

## 낙동강 원수의 생물활성탄 및 오존처리공정에 따른 수질 변화 및 폴리오바이러스의 제거특성

정은영<sup>2\*</sup> · 박흥기<sup>1</sup> · 이유정 · 정종문 · 정미은 · 홍용기<sup>1</sup> · 장경립<sup>2</sup>

부산광역시 상수도사업본부 수질연구소, <sup>1</sup>부경대학교 생물공학과, <sup>2</sup>부산대학교 미생물학과

Received July 21, 2005 / Accepted August 19, 2005

**Water Quality Variation and Removal Characteristics of Poliovirus by Biological Activated Carbon (BAC) and Ozone Treatment Process in Nakdong River.** Eun-Young Jung<sup>2\*</sup>, Hong-Ki Park<sup>1</sup>, You-Jung Lee, Jong-Moon Jung, Mi-Eun Jung, Yong-Ki Hong<sup>1</sup> and kyoung-Lib Jang<sup>2</sup>. *Water Quality Institute, Water Works HQ of Busan Metropolitan City, Kyoungnam, 621-813, Korea, <sup>1</sup>Department of Biotechnology, Pukyong National University, Busan 608-737, Korea, <sup>2</sup>Division of Biological Sciences, College of Natural Science, Busan National University, Busan 609-735, Korea* – Ozonation is a disinfection technique of harmful microbes commonly used in the treatment of drinking water. And Biological Activated Carbon (BAC) treatment also provides numerous benefits for drinking water utilities, including removal of micro-pollutants, improved treatment processes. The multiful-stage ozonation and BAC play roles as effective methods for removing several materials in raw water. Water quality variation in Nak dong river and the removal efficiency of viruses by ozonation-BAC process were investigated on pilot-scale. During the period of survey, most of water quality parameters including NH<sub>4</sub>-N were highly improved after passing through the BAC. The removal efficiency of poliovirus type III in water treatment process using pilot-plant, 99.6% of viruses were removed by pre-ozonation, sedimentation and sand filtration process, 100% were removed after in BAC filtration step. In the removal survey of viruses by ozonation, approximately 61.1% of polioviruses were inactivated by ozone of 0.4 mg/l within 5 min. and 100% were inactivated by ozone of 0.8 mg/l over 10 min.

**Key words** – ozonation, BAC, poliovirus, pilot-plant

정수처리의 가장 중요한 목적 중 하나는 시민들을 식수를 통한 병원성 미생물의 감염위험으로부터 보호하는 것이다. 현재 정수처리에서 수인성 미생물에 대한 관심은 콜레라(Cholera), 장티푸스(Typhid) 등과 같은 세균, 바이러스(Virus), 지아르디아(Giardia) 그리고 크립토스포리디움(Cryptosporidium) 등이 포함되고 있다[4]. 이러한 병원성 미생물 중 현재 국내에서 가장 문제가 되고 있는 것은 장관계 바이러스(Enteric virus)이다. 바이러스는 살아있는 숙주세포에서만 자기복제와 증식이 가능한 세포내 기생체이다. 일단 세포 밖으로 방출되면 개개의 바이러스 입자(Virion)는 새로운 숙주에 침투할 때까지 복제나 증식을 비롯한 물질대사를 수행하지 않는 상태로 존재하며 동물바이러스 중 많은 종류가 한정된 기간 내에 새로운 숙주를 찾지 못할 경우에는 다양한 환경적 요인에 의하여 불활성화 되는 것이 일반적이다[9].

수인성 장관계 바이러스는 110여 종류가 알려져 있으며 먹는 물의 수원에 분포할 경우 최소 감염 단위가 낮기 때문에 1~2 MPN (Most Probable Number)/100 l 정도의 소량으로도 감염되어 설사, 무균성 뇌수막염, 심근염 등의 급성질환을 일으킬 수 있다[2,7]. 이러한 장관계 바이러스는 정수장에서 소독이나 여과와 같은 정수처리공정에서 제거가 가능

하나 세균에 비해 소독제에 대한 내성이 강한 생태학적 특성을 소유하므로 지표세균이 검출되지 않은 경우에도 바이러스가 검출될 가능성이 높다. 따라서, 소독 처리시에 이러한 지표세균의 한계적인 특성을 감안하여 처리수의 지표세균을 검사하여 처리능을 판정하지 않고 내성이 가장 강한 종류의 미생물을 처리할 수 있는 강도의 소독처리를 수행하도록 하여야 한다[10].

그러나 국내에서는 일부 미생물 (일반세균, 총대장균군)에 대한 기준만 존재할 뿐 바이러스에 대한 수돗물 수질기준은 우리나라를 비롯하여 대부분의 나라에서 수질기준으로 설정하고 있지 않으나, 미국 Environmental Protection Agency (EPA)의 지표수 처리법(Surface Water Treatment Rule)에서는 지표수 또는 지하수의 영향을 받은 수돗물에 대해 Maximum Contamination Level (MCL)로서 기술적으로 오염물질의 농도를 확인하기 어려운 경우에 적용하는 처리기술규정(Treatment Technique)을 정해 장관계 바이러스를 정수처리과정 시 99.99% 제거, Maximum Contamination Level Goal (MCLG)는 “불검출” 또는 “0”으로 정해 물 환경에서의 바이러스의 위해성과 그에 따른 제어의 필요성을 강조하고 있다[10].

