorgio, 2003). 수처리 분야에서 주로 하·폐수처리 공정 중 생물학적 처리공정의 미생물 군집 분석에 FISH 기법을 이전부터 많이 이용하고 있으며 (Wagner et al., 1994; Kämpfer et al., 1996; Snaidr et al., 1997; Falkentoft et al., 2002), 상수처리 분야에서는 주로 배·급수관망에서 미생물 재성장(regrowth)에 의해 형성된 생물막 특성분석 (Manz et al., 1993; Kalmbach et al., 1997)과 막 여과 공정 중 막 표면에서 막오염을 유발하는 미생물의 특성분석을 위해 사용하였다 (Hörsch et al., 2005).

본 연구에서는 1일 300톤 처리 용량의 pilot-plant를 이용하여 BAC 공정에서의 활성탄 재질별로 운전기간에 따른 유기물 제거능과 미생물 생체량, 생산력 등 부착 미생물의 분포상태를 조사하였고, 또한, FISH 방법을 이용하여 BAC 부착세균의 군집구조를 분석하였다.

## 제 2 장 문헌연구

### 2.1. 자연생태계에서의 미생물 분포 및 군집동태

생태계의 기본적 특성 중의 하나는 시간적, 공간적 역동성을 갖는 것으로서 이는 기후, 지형 등 자연요인과 물리, 화학, 생물학적 상호관계가 복잡하게 작용한다. 따라서 수생 생태계에서의 미생물의 동태와 기능을 파악하는 것은 기초학문으로서 뿐만 아니라 물질순환의 관점에서도 매우 중요하고, 미생물 군집의 구조와 다양성을 정량적으로 이해하기 위한 노력은 미생물 생태학에 있어 핵심적 과제라고 할 수 있다.

수생 생태계에서의 미생물 군집동태의 연구는 전통적 배양적 방법과 비배양적 방법이 사용된다. 세균 군집구조의 연구는 배양이 되지 않는 세균(viable but unculturable bacteria)이 전체 군집의 95% 이상을 차지하는 만큼 배양적 방법에 한계를 가져왔다. 따라서, 형광현미경으로 직접 계수하는 방법이 도입되었으며, 세균의 활성도와 체외효소의 활성도, 생리적 활성도, 성장률 등을 생화학적, 유전학적 방법을 동원하여 분석하였으며, 그로 인해 호수 생태계에서 미생물의 기능을 보다 더 잘 파악할 수 있었다. 최근 개발된 분자생물학적 방법은 다양한 유전자를 대상으로 응용할 수 있지만, 세균 분류 및 진화에서 많은 연구와 자료가 많은 Ribosomal RNA 이용은 세포내 다량의 rRNA 유지로 추적이 용이한 점 등의 장점으로 널리 시도되어 왔다 (이 등, 1997).

한편, 비배양적 방법으로 직접 계수에 의한 총세균수의 측정 방법인 DAPI(4,6-diamidino-2-phenylindole) 염색법과 형광물질로 표지된 rRNA-target oligonucleotide를 사용한 *in situ* hybridization 방법은 자연상태의 세균군집 구조를 가장 정확하게 나타낼 수 있는 장점을 가지고 있으며, 군집구조의 이해에 적합한 방법으로 현재 인식되고 있다 (Kratzer and Brezonik, 1981). Fluorescent *in situ* hybridization (FISH) 기법은 다양한 oligonucleotide probe를 이용하여 현재 보편적으로 사용하는 분류기준인 Bacteria, Archaea, Eucarya의 3계 중 BacteriarP의 분류군을 추적하는 방법이다.

Bacteria 계내에서는 여러 문들이 존재하지만, Gram (+) bacteria와 Cyanobacteria 그리고 Proteobacteria가 많은 부분을 차지하고 있다. Gram (+) bacteria는 다시 G-C의 함량(약 50%)에 따라 high G-C 그룹과 low G-C 그룹 등 2개의 하부군을 가진다. proteobacteria는 Gram (-) bacteria 중 가장 규모가 크며, 생리학적으로 가장 다양한

Eubacteria 그룹으로 종속영양세균의 대부분을 차지하며, 5 종류의 하위 그룹, 즉,  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -,  $\delta$ -,  $\epsilon$ -그룹을 가지며, 이들 중 일부 세균은 광영양성을 가지기도 하지만 비광영양성 세균도 많이 존재한다 (Madigan et al., 2000).

Table 1에서 Table 5는  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -Proteobacteria 그룹의 분류군과 Gram (+) high G+C content bacteria, 그리고 *Cytophaga-Flavobacterium*의 분류군을 나타낸 것으로 oligonucleotide probe를 이용한 FISH법에 의해 검출이 가능한 그룹들이다 (Madigan et al., 2000; 박, 2000).

하지만 수생생태계에서 이들 그룹들이 가지고 있는 생태학적 기능에 대한 보고는 매우 적다. 유기물이 풍부한 곳에 영양염류를 첨가하면  $\beta$ -그룹에서  $\gamma$ -그룹으로 우점종이 바뀌며, 소양호에서 Eubacteria의 계절별 군집구조는 봄철에는  $\gamma$ -그룹, 여름철에는  $\alpha$ -그룹이 우점하고, 가을철에는 Eubacteria 그룹의 비율이 상대적으로 낮아 other Eubacteria가 우점하는 특성을 보고한 바 있다 (김 등, 1999).

Proteobacteria 그룹의 보고되어진 생태학적 특성을 보면,  $\alpha$ -그룹은 혐기성 광합성 세균인 *Rhodobacter* sp., 호기성 종속영양세균인 *Caulobacter* spp.와 *Hyphomicrobium* spp. 등 다양한 물질대사와 다양한 형태를 가진 세균군을 포함하며, 저농도의 유기물 이용능력이 다른 세균군에 비해 좋은 것으로 보고되었으며 (김 등, 1999),  $\beta$ -그룹은 *Nitrosomonas*, *Thiobacillus* 등 chemoautotrophs를 포함하여 빈 영양상태의 호수, 바이칼 호수의 심수층, 활성슬러지에서 우점하거나 다량 검출되었고, 저온의 수계에서도 우점한다고 보고되었다 (Gophen, 1990; Manz et al., 1992; Alfreider et al., 1996; Kampfer et al., 1996; Glockner et al., 1999). 유기물과 관련된  $\gamma$ -그룹은 다수의 세균이 분해가 용이한 유기물질을 이용하여 빨리 성장하는 copiotrophs이고, 실제 수생생태계에서는 4% 미만의 비율을 차지하고 있으며 (Manz et al., 1992; Glockner et al., 1999), 이 등의 연구 (2002)에서도 10% 미만의 비율을 차지하였다고 보고하고 하였고, 클로로필-*a*의 농도가 증가했을 경우 우점한다는 C-F 그룹은 심수층에 존재하는 다양한 고분자 물질의 분해에 관여하는 것으로 추정하였는데 (Gophen, 1990; Glockner et al., 1999), 태평양, 남극해 등의 바다와 바이칼 호, 발틱 호 등 여러 호수에서 C-F 그룹이  $\alpha$ -그룹 보다 항상 많이 검출되었으며 (Glockner et al., 1999), 남매지에서도 이와 유사하게  $\alpha$ -그룹이 많이 검출되는 경향이 보고되었다 (이 등, 2002).

Table 1. Characterized species of  $\alpha$  -Proteobacteria  
(Madigan et al., 2000; park, 2000)

---

---

|                                       |                                    |
|---------------------------------------|------------------------------------|
| Subgroup $\alpha$ -1                  | Subgroup $\alpha$ -2               |
| <i>Rhodospirillum rubrum</i>          | <i>Rhodomicrobium vannielii</i>    |
| <i>R. photometricum</i>               | <i>Rhodopseudomonas viridis</i>    |
| <i>R. molischianum</i>                | <i>Rhodopseudomonas palustris</i>  |
| <i>R. fulvum</i>                      | <i>Nitrobacter winogradskyi</i>    |
| <i>Rhodopseudomonas globiformis</i>   | <i>Rhizobium leguminosarum</i>     |
| <i>Aquaspirillum itersonii</i>        | <i>Agrobacterium tumefaciens</i>   |
| <i>Azospirillum brasilense</i>        | <i>Rhodospirillum rubrum</i>       |
|                                       | <i>Rhodopseudomonas acidophila</i> |
| Subgroup $\alpha$ -3                  | <i>Pseudomonas diminuta</i>        |
| <i>Rhodobacter capsulatum</i>         | <i>Phenylobacterium immobile</i>   |
| <i>Rhodobacter sphaeroides</i>        |                                    |
| <i>Paracoccus denitrificans</i>       | Subgroup $\alpha$ -4               |
| <i>Manganese oxidizers</i> (2 strain) | <i>Erythrobacter longus</i>        |

---

---

Table 2. Characterized species of  $\beta$  -Proteobacteria  
(Madigan et al., 2000; park, 2000)

| Subgroup $\beta$ -1             | Subgroup $\beta$ -2               |
|---------------------------------|-----------------------------------|
| <i>Rhodocyclus gelatinosa</i>   | <i>Rhodocylus tenue</i>           |
| <i>Sphaerotilus natans</i>      | <i>R. purpureus</i>               |
| <i>Pseudomonas testosteroni</i> | <i>Aquaspirillum dispar</i>       |
| <i>P. acidovorans</i>           | <i>A. serpens</i>                 |
| <i>Aquaspirillum gracile</i>    | <i>A. bengal</i>                  |
| <i>A. aquaticum</i>             | <i>Chromobacterium violaceum</i>  |
| <i>Comamonas terrigena</i>      | <i>Chromobacterium lividum</i>    |
| <i>Thiobacillus intermedius</i> | <i>Alcaligenes faecales</i>       |
|                                 | <i>Alcaligenes eutrophus</i>      |
| Subgroup $\beta$ -3             | <i>Pseudomonas cepacia</i>        |
| <i>Spirillum volutans</i>       | <i>Thiobacillus denitrificans</i> |
| <i>Nitrosomonas europaea</i>    | <i>Vitreoscilla stercoraria</i>   |
| <i>Neisseria gonorrhoeae</i>    |                                   |
| <i>Nitrosopira sp.</i>          |                                   |
| <i>Nitrosovibrio tenuis</i>     |                                   |
| <i>Nitrosococcus mobile</i>     |                                   |

Table 3. Characterized species of  $\gamma$ -Proteobacteria  
(Madigan et al., 2000; park, 2000)

| Subgroup $\gamma$ -1         | Subgroup $\gamma$ -3                    |
|------------------------------|-----------------------------------------|
| <i>Chromatium</i>            | <i>Fluorescent pseudomonas</i>          |
| <i>Thiocapsa</i>             | <i>Xanthomonas</i>                      |
| <i>Thiocystis</i>            | <i>Lysobacter</i>                       |
| <i>Thiodictyon</i>           | <i>Acinetobacter</i>                    |
| <i>Thiospirillum</i>         | <i>Oceanospirillum</i>                  |
| <i>Lamprocystis</i>          | <i>Alcaligenes putrefasciens</i>        |
| <i>Nitrosococcus oceanus</i> | <i>Pasteurella multocida</i>            |
| <i>Ectothiohodospira</i>     | <i>Aeromonas hydrophila</i>             |
|                              | <i>Bacteroides amylophilus</i>          |
| Subgroup $\gamma$ -2         | <i>Enterics, vibrios, photobacteria</i> |
| <i>Legionella</i>            | <i>Halomonas elongata</i>               |
|                              | <i>Flavobacterium helmephilum</i>       |
|                              | <i>Leucothrix mucor</i>                 |
|                              | <i>Beggiatoa leptomitiformis</i>        |

Table 4. Characterized species of Cytophaga-Flavobacterium  
phylum (Madigan et al., 2000; park, 2000)

| Flavobacterium subdivision          |                                    |
|-------------------------------------|------------------------------------|
| <i>Flavobacterium aquatile</i>      | <i>Flavobacterium heprainum</i>    |
| <i>Cytophaga johnsonae</i>          | <i>F. ferrugineum</i>              |
| <i>Sporocytophaga myxococcoides</i> | <i>F. elegans</i>                  |
| <i>Cytophaga lytica</i>             | <i>Saprospira grandis</i>          |
| <i>F. uliginosum</i>                | <i>Haliscomenobacter hydrossis</i> |
| <i>F. breve</i>                     |                                    |

Table 5. Characterized species of gram(+) high G+C content bacteria (Madigan et al., 2000; park, 2000)

---

|                              |                                     |
|------------------------------|-------------------------------------|
| High-G+C subdivision         |                                     |
| <i>Bifidobacterium</i>       | <i>Brevivaterium ketoglutamicum</i> |
| <i>Propionibacterium</i>     | <i>Corynebacterium</i>              |
| <i>Actinomyces</i>           | <i>Geodermatophilus</i>             |
| <i>Arthrobacter</i>          | <i>Frankia</i>                      |
| <i>Micrococcus</i>           | <i>Dactylosporangium</i>            |
| <i>Dermatophilus</i>         | <i>Ampurariella</i>                 |
| <i>Cellulomonas</i>          | <i>Actinoplanes</i>                 |
| <i>Derskovia</i>             | <i>Micromonospora</i>               |
| <i>Nocardia cellulans</i>    | <i>Arthrobacter simplex</i>         |
| <i>Microbacterium</i>        |                                     |
| <i>Corynebacterium</i>       | Photosynthetic subdivision          |
| <i>Brevibacterium linens</i> | <i>Heliobacterium</i>               |
| <i>Streptomyces</i>          |                                     |
| <i>Kitasatoa</i>             | Species with gram(-) walls          |
| <i>Chainia</i>               | <i>Megasphaera</i>                  |
| <i>Microellobosporia</i>     | <i>Selenomonas</i>                  |
| <i>Streptovercillium</i>     | <i>Sporomusa</i>                    |
| <i>Actinomadura</i>          |                                     |
| <i>Streptosporangium</i>     |                                     |
| <i>Thermomonospora</i>       |                                     |
| <i>Mycobacterium</i>         |                                     |
| <i>Nocardia</i>              |                                     |

---



## 2.1. 현장조건에서의 형광 연계 잡종화 (Fluorescent in situ hybridization )

Fluorescent in situ hybridization (FISH)자연계 생태계 분석은 생물의 종류나 수 등을 주로 측정하였고, 세균의 경우는, 세포수 측정 이외에 군집 구조를 밝히기 위해서는 배양하여 얻은 균의 생리적·생화학적 특징으로 분류가 가능하였다. 그러나 호수 생태계에서 배양 가능한 세균은 acridine orange로 염색하여 얻은 값의 1% 미만에 불과하여 배양한 후에 세균 군집을 파악하는 것은 의미가 없다. 실제로 배양한 후 분류한 경우와 *in situ* hybridization으로 측정한 결과는 매우 상이하게 나타나 있다. 그러나 특정 유전자와 결합하는 특이성을 가지고 있어 실제 생태계의 다양한 세균을 파악하는데 믿을만한 자료를 제공하는 fluorescent rRNA-targeted oligonucleotide probe가 호소생태계의 세균 군집 파악을 위한 새로운 유전학적 접근법으로 제시되었다 (김 등, 1989; 홍 등, 1997; 한 등, 1998; 홍 등, 1998; 김 등, 1999; 김 등, 2000).

Fluorescent *in situ* hybridization(FISH)이라 불리는 이 방법은 세포 내에 다량으로 존재하면서 변이가 심하지 않은 rRNA에 gene probe 즉, 이미 알려져 있는 rRNA database를 이용하여 제작한 다양한 세균균의 single stand DNA(oligonucleotides probe, 약 17~34 nts)를 교잡(hybridized)시켜 배양을 통하지 않고 직접 현장상태(*in situ*)의 세균군집을 동정하는 방법이다. 이는 세균을 배양하지 않고 자연 상태를 그대로 나타낼 수 있고 또한 세균을 직접 관찰할 수 있을 뿐 아니라 측정이 쉽고 간단하여 빠른 시간에 여러 생태계 내의 군집들에 대한 시간·공간적 변화를 파악할 수 있다는 장점을 가진다. 그러므로 최근 이를 이용한 다양한 생태계의 세균군집구조 변화를 밝히는 연구가 활발히 진행 중이다 (Lee et al., 2001; 이 등, 2002).

rRNA는 세포 내에 많은 양이 존재하고 관찰이 쉬우며, 특히 16S rRNA와 23S rRNA 유전자는 세균들을 종 수준으로 구분할 수 있는 정보를 담고 있는 영역으로 염기 서열의 변화는 미생물간의 유영관계를 파악하는 데에 유용하다 (안 등, 2001; 홍 등 2001). 또한 16S rRNA의 특정부분은 진화 속도가 매우 느려 많은 생물체가 공통적으로 갖는 보존된 염기서열과 이차 구조를 나타내어 다양한 분류군의 상호 비교를 가능하게 한다. Ribosomal Database Project(RDP)에서 제공하는 16S rRNA database는 계통 분류학적 관점에서 비교가 가능하도록 정리되어 있으므로 특정 군집을 연구하기 위한 probe의 설계가 가능하고, 따라서 16S rRNA와 23S small subunit rRNA gene probe는 세균군집을 분류하기 쉬운 장점이 있다 (Lee and Fuhrman, 1990; Felske et al., 1996).

1kb에서부터 유전체 전부를 probe로 하여 genomic DNA에 직접 결합시켜 그 probe의 위치를 용이하고 정확하게 관찰할 수 있게 한다. 사용하고자 하는 probe 특성과 표적이 되는 염색체 상태에 따라 다양한 결과를 얻을 수 있다. 새로운 유전자의 염색체 위치를 결정해 줄뿐 아니라 염색체의 재배열이나 주어진 염색체 부분에서의 유전자들의 물리적 상호 위치를 평가하는데 적용하고 있다.

일반적으로 쓰이는 것은 간접적인 방법으로 reporter(biotin or FITC)를 probe에 표지시키고 변성시킨 후 변성시킨 염색체 DNA에 결합시킨다. 형광 표지된 항체로 면역학적 방법을 이용해 결합된 probe의 위치를 형광 현미경으로 결합된 신호로서 관찰할 수 있다, 한편, 직접적인 방법은 검출 가능한 형광물질을 probe에 표지시키고 변성시킨 후 변성시킨 염색체 DNA에 결합시키면 결합된 신호를 직접 형광현미경으로 관찰할 수 있다 (Amann et al., 1990; Mittelman et al., 1997).

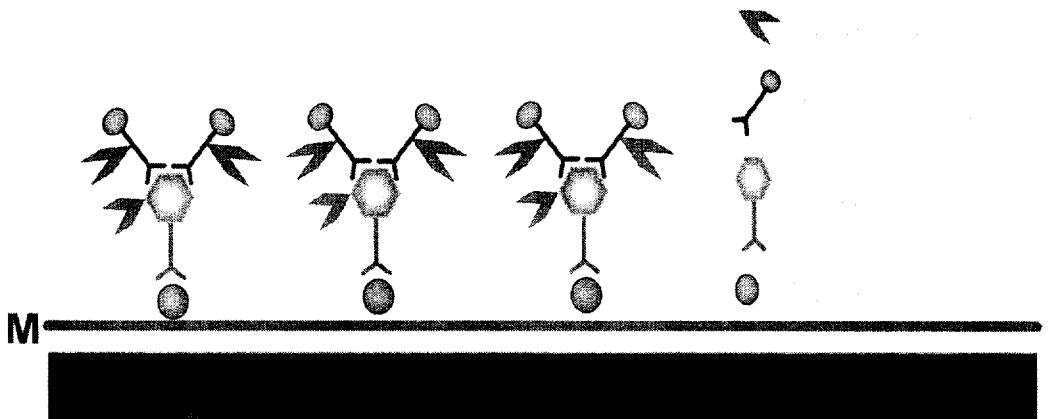


Fig. 1. Principle of detection by FISH.

## 2.3. 천연유기물질(natural organic matter, NOM)

천연유기물질은 주로 humic substance로서 모든 토양과 수 환경 내에 존재하며 식물이나 동물 사체의 분해로부터 유래하는 매우 복잡한 구조를 가진 유기 화합물이다 (MacCarthy and Suffet, 1989). 또한, humic substance는 식물류에서 유래되는 lignins와 tannins의 분자간 응축과정에 의하여 phenolic polymers가 형성된다. 또한, phenolic polymers는 살아있거나 죽은 미생물의 대사산물과 결합하여 비정형질의 고분자 유기물질을 형성하게 된다. Humic substances는 자연수에서 용존유기탄소(DOC)의 50%를 차지하고 있으며 분자량 분포 범위는 500~10,000 dalton(Da)의 범위를 지니고 있다. Humic substance의 안정도는 산성작용기의 전하밀도에 의하여 좌우되며, 수중에서 안정된 상태로 존재하므로 수처리 공정의 제거가 어렵다. 또한, 수처리 공정에서 염소와의 반응을 통하여 소독부산물을 형성하게 된다 (Krasner *et al.*, 1989).

Humic substance는 수체에서 pH 변화에 따른 용해도 특성에 의해 fulvic acid, humic acid와 humin으로 분류된다. Fulvic acid는 모든 pH 조건에서 물에 용해성이고, humic acid는 산성영역 (< pH 2) 또는 에틸 알콜에 불용성이다. 그리고, Humin은 어떤 pH 조건에서도 물에 용해하지 않는다. Fulvic acid의 분자량은 전형적으로 500에서 2,000 dalton의 범위이고 humic acid는 2,000 dalton 이상의 큰 분자량을 가진다 (Thurman *et al.*, 1982). 일반적으로 humic substances의 80%는 fulvic acid로 분류되며 20%는 humic acid로 구성되어 있다. 하지만 이러한 유기물의 분포는 사용하는 원수의 수질특성에 따라 다양하게 나타나고 있다.

다양한 분석 방법과 화학적 기술을 통하여 humic substance를 구성하고 있는 작용기에 대한 연구가 많이 진행되어 왔다 (Miano *et al.*, 1988; Day *et al.*, 1991; Aiken and Leenheer, 1993; Korshin *et al.*, 1997). 지표수에서 색도는 soil humus와 peat의 수용성 콜로이드 성분으로부터 유래된 자연 유래의 복잡한 유기화합물에 의해 유발된다 (Hall and Packham, 1965). 광물질 토양 내의 humic substance는 cellulose와 lignin을 포함하는 식물의 부패로부터 유래한다 (Malcolm, 1985). 하천이나 호수 등과 같은 지표수에 함유되어 있는 DOC는 주로 유역 내의 토양에서 유입되는 allochthonous이다. 이러한 allochthonous 휴믹물질은 강이나 늪지 등에서 주로 존재하는 반면, autochthonous 휴믹물질은 깨끗한 호수에서 보통 발견되며 (Steinberg and Muenster, 1985), 수생생물의 분해로부터 유래한다 (Malcolm, 1985).

Humic substance의 구성성분은 그것의 유래와 추출방법에 따라 다양하다. 자연수에 용존되어 있는 humic substance는 아미노산과 당분, 지방족 및 방향족 산성기와

혼합되어 있으며 (MacCarthy and Suffet, 1989), 또한, humic substance는 다양한 금속이온이나 점토, aluminium과 iron의 무정형의 산화물과 관계하여 반응한다 (Thurman *et al.*, 1982).

Humic substance의 구성 성분은 그 특성에 따라 수처리 분야에서 다양한 정보를 제공한다. 따라서 다양한 분석적 방법과 화학적 기술을 통해 humic substance의 특성화하기 위하여 연구되고 있다. 이러한 humic substance 구조적 특성은 방향족 성분을 지니고 있으며 carboxylic acid, phenolic-OH, carbonyl, hydroxyl group을 지니고 있다 (Thurman, 1985). 또한 humic acid는 방향족 성분의 함유율이 높으며 phenol기가 더 많이 함유되어 있으며 fulvic acid는 carboxyl기를 더 많이 함유하고 있다. 따라서 humic acid의 경우 fulvic acid에 비하여 소수성 성향이 더 강하기 때문에 수중에서 용해성이 낮게 나타난다. 그러므로 일반적인 지표수의 특성에 있어서 fulvic acid 성분이 humic acid 성분에 비하여 더 많이 존재하게 되는 것이다.

