大韓環境工學會誌・論文 - Original Paper - 616～620. 2008.

인산염의 존재 하에서 *Escherichia coli*의 석영 및 철피복 모래에의 부착

박성직*・이창구*・김현정*・한용운*・김성배†,*,**

*서울대학교 환경바이오콜로이드공학연구실・**서울대학교 농업생명과학연구원

(2008년 3월 17일 접수, 2008년 5월 22일 채택)

Adhesion of *Escherichia coli* to Quartz and Iron-coated Sands in the Presence of Phosphate

Seong-Jik Park*・Chang-Gu Lee*・Hyon-Chong Kim*・Yong-Un Han*・Song-Bae Kim†,*,**

**Environmental Biocolloid Engineering Laboratory, Seoul National University*
***Research Institute for Agriculture and Life Sciences, Seoul National University*

ABSTRACT : The aim of this study was to investigate the influence of phosphate on the adhesion of *Escherichia coli* to porous media. Column experiments were performed to examine the effect of phosphate on bacterial adhesion to quartz sand and iron-coated sand. Results showed that bacterial mass recovery in quartz sand decreased from 74.5 to 35.4% as phosphate concentration increased from 0 to 16 mg/L. This indicated that bacterial adhesion to quartz sand was enhanced with increasing phosphate concentration. This phenomenon is due to the increase of ionic strength. In contrast, the mass recovery in the coated sand increased from 2.9 to 26.0% as phosphate concentration increased. This indicated that bacterial adhesion to the coated sand was reduced with increasing phosphate concentration, due to the preoccupation of favorable adsorption sites and competitive adsorption by phosphate.

Key Words : *Phosphate, Iron-coated Sand, Quartz Sand, Escherichia coli, Bacterial Adhesion*

요약 : 본 연구의 목적은 다공성 여재에서 인산염이 *Escherichia coli*의 부착에 미치는 영향을 분석하는 것이다. 석영모래와 철피복 모래에서 박테리아 부착에 대한 인산염의 영향을 분석하기 위하여 칼럼실험을 수행하였다. 실험결과, 석영모래에서 인산염의 농도가 0에서 16 mg/L로 증가함에 따라 박테리아의 질량 회수율은 74.5에서 35.4%로 감소하였다. 이는 석영모래에서 인산염의 농도가 증가함에 따라 박테리아의 부착이 향상됨을 나타내는데, 이러한 현상은 이온강도의 증가 때문이다. 반면, 철피복 모래에서는 인산염의 농도가 증가함에 따라 질량 회수율이 2.9에서 26.0%로 증가하였다. 이는 인산염에 의한 호의적 흡착지역 선점과 박테리아와의 경쟁적인 흡착으로 인하여, 인산염의 농도가 증가함에 따라 철피복 모래에서 박테리아의 부착이 감소함을 나타낸다.

주제어 : 인산염, 철피복 모래, 석영모래, *Escherichia coli*, 박테리아 부착

1. 서 론

수 환경시스템에서 박테리아와 금속 수산화물(metal oxy-hydroxides)의 상호작용은 두 가지 측면에서 주목을 받고 있다. 첫 번째는 지화학적 불균질 대수층에서의 박테리아의 부착 및 이동이라는 측면에서 이다. 대수층에서 금속(알루미늄, 철, 망간) 수산화물은 중성 pH 조건에서 양전하를 띄고 있기 때문에, 대수층 매질체 표면에 전하 불균질성을 제공한다. 따라서, 중성 pH 조건에서 음전하를 띈 박테리아는 정전기적 인력작용에 의하여 양전하를 띈 매질체의 표면에 용이하게 부착할 수 있다.[1,2] 두 번째는 양전하를 띈 다공성 여재를 이용한 박테리아와 제거와의 관계이다. 수 처리 여과시스템에서 금속 수산화물로 다공성 여재의 표면전하를 변형시켜 양전하를 띄게 할 경우, 박테리아 제거가 증진될 수 있다.[3,4]