정수처리공정은 응집·침전·여과·소독 처리에 의해 제어되는데 바이러스는 박테리아에 비하여 염소에 대한 저항성이 강하며, 완전정수처리를 거친 정수에서도 바이러스의 검출이 보고되고 있다. 또한, 완전처리(응집-침전-여과-소독)

### \*Corresponding author

Tel : +82-55-323-4718, Fax : +82-55-323-4719

E-mail : meetjung@hanmail.net

를 거친 외국의 중·소규모 정수장 혹은 간이 정수장에서 바이러스 오염으로 인하여 질병이 발생한 예가 보고되고 있어 음용수에 의한 바이러스 감염에 대한 주의가 요구되고 있다 [13]. 특히 상수도는 염소 소독을 실시하여 병원성 미생물을 제거하여 수인성 질병으로부터 공중보건을 보호하는 중요한 역할을 해왔다. 그러나, 수인성 장관계 바이러스는 일반환경에서 세균보다 적은 농도로 분포하지만 생존력이 높고 염소 처리에 대한 내성도 세균보다 강하며, 적은 수로도 감염이 가능하여 장관계 바이러스의 검출은 공중보건학적으로도 매우 중요한 부분으로 인식되고 있다[12].

수중에 존재하는 바이러스를 비롯한 병원성 미생물과 유기물을 적절히 제어하기 위해 현재 부산시에서 사용하고 있는 고도정수처리공정은 활성탄 여과법이다. 활성탄은 다공성에 의해 수중의 각종 유해물질들을 잘 흡착되므로 기존의 급속 여과법에서는 제거되지 않는 용해성 유기물, 미량 유기화합물, 암모니아성 질소, 철, 망간, 이취미 원인 물질, 소독 부산물 등의 제거에 매우 효과적이어서 구미 각국에서도 고도정수처리에 많이 이용하고 있다[18]. 또한 입상활성탄(granular activated carbon : GAC) 공정에서 GAC 파괴점을 지나 지속적으로 운전한 결과, GAC 표면에 부착된 미생물의 응집체(aggregation)에 의한 생물학적 분해 작용으로 인하여 용존유기탄소(dissolved organic carbon : DOC)가 제거된다는 보고가 알려져 있다. 이것을 생물활성탄(biological activated carbon : BAC) 공정이라고 하는데[18], 부산시 정수장은 모두 이 공정을 도입하여 운영하고 있다. 또한, 기존에 사용하고 있는 염소 소독에 비해 10배 이상의 산화능을 가지고 있는 오존을 소독제로 사용하는 등 염소소독과 병행한 오존의 활용이 고도정수처리시설에 적극적으로 도입되고 있다. 오존은 염소나 이산화염소 등과 같은 소독제 보다 훨씬 작은 접촉시간과 농도로 소독할 수 있는 강한 산화제이며, 3차 처리에 사용되었을 때 무기염과 2차 오염물질을 생산하지 않으며, 처리수에 맛과 냄새를 남기지 않으며 바이러스를 포함한 병원성 미생물에 대해 넓은 범위의 높은 살균력을 가지고 있는 강력한 소독제이다[11]. 그러나 오존은 급수시설에서 잔류성을 유지할 수 없기 때문에 1차 소독제로만 사용할 수 있으므로 완벽한 소독체계를 위해서 염소, 클로라민 등 2차 소독제와 결부시켜야 하고, 알데하이드류, 케톤류, 카르보닐 화합물 등의 오존 살균 부산물과 OH radical, O<sub>2</sub> 등의 Reactive Oxygen Species (ROS) 생성 등의 단점이 있다. 현재 물 공급에 있어서 중요한 문제는 어떻게 하면 바이러스, 원생동물 등과 같은 병원성 미생물을 제거하면서 동시에 소독 부산물을 최소화시키므로써 모든 위험으로부터 보호할 수 있는지의 여부에 초점이 맞추어지고 있다[5].

2001년에서 2002년에 걸쳐 부산시 상수원수 및 수도물에 대한 바이러스 분포실태 조사결과 원수에서는 바이러스가 1.92~9.70 MPN/100 l가 검출되고 정수와 수도꼭지에서는

모두 불검출 됨을 보고한 바 있다[14]. 따라서 정수처리공정의 어느 단계에서 바이러스가 제거되는지의 여부를 조사하는 것도 필요하다.

따라서 본 연구는 부산시 정수장에서 운영하고 있는 고도정수처리공정을 축소한 pilot-plant를 이용하여 생물활성탄 및 오존처리공정의 효율성을 수질 변화 조사를 통해 평가하고, 부산시 상수원수에서 가장 많이 검출되는 폴리오바이러스(Poliiovirus)를 대상으로 정수처리 공정별로 바이러스 제거 효율을 조사하였다. 또한 현재 국내 정수장에서 소독제로 각광받고 있는 오존을 농도 및 시간별로 처리하여 폴리오바이러스를 불활성화 시킬 수 있는 최적의 농도도 함께 살펴보고자 하였다.

## 재료 및 방법

### Pilot-plant 장치

본 연구에 사용된 Pilot-plant 실험장치는 기존 급속 여과 시스템에서 전염소처리 공정이 생략되었고, 오존의 전·후 처리와 BAC 공정을 부가한 시스템으로 실험하였으며(Fig. 1), BAC 운영조건은 Table 1과 같다. 원수는 낙동강 하류지점인 매희 취수장의 표층수를 사용하였고, 응집제로는 Polyaluminum Sulfate Organic Magnesium (PSOM)을 사용하였다. 또한 본 실험장치의 입상활성탄의 재질은 석탄계(F-400, Calgon사) 재생탄이며 여과층의 깊이는 2.5 m이다.