### 2.3.1 천연유기물질의 생물학적 분해도에 따른 분류

최근 들어 처리수 중에 존재하는 천연유기물질(NOM)의 생분해도(biodegradability)에 대하여 관심이 증가되고 있다. 수중의 NOM은 생분해도에 따라 두 가지로 나뉘어진다. 즉, 미생물에 있어서 에너지와 탄소원으로 사용되는 생분해 가능한 유기물질(biodegradable organic matter, BOM)과 생분해되기 어렵고 박테리아의 재성장에 영향을 미치지 않는 유기물질(refractory organic matter, ROM)이다.

처리수 중에 포함되어 있는 BOM은 상수관망 내에서 병원균이나 박테리아, 무척추동물(macroinvertebrate)들의 증식을 야기하여 냄새, 색도 및 생물부식(biocorrosion) 등의 여러 가지 문제를 유발한다 (Lee *et al.*, 1980; Levy *et al.*, 1986; Huck, 1990; LeChevallier *et al.*, 1991; Miltner *et al.*, 1992; Geldreich, 1996). 이러한 BOM은 종속영양 박테리아가 새로운 세포성 물질을 생산하는 데 있어 필요한 에너지와 탄소원으로 제공된다. 이렇게 종속영양 박테리아는 관망 내에서 생물막을 형성하여 지속적인 성장을 하며, 형성된 생물막은 관망내에서 수질을 저하시키고, 관 부식을 가속화시키는 등 다양한 수질악화 요인으로 작용된다 (Videla, 1996). 현재, 종속영양 박테리아는 잔류염소 유지 차원에서 억제되고는 있지만, 과도한 염소주입은 소독부산물에 의한 건강에 대한 위험을 증대시키고 특히, 산화력이 강한 유리염소라 할지라도 관의 벽면이나 잔류 입자상에 부착한 세균에 대한 소독효과가 낮은 것으로 알려져 있다 (Ridgway and Olson, 1981; Norton and LeChevallier, 2000; Berchielli *et al.*, 2002).

따라서, 낮은 잔류염소 농도 하에서 세균 증식을 막고, 생물학적으로 안정된 수도수의 공급이 중요하다는 인식이 높아지고 있다.

BOM은 일반적으로 탄수화물과 같은 작은 분자량을 가진 화합물들로 알려져 있으나, ROM은 humic substance와 같은 복합분자라고 추정되고 있다. 하지만, 몇몇 연구에서는 이와 같은 분류에 있어 주의를 요구하고 있다. (Amon and Benner, 1996; Volk et al., 1997). 즉, BOM은 저분자 화합물들과 고분자 화합물들을 같이 함유하고 있으며, 또한, 몇몇의 저분자 화합물들은 신진대사를 위해 바로 사용되어질 수도 있기 때문이다. Volk et al. (1997)의 연구에서는 휴믹물질의 27%가 생물막(biofilm)을 형성하는 박테리아에 의해 분해되는 것을 보여주었다. 또한, 평균적으로 휴믹물질의 75%가 BDOC로 구성되어 있고, BDOC의 30% 정도가 100,000 Da 보다 큰 분자들로 구성되어 있다고 하였다.

수중에 존재하는 유기물을 분류하여 나타내면 Fig. 2와 같다. Fig. 2에서 AOC(assimilable organic carbon)와 BDOC(biodegradable dissolved organic carbon)로 구성됨을 알 수 있다 (Van der Kooij et al., 1982; Kemmy et al., 1989; Huck, 1990; Ribas et al., 1991). 그리고, NOM과 같이 BOM 역시 다양한 화합물의 복합체로 존재하기 때문에 정량·정성분석이 매우 어렵고, 이를 측정하기 위해서는 bioassay 방법을 이용하여 측정이 가능하다 (Amy, 1993).

AOC는 *Pseudomonas fluorescens* P17과 *Spirillum* NOX 같은 순수 박테리아를 이용하여 시료수 중에 접종시킨 후 박테리아의 성장을 콜로니 수, ATP(adenosinetriphosphate) 및 탁도 등을 측정하여 배양기간 동안의 최대 성장수( $N_{max}$ )와 acetate나 oxalate 같은 표준 유기화합물질의 농도들로부터 계산된 calibration curve에 의해 박테리아의 성장률을 이용하여 AOC 농도를 환산하여 구한다 (Van der Kooij and Hijnen, 1984; Kemmy et al., 1989; LeChevallier et al., 1993).

또한, BDOC는 시료수에 원수 중에 존재하는 부유성 박테리아나 완속 여과지의 모래에 부착되어 있는 부착 박테리아와 같은 환경에 존재하는 박테리아로 구성되어진 접종물을 이용하여 접종한 후, 접종하기 전의 초기 DOC와 배양기간 동안 측정되는 최소 DOC와의 차이로 구할 수 있다 (Servais et al., 1987; Mogren et al., 1990; Frias et al., 1992; Kaplan et al., 1996).

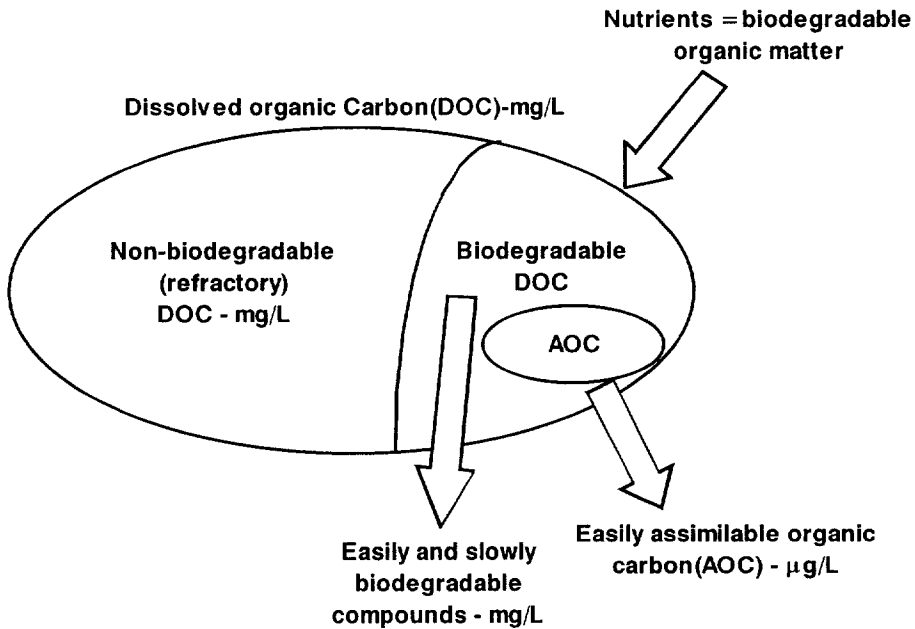


Fig. 2. Fraction of dissolved organic matter.

정수처리에서 AOC와 BDOC는 배·급수관망에서 종속영양 박테리아들의 성장에 제한인자로 작용한다. 따라서, AOC와 BDOC의 측정은 매우 중요하다고 할 수 있다 (Bourbigot et al., 1984). BDOC는 종속영양 박테리아에 의해 무기화(mineralization)되는 DOC의 한 부분으로서 정수처리 공정에 있어 생물학적으로 산화되어질 수 있는 유기탄소를 나타내는 것이다 (Huck, 1990). 그리고, AOC는 BDOC 중에서 생체량(biomass)으로 전환되는 한 부분을 나타내는 것으로 박테리아의 재성장에 대한 잠재성을 측정하는 것이기 때문에 AOC와 BDOC는 근본적으로 차이가 있다고 할 수 있다 (Huck, 1990).

외국에서는 소독공정 없이 생산된 음용수에 대해 AOC 농도가  $10\sim 20\ \mu\text{g acetate-C/L}$  이하, BDOC의 경우에는  $200\ \mu\text{g/L}$  이하일 경우에 있어서 생물학적으로 안정하다고 여기고 있다 (Easton, 1993). 그리고, 소독공정이 부가된 경우에 있어  $50\sim 100\ \mu\text{g acetate-C/L}$  이하이면 생물학적으로 안정하다고 보고하고 있다 (LeChevallier et al., 1993). 또한, 정수공정에서 오존이나 염소처리에 의해 AOC 농도의 증가와 같은 수도수중에 함유된 BOM의 위험성에 대한 심각성을 언급한 많은 연구결과도 있다 (笹原 등, 1997; 笹原 등, 1998). 따라서 BOM을 측정함으로서 상수관망에서의 미생물

재성장)에 대한 평가와 미생물학적으로 안전한 음용수를 생산하기 위한 정수처리 공정의 평가에 중요한 지표로 활용할 수 있다 (Prévost et al., 1992).

BDOC는 산화동력학(degradation kinetic)에 의해 3 가지( $S$ ,  $H_1$ ,  $H_2$ )로 Fig. 3과 Fig. 4에서와 같이 분류할 수 있다 (Langlais et al., 1991; Servais et al., 1992b).  $S$ 는 AOC와 같은 박테리아에 의해 바로 동화되어질 수 있는 단량체 기질(monomeric substrate)들을 나타낸 것이고,  $H_1$ 은 박테리아 체외효소(exoenzyme)들에 의해 빠르게 가수분해될 수 있는 중합 유기물질(polymeric organic matter)을 나타낸 것이며,  $H_2$ 는 느리게 가수분해되는 유기물질들을 나타낸 것이다.

최근에는 BDOC를 더욱 세분화시켜 빠르게 생분해되는 부분과 느리게 생분해되는 부분으로 분류하여 aldehyde와 같은 유기 오존부산물, BDOC 및 염소 소독부산물 전구물질의 제거에 효과적인 정수공정으로 생물활성탄(BAC)과 같은 생물여과 공정을 이용하며, 유기물질 제거능을 최적화하고자 하는 목적으로 이용하고 있다 (Hozalski et al., 1995; Wang et al., 1995; Carlson and Amy, 2001; Liu et al., 2001; Rittmann et al., 2002).

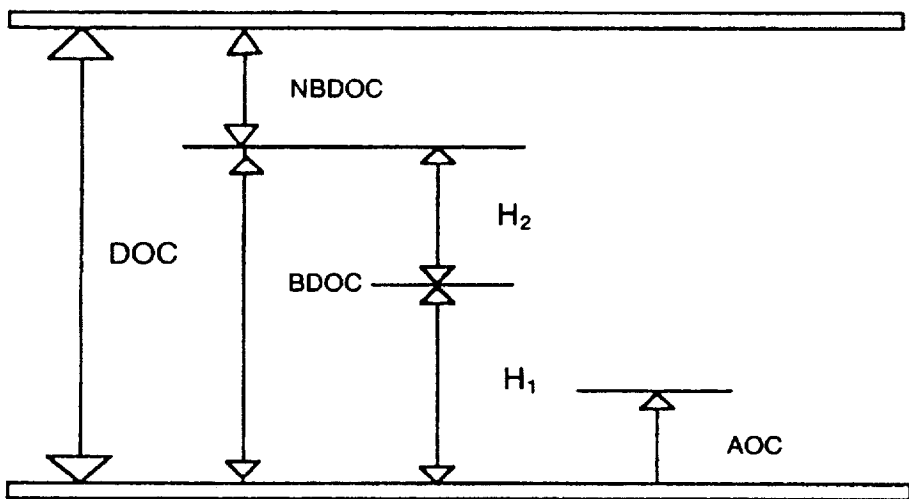
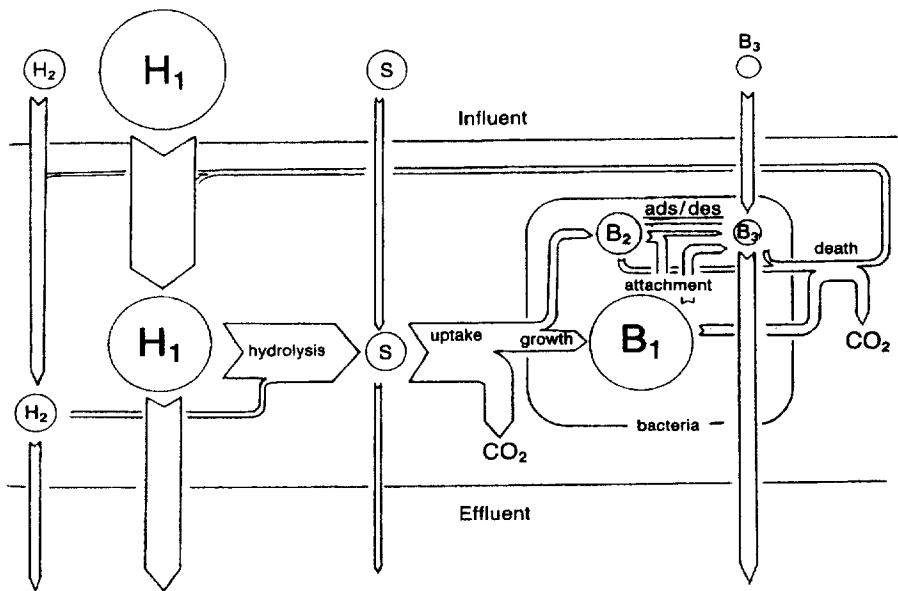


Fig. 3. Hypothetical fractionation of DOC according to biodegradable.



$H_1$  = Fraction of BDOC that is rapidly biodegradable,  $H_2$  = Fraction of BDOC that is slowly biodegradable,  $S$  = Substrate directly available for bacterial growth,  $B_1$  = Bacteria bound irreversibly to the GAC,  $B_2$  = Bacteria bound reversibly to the GAC,  $B_3$  = Free bacteria, Death = Loss of bacteria through decay and predation, ads/des = adsorption and desorption of bacteria on the GAC

Fig. 4. Conceptual model for the utilization of BDOC in a GAC contactor.

생물여과 공정을 최적의 조건으로 설계하거나 운전하고자 할 때, 수중의 DOC와 같은 유기물질 제거는 오존처리에 의해 생성되는 BDOC에 의해 제한되어진다 (Carlson and Amy, 1995). 즉, 빠르게 생분해되는 BDOC에 대해서는 생물여과 공정에서 실제로 제거되어질 수 있는 BDOC, 그리고 느리게 생분해되는 BDOC에 대해서는 생물여과 공정에서 제거되지 않고 배·급수관망으로 유출될 가능성이 있는 BDOC로 평가되어진다 (Carlson et al., 1996). 그러므로 오존/생물여과 공정의 최적화 조건은 NOM 제거능을 최대로 높이면서 오존 부산물이나 관망으로 유출될 가능성이 있는 BOM을 최대로 줄이는 것이다. 그리고, 생물여과 공정에서 제거되어질 수 있는 BOM을 최대로 생성시키고, 배·급수관망으로 유출될 수 있는 BOM을 최소로 생성시키는 것이다. 하지만 현재까지의 연구에서 오존/생물여과 공정의 효율에 대한 평가에 있어서 DOC와 BDOC 같은 총량적인 개념의 접근만 이루어졌다. 이와 같은 세분화된 분류를 통한 접근은 거의 없었으며, 몇몇 외국의 연구자들에 의해서만 기초적인 연구가 진행되어



오고 있다 (Allgeier et al., 1996).

### 2.3.2 오존처리에 의한 천연유기물질의 생분해능 변화

오존처리에 의해 수중의 천연유기물질 중에서 생물분해가 어려운 유기물질 (refractory organic matter: ROM)이 생물분해가 가능한 유기물질(biodegradable organic matter: BOM)로 전환하는 되는 것은 여러 연구자들에 의해 보고되었다 (Van der Kooij et al., 1982; Servais et al., 1987). 오존처리에 의해 수중의 천연유기물질은 hydroxyl, carbonyl과 carboxyl 그룹들의 증가, 극성(polarity)과 친수성(hydrophilicity) 증가에 따른 활성탄에 대한 흡착능(adsorbability)의 감소, 탄소 2중 결합 및 방향성을 가진 유기물질의 감소, 고분자 유기물질의 저분자 물질로의 전환 등이 있다 (Amy et al., 1988; Glaze and Weinberg, 1993; Owen et al., 1995).

오존처리에 의해서 상당량의 BOM이 생성되는 것으로 나타났으며, 오존처리 공정을 채택한 많은 정수장에서 생성된 BOM에 의해 배·급수관망에서 박테리아의 재성장 발생 가능성이 높은 것으로 나타났다. 특히, 오존처리 공정 후단에 생물여과 공정이 없는 경우에는 박테리아의 재성장능이 현저히 증가하는 것으로 여러 연구에서 보고되었다 (Van der Kooij et al., 1989; Price, 1994; LeChevallier et al., 1996).

오존처리에 의한 천연유기물질의 생분해능의 증가는 고분자 유기물질이 저분자 유기물질로 전환되어 나타나는 결과로 저분자 화합물들은 고분자 화합물들 보다 쉽게 미생물들의 세포막을 통과하며, 미생물들의 체내에서 신진대사 효소(metabolic enzyme)에 의해 쉽게 분해된다(Leisinger et al., 1981). 또한, 일반적으로 생물분해에 대해 내성을 가지는 탄소 2중 결합 및 방향성을 가진 유기물질의 감소도 결국 생분해능의 증가를 의미한다.

정수처리 공정에서 몇몇을 제외한 거의 모든 경우에 질소나 인 보다 탄소가 미생물 성장의 제한인자로 작용하며, 이런 탄소는 미생물의 전자공여체로 작용한다. 따라서, 오존처리에 의해 생성된 BOM은 생물여과 공정에서 미생물의 활동도를 증진시킨다 (DeWaters and DiGiano, 1990). 그리고 오존처리에 의해 생성된 BOM의 경우 생물여과 공정에서 제거되어 오존처리 이전의 수준으로 낮아지고 (Harward and Croll, 1993; Hacker et al., 1994), 생물여과 공정은 유입수 수질의 특성에 따라 BOM 제거량에는 차이를 보이지만 생물여과 공정을 거치면 BOM의 조성에는 많은 변화가 나타난다.

현재 밝혀진 주요 오존 부산물로는 카르복실산류, 알데하이드류 및 알도/케토산류들

이 있으며(Xie and Reckhow, 1992; Najm and Krasner, 1995), 이들은 BOM과 깊은 연관이 있으며, biofilter에서 75% 이상의 높은 제거율을 보인다고 보고되었다(Wang and Summers, 1996).

Table 6은 오존처리에 의해 생성되는 AOC와 BDOC의 농도와 생성율을 나타낸 것이다. 원수에 따라 차이는 보이지만 오존처리에 의해 AOC는 692~900%로 BDOC의 152~175% 보다 월등히 많은 생성율을 보이는 것으로 나타나고 있다. 또한, 오존 투입농도별 BDOC 생성율을 나타낸 Table 7에서는 오존 투입농도가 증가할수록 BDOC의 생성율이 높아져 전체 DOC 농도 중에서의 BDOC가 차지하는 비율이 증가하고 있는 것을 알 수 있다.

Table 6 The effect of ozonation on biodegradability in several drinking water treatment plants (Langlais et al., 1991)

| Method | Treatment plant             | Biodegradability           |                           | Percent increase |
|--------|-----------------------------|----------------------------|---------------------------|------------------|
|        |                             | Before ozonation<br>(mg/L) | After ozonation<br>(mg/L) |                  |
| AOC    | Kralingen(Netherlands)      | 0.025                      | 0.173                     | 692              |
| AOC    | Weesperkarspel(Netherlands) | 0.012                      | 0.108                     | 900              |
| BDOC   | Choisy-le-Roi(France)       | 0.41                       | 0.71                      | 173              |
| BDOC   | Neuilly-sur-Marne(France)   | 0.32                       | 0.56                      | 175              |
| BDOC   | Choisy-le-Roi(France)       | 0.46                       | 0.70                      | 152              |

Table 7 Effect of ozone dose on BDOC and bacterial growth kinetics  
(Werner and Hambsch, 1986)

| Ozone dose<br>(mgO <sub>3</sub> /mgDOC) | BDOC/DOC | $\mu_{\max}$<br>(h <sup>-1</sup> ) | K <sub>s</sub> <sup>†</sup><br>(mg/L) |
|-----------------------------------------|----------|------------------------------------|---------------------------------------|
| 0                                       | 0.10     | 0.20                               | 4.2                                   |
| 0.5                                     | 0.25     | 0.38                               | 6.2                                   |
| 1.0                                     | 0.32     | 0.61                               | 7.7                                   |
| 1.5                                     | 0.37     | 0.61                               | 5.5                                   |

† : Apparent K<sub>s</sub>, because this is not a single organic electron donor, but rather a mixture of many organic compounds.

## 2.4. 입상활성탄 공정 (granular activated carbon, GAC)

### 2.4.1. 입상활성탄 흡착

#### 2.4.1.1 흡착 메카니즘

활성탄은 활성 표면의 견인력과 흡착력에 의해 수중으로부터 유기물질을 제거하게 된다. 수중으로부터 유기물 제거 또는 흡착에 가장 중요한 요소는 활성탄의 높은 비표면적과 세공구조 등과 같은 물리적인 특성과 활성 표면의 화학적 특성에 있다고 할 수 있다.

흡착은 흡착력에 따라 물리적 흡착(physical adsorption, physisorption)과 화학적 흡착(chemical adsorption, chemisorption)으로 분류하는데 물리적 흡착을 지배하는 힘은 비교적 약한 van der Waal's force이며, 화학적 흡착을 지배하는 힘은 강한 이온결합 또는 공유결합 등의 화학적 결합이다. 물리적 흡착일 경우 흡착제 표면과 흡착질 간에 전자가 공유되지 않기 때문에 흡착질은 소위 분자간 인력 즉, London force에 의해 흡착제의 표면 가까이에 일시적으로 붙잡힌 상태에 놓여지게 된다. 이렇게 약하게 흡착된 분자는 용액의 농도 변화나 그다지 높지 않은 온도와 저압에서 수증기 등으로 쉽게 짧은 시간에 탈착·재생될 수 있기 때문에 가역적이라고 보며 대부분의 기상흡착이 이에 해당된다. 또한, 피흡착제와 극성인 물간의 인력은 피흡착제의 극성이 약할수록 더 약하다. 즉, 비극성인 피흡착제에 더 강하게 흡착되는데 이를 소수성 결합(hydrophobic bonding)이라 하며, 그 결과 소수성 화합물들은 활성탄에 더 강하게 흡착된다. 반면에 화학적 흡착은 흡착제와 흡착질 간에 전자의 이동이 일어나며 그 결과 화학적 화합물이 형성되기 때문에 비가역적이라고 보며, 탈착시키기 위해서는 고온에서 장시간 수성가스 등과 접촉시켜야 하며 대부분의 액상흡착이 이에 해당된다. 화학적 흡착은 흡착제의 표면에서 피흡착제와 표면간의 공유결합으로 인해 단일 분자층을 형성하며, 흡착시의 이런 결합은 흡착제의 표면에 존재하는 특정의 위치나 작용기에 한정된다. 또한, 단일 분자층을 형성한 이후로는 더 이상 화학적 결합을 할 수 없기 때문에 화학적 흡착은 정지된다. 그러나 물리적 흡착의 경우는 단일 분자층을 형성한 이후에도 그 이상의 층까지 계속해서 흡착이 일어난다. 유기물의 흡착시 흡착은 물리적 흡착과 화학적 흡착이 동시에 일어나는 경우가 많다. Table 8에 물리적 흡착과 화학적 흡착의 특성을 비교하여 나타내었다.

활성탄의 흡착에 영향을 미치는 인자들로는 비표면적(specific surface area), 세공용적(total pore volume), 세공크기, 흡착질 분자크기, 흡착질의 종류와 특성, 이온화율, pH, 수온 및 작용기 등이 있으며, 이들은 직·간접적으로 흡착능에 영향을 준다.