다공성 여재에서 박테리아 부착은 여재의 특성(입자표면전하, 입자크기)과 박테리아의 특성(박테리아 표면전하, 소수성, 박테리아 크기)에 의해 영향을 받는다.[5,6] 특히, 수용액의 화학적 특성(이온강도, pH)은 금속 수산화물로 피복된 여재에의 박테리아 부착에 중요한 역할을 한다. Yee 등[7]은 *Bacillus subtilis*의 산화알루미늄 광물(corundum)에의 부착은 이온강도가 증가함에 따라서 감소한다고 보고하였다. Jiang 등[8]은 침철석(goethite)에서 *Pseudomonas putida*의 부착에 미치는 pH의 영향을 조사하였다. 이들은 pH가 3.0에서 8.0 사이에 증가할 때 박테리아의 부착은 점차 감소하지만, 침철석의 등전점(pH_{pzc} = 8.3)이 위치하는 pH 8.0～9.0범위에서는 박테리아의 부착이 급격하게 감소함을 보고하였다. Ams 등[9]은 침철석으로 피복된 모래에서 *B. subtilis*와 *Pseudomonas mendocina*의 부착이 pH에 따라 달라진다고 보고 하였다. 즉, *B. subtilis*의 부착은 pH가 6.0에서 9.0으로 증가할 때 점차 감소하고, *P. mendocina*의 경우에

† Corresponding author
E-mail: songbkim@snu.ac.kr
Tel: 02-880-4587 Fax: 02-873-2087

는 pH 4.0-7.5 조건에서 보다 pH 7.5-9.0 범위에서 박테리아의 부착이 감소함을 제시하였다.

금속 수산화물로 피복된 여재와 박테리아의 상호작용은 수용액의 성분에 의해서도 영향을 받을 수 있다. 환경에서 중요한 영양분인 인산염(phosphate)은 알루미늄 산화물,[10,11] 철 산화물,[12,13] 그리고 망간 산화물[14,15]과 복합체를 형성하거나 침전을 통해서 표면에 강하게 흡착되는 특성을 갖고 있다. 따라서, 금속 수산화물로 피복된 여재에서 인산염은 박테리아와 부착 위치에 대한 경쟁을 하여 박테리아 부착에 영향을 줄 수 있다. 따라서, 본 연구에서는 인산염이 석영모래(quartz sand)와 철피복 모래(iron-coated sand)에서 *Escherichia coli*의 부착에 미치는 영향에 대하여 분석하기 위하여 칼럼(column)실험을 수행하였다. 인산염의 박테리아 부착에 미치는 영향을 파악하기 위하여, 유출수를 취득하여 박테리아의 파과곡선(breakthrough curve)을 구하고, 이 곡선을 이용하여 박테리아의 질량회수율(mass recovery)을 정량화 하였다.

2. 재료 및 방법

2.1. 박테리아

실험에 사용된 박테리아는 *E. coli* ATCC 11105(Korea Culture Center for Microorganisms, Seoul)이며, 준비과정은 다음과 같다. 멸균된 LB배지(tryptone 10 g, yeast extract 5 g, NaCl 5 g, distilled water 1 L) 200 mL가 담긴 삼각플라스크에 박테리아를 3 mL 주입하고, 배양기(DAIHAN Scientific, DH. LIB. 200 M)에서 84시간 동안 30℃조건에서 배양하였다. 배양된 박테리아 현탁액을 4℃조건의 원심분리기(Vision Scientific, VS-24SMTi)에서 10,000 rpm으로 20분 동안 원심분리한 후 상등액을 버렸다. 영양배지물질을 확실하게 제거하기 위하여 농축된 박테리아에 멸균된 3차 증류수를 넣고 위와 동일한 조건에서 다시 원심분리를 하였다. 칼럼실험에 사용된 박테리아의 초기농도는 0.5 OD_{600}으로, 농축된 박테리아에 증류수를 넣어 초기농도를 맞추었다. 실험에 사용된 모든 배지와 초자기구들은 다른 미생물에 의한 오염을 방지하기 위하여 17.6 psi, 121℃ 조건의 autoclave(JISICO, J-NAS2)에서 15분간 멸균시켜 사용하였다. *E. coli*의 입자크기는 투과전자현미경과 이미지 처리 프로그램(Image-Pro Plus)을 이용하여 결정하였는데, *E. coli*의 크기는 평균길이 2.2 μm, 평균직경 0,6 μm이며, 구 모양으로 환산된 직경(equivalent diameter)은 1.21 μm이었다. *E. coli* 표면의 정전기적 특징은 전기영동광산란계(ELS-8000, Otsuka Electronics, Japan)를 이용하여 분석하였다. *E. coli* 표면의 전기영동 이동성(electrophoretic mobility)을 측정한 후(pH = 6.8, 온도 = 25℃, 이온강도≈0 mM), Smoluchowski 식을 이용하여 제타전위(zeta potential)를 결정하였는데, 이때 *E. coli*의 제타전위는 -51 ± 6 mV이었다.