### 오존처리 장치

오존처리 장치는 오존에 강한 재질의 실리콘호스를 이용하여 오존발생기와 반응조를 연결하여 구성하였고(Fig. 2), 오존발생기는 순수공기를 사용하여 무성 방전관 방식의 수냉식인 ozonia사 제품(Lab2b)을 사용하였다. 오존 접촉조는 높이 1.5 m, 직경 0.1 m의 아크릴 원통형이며, 상향류 기포형이다. 5000 PFU(Plaque Forming Unit)/ml의 poliovirus type III를 접종한 5 l의 증류수를 오존 접촉조에 채운 다음 오존 농도와 시간을 달리하여 접촉시켰다. 공기는 4 l/min의 일정한 공기유량을 유지시켰으며, 오존발생량은 0.1~0.8 mg O<sub>3</sub>/l air로 조절하여 변화시켰다. 오존 주입량은 접촉시간과 시료의 부피에 따라 0.08~6.4 mg O<sub>3</sub>/l의 범위로 나타났다.

### 정수공정별 수질조사 및 기간

정수공정별에 따른 수질조사는 6단계 즉 원수, 전오존 처리조, 침전조, 여과 수조, 후오존 처리조, BAC 여과수(석탄계 여과수)이며, 조사기간은 4년(1999. 1~2002. 12)으로 하였다. 조사주기는 주 1회 간격으로 실시하였다.

### 정수공정별 수질조사 항목 및 방법

생물활성탄 공정에 따른 수질조사 항목의 이화학적 분석

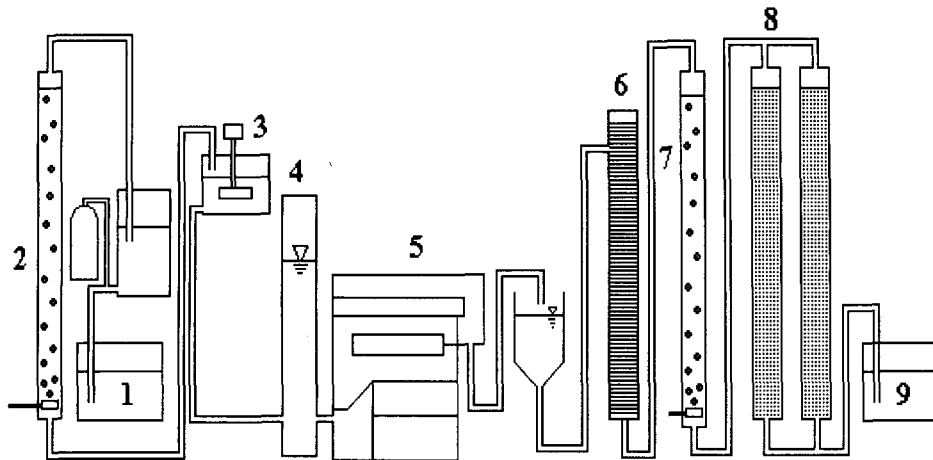


Fig. 1. Schematic diagram of a pilot-plant for water treatment.  
 1; raw water distributed tank, 2; O<sub>3</sub> pre-contactor, 3; coagulant mixer, 4; circulator tank, 5; pulsator, 6; settling tank, 7; O<sub>3</sub> post-contactor, 8; BAC column, 9; clean water tank.

Table 1. Operating condition of water treatment process using biological activated carbon (BAC).

Parameter	Operating condition
Empty Bed Contact Time (min)	12
Linear Velocity (m/h)	10
Bed depth (m)	2.5
Backwashing time (min)	19
Expansion rate (%)	40
Pre-Ozone dose (mg/l)	1
Post-Ozone dose (mg/l)	2

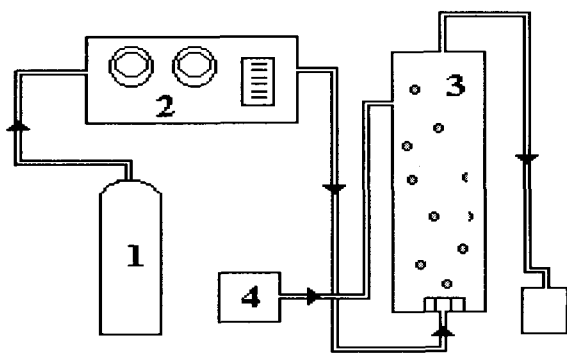


Fig. 2. Schematic diagram of ozone process.  
 1; air, 2; ozone generator, 3; ozone contactor, 4; sample pump.

은 Standard Method[1]와 일본 상수도 시험법[19,20]에 따랐다. 미생물 항목인 총대장균군(Total coliforms) 및 대장균(E.coli) 실험은 막여과법을 이용하여 실시하였으며, 빈영양 종속영양세균(Heterotrophs : HPC)은 R<sub>2</sub>A agar (Difco사) 평판배지에 시료 1 ml를 도말한 후 25°C 배양기에서 14일간 배양하여 형성된 colony를 계수하였다.