Table 8. Composition of chemisorption and physisorption

| Category           | Chemisorption            | Physisorption             |
|--------------------|--------------------------|---------------------------|
| Force of molecules | Chemical bond            | van der Waals interaction |
| Reaction rate      | Slow                     | Fast                      |
| Electron           | Transfer                 | No transfer               |
| Heat of adsorption | High( $\sim 100$ kJ/mol) | Low( $\sim 20$ kJ/mol)    |

활성탄의 세공직경(pore diameter)에 따른 분류를 살펴보면 IUPAC(International union of pure and applied chemistry)에서는 20 Å 이하를 미세세공(micro pore), 20~500 Å은 중간세공(meso pore), 500Å 이상을 거대세공(macro pore)으로 아래와 같이 분류하고 있다 (박, 1997).

- ① 20 Å 이하 : 이 세공의 직경 영역은 흡착에 관여하는 세공 중에서 미세세공에 속하게 된다.
- ② 20~500 Å : 다공성 고체에 있어서 흡착은 이 세공직경 영역 및 그 이하의 세공에 의해 지배되어 그 같은 흡착에 관여하는 세공의 중간에 속하게 된다.
- ③ 500 Å 이상 : 이 세공은 흡착질 분자를 외부에서 입자 내로 신속하게 운송하는 역할을 하는 것으로 도입(admission), 확산(diffusion) 또는 운송세공(transport pore)이라 한다.

흡착은 액체 혹은 기체상에 존재하는 물질이 고체표면으로 이동하여 농축되는 표면 현상으로 흡착제가 용액과 접할 경우에 용액 중의 용질은 흡착제 표면으로 이동하여 흡착된다. 이러한 물질전달 현상은 용액 중의 용질농도와 활성탄에 흡착된 용질 사이에 평형이 이루어질 때까지 계속 된다. 평형흡착량은 일반적으로 용액 중의 농도가 증가함에 따라 증가한다.

활성탄과 같은 다공성 물질에 의해 용존상태의 피흡착제가 제거되는 과정은 다음의 4 단계로 이루어지는 것으로 알려져 있으며, Fig. 5에 나타내었다.

- ① 1 단계 : 피흡착제가 액 경막 표면으로 이동하는 단계로 이 과정은 용액의 혼

함에 의해 쉽게 이루어짐 (*bulk solution transport*).

- ② 2 단계 : 피흡착제가 용액으로부터 흡착제의 외부표면으로 이동하는 과정으로 액체상의 용액과 고체상의 흡착제 사이에 액 경막을 통하여 film transfer가 발생 (*external film resistance to transport*).
- ③ 3 단계 : 내부확산에 의한 물질전달 과정으로 피흡착제가 흡착제의 외부표면으로부터 내부표면으로 확산하는 단계로 흡착질이 흡착제의 거대세공, 중간세공을 통해 확산 (*internal pore transport*).
- ④ 4 단계 : 활성탄 내부표면에서 피흡착제와 흡착제 표면을 구성하는 functional group 사이에 물리·화학적 결합이 이루어지는 단계로 확산된 흡착질이 미세세공 내부표면과의 화학적 결합 또는 미세세공에 물리적으로 흡착되며, 이 단계는 매우 빠르게 진행됨 (Adamson, 1982) (*adsorption*).

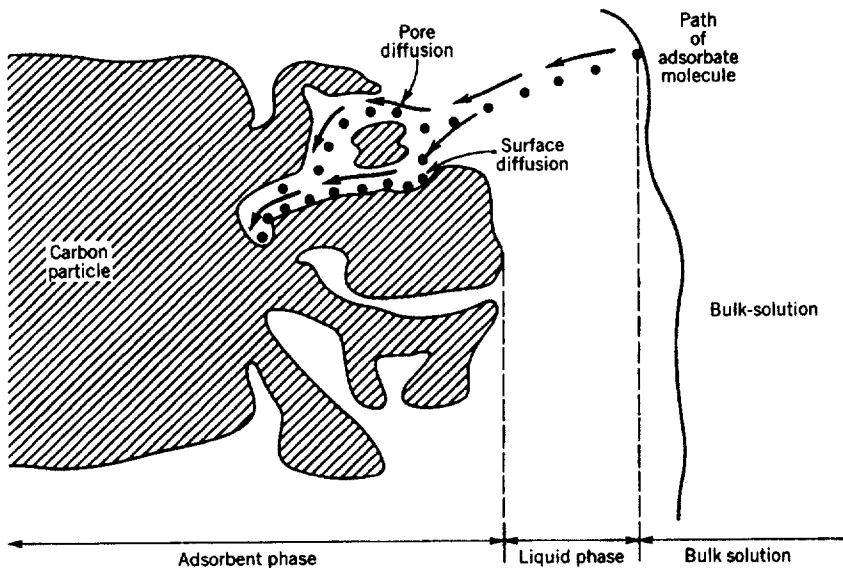


Fig. 5. Pore and surface diffusion (Hand et al., 1982).

위의 4 단계 중 진행이 가장 느린 단계가 전체의 흡착속도를 결정하게 되며, 일반적으로 흡착단계(4 단계)는 물리·화학적 반응에 의해 순간적으로 발생한다고 보고되므로 속도제한 단계로 고려되지 않는다. 따라서 흡착속도는 흡착제 및 피흡착제의 중

류, 용액의 유동상태에 의한 층류 경계층의 발달 정도에 따라 다르므로 1, 2 단계를 함께 고려해야 한다. 흡착은 입자의 표면 위에서도 그리고 거대공극과 중간공극 안에서 일어나지만 이 부분의 표면적은 미세공극의 표면적에 비해 매우 작으므로 여기에 흡착된 물질의 양은 보통 무시한다.

## 2.4.2 파과 곡선 (Breakthrough Curves)

하항류 고정상 입상활성탄 흡착탑에서의 흡착 특성을 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6 (a)에는 피흡착 물질의 농도 경사(concentration gradient)를 나타내었다. 피흡착 물질은 운전초기에 흡착탑 상층부의 흡착대(mass transfer zone)에서 제거되기 시작하여 운전시간이 경과하여 상층부에 위치한 활성탄의 흡착능이 소진되면 흡착대는 활성탄 층을 따라 하층부로 점점 이동한다. 흡착대가 점점 하층부로 이동하여 활성탄 층 바닥에 도달하게 되면 활성탄의 흡착능은 모두 소진되며, 이것을 활성탄의 파과(breakthrough)라고 한다. 활성탄 흡착탑에서 파과가 진행되면 피흡착 물질이 유출되는 농도는 점점 증가하게 되며(Fig. 6 (b)), 활성탄이 완전히 파과에 도달하면 유입되는 물질의 농도( $C_{in}$ )와 유출되는 물질의 농도( $C_{out}$ )는 같아지는 평형상태에 도달한다( $C_{in}=C_{out}$ ). 유출되는 농도변화를 운전시간의 경과에 대하여 나타낸 그래프를 활성탄의 파과곡선(breakthrough curve)이라 하며, 이런 파과곡선들은 피흡착 물질의 종류에 따라 약간의 차이는 있으나 전형적인 S자 형상을 나타낸다. 파과곡선에서 급격한 경사를 보일수록 film transfer 및 internal diffusion 계수가 크다는 것을 의미하며 또는 Freundlich 등온흡착식에서  $1/n$ 이 작다는 것을 의미한다.

단일 물질이 아닌 혼합된 물질이 활성탄 흡착탑으로 유입될 경우는 흡착능이 상대적으로 높고 확산속도가 빠른 피흡착물질은 운전초기에 흡착탑 상부의 흡착대에서 제거되기 시작한다. 그리고 흡착능이 낮은 확산속도가 느린 피흡착물질은 운전초기에는 고정상의 깊은 지점에서 경쟁흡착 없이 제거되거나 상층부가 포화되면서 상층부 흡착대가 하부에 흡착되어 있는 흡착능이 보다 작은 물질들을 경쟁에 의해 치환 흡착하게 되어 물질에 따른 흡·탈착이 연속적으로 일어난다.

Fig. 7과 같이 활성탄의 파과곡선에서 오염물질의 제거율은 종축에 유입수 농도에 대한 유출수 농도비( $C_e/C_0$ )로 나타내는 것이 일반적이다. 보통 TOC 중 일부분은 흡착되지 않고 활성탄 칼럼을 통과하며, 따라서 파과곡선은  $C_e/C_0 > 0$ 에서 시작한다. 흡착 초기단계에서 입상활성탄 흡착조를 통과하는 분율은 일반적으로 5~20% 정도로 수중의 DOC 농도로는 0.05~0.5 mg/L로 주어진 접촉시간 안에 이들을 흡착하기에는 이런

물질들의 흡착속도가 너무 느리기 때문에 어렵다고 알려져 있다 (McGuire et al., 1989).

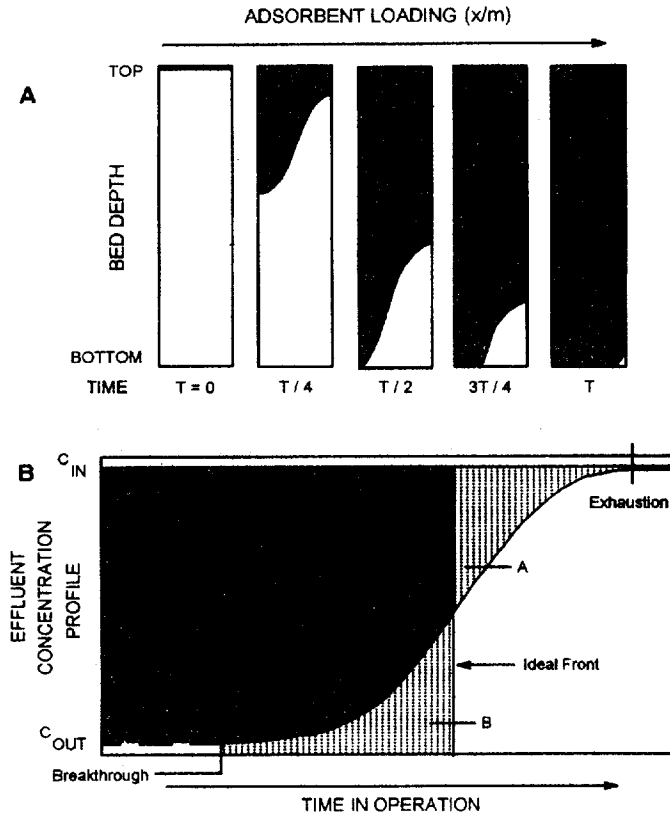


Fig. 6. Typical adsorption column performance.

운전초기에는 미생물의 순치와 활성탄의 파괴가 동시에 진행되며, bed volume의 증가에 따라 파괴형태가 일정하게 유지된다. 이를 정체기간이라고 하고, 파괴곡선의 수평부분을 정상상태(steady state)라고 한다. 정체상태에 도달할 때까지 처리된 수량을 입상활성탄의 흡착 용량으로 나타낼 수 있으며, 또한 정체기에서는 흡착이 완결되었다고 가정하며, 생물학적 유기물 분해작용이 지배적이다. 흡착이나 생물학적 활성에 의해 제거된 처리대상물질의 제거분율을 결정하기는 어려움이 있으며, DOC가 흡착과 생물학적 분해에 의해 제거되는 이론적 배경을 Fig. 7에서 알 수 있다. 입상활성탄의 초기단계에서는 흡착에 의한 유기물 제거가 대부분이지만, 입상활성탄의 순수 흡착능이 소모된 후에는 흡착에 의한 유기물 제거보다는 생물학적 분해가 지배적인 메카니



증이다.

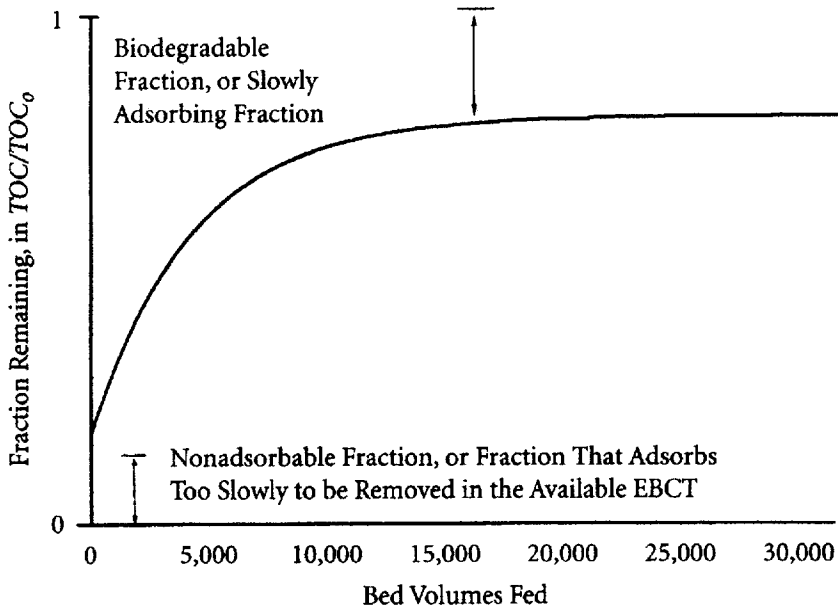


Fig. 7. Theoretical breakthrough curve for TOC removal by granular activated carbon.

처리대상 화합물의 제거에 있어 입상활성탄을 평가하기 위한 가장 일반적인 절차는 과과형태를 구하는 것으로 식(1)은 실험자료들 가장 잘 대표하는 과과형태이며, 이 식을 이용하여 best-fit를 구하였다.

$$\frac{C_e}{C_0} = a(1 - e^{-bx}) + c \quad \text{----- (1)}$$

이 식은 실험을 통해 얻은 최대값까지 상승한 과과곡선자료를 대표한다. 독립 변수(x)는 사용된 bed volume의 수이며 종속변수( $C_e/C_0$ )는 제거효율을 의미한다. 분석 초기에, 지수함수 항( $e^{-bx}$ )은 대략 1이다. 따라서  $C_e/C_0$ 는 c와 같으며 Fig. 7에서의 비흡착분율을 나타낸다. 과과곡선의 거의 끝에서(bed volume이 키질 때), 지수함수 항은 거의 0에 도달한다. 이 지점에서 이용된 bed volume의 증가에 대한 제거효율은 일정하며  $(a + c)$ 와 같다. 생분해 분율은  $1.0 \sim (a + c)$ 로 차이가 있다. 변수 b는 지수함수 증가 형태를 결정하는 최적 인자이다.

### 2.4.3 공탑채류시간 (Empty Bed Contact Time, EBCT)

임상활성탄 흡착조의 설계에 있어서 가장 중요한 인자는 흔히 EBCT라 표현하는 접촉시간이다. 일반적으로 EBCT는 식(2) 또는 식(3)과 같이 나타낼 수 있다.

$$EBCT = \frac{V}{Q} \quad \text{-----} \quad (2)$$

$$EBCT = \frac{L_{Bed}}{Q/A} = \frac{L_{Bed}}{\text{approach velocity}} \quad \text{-----} \quad (3)$$

여기서,  $V$  = 접촉조에서의 임상활성탄 충전용적,  $Q$  = 접촉조로의 유량,  $L_{Bed}$  = 여층 깊이,  $A$  = 여층 단면적이다.

실제 접촉시간은 EBCT와 입자간의 공극율의 곱과 같고, 대체로 이 공극율은 약 0.4~0.5 정도이다. EBCT는 공정운전에 상당한 영향을 미친다. 임상활성탄 흡착조에서 허용수질을 얻으려면 주어진 여전에서 임상활성탄 한계깊이(critical depth)와 그에 대응하는 최소 EBCT를 초과해야 한다. EBCT가 증가하면 접촉조에 충전된 활성탄의 수명(bed life)과 흡착 기간(service time)이 길어질 것이고, 활성탄 이용율(carbon usage rate)은 줄어든 것이다. 예를 들면, Fig. 8 (a)는 깊이에 대해 선형적으로 증가하지는 않지만 깊이가 증가함에 따라 칼럼의 운전기간이나 이용시간은 증가할 것이다. 이 곡선은 일반적으로 bed 깊이-이용시간 곡선(bed depth-service time curve)이라 부르며 그림에 나타나 있듯이 한계깊이를 결정하는데 이용한다. Fig. 8 (b)는 깊이나 EBCT가 증가함에 따라 파괴상태에 도달할 때까지 소모된 칼럼 내 활성탄의 백분율이 증가함을 나타내고 있다. 소모속도가 증가함에 따라 활성탄 단위 질량당 흡착되는 유기물의 질량은 증가한다. 따라서 파괴상태 이전까지의 bed volume은 최대로 증가할 것이다.

일정한 수리학적 부하율에서 EBCT나 bed 깊이의 증가는 연간 처리 비용에 영향을 미친다 (Wiesner et al., 1987). 접촉조 크기 또는 시스템의 규모가 커짐에 따라 고정비용은 증가하며, 활성탄 이용율(carbon usage rate)과 교체빈도(replacement frequency)가 감소함에 따라 유지관리비는 감소한다. 따라서 최적 깊이나 접촉시간을 구하는 것이 경제적인 운영조건을 만족할 것이다.

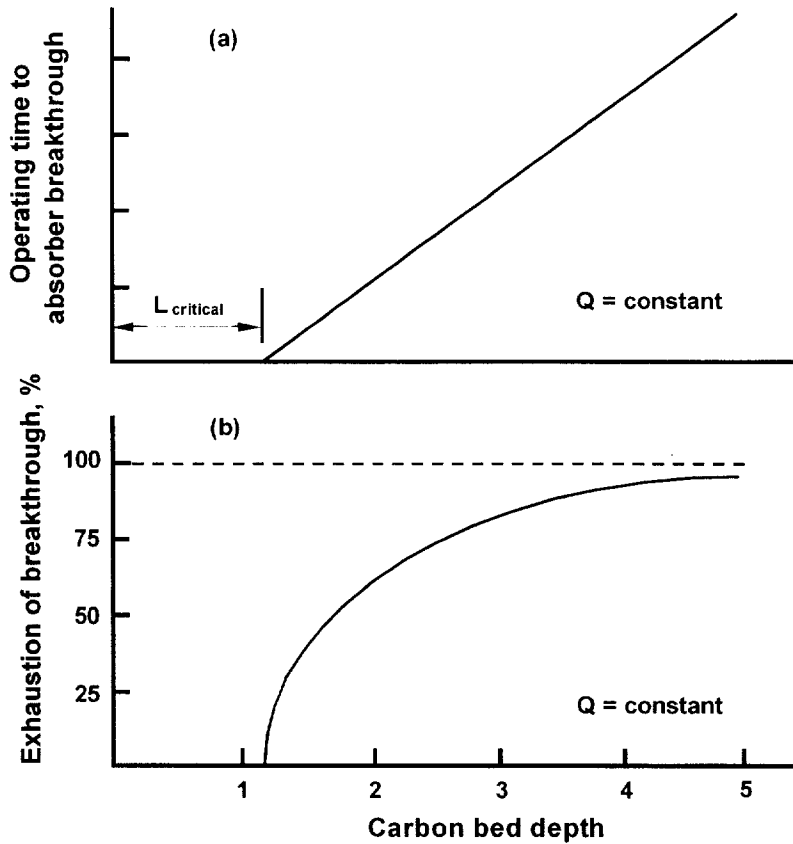


Fig. 8. Bed depth-service time and percent exhaustion at breakthrough versus depth.

수리학적 부하율을 결정할 때 EBCT 외에 다른 인자들도 고려되어야 한다. 종종 막 전달이 수용액으로부터의 많은 화합물 전달율에 대해 비교적 적은 영향을 미치기 때문에 경계층 두께가 대부분의 적용에 대해 큰 영향을 주지는 않지만 부하율이 증가함에 따라 수리학적 경계층의 두께는 감소한다. Cover and Pieroni (1969)는 동일한 EBCT와 다른 수리학적 부하율로 운전되는 흡착조에서 이용된 깊이가 한계깊이보다 깊지만 파과에 도달할 때까지의 bed volume 수 측면에서의 동일한 결과를 나타내었다. 수리학적 부하율이 증가할수록 수두손실이 커지므로 에너지비도 고려해야 한다. 또한 입상활성탄이 용존성 유기물과 같은 물질을 제거하는데 이용된다면 탁도제거에 대한 부하율의 영향도 고려해야 한다.

## 2.5 생물여과 공정 (Biofiltration Process)

정수처리에 있어서 생물여과 공정은 강화되는 수질기준과 오존사용의 확대로 인하여 관심이 증가하고 있는 공정이다(Huck et al., 2000). 생물여과 공정은 수중의 용존 유기물질 농도를 감소시켜 염소 처리에 의한 소독부산물의 생성과 염소요구량을 감소시키고, 배·급수관망에서의 미생물 재성장 잠재능(bacterial regrowth potential)과 부식 잠재능(corrosion potential)을 감소시키는 장점이 있다 (Rittmann and Huck, 1989). 또한, 이취미 유발물질, 건강과 심미적으로 영향을 주는 미량유기물질들의 제어에도 효과가 있다고 알려져 있다 (Elhadi et al., 2003).

최근에는 멤브레인 공정에서 bio fouling을 줄이는 목적으로 멤브레인 공정의 전처리 공정으로 부각되고 있다 (Park et al., 2002). 이처럼 생물학적 처리의 많은 장점 때문에 정수처리 공정에서의 생물학적 처리에 대한 연구가 진행되어오고 있다 (Rittmann and Huck, 1989; Bouwer et al., 1995; Rittmann, 1995b; Huck et al., 1998).

생물학적으로 안전한 음용수 생산을 위한 생물여과 공정의 유용성은 지난 30년간 유럽에서 검증되어 오고 있으며 (Sontheimer et al., 1979a, 1979b), 몇몇 연구에서는 급속 생물여과 공정을 이용하여 입자상 물질의 제거와 생물학적으로 안전한 음용수의 생산에 효과가 있음을 보고하였다 (Huck et al., 1991).

음용수 생산에 있어서 생물학적 불안정성을 유발하는 물질들로는 생물학적으로 분해가능한 유기물질(BOM),  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{NO}_2^-$ , 용존수소 등이 있다 (Rittmann and Huck, 1989). 생물여과 공정에서 biofilm 형태로 여재(media)에 부착되어 있는 종속영양성(heterotrophic) 박테리아는 BOM을 산화시켜 탄소 에너지원으로 이용한다. 따라서 AOC 및 BDOC와 같은 인자들은 유용한 BOM surrogate로 활용가능하며, 이들은 종속영양성 박테리아의 성장 제한인자로 작용하기도 한다 (Huck, 1990). 이러한 이유로 최근에는 이들 물질들에 대한 관심이 집중되고 있다. 이런 물질들로는 휴믹물질, 아미노산류, 탄수화물류 및 오존 소독부산물이 있으며, 이런 BOM은 생물여과 공정에서 복잡한 제거기구를 통하여 제거되어진다 (Booth et al., 1995).

정수처리에 이용되는 생물여과 공정에서 발생하는 작용(process)들을 Fig. 9에 나타내었다. 수중에 포함된 BOM, 부유 미생물들과 무기입자들, 용존 산소 및 용존 영양분들이 생물여과지 상부로 유입되어 여층을 따라 여과지 하부까지 도달한다. 유입수 중에 함유된 박테리아는 여재 표면에서 부착되어 성장과 탈착을 반복하면서 여재 표면에 축적되고, BOM은 여층을 따라 계속적으로 유입된다면 BOM과 같은 기질의 생분

해와 미생물의 성장은 bulk liquid에서 일어난다. 여재로부터 미생물 생체량의 탈리는 미생물의 노화(decay)로 인한 활성의 저하, 수류 흐름의 전단력(shear force) 및 역세척에 의해서 발생되며, 역세척시 여재로부터 탈리되어 나온 미생물은 역세수와 함께 생물여과조 밖으로 유출된다.