2.2. 다공성 여재

실험에 사용된 석영모래는 유기물을 미리 제거한 모래(주문진사)로써, 유효경은 1.0 mm, 균등계수는 1.53이었다. 모래에 존재하는 부유물질을 제거하기 위하여 증류수로 600 nm 흡광도(OD_{600})에서 0.01 이하(UV-visible spectrophotometer, Thermo, Helios)가 될 때까지 세척하였다. 세척된 모래는 autoclave에서 15분간 2회에 걸쳐 멸균하여(121℃, 17.6 psi), 미생물에 의해 오염되는 것을 최소화하였다. 철피복 모래의 제조과정은 다음과 같다. 멸균된 증류수 100 mL 용액에 $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ 5.5 g을 넣고 6 N NaOH로 pH를 조절하여 $FeCl_3$ 수용액을 제조하였다. $FeCl_3$ 수용액에 멸균된 석영모래 200 g을 넣은 후 회전증발농축기(HAHNSHIN, HS-2005S)를 이용하여 90℃, 80 rpm 조건에서 20분 반응시켜 1차 철피복 모래를 제조하였다. 이 피복 모래를 Drying oven(JISICO)에서 건조하고(150℃, 6시간) 증류수로 세척한 후 같은 조건에서 다시 건조하여 사용하였다.

2.3. 칼럼실험

칼럼실험을 석영모래와 철피복 모래로 충진된 칼럼에서 수행하였다. 본 연구에 사용된 칼럼은 polycarbonate(PC) 재질로써, 내경 2.5 cm, 높이 30 cm이었다. 여재를 30 cm까지 충진한 후 칼럼조건을 측정한 결과, 여재의 질량은 231.6 ± 2.3 g, 체적밀도 1.573 ± 0.016 g/cm^3, 공극율 0.407 ± 0.006이었다. 실험은 석영모래와 철피복 모래 각각에 대하여 세 가지 다른 인산염 농도조건(0, 4, 16 mg/L)에서 수행하였다. 인산염 용액은 표준용액(KH_2PO_4 in H_2O, MERCK, Germany)을 이용하여 준비하였다. 여재로 채워진 칼럼에 0.5 mL/min의 유량조건에서 HPLC펌프(QC400, FASCO, USA)를 이용하여 상향으로 인산염 용액을 주입(7～8 pore volumes)하여 포화된 정상류 상태에 이르게 하였고, OD_{600}이 0임을 확인한 후 박테리아 용액(인산염 포함)을 0.5 mL/min 정속으로 60분 동안 하향흐름으로 주입하였다. 이때, 칼럼의 공탑체류시간(EBCT)은 120분이었다. 박테리아의 주입이 끝난 후 같은 유속으로 인산염 용액을 다시 주입하였으며, 유출수를 일정한 시간 간격으로 자동 포집기(Retriever 500, TELEDYNE, USA)를 이용하여 포집하였다. 유출수 내의 박테리아 농도는 UV-visible spectrophotometer로 측정하였고, pH는 pH probe(9107BN, Orion, USA)로 측정하였다. 실험결과의 신뢰도를 높이기 위해 실험은 각 조건에서 반복 수행하였다.