### 바이러스 회수율 조사

바이러스 회수율은 음성시료와 양성시료 각각 1개씩을 이용하여 3회 실시하였다. 먼저 양성시료는 멸균된 폴리프로필렌 용기에 3차 증류수 40 l를 넣고 약 200 PFU/ml 농도의 약독화 폴리오 바이러스 정도관리용 저장용액 1 ml를 첨가하였다. 잘 혼합시킨 시료는 펌프를 이용하여 1-MDS filter (Cuno사)가 들어 있는 표준필터장치로 통과시켜 여과하였다. 또한, 음성시료도 3차 증류수 40 l를 멸균된 폴리프로필렌 용기에 넣어 양성시료 실험과 동일하게 통과시켰다. 여과시킨 1-MDS filter를 총 배양성 바이러스 분석법에 따라 농축하여 3~4일 전에 배양된 BGM (Buffalo Green Monkey kidney, passage 135) 세포에 각각 감염시켜 세포병변현상(CPE : Cytopathic effect) 여부를 관찰한 후 MPN program (ICR-MPNV Software Program)을 이용하여 수치를 산출하였다.

### 정수공정별 바이러스 제거율 조사

실험은 3차 증류수 30 l에 3×10<sup>7</sup> PFU의 바이러스를 혼합하여 정량펌프를 이용, 3 ml/min의 속도로 원수 유입조에 주입하였다. 시료 채수는 미국 EPA의 ICR 및 환경부에서 권장하는 표준필터장치를 조합하여 사용하였다. 시료 채수는 1-MDS filter를 이용하여 원수·전오존은 200~300 l를 침전·여과·후오존·BAC 여과 그리고 정수는 1,600 l 이상을 여과하였다. 본 실험에 사용된 filter는 수중에서 negative charge를 띠고 있는 바이러스를 포함한 수중의 모든 유기물질을 흡착할 수 있도록 제조된 것으로 표면자체가 positive charge를 띠고 있다. 채수한 시료의 전처리는 미국 EPA의 ICR 방법 및 환경부에서 정한 표준시험방법에 준하여 수행하였다[3]. 멸균 튜브가 장착된 연동펌프(peristaltic pump)

를 사용하여 50 mM glycine이 함유된 1.5% Beef extract 완충액(pH 9.5)을 여과지가 장착된 Housing filter내로 밀어 넣어 1분간 정체시킨 후 3회 반복하여 용출시켰다. 먼저 탈리된 용출액의 pH를 7.0~7.5로 조정하고 1 M HCl로 3.5±0.1로 조절한 후 실온에서 30분간 교반시켜 침전물의 생성 유무를 확인하였다. 탈리액을 2,500×g, 4℃에서 15분간 원심분리하고 상등액을 제거한 후 0.15 M PBS (Phosphate Bufferd Saline, pH 9.4) 30 ml를 첨가한 후 완전히 용해시켰다. 용해된 침전물을 7,000×g로 4℃에서 10분간 원심분리 한 후, 상등액만 취하여 1 M HCl로 pH 7.0~7.5로 조정하였다. 미생물 오염을 제거하기 위해 구경 0.22 μm 멸균 필터를 이용하여 상등액을 여과하였다. 여과시킨 상등액을 3~6일간 배양된 세포배양 플라스크(25 cm<sup>2</sup>)의 BGM 세포주에 접종하였다. 음성대조구 및 양성대조구는 각각 0.15 M Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> · 7H<sub>2</sub>O (pH 7.4) 용액과 순화된 poliovirus type III를 0.15 M Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> · 7H<sub>2</sub>O 용액으로 희석하여 시료 접종량과 동일하게 접종하였다. 배양기에서 BGM 세포에 시료를 흡착시켜 15분 간격으로 배양용기를 좌우로 가변게 기울여 접종된 시료가 골고루 세포에 흡착되도록 하였다. 접종 80~120분 후 세포 배양플라스크에 2% Fetal Bovine Serum (FBS)가 함유된 MEM/L-15 배지를 분주한 후 14일간 배양하며 세포병변현상을 관찰하였다. 원수·전오존수는 100 l, 침전수는 300 l, 여과수·후오존수·BAC 처리수 그리고 정수는 1,000 l를 기준으로 환산하였으며 3회 반복 실험하였다.

#### 오존농도별 바이러스 제거율 조사

먼저 시료를 3차 증류수 5 l에 정량화된 바이러스 stock 1 ml (5000 PFU)를 첨가하여 조제하였다. 조제된 3차 증류수 5 l를 펌프로 오존 발생장치 내로 순환시키고 오존 발생기(generator)를 사용하여 오존 발생량을 일정하게 유지시켜 시료와 시간별로 반응시켰다. 반응시킨 5 l 시료는 압력 여과장치를 이용하여 여과하였다. 사용된 여과지는 수중에서 negative charge를 띠고 있는 virus의 포집이 잘 되도록 표면 자체가 positive charge로 이루어져 있는 0.22 μm membrane filter (Hybond-N<sup>+</sup>, RPN 303B, Amersham pharmcia bioech.)로서 여과한 후 여지를 1 l의 50 mM glycine이 함유된 Beef extract가 들어있는 5 l 플라스크에 즉시 넣어 30분 동안 교반시켜 여지에 흡착되어 있는 바이러스를 탈리시켰다. 탈리 후의 실험과정은 Pilot-plant 공정수정별 제거실험과 동일하게 유기 응집 농축법을 이용하여 처리하였으며, 잔류 오존은 KI 용액으로 측정하였다. 실험에 사용된 모든 초자 기구는 0.1% 염소용액으로 30분 이상으로 소독하여 2% 티오황산나트륨으로 중화시킨 후 다시 3차 증류수로 여러 번 씻은 후 121℃, 20분간 멸균하여 건조한 후 사용하였으며 실험은 3회 실시하였다.