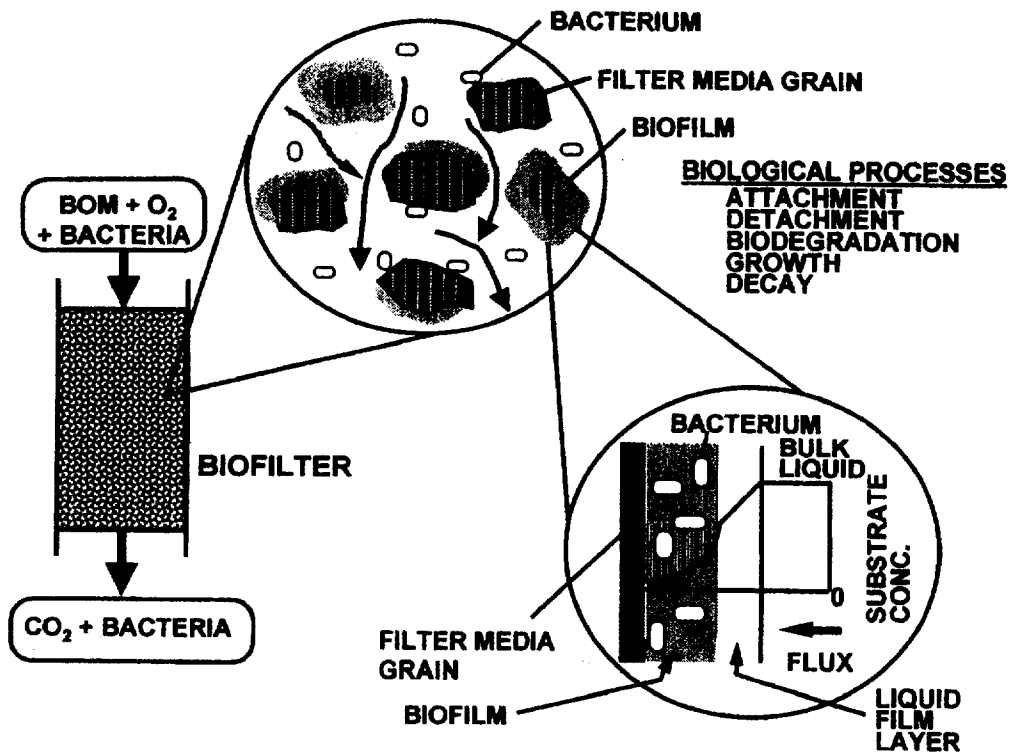


Fig. 9. Schematic diagram illustrating the processes occurring in a drinking water biofilter.

생물여과지의 운전 초기부터의 BOM과 탁도 제거에 대해 관찰한 것을 Fig. 10에 나타내었다. 탁도의 경우, 특정한 값을 정하여 그 값을 초과하지 않는 범위 내에서 생물여과지를 운전하여야 한다. BOM 제거효율은 운전 초기부터 증가하여 정상상태에 도달한다. 이때 BOM 제거율은 오존처리 조건, 수온, 역세척 조건 등 다양한 요소들에 의해 영향을 많이 받는다. BOM 제거율을 나타낸 2개의 BOM 제거율 변화곡선이 있으며, 상부의 변화곡선은 GAC/모래나 anthracite/모래를 충전한 combined 생물여과조

에서의 BOM 제거율의 변화를 나타내고 있다. 두 변화곡선의 한 부분을 확대해서 나타낸 그림을 보면 역세척으로 인한 미생물 생체량의 변화로 BOM 제거율이 감소되었다가 생체량의 회복으로 인하여 다시 제거율이 상승하는 것이 반복되면서 톱니 모양의 pattern이 연속적으로 진행되고 있으며, 상부 보다 하부의 변화곡선에서의 변화가 훨씬 더 크게 나타나고 있다. 이는 역세척 combined 생물여과조에서의 미생물 생체량의 손실이 작다는 것을 의미한다. 따라서, 생물여과 공정을 최적화하기 위해서는 톱니 모양의 pattern이 반복되는 짧은 주기의 생물여과조의 거동을 잘 관찰하고 평가해야 한다.

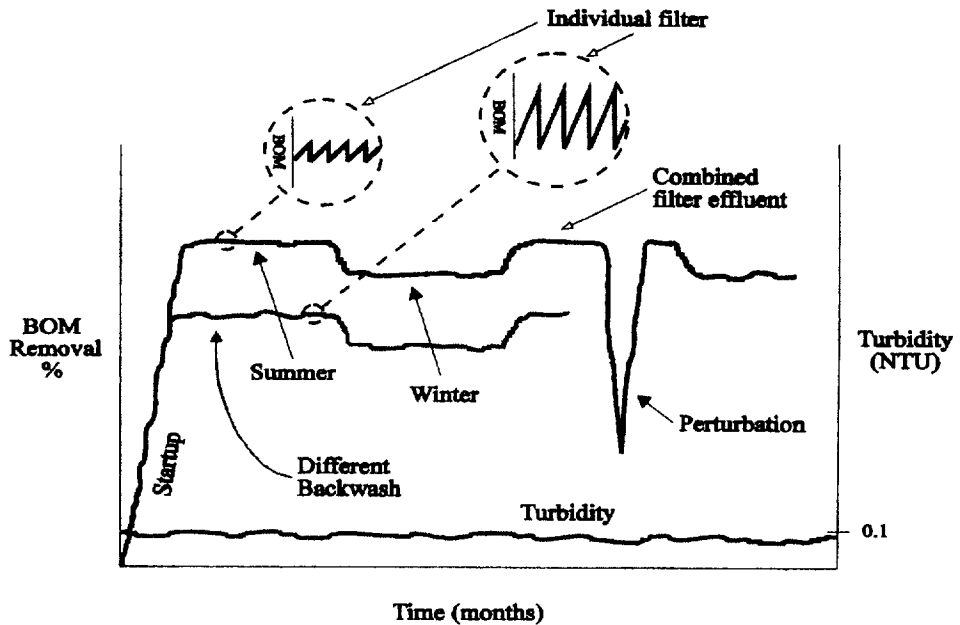


Fig. 10. Representation of biological filtration.

정수처리 공정에서 생물학적 처리에 대해 유럽에서 넓은 범위로 여러 관점에서 실질적인 연구가 진행되었다. 독일과 네덜란드에서는 slow sand filtration, bank filtration, ground passage 등을 대상으로 자주 연구되었으며, 프랑스에서는 오존과 결합한 생물활성탄(BAC) 여과공정에 대해 연구가 되었다.

생물활성탄 여과공정은 입상활성탄의 운영기간이 증가함에 미생물이 증식, 생물막

을 형성하여 활성탄 흡착과 부착미생물의 산화, 분해 등 두 반응이 서로 기능을 보완하면서 수중의 유기물을 효과적으로 처리하는 시스템이다. 이 공정은 1970년대 초반 Sontheimer and Hubele (1987)에 의해 활성탄 여과공정에서 생물학적 작용에 대한 연구를 기초로 발전되어 왔다. 그 후 활성탄 칼럼내의 미생물 성장은 활성탄의 흡착능을 증가시킨다는 사실을 발견한 후부터 입상활성탄 칼럼을 이용한 BAC 공정이 발달되어 왔다. 생물활성탄 공정의 운전초기에는 미생물의 활동도가 낮은 관계로 흡착속도가 미생물에 의한 분해속도보다 커서 주로 흡착에 의해 유기물이 제거되며 운전시간이 길어짐에 따라 미생물이 기질에 순응되면서 미생물막이 형성되므로 미생물의 활성이 높아져서 유기물이 미생물에 의해 제거되는 비율이 높아진다.

생물활성탄은 입상활성탄을 이용한 수처리 방법으로 일반적으로 정수처리 공정 중 후처리 공정에서 사용되며, 생물학적 작용과 흡착작용을 병행한다. 이 작용으로 수중의 용존성 유기물질은 흡착에 의해 제거되고, 생분해 가능한 유기물질은 미생물의 작용에 의해 산화된다 (Kim et al., 1996).

기존의 입상활성탄이 수중의 유해 유기물을 흡착처리하는데 비해 생물활성탄 공정은 전단계에 오존처리 공정을 부가하여 오존에 의해 수중의 유기물질 중 고분자 유기물질을 저분자 물질로 전환시킨다. 또한, 생분해 불가능한 용존성 유기물질(refractory DOC)을 생분해 가능한 용존성 유기물질(biodegradable DOC)로 전환시켜 유기물을 흡착처리 및 미생물에 의한 생물학적 처리를 동시에 수행함으로써 유기물에 의한 흡착부하량을 줄여 활성탄의 수명을 연장시켜 정수처리 비용을 줄일 수 있는 장점이 있다 (Siddiqui et al., 1997).

## 2.5.1 생물여과 공정에서 오존처리의 영향

오존처리에 의한 천연유기물질의 생분해능의 증가는 고분자 유기물질이 저분자 유기물질로 전환되어 나타나는 결과이다. 즉, 저분자 화합물들은 고분자 화합물들 보다 쉽게 미생물들의 세포막을 통과하며, 미생물들의 체내에서 신진대사 효소(metabolic enzyme)에 의해 쉽게 분해된다 (Leisinger et al., 1981). 또한, 일반적으로 생물분해에 대해 내성을 가지는 탄소 2중 결합 및 방향성을 가진 유기물질의 감소도 결국 생분해능의 증가를 의미한다.

오존처리는 수중에 존재하는 천연유기물질의 활성탄에 대한 흡착능(adsorbability)의 변화를 유발한다. 수중의 천연유기물질이 오존과 반응하게 되면 극성과 친수성(hydrophilicity)이 증가하여 활성탄 흡착에 부정적인 영향을 미치는 반면, 천연유기물

질의 분자량 감소에 기인하여 긍정적인 영향도 나타난다. Kim et al. (1997)은 오존처리를 한 시료수 중의 천연유기물질이 오존처리를 하지 않은 천연유기물질 보다 활성탄에 대한 흡착능이 보다 낮은 것으로 보고하였다. 또한, 그들은 오존처리된 천연유기물질이 생물학적 처리를 거친 후에는 오존처리를 하지 않은 천연유기물질과 거의 같은 흡착능을 가진다고 보고하였다. 그러나, DiGiano와 Harrington (1989)은 오존처리된 천연유기물질을 생물학적 처리한 후에 오존처리를 하지 않은 천연유기물질과 활성탄에 대한 흡착능을 비교한 결과 오존처리를 하지 않은 천연유기물질에서 활성탄에 대한 흡착능이 더욱 높게 나타나 활성탄 흡착능에 대한 오존처리의 부적절한 영향을 보고하였다. 비록 활성탄의 흡착능에 오존처리가 미치는 영향이 부정적인 측면과 긍정적인 측면 모두 존재하지만, 생물활성탄 공정에서는 오존처리가 TOC 및 THM 생성능에 대한 제거율의 증진과 활성탄 사용기간을 연장시키는 긍정적인 측면이 훨씬 크다고 보고하고 있다 (Kim et al., 1997).

정수처리 공정에서 몇몇을 제외한 거의 모든 경우에 질소나 인 보다 탄소가 미생물 성장의 제한인자로 작용하며, 이런 탄소는 미생물의 전자공여체로 작용한다. 따라서, 오존처리에 의해 생성된 BOM은 생물여과 공정에서 미생물의 활동도를 증진시킨다 (DeWaters and DiGiano, 1990). 그리고, 오존처리에 의해 생성된 BOM의 경우 생물여과 공정에서 제거되어 오존처리 이전의 수준으로 낮아지고 (Harward and Croll, 1993; Hacker et al., 1994), 생물여과는 유입수 수질의 특성에 따라 BOM 제거량에는 차이를 보이지만 생물여과 공정을 거치면 BOM의 조성에는 많은 변화가 나타난다.

## 2.5.2 생물여과 공정에서 여재(media)의 영향

생물여과 공정에서 여재(media)의 선정은 소요 경비와 밀접한 관련이 있기 때문에 매우 중요한 요소이다. 생물여과 공정에서 GAC와 같이 가격이 고가이면서 흡착능이 있는 여재(adsorptive media)와 anthracite나 모래와 같은 가격은 비교적 저가이면서 흡착능이 없는 여재(non-adsorptive media)를 사용하여 BOM 제거에 대한 실험적인 연구들이 진행되었다 (LeChevallier et al., 1992; Krasner et al., 1993; Wang et al., 1995). 연구 결과, GAC 표면에 발달된 500 Å 이상의 거대세공은 미생물의 서식에 좋은 환경을 제공하지만, GAC의 미세세공에서는 박테리아들이 거의 서식하지 않는 것으로 나타났다. 이는 박테리아의 몸체 크기가 200 nm 이상인데 비하여 GAC의 미세세공의 크기는 1~100 nm 정도여서 박테리아들이 GAC의 세공내로 들어가 서식할 수가 없기 때문이다 (Werner, 1982).



모래와 GAC의 경우 박테리아의 부착에 이용될 수 있는 비표면적(specific surface area)을 비교하였을 경우, 모래의 유효경이 GAC 보다 작기 때문에 GAC 보다도 모래에서 박테리아의 부착에 이용될 수 있는 비표면적이 더 높게 나타난다. 하지만 GAC의 거대세공과 고르지 못한 표면은 박테리아의 서식에 적합한 환경을 제공하며, 역세척이나 유속증가에 따라 증가된 전단력(shear stress)으로부터 GAC 표면에서 박테리아의 탈리를 방지한다. 역세척시 활성탄에 부착된 미생물 중 탈리되는 미생물의 생체량은 보통 전체 미생물 생체량 중 4~8% 정도로 알려져 있으며 (Servais et al., 1991), 다른 여재와 비교하여 GAC에서는 미생물의 생체량 손실율이 크지 않기 때문에 손실된 생체량의 회복은 단시간 내에 이루어진다.

활성탄에서 유기물의 제거시 생물학적 분해와 물리적 흡착은 상호보완적인 작용을 한다 (Andrews and Tien, 1974). 방향성을 가진 유기화합물이나 염소처리된 지방족 유기화합물 등은 생물학적 분해도가 낮은 반면, 비교적 쉽게 활성탄에 흡착이 되기 때문에 주로 흡착에 의해 제거된다. 그러나 단당류나 아미노산과 같이 미생물이 기질로 사용할 수 있는 물질들은 용해성이 높아 활성탄에 대한 흡착능은 떨어지지만 미생물에 의한 생분해능이 높기 때문에 생물학적 분해로 제거된다. 활성탄에 주로 우점하는 미생물종으로는 *Pseudomonas*, *Alcaligenes*, *Bacillus*, *Acinetobactor*, *Aeromonas*, *Chromobacterium*속 등이 있는 것으로 보고되고 있다 (Stewart et al., 1990).

활성탄의 생물학적 재생(bioregeneration)은 미생물의 영양분이 될 수 있는 각종 유기 및 무기물질이 포함되어 있는 후오존 처리수가 공급되면 미생물은 활성탄의 거대세공에 대부분 부착되며, 이 거대세공에서 효소를 생산한다. 이 효소들은 20 Å 이하의 미세세공에도 쉽게 확산되어 흡착된 기질과 반응하여 각종 유기물들을 분해하여 활성탄의 흡착능력을 재생시키는 역할을 한다 (Ridgway and Olsan, 1981; Chang and Rittmann, 1987). 또한, 거대세공에 부착된 미생물이 수중에 존재하는 유기물을 분해함으로써 수중의 유기물 농도는 활성탄 내부의 유기물 농도 보다 낮아지게 된다. 따라서 미세세공에 흡착되어 있던 유기물은 탈착되어 미생물에 의해 분해가 이루어진다. 이와 같은 현상은 모래나 다른 매체를 사용한 생물막 처리에서는 볼 수 없는 생물활성탄 공정만이 가지는 독특한 특징이다.

LeChevallier et al. (1992)은 생물여과 공정에서 여재로 BAC/모래와 anthracite/모래를 사용하여 EBCT 7.5분, 수온 3.5℃, 유입수의 AOC 농도 780 µg/L의 조건에서 여재의 차이에 따른 AOC의 제거율을 조사하였다. anthracite/모래의 경우 평균 제거율이 75%, BAC/모래의 경우는 86%로 나타나 BOM의 제거에는 BAC가 더욱 효과적으

로 보고하였다. Coffey et al. (1995)은 1주일 동안 생물여과 공정의 운전을 중단하였을 경우에 여재의 차이가 미생물의 활성에 미치는 영향을 조사하였다. 이 결과, 운전을 재개하였을 시에 anthracite/모래 보다 BAC/모래를 여재로 사용한 생물여과 공정에서 BOM 제거율에 대해 빠른 회복율을 나타내었다고 보고하였다. 또한, Maloney et al. (1984)은 anthracite/모래와 GAC/모래를 여재로 사용하여 TOC 제거율을 평가한 결과에서 유출수의 TOC 농도가 차이를 보이는 것은 생물학적 분해가 아닌 GAC의 흡착능이 기여하여 나타난 결과로 평가하였다.

Krasner et al. (1993)은 anthracite/모래와 GAC/모래를 충전한 pilot plant용 생물여과 컬럼을 이용하여 생물학적으로 aldehyde 제거를 연구하였다. 이 결과, GAC/모래를 여재로 사용한 biofilter에서 aldehyde 제거율이 높게 나타났으며, 일시적인 잔류염소의 유입이나 biofilter 운전 중단시에 내성이 anthracite/모래를 여재로 사용한 biofilter 보다 강한 것으로 나타났다. 또한, aldehyde류 중에서도 비교적 생분해능이 낮은 glyoxal의 제거에서도 GAC/모래를 여재로 사용한 경우가 anthracite/모래 보다 glyoxal의 제거에 유리한 것으로 조사되었다. 또한, Prévost et al. (1995)은 anthracite/모래와 흡착능이 소진된 GAC/모래 생물여과 컬럼을 이용한 실험에서 수온이 10℃일 때 formaldehyde의 제거율을 비교한 결과, anthracite/모래 생물여과의 경우 제거율이 50% 정도로 나타난 반면, GAC/모래 생물여과 컬럼에서는 80% 이상의 제거율을 나타내어 활성탄을 여재로 사용한 경우가 온도 변화에 대한 내성이 더 강한 것을 보여주었다.

### 2.5.3 생물여과 공정에서 접촉시간(contact time)의 영향

BOM 제거를 위한 생물여과 공정에서 접촉시간의 중요성에 대해서는 많은 연구결과가 보고되었다 (DeWaters and Digiano, 1990; Huck et al., 1994; Zhang and Huck, 1996). 접촉시간은 흔히 EBCT로 표현되며, EBCT는 운전과 설계의 중요한 인자로 작용한다.

Zhang and Huck (1996)는 접촉시간을 증가시킬수록 생물여과 공정에서 AOC의 제거율을 향상시켰다고 하였다. 또한, 다른 연구자들은 접촉시간과 수리학적 부하(hydraulic loading)는 주어진 EBCT에서 생물학적으로 BOM을 제거하기 위한 중요한 지표이며, BOM 제거는 수리학적 부하에는 독립적이라고 보고하였다 (Sontheimer and Hubele, 1987; Carlson and Amy, 1995).

LeChevallier et al. (1992)은 0.5~1.0 mgO<sub>3</sub>/mgTOC로 상수원수를 오존처리한 후

GAC /모래여과에서 TOC와 AOC 제거율을 EBCT의 함수로 평가하였다. 여기서 이들은 TOC 제거효율은 EBCT 5분에서 29%, 10분에서는 33%, 20분에서는 51%로 증가하였으며, 또한 동일한 EBCT 범위에서 AOC 제거효율도 증가한 것으로 보고하였다. Sontheimer and Hubele (1987)은 미생물 활성 GAC 여과공정에서 체류시간이 5~20분으로 증가함에 따라 DOC 제거효율이 27~41 %로 증가한 것으로 보고하였다. Merlet et al. (1991)은 오존처리를 거친 후 생물학적 활성 GAC 여과공정에서 EBCT를 25분까지 증가시켰을 때 BDOC 제거효율이 증가하다가 일정하게 유지되는 것으로 보고하였다. 일반적으로 AOC는 생분해 가능한 TOC 보다 아주 급속하게 제거되는 양상을 보이는데, Prévost et al. (1992)은 생물학적 활성 여과공정으로 AOC를 62~92%까지 제거하는데 2분의 접촉시간이면 충분하나 BDOC를 90%제거하는데는 10~20분의 EBCT가 소요된다고 보고하였다. LeChevallier et al. (1992)의 연구결과에서는 충분한 TOC의 제거를 위해서는 15~20분의 EBCT가 필요하나 AOC 제거에 있어서는 이 정도의 EBCT 범위는 너무 길다고 보고하였다.

#### 2.5.4 생물여과 공정에서 역세척(back washing)의 영향

성공적인 생물여과 공정의 운전을 위해서는 운전기간 동안 여과지 내 미생물의 생체량(biomass)을 적절히 관리하는 것이 중요하다. 생물여과지 내에서는 부착 미생물이 증식하기도 하지만 입자성 무기물질들도 유입되어 여층 내에 축적된다. 따라서, 손실수두의 증가로 인해 역세척을 해야하며, 역세척시 공세(air csour)나 여층의 팽창 정도에 따라 미생물의 탈리량은 달라서 역세척이 생물여과 공정의 최적화에 미치는 영향은 크다고 보고하고 있다 (Chipps et al., 1995; Prévost et al., 1995). 또한, 역세척수에 존재하는 잔류염소 유무 또한 BOM의 제거율이나 미생물의 생체량에 미치는 영향이 크다고 알려져 있다. 그리고, 일부는 생물여과지 내에서 손실수두를 증가시키는 원인 중의 하나인 지나친 미생물의 부착을 막기 위하여 의도적으로 잔류염소가 존재하는 역세수를 사용하기도 한다 (Urfer et al., 1997).

Ahmad and Amirtharajah (1995)는 실험실 규모의 생물여과조를 이용하여 입자들의 부착과 탈리에 대해 조사하였다. 그들의 연구에서 박테리아의 HPC(heterotrophic plate count)나 세포의 ATP(adenosine triphosphate)를 분석하여 역세시 미생물 입자(biological particle) 보다 무기입자(nonbiological particle)들의 탈리가 훨씬 많이 일어나며, 무기입자들의 제거를 위한 역세척의 최적조건으로 역세척을 하여도 미생물 입자(biofilm)의 탈리는 과도하게 일어나지 않는다고 보고하였다. Ahmad et al. (1994)은

collapse pulsing 조건으로 역세척을 하여도 AOC 제거율의 감소는 관찰할 수 없었다고 보고하였다. 그러나, Lu and Huck (1993)는 세포막에 존재하는 phospholipid의 농도를 측정하여 역세척이 생체량에 미치는 영향을 조사하였는데 collapse pulsing 조건으로 역세척을 할 경우 현저한 생체량의 감소가 일어났다고 보고하여 앞의 연구결과들과는 상이하게 나타났다. Prévost et al. (1995)은 여재에 축적된 입자들은 박테리아의 활성도를 방해하기 때문에 역세척은 생물여과 공정의 제거효율에 이점을 준다고 보고하였다.

### 2.5.5 생물여과 공정에서 수온의 영향

이론상 생물여과 공정에서의 BOM 제거효율은 수온이 높을수록 높아지며, 이는 미생물 동력학(kinetic)과 물질전달(mass transfer)이 상대적으로 높은 수온에서 더 빠르기 때문이다. 하지만 여재의 종류에 따라 이런 영향은 감소한다. Krasner et al. (1993)과 Coffey et al. (1995)은 glyoxal 제거에서 수온이 20~25℃일 때가 10℃~13℃일 때 보다 생물여과조의 효율이 정상상태에 보다 빨리 도달하였으며, 이러한 영향은 GAC/모래 보다 anthracite/모래 여과지에서 크게 나타났다고 보고하였다. 이러한 영향은 BDOC의 제거시에도 유사하게 나타났으며, 미생물의 생체량 보다는 수온이 생물여과 공정의 제거율이 미치는 영향이 더 크다는 연구결과도 있다 (Servais et al., 1992a; Wang et al., 1995).

상수 원수중의 TOC의 생분해성은 Table 9에 나타나 있듯이 운전경험에 의해 영향을 받기 때문에 아주 다양하며, 또한 TOC가 자연 분해공정의 잔여물로 구성되어 있기 때문에 생분해도는 적다고 알려져 있다.