2.4. 데이터 분석

박테리아 파과곡선은 다음과 같은 일차원 운송식(성장과 사멸 제외)을 이용하여 분석하였다.[16]

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v\frac{\partial C}{\partial x} - \lambda C \qquad (1)$$

여기에서 t는 시간, x는 거리, C는 수용액상의 박테리아 농도[ML^{-3}], D는 수리분산계수[L^2T^{-1}], v는 박테리아의 이동

속도[LT^{-1}], 그리고 λ는 박테리아의 부착계수[T^{-1}]이다. 박테리아 이동모델 관련 파라미터는 박테리아 파과곡선으로부터 CXTFIT 코드[17]를 이용하여 구하였다. 그리고, 유출수내의 박테리아의 질량회수율(M_r)은 다음 식을 이용하여 정량화하였다.

$$M_r = \frac{\int_0^t C dt}{C_0 t_0} \quad (2)$$

여기에서 C_0는 박테리아의 주입농도이고, t_0는 주입시간이다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 박테리아 파과곡선

석영모래와 철피복 모래에서 인산염 농도에 따른 *E. coli*의 파과곡선을 각각 Fig. 1과 2에 나타내었다. 파과곡선은 인산염의 농도에 따라서 다른 단일 첨두농도(peak concentration)를 나타내었다. 석영모래에서는 인산염 농도가 증가함에 따라 상대 첨두농도가 0.648에서 0.315로 감소하였다(Fig. 1(a)). 철피복 모래에서의 첨두농도는 이와는 반대로 인산염의 농도가 증가함에 따라 0.031에서 0.255로 증가하였다(Fig. 1(b)). 박테리아 파과곡선으로부터 얻은 수리학적 특성변수(v, D)는 각각 0.263 ± 0.012 cm/min과 0.095 ± 0.040 cm^2/min이었다. 박테리아 파과곡선으로부터 추정된 v값은 $v_w = q/n$ (여기에서, q와 n은 각각 다시안 유동율(Darcian flux)과 공극률을 나타냄)의 관계식으로부터 구한 공극유속(v_w = 0.246 ± 0.003 cm/min)과 유사하였다.

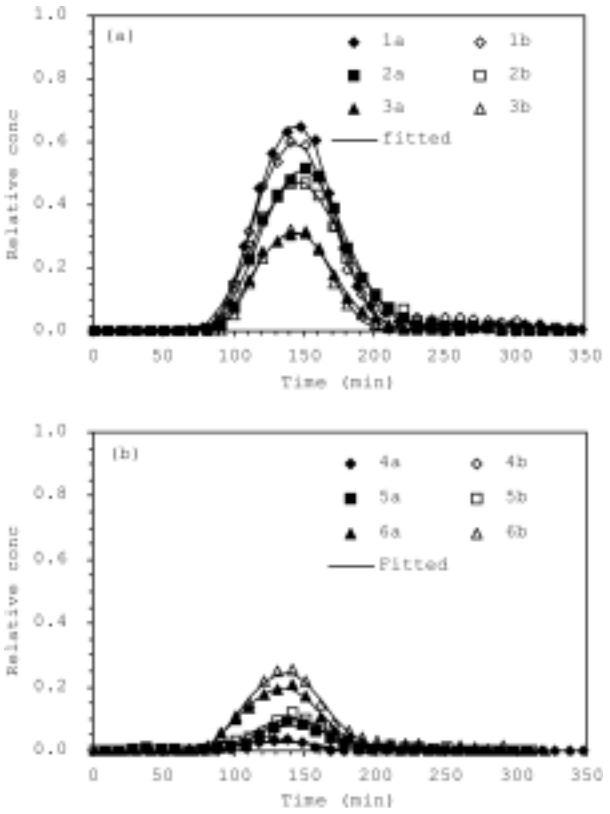

Fig. 1. Breakthrough curves of *E. coli* obtained from column experiments and model fits in (a) quartz sand at various concentrations of phosphate(1a, 1b: 0 mg/L; 2a, 2b: 4 mg/L; 3a, 3b: 16 mg/L) and (b) iron-coated sand at various concentrations of phosphate(4a, 4b: 0 mg/L; 5a, 5b: 4 mg/L; 6a, 6b: 16 mg/L).