#### 세포배양

바이러스 배양에는 국립환경연구원에서 분양받은 BGM

세포를 사용하였다. BGM 세포주의 배양액은 penicillin-streptomycin 용액과 amphotericin (fungizone) 용액이 혼합된 항생제와 10% FBS가 첨가된 MEM/L-15 배지를 사용하였다. 세포의 계대는 우선 monolayer가 형성된 BGM 세포주를 배양기에서 꺼내어 배양용기 안에 있는 배지를 우선 제거한 후 trypsin-EDTA를 세포배양용기에 적정량(약 10 ml)을 넣고 36.5±1℃ 배양기에 5분 정도 방치하였다. BGM 세포들이 배양용기의 바닥에서 완전히 떨어지는 것을 확인한 후 떨어진 세포들을 1,000×g, 10분간 실온에서 원심 분리한 후에 상등액을 깨끗이 제거하고 침전된 세포를 새로운 증식용 배양액에 혼합한 후 세포배양 플라스크(25 cm<sup>2</sup>)에 분주하여 36.5℃, 5% CO<sub>2</sub>의 배양기에서 배양하였다.

#### ICC-PCR (Integrated Cell Culture - Polymerase Chain Reaction)

바이러스 검출을 위한 primer는 poliovirus genome를 특이적으로 검출할 수 있는 5' NCR (Non Coding Region) 부분의 염기서열을 사용하였다[7]. 1, 2차 세포배양액 200 ul를 500 ul의 GT (5 M guanidium thiocyanate, 50 mM Tris-HCl, 25 mM EDTA, 8% 2-mercaptoethanol)와 섞은 후, phenol/chloroform법으로 RNA를 추출하였다[7]. 추출한 RNA를 70℃에서 3분간 가열하여 변성시키고, 미리 준비한 cDNA 합성 혼합물(5×반응 완충액, 3 mM dNTP, 150 pmol reverse primer (PEV-R), 250 U M-MLV 역전사효소(Promega사)를 넣어 37℃에서 1시간 동안 합성하였다. 95℃에서 5분간 열을 가하여 반응을 종결시킨 다음 PCR을 위한 주형으로 사용하였다. PCR 반응액은 총 100 ul[cDNA, 10×반응 완충액, 1.5 mM MgCl<sub>2</sub>, PEV-F, PEV-R 각각 50 pmol/ul, 5 U/ul Taq polymerase (Takara사), adjusted to final 100 ul with H<sub>2</sub>O]이 되도록 하여 PCR 반응을 수행하였다. PCR은 95℃에서 30초, 56℃에서 45초, 72℃에서 45초 동안 40회를 반복시켜 PCR 산물을 얻었다. PCR 반응 결과 생겨난 산물을 1.2% agarose gel에 전기영동 하여 394 bp의 PCR 산물의 형성 유무를 확인하였다.

#### 결과 및 고찰

##### 정수처리 공정별 수질변화

낙동강 하류의 매리취수장 원수를 사용하여 BAC 공정을 거치는 동안 각 정수 단계별 수질변화를 측정하여 4년 동안의 평균치를 분석한 결과는 Table 2와 같다. 원수가 전오존 처리조에서 침전조·여과조를 거쳐 후오존 처리 공정 단계에 이르면, 이미 탁도·KMnO<sub>4</sub> 소비량·금속성 양이온 함량 등은 각각 원수에 비해 97.4%, 73.1%, 71.8%의 제거효율을 보였으며 pH, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 등은 거의 변화가 없는 것으로 나타났다. 마지막 단계인 BAC 유출수는 후 오존처리 단계에서까지 제거되지 않았던 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 등을 포함한 모든 항목들이 거

Table 2. Water quality from each step of water treatment process using biological activated carbon.

Parameter	Step 1	2	3	4	5	6
pH	7.7 ( $\pm 0.4$ )	7.7 ( $\pm 0.3$ )	7.1 ( $\pm 0.2$ )	7.2 ( $\pm 0.2$ )	7.4 ( $\pm 0.2$ )	7.2 ( $\pm 0.3$ )
Turbidity (NTU)	16.29 ( $\pm 16.80$ )	14.39 ( $\pm 15.41$ )	2.38 ( $\pm 3.18$ )	0.34 ( $\pm 0.13$ )	0.36 ( $\pm 0.24$ )	0.20 ( $\pm 0.07$ )
UV <sub>254</sub> (cm <sup>-1</sup> )	0.0551 ( $\pm 0.0112$ )	0.0341 ( $\pm 0.0113$ )	0.0212 ( $\pm 0.0092$ )	0.0236 ( $\pm 0.0319$ )	0.0104 ( $\pm 0.0043$ )	0.0079 ( $\pm 0.0030$ )
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N (mg/l)	0.06 ( $\pm 0.11$ )	0.06 ( $\pm 0.12$ )	0.07 ( $\pm 0.19$ )	0.04 ( $\pm 0.15$ )	0.03 ( $\pm 0.10$ )	0.02 ( $\pm 0.09$ )
KMnO <sub>4</sub> (mg/l)	9.5 ( $\pm 2.6$ )	7.4 ( $\pm 2.7$ )	3.8 ( $\pm 1.2$ )	2.8 ( $\pm 1.0$ )	2.5 ( $\pm 0.9$ )	1.4 ( $\pm 0.5$ )
THMFP ( $\mu$ g/l)	64.9 ( $\pm 23.1$ )	45.3 ( $\pm 17.1$ )	26.0 ( $\pm 9.5$ )	21.6 ( $\pm 8.5$ )	18.0 ( $\pm 7.4$ )	11.3 ( $\pm 5.1$ )
Mn (mg/l)	0.01 ( $\pm 0.01$ )	0.01 ( $\pm 0.01$ )	N	N	N	N
Fe (mg/l)	0.21 ( $\pm 0.24$ )	0.23 ( $\pm 0.30$ )	0.06 ( $\pm 0.20$ )	0.02 ( $\pm 0.06$ )	0.01 ( $\pm 0.04$ )	0.01 ( $\pm 0.02$ )
Al (mg/l)	0.32 ( $\pm 0.34$ )	0.37 ( $\pm 0.39$ )	0.21 ( $\pm 0.19$ )	0.05 ( $\pm 0.06$ )	0.05 ( $\pm 0.04$ )	0.01 ( $\pm 0.02$ )
Bacteria (CFU/ml)	32,000	2,500	21,000	28,500	500	15,000
Total coliforms (MPN/100 ml)	430	2	10	12	N	N
<i>E.coli</i> (MPN/100 ml)	5	N	N	N	N	N