Table 9. Experience with biological processes in drinking water treatment for organic carbon removal (Bouwer and Crowe, 1988)

| Process                                                                         | Location                      | Influent<br>Concentration              | Reduction<br>(pseudo-steady state) |
|---------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------|----------------------------------------|------------------------------------|
| Aerated Biological filter<br>Full scale (upper<br>layer of GAC)                 | Annet sur Marne,<br>France    | 3.2 mgTOC/L                            | 38%                                |
| Fluidized bed<br>Pilot scale                                                    | Medmenham,<br>Great Britain   | 3.7 mgTOC/L                            | 5.4%                               |
| Pilot scale                                                                     | Medmenham,<br>Great Britain   | 2.8 mgBOD <sub>5</sub> /L              | 29%                                |
| Pilot scale                                                                     | Colwick,<br>Great Britain     | 10 mgTOC/L                             | 10%                                |
| Rapid sand filtration<br>Full scale                                             | Mulheim, Germany              | 2.9 mgDOC/L                            | 10%                                |
| Full scale                                                                      | The Netherlands               | 23-500 µgAOC/L                         | 3-84%                              |
| Slow sand filtration<br>Full scale                                              | The Netherlands               | NR                                     | Δ3.1 mgTOC/L                       |
| Full scale                                                                      | Bremen, Germany               | NR                                     | Δ0.7 mgTOC/L                       |
| Full scale                                                                      | France                        | NR                                     | < 40%                              |
| Microbially active GAC<br>Full scale                                            | Mulheim, Germany              | 1.8-2.6 mgDOC/L                        | 75%**                              |
| Pilot scale                                                                     | Choisy-le-Roi, France         | 2.4 mgTOC/L                            | 30%                                |
| Full scale                                                                      | Jefferson Parish, La.         | NR                                     | 30-50%                             |
| Full scale                                                                      | Bremen, Germany               | 3.6-5 mgDOC/L                          | Δ1-1.7 mgDOC/L**                   |
| Full scale (advanced<br>wastewater<br>treatment for<br>groundwater<br>recharge) | Orange Country, Calif.        | 25 mgDOC/L                             | 20%                                |
| Soil-aquifer treatment<br>Full scale                                            | Garonne River, France         | 2.3-2.9 mgTOC/L                        | 60-70%                             |
| Full scale                                                                      | Darlsruhe, Germany            | 2.5-4.5 mgDOC/L                        | 40-65%**                           |
| Full scale (bank<br>filtration)                                                 | Rhine River, Germany          | 5-7 mgDOC/L                            | 75%                                |
| Full scale (dune<br>infiltration)                                               | Castricum, the<br>Netherlands | 13-17 µg EOC/L***                      | 84-87%                             |
| Full scale (dune<br>infiltration)                                               | Amsterdam, the<br>Netherlands | 19 µg/L Σorganic<br>nitrogen compounds | 92-94%                             |

NR = not reported.

\* BOD<sub>5</sub> = 5-day biological oxygen demand.

\*\* Employed preozonation.

\*\*\* EOC = extractable organic chlorine.

## 제 3 장 재 료 및 방 법

### 3.1 실험재료

#### 3.1.1 Pilot-plant 실험장치

본 연구에 사용된 pilot-plant는 300 m<sup>3</sup>/일 처리용량으로 전오존, 응집-침전-급속여과, 후오존, BAC 공정으로 구성되어 있다. 후오존 처리는 1 mgO<sub>3</sub>/mgDOC의 농도로 오존을 투입하였고, 접촉시간은 20분으로 고정하여 운전하였다. 실험기간인 2002년 12월부터 2004년 12월까지의 후오존 처리수의 성상을 Table 10에 나타내었다.

BAC 공정은 직경 30 cm, 층 높이 250 cm인 3개의 아크릴 컬럼에 석탄계(F-400, Calgon), 야자계(삼천리 1급) 및 목탄계(Picabiol, Pica) 활성탄 신탄을 충전하여 공탑 체류시간(empty bed contact time: EBCT) 15분, 수리학적 부하율(hydraulic loading rate: HLR) 10 m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> · hr로 운전하였으며, 활성탄의 역세척은 평균 주 1회 정도로 하였다. 또한, 실험에 사용된 초기 입상활성탄의 물성치를 Table 11에 나타내었다. 또한, 실험에 사용된 초기 입상활성탄의 세공분포를 Fig. 11에 나타내었다.

Table 10. Characteristics of post-ozonated water

| Item  |        | Data    |
|-------|--------|---------|
| DOC   | (mg/L) | 1.2~1.7 |
| BDOC  | (mg/L) | 0.7~1.1 |
| AOC   | (µg/L) | 230~410 |
| Temp. | (℃)    | 4~25    |
| pH    | (-)    | 6.8~7.5 |

Table 11. The physical characteristics of GACs used in this study

| Species               |                     | Coal<br>(Calgon F-400) | Coconut<br>(Samchully) | Wood<br>(Pica) |
|-----------------------|---------------------|------------------------|------------------------|----------------|
| Iodine value          | (mg/g)              | 1016                   | 1163                   | 937            |
| Specific surface area | (m <sup>2</sup> /g) | 1100                   | 1230                   | 1350           |
| Total pore volume     | (cc/g)              | 0.548                  | 0.495                  | 1.031          |
| Mean pore radius      | (Å)                 | 23                     | 18                     | 28             |

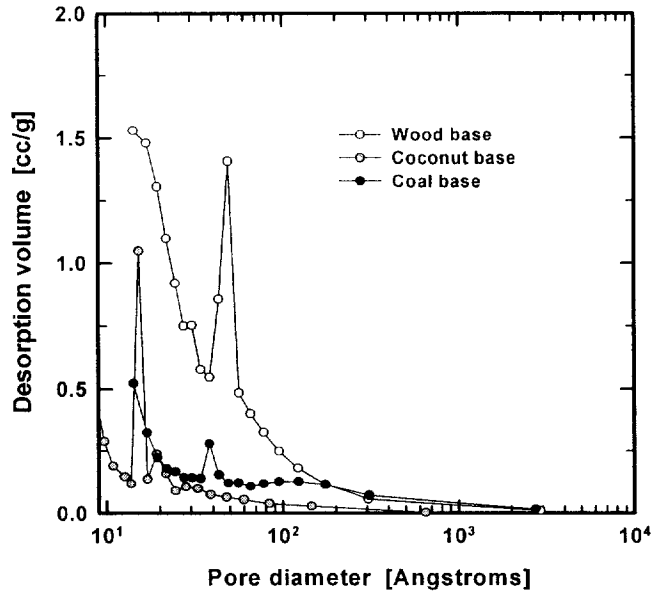


Fig. 11. Distributions of desorption volume with pore size.

## 3.2 실험방법

### 3.2.1 수질항목 분석

본 실험의 모든 분석은 Standard methods (APHA, AWWA, WPCF, 1998)에 따랐다.

#### 1) DOC (Dissolved Organic Carbon)

수중에 존재하는 용존성 유기물질의 농도를 정량화하기 위해 용존성 유기탄소 (DOC) 농도를 측정하였다. DOC는 0.2  $\mu\text{m}$  멤브레인 필터(Sartorius, Germany)로 시료를 여과한 후 TOC analyzer(Sievers 820, Sievers, U.S.A.)로 분석하였다. 분석 결과는 총 5회 분석한 데이터 중에서 최대값과 최소값을 제외한 나머지 3개의 결과를 평균하여 사용하였다.

#### 2) AOC (Assimilable Organic Carbon)

AOC 균주는 *Spirillum* strain NOX(ATCC 49643)와 *Pseudomonas fluorescens*

strain P-17(ATCC 49642)을 American Type Culture Collection(ATCC)에서 분양 받아 사용하였다. 실험에 사용된 모든 초자기구는 우선 세제로 여러 번 세척한 후, 질산으로 세정하여 다시 3차 증류수로 3번 이상 씻어내어 회화로에서 550℃로 4시간 동안 열처리하여 사용하였다.

먼저 0.2  $\mu\text{m}$  membrane filter(Sartorius社, Germany)로 여과시킨 시료수 600 mL를 시수 중의 세균 불활성화를 위해 70℃ 수욕조에서 30분간 방치하여 즉시 냉각한 후 미리 배양한 *Pseudomonas fluorescens* strain P-17과 *Spirillum* strain NOX를 동시에 접종하여 15℃에서 4일간 정치 배양하였다. 배양한 시료수를 Leb-Lemco Agar(LLA 8.0, Oxoid Ltd.) 배지에 접종하여 25℃에서 2~3일 배양하여 형성된 colony를 측정하였다. 본 연구에 사용된 *Pseudomonas fluorescens* strain P-17과 *Spirillum* strain NOX의 수율계수는 각각  $4.1 \times 10^6$ ,  $1.2 \times 10^7$  CFU/ $\mu\text{g}$  of C as acetate로 하였다 (Van der Kooij *et al.*, 1982; Van der Kooij *et al.*, 1989).

### 3.2.2 세균 생체량

BAC에 부착된 종속영양 세균의 생체량(biomass)은 BAC 습중량 1 g을 건조시킨 후 37 kHz, 190 W로 3분 동안 초음파 처리(DHA1000, Branson, U.S.A.)하여 세균을 탈리시킨 후 R<sub>2</sub>A agar(Difco) 평판배지에 시료 1 mL를 단계적으로 희석 도말한 후 25℃ 배양기에서 2주간 배양하여 습중량 1 g당 colony 형성 세균수로 표시하였다.

총 세균수는 FISH 방법을 적용한 후 nucleotide에 삽입되어 결합하는 DAPI(4,6-diamidino-2-phenylindole-2HCl, sigma, U.S.A)로 염색하여 직접 계수하는 DAPI법을 이용하여 측정하였다. DAPI와 fluorescent oligonucleotide의 dual strain은 Hicks 등 (1992)과 박 (2000)의 방법에 준하여 실시하였다. 시료에 cold paraformaldehyde solution(4% in PBS)를 시료량의 3배가 되게 넣고, 잘 섞은 후 4℃에서 16시간 동안 반응을 시키고, 반응이 끝난 시료를 4℃, 12,000rpm으로 20분간 원심분리하여 상정액을 제거하고 PBS로 세척한 후 PBS로 적당히 희석하였다. 고정된 시료 1 volume에 에탄올 1 volume을 첨가하여 -20℃에 저장하여 실험을 진행하였으며, 고정된 시료 2  $\mu\text{L}$ 를 silane coation slide glass 위에 떨어뜨리고, DAPI (1  $\mu\text{g/mL}$ )를 50  $\mu\text{L}$  첨가하여 5분간 염색한 후, 멸균 증류수로 세척하여 형광현미경(Axioskop 2 plus, Carl Zeiss, Germany)과 scanning confocal laser microscopy(LSM 510, Carl Zeiss, Germany)를 사용하여  $\times 400$  또는  $\times 1,000$ 의 배율에서 field에 나타난 세균을 계수하였으며, 20번 이상 반복하여 그 평균값으로 나타내었다.



### 3.2.3 세균 생산력 (bacterial production)

세균의 생산력(bacterial production)은  $^3\text{H}$ -thymidine이 DNA에 흡수되는 정도로 구하였다 (Fuhrman and Azam, 1982). 먼저 BAC 습중량 1 g을 초음파 처리하여 세균을 탈리시킨 시료 2 mL에 200 nM [methyl- $^3\text{H}$ ] thymidine 용액(specific activity: 40~50 Ci/mmol) 1 mL와 200 nM cold thymidine 용액 1 mL를 첨가한 후 교반 배양기에서 in situ 조건으로 4시간 배양하였다. ATP 용액(25 g/L) 100  $\mu\text{L}$ 와 1 N NaOH 2 mL를 첨가하여 100  $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간 동안 가열하여 DNA를 추출한 후 잠시 냉각시키고 3000 rpm에서 10분간 원심분리하였다. 상정액 1 mL에 ice-cold 10% trichloroacetic acid 5 mL를 첨가하여 반응을 종료시키고 15분 정도 냉각시킨 후 0.2  $\mu\text{m}$  멤브레인 필터로 여과하였다. 이 여지를 vial에 넣고 건조시킨 후 ethyl acetate 1 mL와 10 mL의 scintillation cocktail(Aquasol-2, Packard Co.)을 주입하여 liquid scintillation analyzer(HP, 2500 TR/AB, U.S.A.)로 방사선량을 측정하였다. 얻어진 DPM(disintergrate per minute) 값으로부터 Parsons et al., (1984)에 의한 식을 이용하여 incorporation된 thymidine의 양을 계산하였다. 생성 세균수는 전환계수  $2.0 \times 10^{18}$  cells/mole thymidine을 이용하였고 (Bell et al., 1983), 탄소량으로의 전환에는  $2.0 \times 10^{13}$  g-C/ $\mu\text{m}^3$ 의 세균 체적당 탄소량과 평균 세포체적인 0.0865  $\mu\text{m}^3/\text{cell}$ 을 곱한  $1.73 \times 10^{14}$  g-C/cell의 전환율을 사용하였다.

### 3.2.4 세균 동정

세균의 동정은 형성된 colony의 형태학적 특징을 관찰하여 서로 다른 colony를 R2A 배지에 획선 도말하여 순수 분리하였다. 순수 분리된 세균은 API 20 NE Kit(bioMerieux, France) 및 생화학적 실험을 실시하고 Bergey's manual의 분류체계에 따라 속 혹은 종명까지 분류 동정하였다 (Krieg and Holt, 1984). API 20 NE Kit 사용시 95%이상인 경우에만 순수한 종으로 인정하여 판정하였다.

### 3.2.5 세균 균집구조

#### 3.2.5.1 시료 전처리

먼저 BAC 습중량 1 g을 건조시킨 후 초음파 처리하여 세균을 탈리시킨 다음 시료를 0.2  $\mu\text{m}$  polycarbonate 멤브레인 필터(Millipore)로 여과하였다. 여과 후 1 $\times$ phosphate buffered saline(PBS, pH 7.4)로 세척하였고, 다시 ethyl alcohol을 이용하

여 세척하고 공기 중에서 필터를 건조시켰다.

### 3.2.5.2 유전자 탐침(Gene probes)

본 연구에 사용된 probe들은 Eubacteria와 결합하는 EUB338,  $\alpha$  group과 결합하는 ALF 1b,  $\beta$  group과 결합하는 BET 42a,  $\gamma$  group과 결합하는 GAM 42a, Cytophaga-Flavobacterium(CF) group과 결합하는 CF 319a, 그리고 Gram (+) High G+C Content와 결합하는 HGC probe이며, 이들 probe의 sequence 및 specificity를 Table 12에 나타내었다.

### 3.2.5.3 현장조건에서의 형광 연계 잡종화(Fluorescent *in situ* Hybridization)

Gelatin coated slide glass에 필터를 올려놓은 후에 probe 1  $\mu$ L(최종농도 5  $\mu$ g/ $\mu$ L)와 hybridization buffer(0.9 mM NaCl, 0.01% SDS, 20 mM Tris/HCl, X% Formamide) 8  $\mu$ L를 첨가하여 46°C에서 90분 정도 반응시킨 후 water bath (SB-9, Eyela, Japan)로 미리 가열시킨 washing buffer로 48°C에서 15분 동안 세정하여 공기 중에서 건조시켰다. 형광현미경(Axioskop 2 plus, Carl Zeiss, Germany)과 scanning confocal laser microscopy(LSM 510, Carl Zeiss, Germany)를 사용하여 800배 및 400배의 배율에서 field내에 나타난 세균 등을 20번 이상 계수하여 그 평균값을 사용하였다.

Table 12. Sequences, target sites specificities of rRNA-targeted oligonucleotide probes used for Fluorescent *in situ* hybridization

| Probe                                                                      | Specificity                    | Probe sequence(5'→3') | Formamide | Reference             |
|----------------------------------------------------------------------------|--------------------------------|-----------------------|-----------|-----------------------|
| EUB338                                                                     | Eubacteria                     | GCTGCCTCCCGTAGGAGT    | 20(0-50)  | Amann et al., (1990)  |
| ALF 1b                                                                     | α subclass of Proteobacteria   | CGTTCGYTCTGAGCCAG     | 20        | Manz., et al., (1993) |
| BET 42a                                                                    | β subclass of Proteobacteria   | GCCTTCCCACCTTCGTTT    | 35        | Manz., et al., (1993) |
| GAM 42a                                                                    | γ subclass of Proteobacteria   | GCCTTCCCACATCGTTT     | 35        | Manz., et al., (1993) |
| CF 319a                                                                    | Cytophaga-Flavo bacterium      | TGGTCCGTGTCTCAGTAC    | 15        | Amann et al., (1994)  |
| HGC                                                                        | Gram (+) with high G+C content | TATAGTTACCACCGCCGT    | 25        | Wagner et al., (1994) |
| EUB, ALF, BET, C-F Group - Fluorescent Dye, BET, HGC Group - Rhodamine Dye |                                |                       |           |                       |

## 제 4 장 결과 및 고찰

### 4.1 활성탄 재질별 운전기간에 따른 용존유기물질 제거능

활성탄 재질별 운전기간에 따른 DOC 제거율 변화를 Fig. 12에 나타내었다. 운전 초기단계에서의 DOC 흡착능은 석탄계 재질의 활성탄이 가장 우수하였고, 다음으로 야자계, 목탄계 순으로 나타났다. 또한, bed volume 20,000 부근부터 3 가지 재질의 활성탄들이 정상상태(steady state)에 도달하는 것으로 조사되었다.

목탄계 활성탄의 경우는 실험에 사용된 활성탄들 중에서 세공용적과 비표면적이 가장 높게 나타났으나 유기물 흡착능은 매우 낮게 조사되었다. 이는 수중의 유기물질이 가지는 전하(charge)와 활성탄 세공의 표면전하와 밀접한 관련이 있는 것으로 Bjelopavlic 등 (1999)은 목탄계 재질인 Pica의 경우 수중의 pH가 4 부근에서는 활성탄 세공의 표면전하가 0 부근으로 나타나지만 수중의 pH가 증가할수록 활성탄이 가지는 음전하가 더욱 커진다고 보고하고 있으며, 야자계나 석탄계 활성탄의 경우는 수중의 pH가 산성에서는 양전하를 띠며, pH가 증가할수록 표면전하의 감소폭이 목탄계 활성탄 보다는 작아 pH 7 부근에서는 표면전하가 0 부근으로 되기 때문으로 보고하였다. 따라서, chloroform과 같은 수중의 유기물질들은 중성부근의 pH에서는 음전하를 띠고 있어 목탄계 재질의 활성탄에서는 활성탄 표면전하와의 수중 유기물질과의 반발력으로 인하여 흡착능이 매우 낮게 나타나는 것으로 판단되었다.

유기물 흡착능이 우수한 활성탄은 유기물 흡착능이 낮은 활성탄 보다 상대적으로 부착미생물에 대한 유기탄소원의 공급이 뛰어나다는 것을 의미하며, 유기탄소원의 공급이 우수한 활성탄에는 부착되는 미생물의 생체량 및 종류도 다양할 것으로 예상되어 각 재질별 활성탄들에 대해 정상상태에 도달 후인 bed volume 30,000 부근에서 각각의 활성탄 칼럼에서 표층을 채취하여 SEM(scanning electron microscope) 촬영한 것을 Fig. 13에 나타내었다. SEM 사진결과로는 활성탄 표면에 부착된 세균들에 대하여 형태학적인 특성만을 나타내기 때문에 정확한 구분은 힘들지만 야자계 재질의 활성탄 표면을 촬영한 Fig. 13 (b)를 보면 Fig. 13 (a)의 석탄계 재질의 활성탄과 Fig. 13 (c)의 목탄계 재질 활성탄에 비하여 단조로운 세균 군집과 적은 개체수를 가지는 것을 관찰할 수 있었다. 이전의 연구결과 (Krasner et al., 1993; Wang et al., 1995)에서 활성탄 표면의 많은 세공 중에서 미생물들이 부착·서식하기에 좋은 환경은 500 Å 이상의 거대세공(macropore)으로 보고하고 있다. 석탄계와 목탄계 활성탄의 경우

는 활성탄의 세공분포를 나타낸 Fig. 11에서 볼 수 있듯이 500 Å 이상의 거대세공이  
아자계 활성탄 보다 많이 발달해 있는 것을 볼 수 있다.

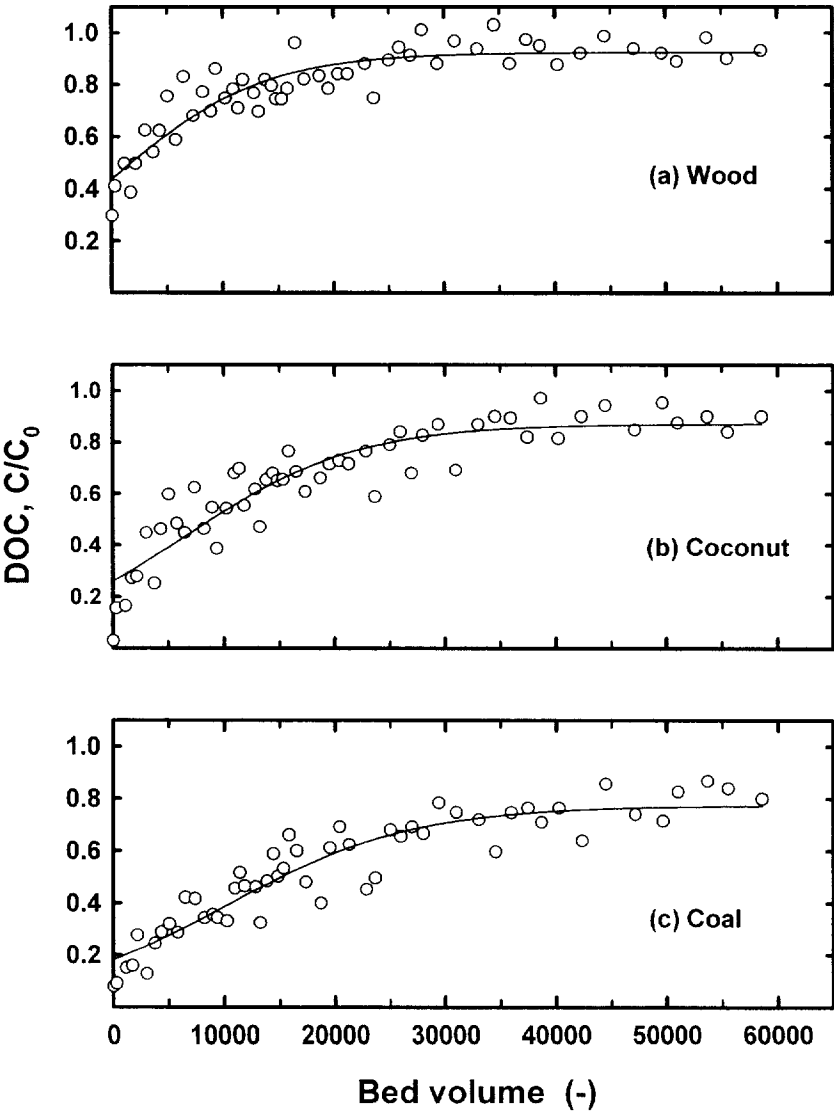
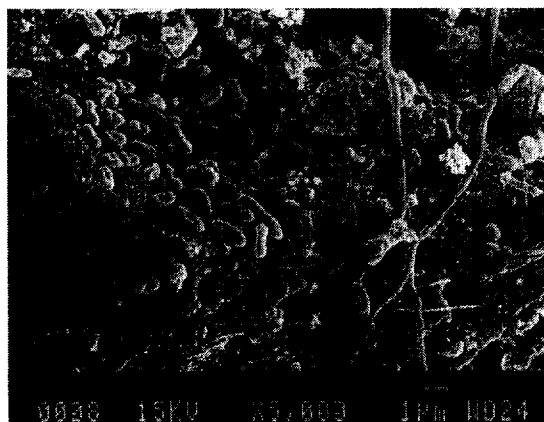
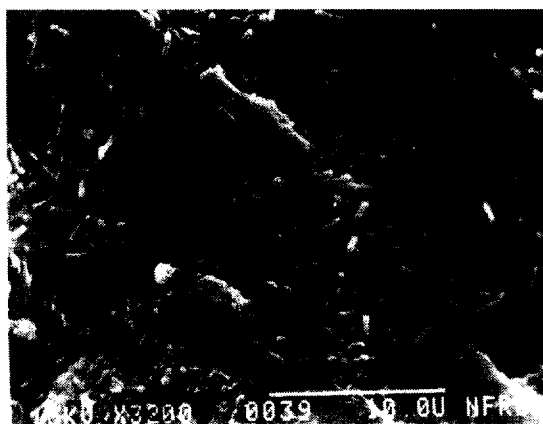


Fig. 12. DOC breakthrough curves for various GACs.