3.2. 석영모래에서 인산염의 영향

석영모래에서 박테리아 질량회수율은 인산염의 농도가 증가할수록 감소하였다(Fig. 2(a)). 즉, 인산염의 농도가 증가할수록 석영모래로의 박테리아 부착이 증가하였다. 0 mg/L 인산염 용액(증류수 조건)에서 평균 질량회수율은 74.5%(1a, 76.7; 1b, 72.3)이었다. 4 mg/L(이온강도 0.042 mM)에서 질량회수율은 67.8%(2a, 68.6; 2b, 66.9)로써, 증류수 조건에 비하여 약 7.0% 정도 감소하였다. 인산염의 농도를 16 mg/L(이온강도 0.168 mM)까지 증가시켰을 때, 질량 회수율은 35.4%(3a, 36.8; 3b, 34.1)로써, 증류수 조건에 비하여 50% 이상 감소하였다. 한편, 석영모래에서 박테리아 부착계수(λ)는 인산염의 농도가 증가함에 따라서 증가하였다(Fig. 2(a)). 0 mg/L 인산염 용액에서 λ의 평균값은 0.0033 l/min(1a, 0.0030; 1b, 0.0036)이었다. 4 mg/L에서 λ값은 0.0042 l/min(2a, 0.0040; 2b, 0.0044), 16 mg/L에서 λ값은 0.0094 l/min(3a, 0.0091; 3b, 0.0097)이었다(Table 1).

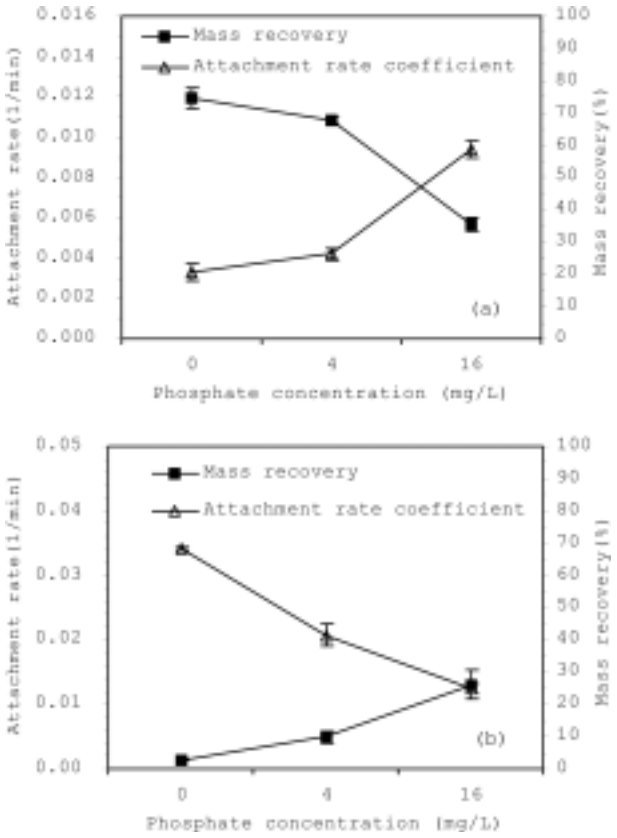

Fig. 2. Relationship between phosphate concentration, attachment rate coefficient, and bacterial mass recovery in (a) quartz sand and (b) iron-coated sand.

Table 1. Experimental conditions and results for column experiments of *E. coli* in quartz sand and iron-coated sand in the presence of phosphate

Exp.	Porous media	Phosphate concentration (mg/L)	Mr (%)	v (cm/min)	D (cm^2/min)	λ (1/min)	R2
1a	Quartz	0	76.7	0.263	0.087	0.0030	0.99
1b	Quartz	0	72.3	0.264	0.103	0.0036	0.91
2a	Quartz	4	68.6	0.247	0.128	0.0040	0.97
2b	Quartz	4	66.9	0.252	0.184	0.0044	0.98
3a	Quartz	16	36.8	0.259	0.102	0.0091	0.99
3b	Quartz	16	34.1	0.263	0.062	0.0097	0.99
4a	Iron-coated	0	2.7	0.282	0.050	0.0339	0.91
4b	Iron-coated	0	3.0	0.286	0.059	0.0343	0.92
5a	Iron-coated	4	8.6	0.259	0.064	0.0219	0.96
5b	Iron-coated	4	11.1	0.258	0.080	0.0196	0.95
6a	Iron-coated	16	22.8	0.255	0.098	0.0130	0.99
6b	Iron-coated	16	29.2	0.273	0.130	0.0119	0.98