\* Values are expressed as average from obtained values per weekly measurements during one year. Step 1 is a water sample from raw water tank. Step 2 from O<sub>3</sub> pre-contactor. Step 3 from sedimentation basin. Step 4 from filtered water tank. Step 5 from O<sub>3</sub> post-contactor. Step 6 from coal-based BAC effluent.

의 제거됨을 알 수 있었다. 따라서 수질분석결과 BAC 여과 단계에 이르면 유입되는 유기물질을 적절하게 흡착과 생분해에 의하여 제거하는 것으로 나타났다. 그러나 이들의 수질 조사 항목별 분석치의 절대값은 원수의 상황에 따라 차이가 날 수 있으며, 낙동강 원수의 경우 식물플랑크톤에 의한 부영양화 즉 하계의 *Microcystis aeruginosa*, 동계의 *Stephanodiscus hantzschii* 등에 의한 대량 증식으로 pH, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N, BOD 등의 농도가 계절에 따라 다르게 나타나는 것으로 보고된 바 있다 [15]. 본 연구의 조사기간 중에는 빈번한 강우에 의한 조류 농도의 감소 등으로 인하여 예년에 비해 원수의 수질은 전반적으로 양호한 것으로 나타났다.

#### 바이러스 정량 및 회수율

바이러스 정량은 양성시료를 대상으로 Plaque assay법을 이용하였으며, 정량한 결과 ml당  $6 \times 10^7$  PFU의 바이러스를 얻을 수 있었다.

바이러스 회수율은 1-MDS cartridge filter로 여과시켜 유기농집법을 이용하여 농축시켰다. 농축시킨 양성 시료는 원액, 1:5, 1:25 희석배율로, 음성 농축액(Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>·7H<sub>2</sub>O, pH 7.4)은 원액 농도로 각각 BGM 세포에 1 ml씩 접종한 후 14일간 배양하여 CPE 여부로 확인하였다. MPN program으로 산출한 결과 120~250 MPN/100 l로 나타났으며, 회수율은 60~120%를 보여 표준시험방법에서 규정한 회수율 35~150% 기준을 만족하는 것으로 나타났다.

#### 정수처리 공정별 바이러스 제거율

정수처리공정에 따른 바이러스 제거효율은 맥동식 Pilot-plant를 이용하여 3회 실시하였다. 원수 분배 탱크조에 연속적으로 바이러스를 주입시키면서, 정수처리 공정별로 시료를 채취하였다. 원수 분배 탱크조를 통과한 시료는 전오존

접촉조·침전·여과·후오존 접촉조·BAC 여과를 거쳤으며, 각 공정별로 500~1500 l의 시료를 여과, 농축하여 세포배양 및 ICC-PCR법으로 실험하였다. 200 l의 원수에서 정량된 바이러스를 기준으로 하였을 때 전 오존 접촉에서는 96.8%의 바이러스가 제거되었는데 이때 Pilot-plant의 전오존 투입비는 1 mg/l였다. 전오존을 거친 침전단계에서는 99.3%, 여과에서는 99.6%의 바이러스가 제거되었으며, 후오존을 거친 BAC 여과수 시료에서는 세포배양법 및 ICC-PCR법 모두에서 바이러스가 100% 제거되어짐을 확인할 수 있었다(Table 3). 지표세균인 총대장균군의 경우 원수에서는 평균 430 MPN/100 ml 검출되었으나 후오존을 거친 BAC 여과수 부터 검출되지 않았고, 대장균의 경우에는 전오존 단계 이후부터 검출되지 않아 바이러스와 비슷한 제거 경향을 보였다. 따라서 오존이 주입되는 전·후오존 과정이 정수처리과정에서 바이러스 및 미생물 농도를 감소시키는데 있어서 가장 효율적인 단계임을 알 수 있었다. 그리고 이러한 바이러스 제거율은 규모가 비슷한 Pilot-plant를 사용하여 조사한 Robeck의 침전단계에서 98%, 여과단계에서 99.84% 제거율과 거의 비슷한 결과를 보였는데[17], 적절한 정수처리공정을 유지하여 BAC 여과를 거치면 대부분의 바이러스는 정수처리과정에서 거의 100% 제거될 수 있음을 확인할 수 있었다.