(a) Coal-based



(b) Coconut-based



(c) Wood-based

Fig. 13. SEM photograph of attached bacteria on BAC.

## 4.2 활성탄 재질별 운전기간에 따른 부착세균의 생체량과 군집구조 변화

DAPI는 세균의 세포막을 통과하여 세포내 DNA 이중나선 중 AT 염기서열이 많은 minor group과 결합하는 원리를 이용하는 것으로서 황록색의 형광을 발하게 된다. 또한, FISH는 특정 염기서열에만 특이하게 결합하는 gene probe를 이용하여 세포형태를 그대로 유지하면서 원하는 세포를 관찰할 수 있고, 정량적 분석이 가능한 특징을 가지고 있는 방법이다.

Fig. 14는 이러한 방법을 이용하여 활성탄 재질별로 부착미생물의 분포를 조사한 결과로 석탄계 재질 활성탄이 다른 재질의 활성탄에 비해 생체량이 많음을 현미경 상에서 확인할 수 있었다.

활성탄 재질별 운전기간에 따른 부착세균의 생체량 변화를 Fig. 15에 나타내었다. 부착세균의 생체량은 기존 평판배양법(HPC), FISH를 이용한 eubacteria(EUB) 및 DAPI를 이용한 TDC를 평가하였다.

Fig. 15 (a)에 나타난 석탄계 재질 활성탄의 경우, HPC는  $0.95 \times 10^7 \sim 52.4 \times 10^7$  CFU/g 범위를 나타내었으며, EUB 및 DAPI는 각각  $3.8 \times 10^8 \sim 134.2 \times 10^8$  cells/g 및  $7.0 \times 10^8 \sim 250.2 \times 10^8$  cells/g의 범위를 나타내어 HPC 보다 EUB 및 DAPI에 의한 부착세균의 생체량이  $10^2$  정도 높은 결과를 나타내었다. 또한, 운전기간에 따른 증가추세는 HPC나 EUB 및 DAPI 모두 bed volume 20,000 부터 증가하는 경향을 보였다.

야자계와 목탄계 재질의 활성탄에서 HPC, EUB 및 DAPI의 생체량 변화를 Fig. 15 (b)와 (c)에 나타내었다. HPC의 경우 야자계 재질 활성탄에서는  $0.21 \times 10^7 \sim 16.0 \times 10^7$  CFU/g, 목탄계 재질의 활성탄에서는  $1.0 \times 10^7 \sim 30.5 \times 10^7$  CFU/g으로 나타났으며, EUB 및 DAPI의 경우 야자계는 각각  $1.8 \times 10^8 \sim 56.1 \times 10^8$  cells/g,  $3.1 \times 10^8 \sim 100.0 \times 10^8$  cells/g으로 나타났으며, 목탄계는 각각  $5.6 \times 10^8 \sim 110.5 \times 10^8$  cells/g,  $9.7 \times 10^8 \sim 160.1 \times 10^8$  cells/g으로 나타났다.

따라서, 활성탄 종류별 부착세균의 생체량은 HPC, EUB 및 DAPI 모두 석탄계 재질의 활성탄에서 가장 높은 것으로 나타났으며, 다음으로 목탄계와 야자계 활성탄 순으로 조사되었다. 또한, HPC, EUB 및 DAPI 모두 bed volume 20,000 이후부터 크게 증진되어 운전기간이 경과할수록 증가하는 추세를 나타내었다. 이것은 Fig. 2에서와 같이 bed volume 20,000 이후부터 BAC가 정상상태에 도달하여 미생물의 활성이 증진되기 시작하는 시점과 부착세균의 생체량이 거의 일치한다고 볼 수 있다.

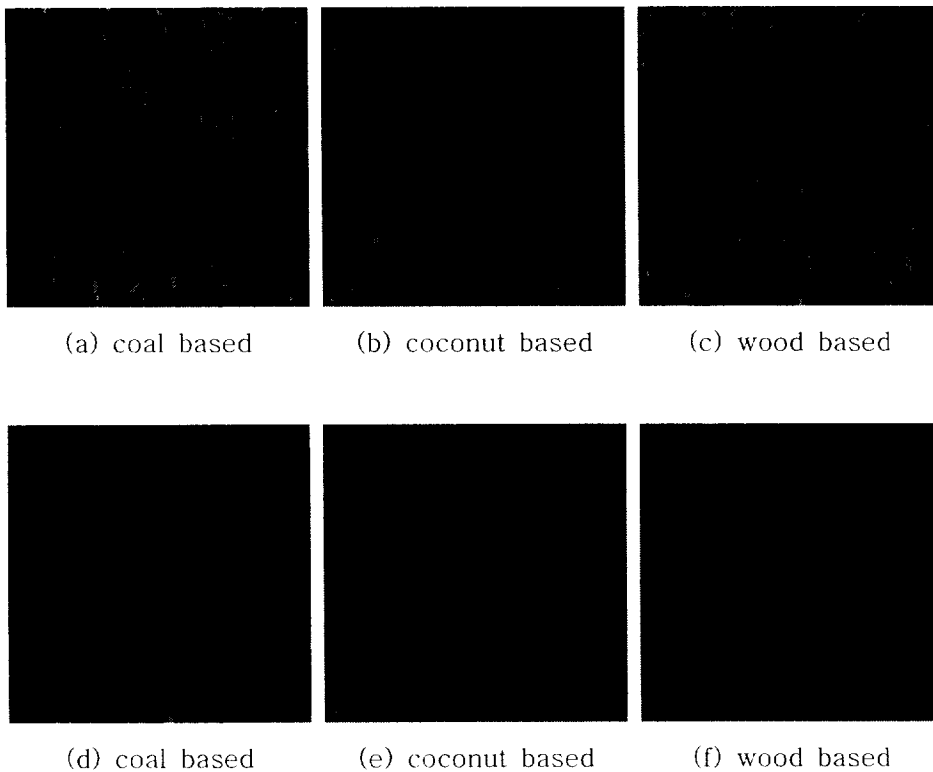


Fig. 14. Photograph of DAPI and EUB for attached bacteria on BAC  
(a~c: DAPI, d~f: EUB).



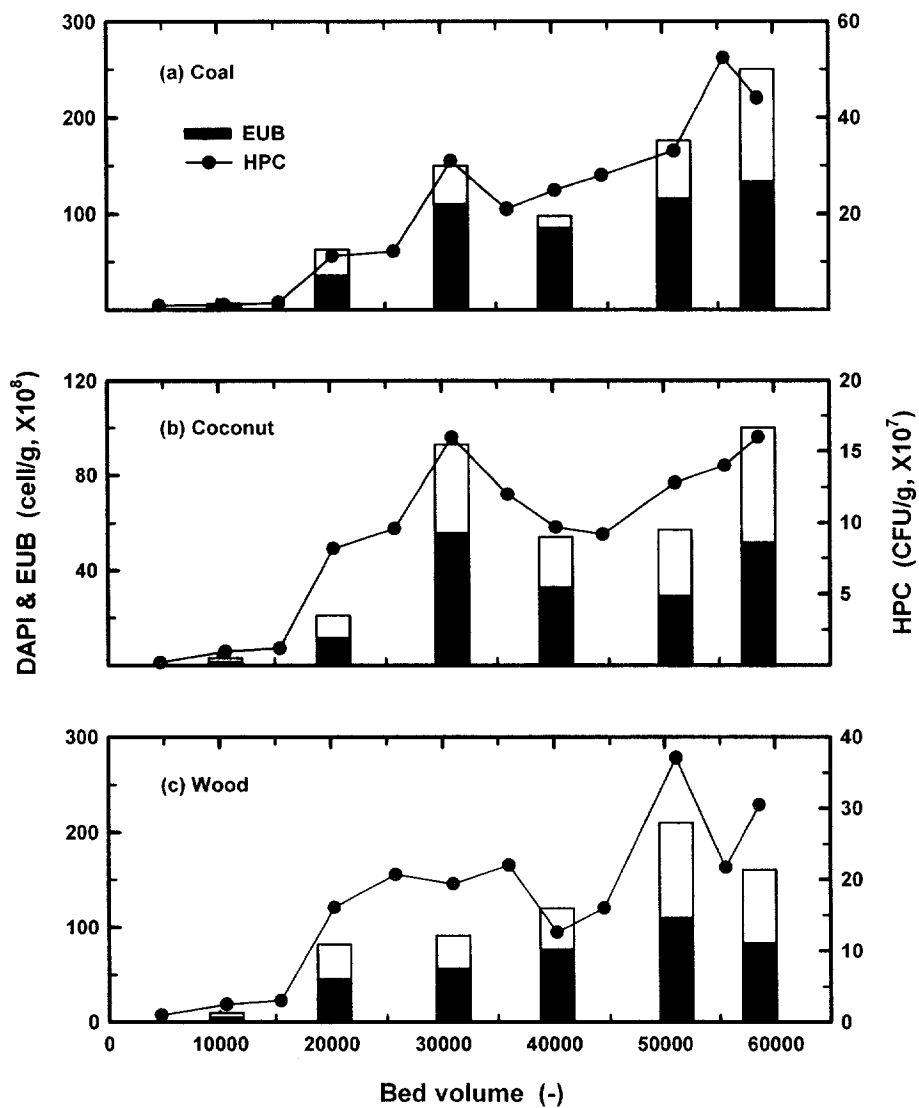


Fig. 15. Variations of bacterial biomass according to bed volume.

세균(bacteria)계 내에서는 여러 문(Phylum)들이 존재하지만 Gram (+) bacteria와 Cyanobacteria 그리고 Proteobacteria가 많은 부분을 차지하고 있다. 그 중 Proteobacteria는 Gram (-) bacteria 중 가장 규모가 크며, 생리학적으로 다양한 eubacteria 그룹으로 종속영양세균의 대부분을 차지하고 있다 (Madigan et al., 2000). Eubacteria 그룹 중  $\alpha$  그룹은 다양한 물질대사능과 다양한 형태를 가진 세균군을 포함하며 저농도의 유기물 이용능력이 다른 세균군에 비하여 높은 것으로 (김 등, 1999),  $\beta$  그룹은 빈영양 상태의 호수, 저온의 수계에서 우점한다고 보고되었다 (Manz et al., 1992).  $\gamma$  그룹은 분해가 용이한 유기물질을 이용하여 빠른 성장능을 가진 그룹이고, CF 그룹은 침수층에 존재하는 다양한 고분자 물질의 분해에 관여하는 것으로 알려져 있다 (Glockner et al., 1999).

이번 BAC 공정에서의 활성탄 재질별 세균군집 구조변화를 FISH로 조사한 결과는 Fig. 16과 같다. Fig. 16 (a)에 나타낸 석탄계 재질 활성탄의 경우 정상상태 도달 전인 bed volume 20,000까지의 FISH 각 그룹들의 평균 우점비율을 조사한 결과  $\alpha$  그룹이 33.5%, other bacteria가 26.3%로 나타났으며,  $\beta$  그룹이 8.7%,  $\gamma$  그룹이 14.8%, CF 그룹이 10.5% 및 HGC 그룹이 5.9%로 분포하고 있는 것으로 나타났으며,  $\alpha$  그룹이 가장 많은 비율로 분포하고 있었고, HGC 그룹이 가장 낮게 분포하였다. Fig. 16 (b)와 (c)에서와 같이 정상상태 도달 전인 bed volume 20,000까지의 결과는 야자계와 목탄계 재질의 활성탄에서도 석탄계와 유사한 경향을 보였다.

또한, BAC가 정상상태 도달 후인 bed volume 20,000 이상에서는 석탄계 활성탄의 경우  $\alpha$  그룹이 차지하는 비율이 34.3%(bed volume 20,266)에서 24.9%(bed volume 58560)로 감소하였고, other bacteria는 25.8%(bed volume 20,266)에서 3.4%(bed volume 58560)로 감소하여 우점비율이 큰 폭으로 감소하였다. 그러나  $\beta$  그룹과  $\gamma$  그룹의 경우 bed volume 20,000 부근에서는 4.2%와 17.5%의 우점비율을 나타내었으나 bed volume 58,000 부근에서는 31.6%와 32.0%의 우점비율을 나타내어 우점비율이 크게 상승하였으며, CF와 HGC 그룹들은 10% 미만의 낮은 우점비율을 나타내었다. 또한, 야자계와 목탄계 활성탄의 결과에서는 other bacteria는 운전기간이 경과할수록 우점비율이 크게 감소하여 bed volume 58,000 부근에서는 각각 9.2%와 6.5%의 분포를 나타내었으나  $\alpha$  그룹의 경우는 석탄계 재질의 활성탄과는 반대로 우점비율이 점점 증가하여 bed volume 58,000 부근에서는 각각 36.39%, 41.0%의 우점비율을 나타내었다. 또한,  $\beta$  그룹과  $\gamma$  그룹의 경우는 석탄계 재질의 활성탄과 같이 우점비율이 운전기간이 경과할수록 점점 증가하는 것으로 나타났으나 이들의 우점비율은 석탄계 재질 활

성탄의 우점비율 보다는 낮게 나타났다. 또한, CF와 HGC 그룹은 석탄계 활성탄과 마찬가지로 낮은 우점비를 나타내었으며, 그 비율도 운전기간의 경과에 따라 점점 감소하는 것으로 나타났다. 활성탄 재질별로 세균군집 분포에 차이가 나는 이유는 각 활성탄별 유기물 흡착능이나 세균들이 서식할 수 있는 세공의 크기 및 용적의 차이에서 기인되는 것으로 판단되며, 타 그룹보다는  $\alpha$  그룹이 우점하는 것으로 나타나 유기물 이용능력, 즉 유기물 제거는 주로  $\alpha$  그룹에 의해 조절되어짐을 알 수 있었다.

또한, 활성탄 재질별 운전기간에 따른 세균 생산력(bacterial production)의 변화 결과를 살펴보면 석탄계 재질의 활성탄의 경우는  $1.2 \sim 3.4 \text{ mg-C/m}^3\text{h}$ 의 범위로 나타났으며, bed volume 30,000 부근에서 가장 높게 나타났다. 야자계와 목탄계 활성탄의 경우  $1.1 \sim 2.6 \text{ mg-C/m}^3\text{h}$ , 목탄계  $0.7 \sim 3.5 \text{ mg-C/m}^3\text{h}$ 로 나타났다. 또한, bed volume 20,000 이후의 평균 세균 생산력을 조사한 결과 석탄계 재질의 활성탄이  $2.90 \text{ mg-C/m}^3\text{h}$ , 목탄계 재질의 활성탄이  $2.58 \text{ mg-C/m}^3\text{h}$  및 야자계 재질의 활성탄은  $2.06 \text{ mg-C/m}^3\text{h}$ 으로 나타나 정상상태 도달 이후의 세균 생산력의 경우도 석탄계 재질의 활성탄이 가장 높은 것으로 나타났다.

Table 13에는 실험기간 동안의 EUB에 대한 각 그룹들의 비율 및 DAPI에 대한 EUB의 비율을 나타내었다. 운전기간에 따른 각각의 구성비율은 활성탄 재질별로 큰 차이를 보이지는 않았고, 운전기간에 따라 EUB에 대한  $\alpha$  그룹의 비율( $\alpha/\text{EUB}$ )은 거의 비슷하게 나타나고 있으며, EUB에 대한  $\beta$ 와  $\gamma$  그룹의 비율( $\beta/\text{EUB}$ ,  $\gamma/\text{EUB}$ )은 증가하는 경향을 나타내었다. 그러나 EUB에 대한 나머지 그룹들의 비율(CF/EUB, HGC/EUB, others/EUB)은 운전기간이 경과함에 따라 점점 감소하는 것으로 조사되었다. 또한, EUB 그룹들 중 평균 우점율이 가장 높은 그룹은  $\alpha$  그룹이며,  $\beta$ 와  $\gamma$  그룹은 비슷한 우점율을 보이며  $\alpha$  그룹 다음으로 높은 우점율을 나타내는 것으로 조사되었다.

DAPI에 대한 EUB의 비율(EUB/DAPI)의 경우도 각각의 활성탄에서 큰 차이를 보이지는 않았으나 석탄계 활성탄에서 EUB/DAPI의 비율이 54%~88%로 가장 높은 것으로 조사되었으며, 다음으로 목탄계(53%~65%), 야자계 활성탄(52%~62%) 순으로 조사되었다. 조사기간 동안 EUB/DAPI의 비율은 62.5~80.5%로 나타났으며, 이는 Glockner 등 (1999)이 수생생태계를 대상으로 조사한 52.5~77.9%에 비해 약간 높은 경향을 보였다.

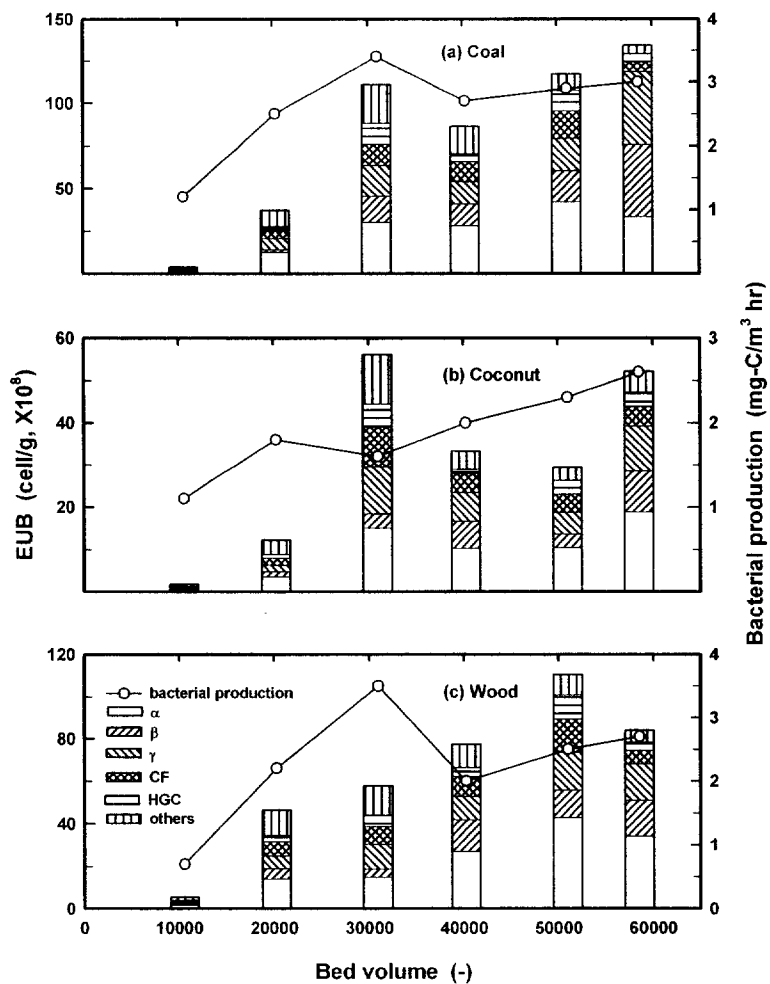


Fig. 16. Variations of bacterial communities and bacterial production according to bed volume.

Table. 13. Distribution of bacteria isolated in different BAC types

| Coal based    |               |              |               |        |         |            |          |
|---------------|---------------|--------------|---------------|--------|---------|------------|----------|
| Bed volume    | $\alpha$ /EUB | $\beta$ /EUB | $\gamma$ /EUB | CF/EUB | HGC/EUB | others/EUB | EUB/DAPI |
| 10,578        | 32.7%         | 13.2%        | 12.1%         | 9.4%   | 5.9%    | 26.7%      | 54.4%    |
| 20,266        | 34.3%         | 4.2%         | 17.5%         | 12.2%  | 5.9%    | 25.8%      | 58.9%    |
| 30,933        | 27.0%         | 13.8%        | 16.4%         | 11.4%  | 10.9%   | 20.5%      | 74.0%    |
| 40,232        | 32.5%         | 15.0%        | 15.5%         | 13.5%  | 5.9%    | 17.7%      | 87.9%    |
| 51,009        | 35.9%         | 15.8%        | 16.0%         | 14.1%  | 10.3%   | 7.9%       | 66.5%    |
| 58,560        | 24.9%         | 31.6%        | 32.0%         | 4.1%   | 3.9%    | 3.4%       | 53.7%    |
| Coconut based |               |              |               |        |         |            |          |
| Bed volume    | $\alpha$ /EUB | $\beta$ /EUB | $\gamma$ /EUB | CF/EUB | HGC/EUB | others/EUB | EUB/DAPI |
| 10,578        | 31.0%         | 11.1%        | 8.7%          | 12.2%  | 14.6%   | 22.4%      | 57.5%    |
| 20,266        | 29.7%         | 10.6%        | 12.0%         | 13.7%  | 7.1%    | 26.8%      | 57.5%    |
| 30,933        | 26.9%         | 6.1%         | 19.9%         | 16.8%  | 9.8%    | 20.6%      | 60.3%    |
| 40,232        | 31.2%         | 19.0%        | 20.7%         | 13.0%  | 3.4%    | 12.7%      | 61.5%    |
| 51,009        | 35.9%         | 10.5%        | 17.6%         | 14.9%  | 10.7%   | 10.5%      | 51.6%    |
| 58,560        | 36.3%         | 18.6%        | 20.5%         | 8.8%   | 6.5%    | 9.2%       | 52.1%    |
| Wood based    |               |              |               |        |         |            |          |
| Bed volume    | $\alpha$ /EUB | $\beta$ /EUB | $\gamma$ /EUB | CF/EUB | HGC/EUB | others/EUB | EUB/DAPI |
| 10,578        | 33.1%         | 11.3%        | 7.0%          | 12.9%  | 12.4%   | 23.3%      | 57.4%    |
| 20,266        | 30.5%         | 10.8%        | 12.6%         | 14.9%  | 6.2%    | 25.0%      | 56.4%    |
| 30,933        | 26.1%         | 6.6%         | 20.2%         | 14.4%  | 9.3%    | 23.4%      | 63.3%    |
| 40,232        | 34.9%         | 19.4%        | 14.3%         | 12.1%  | 5.3%    | 14.1%      | 64.5%    |
| 51,009        | 39.0%         | 11.6%        | 16.2%         | 14.3%  | 10.5%   | 8.6%       | 52.6%    |
| 58,560        | 41.0%         | 20.0%        | 20.2%         | 7.8%   | 4.6%    | 6.5%       | 52.5%    |

활성탄 재질별로 bed volume 50,000 부근에서 활성탄 표층을 채취하여 부착된 세균들을 동정한 결과를 Table 14에 나타내었다. 각각의 활성탄에서 Gram 음성 세균인 *Pseudomonas* 속이 53~65%로 가장 많이 분포하는 것으로 나타났고, 그 다음으로 *Flavobacterium* 속, *Alcaligenes* 속, *Acinetobacter* 속, *Aeromonas* 속 등의 순으로 조사되었으며, Gram 양성 세균인 *Bacillus* 속, *Micrococcus* 속이 일부 검출되었다. 그리고 약 7~10%의 세균은 동정되지 않았다. 이는 Stewart 등 (1990)이 조사한 연구 결과 즉 생물활성탄에 부착된 세균으로는 주로 *Pseudomonas*, *Alcaligenes*, *Bacillus*, *Acinetobacter*, *Aeromonas*, *Chromobacterium* 속 등이 있는 것으로 알려진 결과와 비슷한 경향을 보였다. *Pseudomonas* 속의 경우 야자계와 석탄계 BAC는 *Pseudomonas vesicularis*, 목탄계 BAC는 *Pseudomonas cepacia*가 우점종으로 나타났다. 이렇게 BAC 종류별로 부착세균의 우점종이 다른 이유는 활성탄의 세공 크기, 표면 조직, 유속율 등의 차이에 의해 세균이 활성탄에 부착할 수 있는 환경 조건이 다르기 때문인 것으로 판단된다.