석영모래에서 인산염 농도의 증가에 따른 박테리아의 부착 증가는 이온강도의 증가에 기인한다. 석영모래의 등전점(pH_{pzc})은 pH 2.0으로써,[18] 본 실험조건(pH 7.0～7.3)에서 석영모래는 음전하를 띄고 있다. 따라서, 석영모래와 박테리아의 상호작용에는 전기적인 척력(electrostatic repulsion)이 크게 작용하여 박테리아의 부착이 용이하지 않다. 하지만, 이온강도가 증가하게 되면, 석영모래에 대한 박테리아의 부착이 증가하게 되는데, 이는 DLVO 이론에 의해 설명할 수 있다. 즉, 염(salt)의 농도가 증가하면 이온강도가 증가하게 되는데, 이때 석영모래와 박테리아의 입자표면 사이에 존재하는 정전기적 이중층(electrostatic double layer)이 압축됨으로써, 박테리아의 부착이 증가한다. Redman 등[19]은 이온강도가 1 mM에서 100 mM로 증가함에 따라서 박테리아의 제타전위는 -61.4 mV에서 -21.4 mV로, 석영모래의 제타전위는 -38.5 mV에서 -11.6 mV로 음전하 절대값이 감소하여 둘 사이의 정전기적 반발력이 감소하게 된다고 보고하였다. 입자 표면에서 이온강도의 증가에 따른 박테리아 부착 증가에 대한 보고가 여러 연구자들에 의해 보고되었다: 백운모(muscovite),[18] 석영모래,[11,20] 붕규산염(borosilicate).[21] 예를 들면, Choi 등[20]은 칼럼실험을 통해 이온강도가 증가함에 따라 석영모래로의 *Pseudomonas aeruginosa*의 부착이 증가함을 보고하였다.

3.3. 철피복 모래에서 인산염의 영향

철피복 모래의 경우 박테리아 질량회수율은 인산염의 농도가 증가할수록 증가하였는데(Fig. 2(b)), 이는 인산염의 농도가 증가할수록 철피복 모래에의 박테리아 부착이 감소함을 나타낸다. 0 mg/L(증류수 조건)에서 평균 질량회수율은 2.9%(4a, 2.7; 4b, 3.0)이었다. 4 mg/L에서 질량회수율은 9.9%(5a, 8.6; 5b, 11.1)로써, 증류수 조건에 비하여 7.0% 증가하였다. 인산염의 농도를 16 mg/L까지 증가시켰을 때, 질량 회수율은 26.0%(6a, 22.8; 6b, 29.2)로써, 증류수 조건에 비하여 20% 이상 증가하였다. 한편, 철피복 모래에서 박테리아 부착계수(λ)는 인산염의 농도가 증가함에 따라서 감소하였다(Fig. 2(b)). 0 mg/L에서 λ의 평균값은 0.0341 l/min(4a, 0.0339; 4b, 0.0343)이었다. 4 mg/L에서 λ값은 0.0208 l/min(5a, 0.0219; 5b, 0.0196), 16 mg/L에서 λ값은 0.0125 l/min(6a, 0.0130; 6b, 0.0119)이었다(Table 1).

철피복 모래에서 인산염의 농도가 증가함에 따라 박테리아 부착이 감소하는 것은 인산염에 의한 피복 모래표면의 호의적 흡착지역(favorable adsorption site) 선점과 박테리아와의 경쟁적인 흡착(competitive adsorption) 때문이다. 본 실험에서 박테리아보다 선 주입된 인산염은 호의적 흡착지점을 선점함으로써 박테리아의 부착을 감소시킨다. 또한 박테리아와 동시에 주입된 인산염은 박테리아와 흡착지점에 대하여 경쟁함으로써 박테리아 부착을 감소시킨다. Appenzeller 등[22]은 인산염의 농도가 증가함에 따라 수산화철의 제타전위가 +7 mV에서 -8 mV로 변화하였다고 보고하였다. 이는, 인산염의 흡착에 의해 철피복 모래의 표면이 음전하로 전환되어 박테리아의 부착에 불리한 조건이 형성됨을 나타낸다.