본 실험에서 바이러스의 검출은 EPA에서 규정하고 있는 세포배양법과 세포배양법과 PCR법을 혼용한 ICC-PCR법을 동시에 사용하여 비교하였다. 후자의 방법이 전자보다 더 민감한 검출법으로 확인되었으며, 이러한 결과는 Reynold 등이 조사한 결과와 거의 일치하였다[16]. ICC-PCR법의 경우, 세포배양법을 이용하여 바이러스를 어느 정도 증식시킨 뒤 PCR법으로 검출하기 때문에 감염성 바이러스를 빠른 시간에 검출할 수 있어, 세포배양법과 PCR 보다 각각 10배 정도 높은 감수성을 가진 방법이므로, 바이러스 표준시험방법으

Table 3. Analyses of virus elimination ratio after performed each step of water treatment process

Step	Mean virus density (MPN/l)	% of Virus remained	TCVA**	ICC-PCR
Raw water	71.12	100	+	+
Pre-ozone	2.288	3.22	+	+
Sedimentation	0.4689	0.66	+	+
Sand filter	0.2877	0.40	+	+
Post-ozone	0	0	-	-
BAC	0	0	-	-
Finished water	0	0	-	-

\* Symbol "+" indicates virus detectable on cell culture or by ICC-PCR.

Symbol "-" indicates non-detectable.

\*\* Total Culturable Virus Assay

로 추가적인 검증이 이루어져야 할 것으로 보인다[2,6]. 본 연구에서는 폴리오바이러스만을 대상으로 하여 제거실험을 실시하였으나, 수계에 많이 분포한다고 알려진 레오바이러스나 콕사키바이러스 등에 대한 공정별 제거실험도 향후 실시하여 바이러스 종류에 따른 제거율을 또한 조사되어야 할 것이다.

실제로 2년 동안의 바이러스 분포조사에서도 부산시 3개 정수장의 고도정수처리공정을 거친 정수와 수도꼭지에서는 바이러스가 검출되지 않았기 때문에 부산시 정수장의 바이러스 제거능은 충분히 확보한 것으로 판단된다[14]. 그리고 전오존 처리에서 97% 이상의 바이러스가 제거되어질 수 있음을 확인하였으므로, 오존과 같은 소독제에 대해 지속적인 모니터링이 필요할 것으로 보여진다.

**오존처리농도에 따른 바이러스 제거율**

Pilot-plant에 의한 정수처리공정별 바이러스 제거율 조사에서 전오존 단계에서 대부분의 바이러스가 불활성화 되어졌으므로 오존에 의한 바이러스 제거특성을 세부적으로 살

펴보고자 하였다. 오존 농도에 의한 바이러스 제거 실험은 오존처리 장치를 이용하여 실시하였다. 5000 PFU/ml의 poliovirus III형을 증류수 5 l에 섞어 오존 접촉조에 넣고, 오존 발생량을 고정하고 접촉시간을 변화시킴으로써 오존 주입량에 따른 바이러스 불활성화율을 살펴보았다. 바이러스의 존재유무는 세포배양법과 살아있는 바이러스를 3~4일 정도 세포배양 시킨 후 다시 대량 증폭시켜 낮은 농도의 바이러스까지 검출할 수 있는 ICC-PCR법으로 확인하였다(Table 4). 세포배양법에 의한 바이러스 확인 실험결과 0.4 mg/l의 오존이 5분간 접촉되었을 때 바이러스는 약 61.1%이상이, 0.8 mg/l의 오존농도를 10분간 접촉시킨 후에는 바이러스의 100%가 불활성화 되어졌음을 알 수 있었다. 그러나 1차 실험에서도 0.8 mg/l의 오존농도를 10분간 접촉했을때 ICC-PCR법에 의해 바이러스가 검출되었으며, 2차 실험까지 진행시켰을 경우에는 세포배양법과 ICC-PCR법 모두에서 바이러스가 검출되었다. 따라서 바이러스의 완전한 제거를 위해서는 0.8 mg/l에서 10분 이상의 오존처리가 요구되어지는 것으로 나타났다(Table 4, 5). 이는 Harakeh 등이 조사한 잔류오존 0.2

Table 4. Survival ratio of virus by initial concentrations of ozone

	Time (min)					
	1	3	5	8	10	15
Polivirus type III	59.3	42.4	38.9	28.8	0	0
Initial Ozone dose concentraton (mg O <sub>3</sub> /l)	0.08	0.24	0.40	0.64	0.80	1.2
Residual ozone (mg O <sub>3</sub> /l)	0	0	0	0	0.08	0.1

\* Supplied ozone concentration was 0.1 mg O<sub>3</sub>/l air

Table 5. Analyses with cell culture and ICC-PCR of poliovirus inactivation to ozone.

Exposure to ozone (min)	Initial Ozone dose conc. (mg O <sub>3</sub> /l)	First passage		Second passage	
		Cell culture	ICC-PCR	Cell culture	ICC-PCR
1	0.08	+	+	+	+
3	0.24	+	+	+	+
5	0.40	+	+	+	+
8	0.64	+	+	+	+
10	0.80	-	+	+	+
15	1.20	-	-	-	-

\* Symbol "+" indicates virus detectable.

Symbol "-" indicates non-detectable.

mg/l에서 10~15분간 접촉 하였을 때의 제거율 80~97% 와는 약간의 차이를 보였는데 이에 대한 추가적인 검증이 이루어져야 할 것으로 생각된다[8].