Table. 14. Distribution of bacteria isolated in different BAC types

| Bacterial identification              | % population in BAC |               |            |
|---------------------------------------|---------------------|---------------|------------|
|                                       | Coal-based          | Coconut-based | Wood-based |
| Gram negative                         |                     |               |            |
| <i>Acinetobacter haemolyticus</i>     |                     | 5             | 4          |
| <i>Acinetobacter alcaligene</i>       | 4                   |               | 3          |
| <i>Aeromonas hydrophila</i>           |                     | 3             | 2          |
| <i>Alcaligenes faecalis</i>           | 2                   | 4             |            |
| <i>Alcaligenes odorans</i>            |                     | 3             |            |
| <i>Flavobacterium breve</i>           | 3                   | 6             | 7          |
| <i>Flavobacterium indolgenes</i>      | 4                   | 4             | 6          |
| <i>Flavobacterium meningosepticum</i> |                     | 3             | 2          |
| <i>Pasteurella haemolytica</i>        | 5                   | 3             |            |
| <i>Pseudomonas vesiculari</i>         | 33                  | 31            | 22         |
| <i>Pseudomonas aureofaciens</i>       | 12                  | 3             | 5          |
| <i>Pseudomonas fluorescens</i>        | 14                  | 12            | 11         |
| <i>Pseudomonas cepacia</i>            | 9                   | 7             | 27         |
| <i>Sphingomonas paucimobilis</i>      | 2                   | 6             |            |
| Gram positive                         |                     |               |            |
| <i>Bacillus</i> spp.                  |                     | 2             | 2          |
| <i>Micrococcus</i> spp                | 2                   | 1             |            |
| Unidentified                          | 10                  | 7             | 9          |

#### 4.3 활성탄 재질별 AOC 제거율과 부착세균 생체량과의 관계

본 실험에서 활성탄 재질별로 bed volume 변화에 따른 AOC 제거효율과 부착세균 생체량(HPC, TDC) 및 세균 생산력의 상관관계를 조사한 결과를 Fig. 17~Fig. 19에 나타내었다. Fig. 17의 bed volume 변화에 따른 HPC와 AOC 제거율과의 상관성 평가에서 3 가지 재질의 활성탄의 상관계수( $r^2$ )는 목탄계, 야자계 및 석탄계 활성탄에서 각각 0.590, 0.127 및 0.666으로 석탄계 활성탄에서 가장 상관성이 큰 것으로 나타났으며, Fig. 18의 TDC(DAPI)와 AOC 제거율과의 상관성 평가에서도 상관계수( $r^2$ )가 목탄계, 야자계 및 석탄계 활성탄 순으로 각각 0.520, 0.080 및 0.667로 나타나 석탄계 활성탄이 가장 높은 상관성을 가지는 것으로 나타났다. 또한, Fig. 19에 나타난 세균 생산력의 경우도 상관계수( $r^2$ )가 목탄계 0.679, 야자계 0.291 및 석탄계 0.762로 나타나 석탄계 활성탄이 가장 높은 상관성을 가지는 것으로 나타났으며, 다음으로 목탄계, 야자계 활성탄 순으로 나타났다.

활성탄 재질별 부착세균 생체량 및 세균 생산력에 대한 AOC 제거율과의 상관성 평가결과, 석탄계 활성탄이 각 항목들과 가장 양호한 상관성을 가지는 것으로 평가되었으며, 항목별로는 세균 생산력이 각 재질별 활성탄들과 가장 상관성이 높은 것으로 나타났다.

Moll 등 (1999)은 부착미생물의 생체량(biomass)으로 미생물의 신진대사능을 평가하는 것은 부적절하며, 생체량과 유기물 산화능과는 밀접한 상관성은 없는 것으로 보고하고 있다. 또한, Melin 등 (2002)은 수온의 변화에 따른 세균의 생체량, 활성도(activity) 및 유기물 산화능과의 상관성을 조사한 결과 수온의 변화에 따라 생체량은 큰 변화는 나타나진 않았으나 세균의 활성도는 많이 저하되어 유기물 산화능도 저하한다고 보고하고 있다.



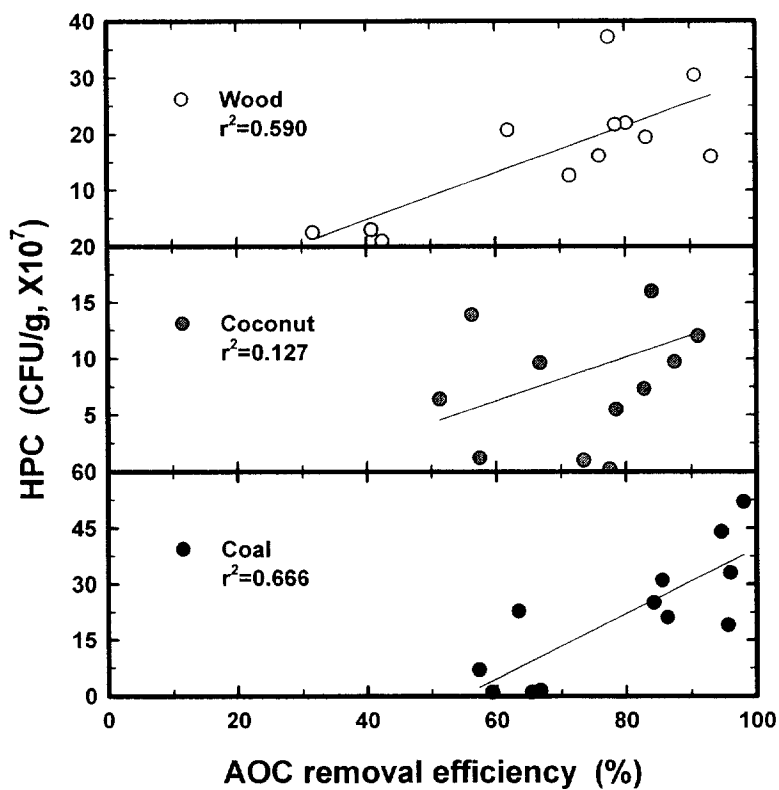


Fig. 17. Correlation between AOC removal efficiency and HPC biomass in different BAC types.

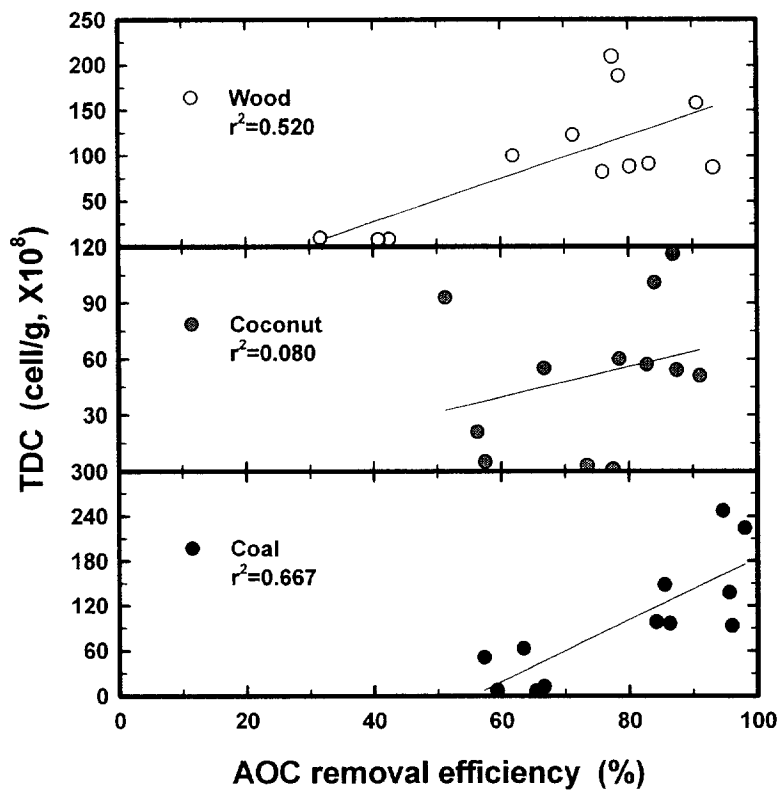


Fig. 18. Correlation between AOC removal efficiency and TDC biomass in different BAC types.

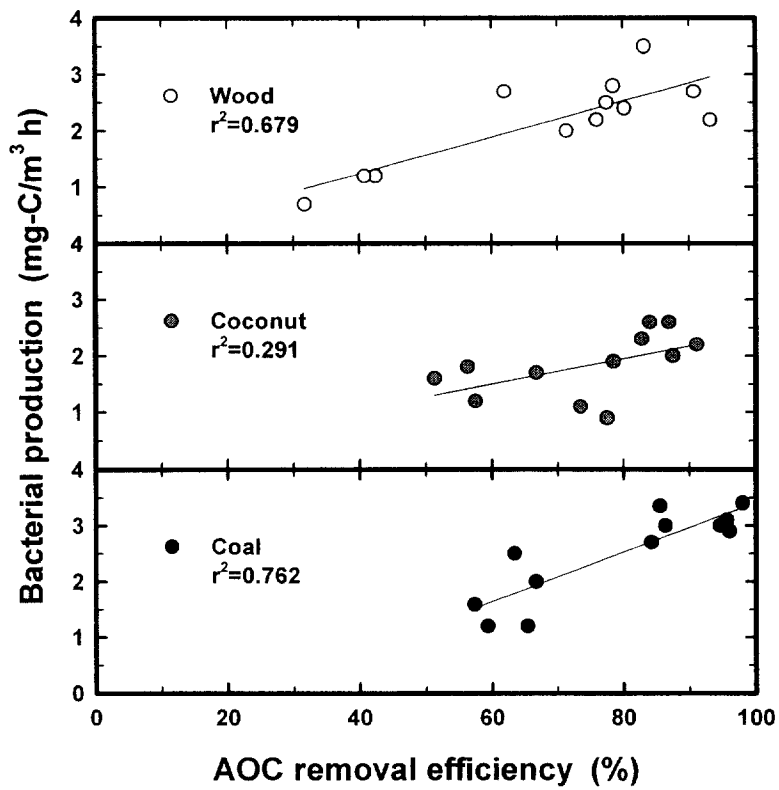


Fig. 19. Correlation between AOC removal efficiency and bacterial production in different BAC types.

## 제 5 장 결 론

본 실험은 파일롯 규모의 활성탄 공정을 운전하면서 GAC 공정에서부터 BAC 공정으로 전환 후 활성탄 재질별로 유기물 제거능과 미생물 군집분포 특성을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 활성탄 재질별 운전기간에 따른 DOC 흡착능은 석탄계 재질의 활성탄이 가장 우수하였고, 다음으로 야자계, 목탄계 순으로 나타났으며, bed volume 20,000 이후부터 3가지 활성탄들이 정상상태(steady state)에 도달하였다.
2. 활성탄 재질별 운전기간에 따른 부착세균의 생체량은 석탄계 재질 활성탄에서 HPC, EUB 및 DAPI가 각각  $0.95 \times 10^7 \sim 52.4 \times 10^7$  CFU/g,  $3.8 \times 10^8 \sim 134.2 \times 10^8$  cells/g 및  $7.0 \times 10^8 \sim 250.2 \times 10^8$  cells/g으로 조사되어 가장 많은 생체량을 보였고, 다음으로 목탄계, 야자계 활성탄으로 나타났다. 또한, HPC 보다 EUB 및 DAPI에 의한 부착세균의 생체량이  $10^2$  정도 높은 결과를 나타내었으며, bed volume 20,000 부터 증가하는 경향을 보였다.
3. 활성탄 재질별 세균군집 구조변화를 FISH로 조사한 결과에서 모든 활성탄에서 BAC가 정상상태 도달 전인 bed volume 20,000 이전에는  $\alpha$  그룹이 가장 많은 비율로 분포하고 있었고, HGC 그룹이 가장 낮게 분포하였으며, bed volume 20,000 이후에는 석탄계 활성탄의 경우  $\alpha$  그룹과 other bacteria 그룹은 감소하였으나,  $\beta$  그룹과  $\gamma$  그룹은 우점율이 상승하였다. 야자계와 목탄계 활성탄에서는 석탄계와 비슷한 경향을 보였으나  $\alpha$  그룹의 경우는 석탄계 재질의 활성탄과는 반대로 우점비율이 점점 증가하였다.
4. 활성탄 재질별 운전기간에 따른 세균 생산력은 석탄계 활성탄이  $1.2 \sim 3.4$  mg-C/m<sup>3</sup>h의 범위로 가장 높은 것으로 나타났고, 다음으로 야자계와 목탄계 활성탄의 경우  $1.1 \sim 2.6$  mg-C/m<sup>3</sup>h, 목탄계  $0.7 \sim 3.5$  mg-C/m<sup>3</sup>h로 나타났다. 또한, bed volume 20,000 이후의 평균 세균 생산력을 조사한 결과 석탄계 재질의 활성탄이 2.90 mg-C/m<sup>3</sup>h, 목탄계 재질의 활성탄이 2.58 mg-C/m<sup>3</sup>h 및 야자계 재질의 활성탄은 2.06 mg

-C/m<sup>3</sup>h으로 나타나 정상상태 도달 이후의 세균 생산력의 경우도 석탄계 재질의 활성탄이 가장 높은 것으로 나타났다.

5. 활성탄 재질별 부착세균 생체량 및 세균 생산력에 대한 AOC 제거율과의 상관성 평가결과, 석탄계 활성탄이 각 항목들과 가장 양호한 상관성을 가지는 것으로 평가되었으며, 항목별로는 세균 생산력이 각 재질별 활성탄들과 가장 상관성이 높은 것으로 나타났다.

6. 활성탄 재질별 세균군집 구조변화를 FISH로 조사한 결과에서 정상상태 도달 전인 bed volume 20,000까지의 FISH 각 그룹들의 평균 우점비율을 조사한 결과  $\alpha$  그룹과 other bacteria가 가장 많은 비율로 분포하고 있었고, HGC 그룹이 가장 낮게 분포하였다. 또한, BAC가 정상상태 도달 후인 bed volume 20,000 이상에서는 석탄계 활성탄의 경우  $\alpha$  그룹과 other bacteria가 차지하는 비율은 점점 감소하였으며,  $\beta$  그룹과  $\gamma$  그룹은 우점비율이 크게 상승하였으나 야자계와 목탄계 활성탄의 결과에서는  $\alpha$  그룹의 경우 석탄계 재질의 활성탄과는 반대로 우점비율이 점점 증가하였으며,  $\beta$  그룹과  $\gamma$  그룹의 경우는 석탄계 재질의 활성탄과 같이 우점비율이 운전기간이 경과할수록 점점 증가하는 것으로 나타났다.

## 감사의 글

논문이 완성되기까지 많은 도움을 주신 박청길 교수님, 강임석 교수님, 이병헌 교수님께 진심으로 감사드립니다.

학업을 지속 할 수 있도록 시간적 배려를 해주신 명장정수사업소의 최병화 소장님, 황선혁 정수담당님, 실험실의 김도훈 선생님, 이정규 박사님, 황보봉형 선생님, 고재현 선생님, 하재철 선생님, 양현욱 선생님, 남정현 선생님 및 실험실에 함께 근무했던 직원 여러분께도 감사의 마음을 전합니다.

논문 시작부터 마무리까지 많은 도움을 주신 수질연구소의 손 희종 박사님, 미생물 분석에 많은 도움을 주신 박흥기 박사님, 논문이 완성되도록 많은 배려를 해주신 황영도 선생님, 자기일처럼 도와준 정미은 선생님 그리고 항상 도움이 필요할 때면 본인의 일도 마다하시고 도와주신 금정구청의 하명순 선생님, 학교가는 길 함께했던 이화자 선생님께도 진심으로 감사드립니다.

작은 결실을 기뻐할 오랜 세월 함께 한 소중한 친구인 덕업, 봉선, 현주 그리고 지금은 연락이 되지 않지만 자신의 일을 열심히 하고 있을 정강이, SGI의 많은 선배 및 후배 여러분께도 감사의 말씀 전하고 싶습니다.

특히 넉넉한 마음으로 무엇이든 들어주고 남을 먼저 배려하는 성희씨. 서울에서 열심히 자신의 일을 개척하고 있는 선혜씨, 항상 걱정해주고 챙겨주는 지은씨와 점희씨에게도 고마운 마음 전합니다.

인생에 명확한 방향과 지표를 가지고 살아가게 해주신 이계다선생님께도 감사의 말씀을 드립니다.

자식 잘 되기만을 항상 바라고 걱정해 주시는 부모님, 오빠와 올케언니, 언니와 형부, 동생과 올케 그리고 우리 귀염둥이 조카들인 은성, 은영, 동욱, 다정, 예지, 예현, 현진, 민재와 기쁨을 함께 하고 싶습니다.

작지만 소중한 결실을 바탕으로 열심히 살아가겠습니다.

## 참고문헌

- Adamson, A. W., *Physical Chemistry of Surfaces*, 4th Ed., John Wiley & Sons, New York, (1982).
- Ahmad, R., Amirtharajah, A., Al-Shawwa and Huck, P. M., Optimum backwashing strategies for biological filters. In *Proceedings of AWWA WQTC*, Denver, Colorado, AWWA, (1994).
- Ahmad, R. and Amirtharajah, A., Detachment of biological and non-biological particles from biological filters during backwashing, In *Proceedings of AWWA Annual Conference*, Denver, Colorado, AWWA, (1995).
- Aiken, G. and Leenheer, J. A., Isolation and chemical characterization of dissolved and colloidal organic matter. *Chemistry and Ecology*, **8**, 135-151, (1993).
- Alfreider, A., Pernthaler, J., Amann, R., Glockner, F. O., Wille, A. and Psenner, R., Community analysis of the bacterial assemblages in the winter cover and pelagic layers of a high mountain lake by *in situ* hybridization, *Appl. Environ. Microbiol.*, **62**, 2138-2144, (1996).
- Allgeier, S. A., Simmers, R. S. and Jacangelo, J. G., Determination of the BDOC of natural and treated waters using a scaled batch reactor, *Proceedings of 1996 AWWA WQTC*, Boston. (1996).
- Amann, R., Binder, B. J., Olson, R. J., Chisholm, S. W., Devereux, R. and Stahl, D. A., Combination of 16S rRNA-targeted oligonucleotide probes with flow cytometry for analyzing mixed microbial populations, *Appl. Environ. Microbiol.*, **56**(6), 1919-1925, (1990).
- Amann, R., Ludwig, W. and Schleifer, K. H., Identification of uncultured bacteria: a challenging task for molecular taxonomists, *ASM. News*, **60**, 360-365, (1994).
- Amann, R., Ludwig, W. and Schleifer, K. H., Phylogenetic and in situ detection of

- individual microbial cells without cultivation, *Microbial. Rev.*, **59**, 143-169, (1995).
- Amon, R. M. W. and Benner, R., Bacterial utilization of different size classes of dissolved organic matter, *Limnol. Oceanography*, **41**, 41, (1996).
- Amy, G. L., Using NOM characterization for the evaluation of treatment. *Proceedings of Workshop on NOM in Drinking Water*, Chamonix, France (1993).
- Amy, G. L., Kuo, C. J. and Sierka, R. A., Ozonation of humic substances: effects on molecular weight distribution of organic carbon and trihalomethane formation potential, *Ozone Sci. Eng.*, **10**(1), 39-54, (1988).
- Andrews, G. F. and Tien, C., The interaction of bacterial growth, adsorption and filtration in carbon columns treating liquid waste, *J. AIChE*, **71**, 164~175, (1974).
- Bell, R. T., Ahlgren, G. M. and Ahlgren, I., Estimating bacterioplankton production by the [<sup>3</sup>H]thymidine incorporation in a eutrophic Swedish Lake, *Appl. Environ. Microbiol.*, **45**, 1709-1721. (1983).
- Berchielli, S., Burrini, D., Dei, R., Donato, R., Galassi, L. and Peruzzi, P., Presence of biofilm in a waterworks distribution system and drinking water quality, In *IWA International Specialised Conference on Biofilm Monitoring*, Porto, Portugal, (2002).
- Bjelopavlic, M., Newcombe, G. and Hayes, R., "Adsorption of NOM onto activated carbon: effect of surface charge, ion strength and pore volume distribution", *J. Colloid and Interface Science*, **210**, 271~280(1999).
- Booth, S. D. J., Huck, P. M., Butler, B. J. and Slawson, R. M., A mechanistic approach for modeling the removal of ozonation byproducts in biologically active filters, In *Proceedings of AWWA WQTC*, Denver, (1995).
- Bourbigot, M. M., Dodin, A. and Lheritier, R., La flore bactérienne dans un réseau



- de distribution, *Wat. Res.*, 18, 585-591, (1984).
- Bouvier, T. and Giorgio, P. A. D., Factors influencing the detection of bacterial cells using fluorescence in situ hybridization (FISH): a quantitative review of published reports, *FEMS Microbiol. Ecol.*, **44**, 3-15, (2003).
- Bouwer, E. J. and Crowe, P. B., Biological processes in drinking water treatment, *J. AWWA*, **80**(9), 82, (1988).
- Bouwer, E. J., Hozalski, R. M. and Goel, S., *Removal of Natural Organic Matter in Biofilters*, AWWARF and AWWA, Denver, (1995).
- Carlson, K. H. and Amy, G. L., The relative importance of HLR and EBCT in biofiltration, *Proceedings of AWWA WQTC*, New Orleans, (1995).
- Carlson, K. H., Amy, G. L., Garside, J. and Blais, G., Ozone induced biodegradation and removal of NOM and ozonation by-products in biological filters, In *Alternative Biological Filtration*, Edited by Collins M. R. and Graham N. J. D., John Wiley & Sons, New York, (1996).
- Carlson, K. H. and Amy, G. L., Ozone and biofiltration optimization for multiple objective, *J. AWWA*, **93**(1), 88-98, (2001).
- Chang, H. T. and Rittmann, B. E., Mathematical modeling of biofilm on activated carbon, *Environ. Sci. & Technol.*, **21**(3), 273, (1987).
- Chipps, M. J., Bauer, M. J. and Bayley, R. G., Achieving enhanced filter backwashing with combined air scour and sub-fluidizing water at pilot and operational scale. *Filtration and Separation*, **1**, 55, (1995).
- Coffey, B. M., Krasner, S. W., Scilimenti, M. J., Hacker, P. A. and Gramith, J. T., A comparison of biologically active filters for the removal of ozone by-products, turbidity and particles, *Proceedings of AWWA WQTC*, Denver, Colorado, (1995).
- Cover, A. E. and Pieroni, L. J., *Evaluation of the Literature on the Use of Granular Activated Carbon for Tertiary Waste Treatment*, U.S. Department