물 공급에 있어서 중요한 문제는 어떻게 하면 바이러스, 원생동물 등과 같은 병원성 미생물을 제거하면서 동시에 소독 부산물을 최소화시킴으로써 모든 위험인자로부터 음용수를 보호할 수 있는지의 여부에 초점이 맞추어지고 있다. 이러한 흐름에 따라 기존의 단편적인 수질관리에서 벗어나 미생물 제거와 소독 부산물의 위해성 감소를 동시에 만족시킬 수 있는 음용수 수질의 관리가 필요할 것으로 사료된다[5].

## 요 약

오존처리는 음용수중의 유해한 미생물을 소독하는 처리기술로 주로 이용되고 있으며, 생물활성탄 처리기술 역시 오염물질 제거를 포함한 음용수 제조과정에 여러 가지 이점을 제공한다. 이들의 병행처리는 원수중의 여러 물질을 제거하는데 효과적인 공정으로 간주되고 있다. 본 연구에서는 낙동강 하류의 매리취수장 원수를 사용하여 생물활성탄 정수처리공정 및 오존에 의한 수질 변화와 함께 폴리오바이러스 제거 효율을 조사하였다.

수질인자들은 BAC 여과를 거치면서  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  등을 포함한 모든 항목들은 거의 제거되는 것으로 나타났다. Pilot-plant를 이용한 정수처리공정별 폴리오바이러스 제거실험에서는 전오존 접촉에 의해 96.8%, 침전단계에서 99.3%, 여과단계에서 99.6%의 바이러스가 제거되었으며, 후오존을 거친 BAC 여과수 시료에서는 세포배양법과 ICC-PCR 방법에서 바이러스가 100% 제거되어짐을 확인할 수 있었다. 오존농도에 의한 폴리오바이러스 제거실험 결과 0.4 mg/l에서 5분간 접촉되었을 때는 약 61.1% 이상이고, 0.8 mg/l에서 10분 이상 접촉시킨 후에는 바이러스의 100%가 불활성화 되어졌음을 알 수 있었다.

## 참 고 문 헌

1. APHA. 1992. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 18th ed., APHA-AWWA-WPCF, New York.
2. Cho, Y. H., C. H. Lee. 2002. Detection of poliovirus in water by cell culture and PCR methods. *Kor. J. Microbiol.* **38**, 198-204.
3. EPA. 1996. ICR Microbial Laboratory Manual.
4. EPA. 1991. Guidance Manual for Compliance with the Filtration and Disinfection Requirements for Public Water Systems Using Surface Water Sources.
5. EPA. 1998. Compliance Dates for the Stage 1 D/DBP Rule.
6. EPA. 1995. Information Collection Requirements Rule Protozoa and Enteric Virus Sample Collection Procedure.
7. Grabow, W. O. K., P. Coubrough, C. Hilner and B. W. Bateman. 1984. Inactivation of hepatitis A virus, other enteric viruses and indicator organism in water by chlorine. *Appl. Environ. Microbiol.* **46**, 619-624.
8. Harakeh, M. and M. J. Butler 1985. Factors influencing the ozone inactivation of enteric Viruses in effluent. *Ozone : Science and Engineering*, **6**, 235-243.
9. Jung, Y. S. 2000. National survey research and significance from ICR method. *Forum collection of waterborne viral analysis*. 21-39.
10. Jung, H. M., J. Y. Yoon. 1994. The Opinion with Microbiological Standard of American Drinking Water. *J. KSWQ*. **10**, 62-71.
11. Langlais, B. Ozone in water treatment : *Application and Engineering*. pp. 218-237. Lewis publishers INC.
12. Maarchais V. A., B. H. Robertson and V. Aubineau. 1995. Direct sequencing of hepatitis A virus strains isolated during an epidemic in France. *Appl. Environ. Microbiol.* **61**, 3977-3980.
13. Park, J. Y. 1994. Drinking Water Microbiology. pp. 385-396, Chemical Engineering Research Corporation, Seoul.
14. Park, H. K., E. Y. Jung, Y. J. Lee, J. M. Jung, D. H. Choi, H. J. Son, K. W. Kwon, and Y. K. Hong. 2003. Distribution of waterborne enteric viruses in raw water and tap water in Busan metropolitan city. *Kor. J. of Life Science*. **13**, 197-205.
15. Park, H. K., C. M. Chung, J. R. Bahk and Y. K. Hong. 1999. The relationship between phytoplankton productivity and water quality in downstream of Nakdong river. *J. of the Korean Environmental Sciences Society*. **8**, 101-106.
16. Reynolds K. A., C. P. Gerba and I. L. Pepper. 1996. Detection of infectious enteroviruses by an integrated cell culture-PCR procedure. *Appl. Environ. Microbiol.* **62**, 1424-1427.
17. Robeck, G., N. A. Clarke and K. A. Dostal. 1962. Effectiveness of water treatment processes for virus removal. *Journal American waterworks*. **54**, 1275-1290.
18. Ryu, D. C. 1997. Optimization of water treatment using ozone and granular activated carbon. pp. 22-25, Thesis for the Degree of Doctor, Department of Environmental Engineering, Graduate School, Pukyong National University.
19. 日本水道協會. 1985. 日本上水道試験方法. pp. 630-637.
20. 長澤. 1990. 粒狀活性炭表層における微生物の動向. 第41回全國水道研究發表會 proceedings. pp. 1-3.