- of the Interior, FWPCA, Report No. TWRC-11, (1969).
- Day, G., Beckett, R., Hart, B. and McKelvie, I., Characterization of natural organic matter from four victorian freshwater system. *Aust. J. Mar. Freshwater Res.*, **42**, 675-687, (1991)
- DeWaters, J. E. and DiGiano, F. A., The influence of ozonated natural organic matter on the biodegradation of a micropollutant in a GAC bed, *J. AWWA*, **82**(8), 69, (1990).
- DiGiano, F. A. and Harrington, G. W., Adsorption equilibria of natural organic matter after ozonation, *J. AWWA*, **81**(6), 93-101, (1989).
- Easton, J., *Measurement and Significance of Assimilable Organic Carbon*, Report no. FR 0373, Foundation for Water Research, GB., (1993).
- Elhadi, S. L. N., Huck, P. M. and Slawson, R. M., Removal of earthy/musty odour compounds by biological filtration: temperature and media effects, In *Proceedings of AWWA WQTC*, Philadelphia, Pennsylvania, (2003).
- Falkentoft, C. M., Muller, E., Amz, P., Harremoes, P., Mosbak, H., Wwlderer, P. A. and Wuertz, S., Population changes in a biofilm reactor for phosphorus removal as evidenced by the use of FISH, *Wat. Res.*, **36**, 491-500, (2002).
- Felske, A., Engelen, B., Nubel, U. and Backhaus, H., Direct ribosome isolation from soil to extract bacterial rRNA for community analysis, *Appl. Environ. Microbial.*, **62**(11), 4162-4167, (1996).
- Fonseca, A. C., Summers, R. S. and Hernandez, M. T., Comparative measurements of microbial activity in drinking water biofilters, *Wat. Res.*, **35**(16), 3817-3824, (2001).
- Frias, J., Ribas, F. and Lucena, F., A method for the measurement of biodegradable organic carbon in water., *Wat. Res.*, **26**, 255, (1992).
- Fuhrman, J. A. and Azam, F., Thymidine incorporation as a measure of heterotrophic bacterio-plankton production in marine surface waters:

- evaluation and field results, *Mar. Biol.*, **66**, 109~120, (1982).
- Geldreich, E. E., *Microbial Quality of Water Supply in Distribution Systems*, CRC Press, Boca Raton, Fla., (1996).
- Glaze, W. H. and Weinberg, H. S., *Identification and Occurrence of Ozonation By-products in Drinking Water*, AWWARF and AWWA, Denver, Colorado, (1993).
- Glockner, F. O., Fuchs, B. M. and Amann, R., Bacterioplankton compositions of lakes and ocean: a first comparison based on fluorescence *in situ* hybridization, *Appl. Environ. Microbiol.*, **65**, 3721-3726, (1999).
- Gophen, M., *Biomanipulation: Respective and Future*, *Hydrobiologia*, 200/201, pp. 1-11, (1990).
- Hacker, P. A., Paszko-Kolva, C., Stewart, M. H., Wolfe, R. L. and Means, E. G., Production and removal of assimilable organic carbon under pilot-plant conditions through the use of ozone and peroxone, *Ozone Sci. Eng.*, 16(3), 197-212, (1994).
- Hall, E. S. and Packham, R. F., Coagulation of organic color with hydrolyzing coagulants. *J. AWWA*, 57(9), 1149-1166, (1965).
- Hand, D. W., Crittenden, J. C. and Thacker, W. E., User-oriented solutions to the homogeneous surface diffusion model for adsorption process design calculations: part 1 batch reactor solutions, *54th Annual Conference of the Water Pollution Control Federation*, Detroit, Michigan, (1982).
- Harward, C. and Croll, B., AOC control in the treatment of eutrophic surface waters using ozone and GAC, *Proceedings of 11th Ozone World Congress, Ozone in Water and Wastewater Treatments*, Stanford, International Ozone Association, (1993).
- Hicks, R., Amann, R. and Stahl, D., Dual straining of natural bacterioplankton with 4',6-diamidino-2-phenylindole and fluorescent oligonucleotide probes

- targeting kingdom-level 16S rRNA sequences, *Appl. Environ. Microbiol.*, **58**, 2158-2163, (1992).
- Hörsch, P., Gorenflo, A., Fuder, C., Deleage, A. and Frimmel, F. H., Biofouling of ultra- and nanofiltration membranes for drinking water treatment characterized by fluorescence in situ hybridization (FISH), *Desalination*, **172**, 41-52, (2005).
- Hozalski, R. M., Goel, S. and Bouwer, E. J., TOC removal in biological filters, *J. AWWA*, **87**(12), 40, (1995).
- Huck, P. M., Measurement of biodegradable organic matter and bacterial growth potential in drinking water, *J. AWWA*, **82**(7), 78-86, (1990).
- Huck, P. M., Coffey, B. M., Amirtharajah, A. and Bouwer, E. J., *Optimizing Filtration in Biological Filters*, AWWARF and AWWA, Denver, (2000).
- Huck, P. M., Zhang, S. and Price, M. L., BOM removal during biological treatment: a first-order model, *J. AWWA*, **86**(6), 61, (1994).
- Kalmbach, S., Manz, W. and Szewzyk, U., Dynamics of biofilm formation in drinking water: phylogenetic affiliation and metabolic potential of single cells assessed by formazan reduction and in situ hybridization, *FEMS Microbiol. Ecol.*, **22**, 265-279, (1997).
- Kämpfer, P., Erhart, R., Beimfohr, C., Böhringer, J. and Wagner, M., Characterization of bacterial communities from activated sludge: culture-dependent numerical identification using group- and genus-species rRNA-targeted oligonucleotide probes, *Microb. Ecol.*, **32**, 101-121, (1996).
- Kemmy, F. A., Fry, J. C. and Breach, R. A., Development and operational implementation of a modified and simplified method for determination of assimilable organic carbon in drinking water. *Water Sci. Technol.*, **21**, 155, (1989).
- Kaplan, L. A., Bott, T. L. and Reasoner, D. J., *Measurement of Biodegradable*

*Organic Matter With Biofilm Reactors*, AWWARF, Denver (1996).

- Kihn, A., Andersson, A., Laurent, P., Servais, P. and Prévost, M., Impact of filtration material on nitrification in biological filters used in drinking water production, *J. Wat. Suppl.: Res. & Technol.-Aqua*, **51**(1), 35-45, (2002).
- Kim, D. Y., Rhim, J. A., Yoon, J. H. and Lee, S. B., Characteristics of micropollutants by ozonation and treatment of BDOC in the Nakdong river, *Water Supply*, **14**(2), 285-295, (1996).
- Kim, W. H., Nishijima, W., Shoto, E. and Okada, M., Competitive removal of biodegradable dissolved organic carbon in ozonation-biological activated carbon, *Water Sci. Technol.*, **35**, 147-153, (1997).
- Kogure, K., Simidu, U. and Taga, N., A tentative direct microscopic method for counting living marine bacteria, *Can. J. Microbiol.*, **25**(3), 415-420, (1979).
- Korshin, G. V., Benjamin, M. M. and Sletten, R. S., Adsorption of natural organic matter(NOM) on iron oxide: effect of NOM composition and formation of organo-halide compounds during chlorination. *Wat. Res.*, **31**, 1643-1650, (1997).
- Krasner, S. W., McGuire M. J., Jacangelo J. G., Patania N. L., Reagan K. M. and Aietta E. M., The occurrence of disinfection by-products in US drinking water, *Jour. AWWA*, **81**(8), 41, (1989).
- Krasner, S. W., Scilimenti, M. J. and Coffey, B. M., Testing biologically active filters for removing aldehydes formed during ozonation, *J. AWWA*, **85**(5), 62, (1993).
- Kratzer, C. R. and Brezonik, P. L., A carlson-type trophic state index for nitrogen in Florida Lakes, *Water Resources Bulletin*, **17**, 713-715, (1981).
- Krieg, N. R. and Holt, J. G., *Bergey's Manual of Systematic Bacteriology*. Williams & Wilins. Baltimore, (1984).
- Langlais, B., Recjhow, D. A. and Brink, D. R., *Ozone in Water Treatment*:

- Application and Engineering*, Lewis Publisher, Inc., Chelsea, Mich., (1991).
- Långmark, J., Storey, M. V., Ashbolt, N. J. and Stenström, T. A., Artificial groundwater treatment: biofilm activity and organic carbon removal performance, *Wat. Res.*, **38**, 740-748, (2004).
- LeChevallier, M. W., Becker, W. C., Schorr, P. and Lee, R. G., Evaluating the performance of biologically active rapid sand filters, *J. AWWA*, **84**(4), 136, (1992).
- LeChevallier, M. W., Schulz, W. and Lee, R. G., Bacterial nutrients in drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.* **57**(3), 857-862, (1991).
- LeChevallier, M. W., Shaw, N. E., Kaplan, L. A. and Bott, T. L., Development of a rapid AOC method for water, *Appl. Environ. Microbiol.* **59**(5), 1526, (1993).
- LeChevallier, M. W., Welch, N. J. and Smith, D. B., Full-scale studies of factors related to coliform regrowth in drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **62**(7), 2201 ~ 2211, (1996).
- Lee, S. H. and Fuhrman, J. A., DNA hybridization to compare species compositions of natural bacterioplankton assemblages, *Appl. Environ. Microbiol.*, **56**(3), 739-746, (1990).
- Lee, S. H., O'Connor, J. T. and Banerli, S. K., Biologically mediated corrosion and its effect on water quality in distribution systems, *J. AWWA*, **72**, 636, (1980).
- Lee, Y. K., Lee, J. H. and Lee, H. K., Microbial symbiosis in marine sponges, *Kor. J. Microbiol.*, **39**(4), 254-264, (2001).
- Leisinger, T., Cook, A. M., Hütter, R. and Nüesch, J., *Microbial Degradation of Xenobiotics and Recalcitrant Compounds*. Academic Press., New York, (1981).
- Liu, X., Huck, P. M. and Slawson, R. M., Factors affecting drinking water biofiltration, *J. AWWA*, **93**(12), 90-101, (2001).

- Levy, R. W., Hart, F. L., and Cheetham, R. D., Occurrences and public health significance of invertebrates in drinking water systems. *J. AWWA*, **78**(9), 105, (1986).
- Lu, P. and Huck., P. M., Evaluation of methods for measuring biomass and biofilm thickness in biological drinking water treatment, In *Proceedings of AWWA WQTC*, Denver, Colorado, AWWA, (1993).
- MacCarthy, P. and Suffet, I. H., Introduction: aquatic humic substances and their influence on the fate and treatment of pollutants. In *Aquatic Humic Substances: Influence on Fate and Treatment of Pollutants*. Edited by I. H. Suffet and P. MacCarthy. American Chemical Society, Washington, D. C. (1989).
- Madigan, T. M., Martinko, J. M. and Parker, J., *Block Biology of Microorganisms*, Prentice-Hall, pp. 453-460, (2000).
- Malcolm, R. L., Geochemistry of stream fulvic and humic substances. In *Humic Substances in Soil, Sediment, and Water: Geochemistry, Isolation, and Characterization*. Edited by Aiken, G. R., McKnight, D. M., Wershaw, R. L. and MacCarthy, P., New York, John Wiley and Sons, (1985).
- Maloney, S. W., Bancroft, K., Pipes, W. O. and Suffet, I. H., Bacterial TOC removal on sand and GAC, *J. Environ. Eng.*, **110**(3), 519, (1984).
- Manz, W., Amann, R., Ludwig, W. and Wangner, M., Phylogentic oligodeoxy nucleotide probes for the major subclasses of proteobacteria: problems and solutions, *Appl. Environ. Microbiol.*, **58**, 593-600, (1992).
- Manz, W., Szewzyk, U., Ericsson, P., Amann, R., Schleifer, K. H. and Stenström, T. A., In situ identification of bacteria in drinking water and adjoining biofilms by hybridization with 16S and 23S rRNA-directed fluorescent oligonucleotide probes, *Appl. Environ. Microbiol.*, **59**, 2293-2298, (1993).
- McGuire, M. J., Davis, M. K., Liang, S., Tate, C. H., Aieta, E. M., Wallace, I. E., Wilkes, D. R., Crittenden, J. and Vaith, K., *Optimization and Economic*

- Evaluation of Granular Activated Carbon for Organic Removal*, Denver, Colorado, AWWARF and AWWA, (1989).
- Melin, E., Eikebrokk, B., Brugger, M. and Ødegaard, H., Treatment of humic surface water at cold temperatures by ozonation and biofiltration, *Wat. Sci. Tech.: Wat. Supply*, 2(5~6), 451-457, (2002).
- Merlet, N., Merlet, Y., Prevost, Y., Desjardins, R. and Bablon, G., Removal of organic matter in BAC filters: the link between BDOC and chlorine demand. in *Proceedings of the AWWA WQTC*, Denver, Colo., AWWA, (1991)
- Miano, T., Spesito, G. and Martin, J., Fluorescence spectroscopy of humic substances. *J. Amer. Soil Sci. Soc.*, **52**, 1016-1019, (1988).
- Miltner, R. J., Shukairy, H. M. and Summers, R. S., Disinfection by-product formation and control by ozonation and biotreatment. *J. AWWA*, **84**(11), 53-62, (1992).
- Mittelman, M. W., Habash, M., Lacroix, J. M., Khoury, A. E. and Krajden, M., Rapid detection of enterobacteriaceae in urine by fluorescent 16S rRNA in situ hybridization on membrane filters, *J. Microbiol. Methods*, **30**, 153-160, (1997).
- Mogren, E. M., Scaropino, P. and Summers, R. S., Measurement of biodegradable dissolved organic carbon in drinking water, In *Proceedings of AWWA Annual Conference*, Cincinnati. (1990).
- Moll. D. M., Summers, R. S., Fonseca, A. C. and Matheis, W., Impact of temperature on drinking water biofilter performance and microbial community structure, *Environ. Sci. Technol.*, **33**(14), 2377-2382, (1999).
- Najm, I. N. and Krasner, S. W., Effects of bromide and NOM on by-product formation, *J. AWWA*, **87**(1), 106. (1995).
- Norton, C. D. and LeChevallier, M. W., A pilot study of bacteriological population changes through potable water treatment and distribution, *Appl. Environ. Microbiol.*, **66**, 268-276, (2000).



- Owen, D. M. Amy, G. L., Chowdhury, Z. K., Paode, R., McCoy, G. and Viscosil, K., NOM characterization and treatability, *J. AWWA*, **87**(1), 46-63, (1995).
- Park, J., Takizawa, S., Katayama, H. and Ohgaki, S., Biofilter pretreatment for the control of microfiltration membrane fouling, *Wat. Sci. Tech.: Wat. Supply*, **2**(2), 193-199, (2002).
- Parsons, T. R., Maita, Y. and Lalli, C. M., *A Manual of Chemical and Biological Methods for Seawater Analysis*, Pergamon, New York, (1984).
- Prévost, J., Coallier, J., Mailly, R. D. and Duchesne, D., Comparison of biodegradable organic carbon(BOC) techniques for process control, *Water Supply: Research & Technology-Aqua*, **41**(3), 141-150, (1992).
- Prévost, M., Niquette, P., Maclean, R. G., Thibault, D., Lafrance, P. and Desjardins, R., Removal of various biodegradable organic compounds by first and second stage filtration, In *Proceedings of 12th Ozone World Congress*, Zurich, Switzerland, International Ozone Association, (1995).
- Price, M. L., *Ozone and Biological Treatment for DBP Control and Biological Stability*, AWWARF and AWWA, Denver, (1994).
- Ribas, F., Frias, J. and Lucena, F., A new dynamic method for the rapid determination of the biodegradable dissolved organic carbon in drinking water, *J. Appl. Bacteriol.*, **71**, 371-378, (1991).
- Ridgway, H. F. and Olson, B. H., Scanning electron microscope evidence for bacterial colonization of drinking water distribution system, *Appl. Environ. Microbiol.*, **41**, 274-287, (1981).
- Rittmann, B. E. and Huck, P. M., Biological treatment of public water supplies, *Critical Reviews in Environmental Control*, **19**(2), 119-184, (1989).
- Rittmann, B. E., Stilwell, D., Garside, J. C., Amy, G. L., Spangenberg, C., Kalinsky, A. and Akiyoshi, E., Treatment of a colored groundwater by ozone-biofiltration: pilot studies and modeling interpretation, *Wat. Res.*, **36**,

3387-3397, (2002).

Servais, P., Billen, G., Bouillot, P. and Benezet, M., A pilot study of biological GAC filtration in drinking water treatment, *J. Wat. Suppl.: Res. & Technol.-Aqua*, **41**(3), 163~168, (1992a).

Servais, P., Billen, G., and Hascoët, M. C., Determination of the biodegradable fraction of dissolved organic matter in waters, *Wat. Res.*, **21**(4), 445-450, (1987).

Servais, P., Billen, G., Laurent, P., Lévy, Y. and Randon, G., Studies of BDOC and bacterial dynamics in the drinking distribution system of Northern Parisian suburbs. *Rev. Sci. Eau.*, **5**, 69-89, (1992b).

Servais, P., Billen, G., Ventresque, C. and Bablon, G. P., Microbial activity in GAC filter at the Choisy-le-Roi treatment plant, *J. AWWA*, **83**(2), 62-69, (1991).

Siddiqui, M. S., Amy, G. L. and Murphy, B. D., Ozone enhanced removal of natural organic matter from drinking water sources, *Wat. Res.*, **31**(12), 3098-3106, (1997).

Snaird, J., Amann, R., Huber, I., Ludwig, W. and Schleifer, K. H., Phylogenetic analysis and in situ identification of bacteria in activated sludge, *Appl. Environ. Microbiol.*, **63**, 2884-2896, (1997).

Sontheimer, H., Applying oxidation and adsorption techniques: a summary of progress, *J. AWWA*, **71**(11), 612, (1979a).

Sontheimer, H., Design criteria and process schemes for GAC filters, *J. AWWA*, **71**(11), 618, (1979b).

Sontheimer, H. and Hubele, C., The use of ozone and granular activated carbon in drinking water treatment, In *Treatment of Drinking Water for Organic Contaminants*, Edited by Huck, P. M. and Toft, P., Pergamon, New York, (1987).

Staley, J. T. and Konopka, A., Measurement of in situ activities of

- nonphotosynthetic microorganisms in aquatic and terrestrial habitats, *Annu. Rev. microbial.*, **39**, 321-346, (1985).
- Steinberg, G. and Muenster, V., Geochemistry and ecological role of humic substances in lake water. In *Humic Substances in Soil, Sediment, and Water: Geochemistry, Isolation, and Characterization*. Edited by Aiken, G. R., McKnight, D. M., Wershaw, R. L. and MacCarthy, P., John Wiley and Sons., New York, (1985).
- Stewart, M. H., Wolfe, R. L. and Means, E. G., Assessment of bacteriological activity in carbon treatment of drinking water, *Appl. Environ. Microbiol.*, **56**, 3822-3829, (1990).
- Thurman, E. M., *Organic Geochemistry of Natural Waters*. Durdrecht, Netherlands, Nijhoff/Junk Publishers, (1985).
- Thurman, E. M., Wershaw, R. L., Malcolm, R. L. and Pinckney, D. J., Molecular size of aquatic humic substances. *Org. Geochem.*, **4**, 27-35, (1982).
- Urfer, D., Huck, P. M., Booth, S. D. J. and Coffey, B. M., Biological filtration for BOM and particle removal: a critical review. *J. AWWA*, **89**(12), 83, (1997).
- Van der Kooij, D. and Hijnen, W. A. M., Substrate utilization by an oxalate-consuming *Spirillum* species in relation to its growth in ozonated water. *Applied Envir. Microbiol.*, **47**, 551, (1984).
- Van der Kooij, D., Hijnen, W. A. M. and Kruithof, J. C., The effects of ozonation, biological filtration and distribution on the concentration of easily assimilable organic carbon(AOC) in drinking water, *Ozone Sci. Eng.*, **11**(3), 297-311, (1989).
- Van der Kooij, D., Visser, A. and Hijnen, W. A. M., Determining the concentration of easily assimilable organic carbon in drinking water, *J. AWWA*, **74**(10), 540-545, (1982).
- Videla, H. A., *Manual of Biocorrosion*, Lewis publishers, New York, (1996).

- Volk, C. J., Volk, C. B., and Kaplan, L. A., Chemical composition of biodegradable dissolved organic matter in stream water, *Limnol. Oceanography*, **42**(39), (1997).
- Wagner, R., Erhart, R., Manz, W., Amann, R., Lemmer, H., Wedi, D. and Schleifer, K. H., Development of an rRNA-targeted oligonucleotide probe specific for the genus acinetobacter and its application for in situ monitoring in activated sludge, *Appl. Environ. Microbial.*, **60**(3), 792-800, (1994).
- Wang, J. Z., Summers, R. S. and Miltner, R. J., Biofiltration performance: part 1, relationship to biomass, *J. AWWA*, **87**(12), 55, (1995).
- Werner, P., *Mikrobiologische Untersuchungen der Aktivkohlefilter zur Trinkwasserbereitung*, Publication No. 19, Department of Water Chemistry, Engler-Bunte Institute, University of Karlsruhe, Karlsruhe, Germany, (1982)
- Werner, P. and Hambsch, B., Investigations on the growth of bacteria in drinking water, *Water Supply*, **4**(3), 227-232, (1986).
- Wiesner, M. R., Rook J. J. and Fiessinger, F., Optimizing the placement of GAC filtration units. *J. AWWA*, **79**(12), 39, (1987).
- Xie, Y. and Reckhow, D. A., A new class of ozonation by-products: the ketoacids, *Proceedings of the AWWA Annual Conference*, Denver, Colorado, (1992).
- Yu, F. P. and McFeters, G. A., Rapid in situ assessment of physiological activities in bacterial biofilms using fluorescent probes, *J. Microbiol. Methods*, **20**(1), 1-10, (1994).
- Zhang, S. and Huck, P. M., Biological water treatment: a kinetic modeling approach. *Wat. Res.*, **30**(5), 1195, (1996).
- 笠原伸介, 相澤 拓, 渡辺義公, 小澤原 三, 岡部 聡, 木質系及び石炭系粒状活性炭を用いたオゾン・生物活性炭処理, 日本水道協会雑誌, **66**(12), 20-29, (1997).
- 笠原伸介, 相澤 拓, 岡部 聡, 渡辺義公, 小澤原 三, AOCを指標とした高度浄水処理シス

テムの性能評價, 日本水道協會雜誌, **67**(11), 12-21, (1998).

김동주, 홍선휘, 안태석, 소양호에서 세균군집구조의 계절적·수질적 변화, 한국미생물학회지, **35**(3), 242-247, (1999).

김동주, 홍선휘, 최승익, 안태석, 소양호 세균군집 구조와 그 구조에 영향을 주는 환경요인, 한국미생물학회지, **36**(2), 136-141, (2000).

김명운, 강찬수, 김상중, 소양호 수중 생태계에서의 세균 생체물질량의 분포, 한국미생물학회지, **27**(2), 130-138, (1989).

박근태, 단일 및 혼합 미생물 개체군을 이용한 호기성 생물막의 폐놀폐수 처리와 특성, 이학박사학위논문, 부산대학교 대학원, (2000).

박영태, 활성탄의 기초와 응용, 동화기술, pp. 299~304, (1997).

안태석, 홍선휘, 김옥선, 유재석, 전선옥, 최승익, B3공법을 사용하는 하수종말처리장에서 Bacillus속 세균의 변화, 한국미생물학회지, **37**(3), 209-213, (2001).

이동훈, 김상중, 수생생태계에서의 세균군집구조의 분자생물학적 분석, 한국미생물학회지, **33**, 55-65, (1997).

이희순, 박정원, 김미경, 이영옥, 남매지에서 Eubacteria 군집구조의 계절적 변화와 그에 영향을 미치는 환경요인, 한국미생물학회지, **38**, 31-37, (2002).

한석균, 이일규, 안태영, 16S rRNA 유전자 계통분석에 의한 한강수계의 세균 다양성, 한국미생물학회지, **34**(4), 194-199, (1998).

홍선휘, 변명섭, 안태석, 16S와 23S rRNA에 결합하는 probe를 이용한 겨울철 소양호 세균군집 구조의 분석, 한국미생물학회지, **33**(4), 257-261, (1997).

홍선휘, 안태석, Fluorescent in situ hybridization 방법으로 분석한 소양호 세균군집구조의 계절적 변화, 한국미생물학회지, **34**(3), 169-174, (1998).

홍선휘, 김옥선, 송홍규, 이동훈, 안태석, Bacillus속 세균을 검출하기 위한 fluorescent in situ hybridization 방법의 개발, 한국미생물학회지, **37**(3), 204-208, (2001).