한편, 차단효과(shielding effect)에 의하여 이온강도가 증가할수록 서로 반대 전하를 띈 여재와 (바이오)콜로이드 표면 사이에 정전기적인 인력이 감소하여 양전하를 띈 여재의 표면에 음전하를 띈 (바이오)콜로이드의 부착이 감소한다는 주장이 있다.[7] 이러한 현상이 철피복 모래와 *E. coli* 사이에도 나타나는지 여부를 확인하기 위하여, 다공성 여재 환경에서 인산염 보다 훨씬 이동성이 좋은 질산염(nitrate)을 이용하여 보완실험을 수행하였다. 질산염의 농도가 62 mg/L(이온강도 1.0 mM)와 3,200 mg/L(이온강도 200.0 mM)조건에서, *E. coli*의 질량 회수율은 모두 2.0% 정도로 증류수 조건(2.9%)과 유사한 반면, 이온강도가 낮은 인산염 16 mg/L(이온강도 0.168 mM) 조건보다(26.0%) 훨씬 작았다. 이 결과는 이온강도 증가에 따른 차단효과가 철피복 모래와 *E. coli* 사이에 작용하지 않음을 나타낸다. 본 실험결과는 알루미늄 산화물로 피복된 모래에서 인산염 또는 탄산염 농도가 0.002 M에서 0.163 M로 증가함에 따라, 바이러스(ϕx174, MS-2)의 부착이 감소하였다는 Zhuang과 Jin[23]의 결과와도 일치하지 않았다. 이러한 차이는 금속수산화물 피복 모래에서 바이러스와 *E. coli*의 부착 메커니즘의 차이에 따른 것일 수 있다. *E. coli*는 피복 모래에서 이온강도의 영향을 받지 않는 inner-sphere complex(이온결합, 공유결합, 또는 이들의 복합적인 작용에 의하여 생성)에 의해 부착이 일어나는 반면, 바이러스는 이온강도에 많은 영향을 받는 outer-sphere complex(정전기적 인력에 의하여 생성)에 의해 일어나는 것으로 보인다.[23]

4. 결 론

본 연구에서는 석영모래와 철피복 모래에서 *E. coli*의 부착에 미치는 인산염의 영향을 분석하였다. 석영모래에서는 인산염의 농도가 증가할수록 용액의 이온강도가 증가하여,

박테리아 부착이 증가하였다. 반면, 철피복 모래에서는 인산염의 농도가 증가할수록 박테리아 부착이 감소하였는데, 이는 인산염에 의한 호의적 흡착지역 선점과 박테리아와의 경쟁적인 흡착으로 인하여 박테리아의 부착이 감소하였기 때문이다. 본 연구는 다공성 여재에서 박테리아의 부착과 관련하여 인산염의 영향에 대한 정보를 제공하고, 양전하를 띈 다공성 여재를 이용한 박테리아 제거에 관한 지식을 증진시킬 것이다.

참 고 문 헌

1. Silliman, S. E., Dunlap, R., Fletcher, M., and Schneegurt, M. A., "Bacterial transport in heterogeneous porous media: observations from laboratory experiments," *Water Resour. Res.*, **37**, 2699～2707(2001).
2. Hall, J. A., Mailloux, B. J., Onstott, T. C., Scheibe, T. D., Fuller, M. E., Dong, H., and Deflaun, M. F., "Physical versus chemical effects on bacterial and bromide transport as determined from on site sediment column pulse experiments," *J. Contam. Hydrol.*, **57**, 161～187(2005).
3. Truesdail, S. E., Lukasik, J., Farrah, S. R., Shah, D. O., and Dickinson, R. B., "Analysis of bacterial deposition on metal (hydr)oxide-coated sand filter media," *J. Colloid. Sci.*, **203**, 369～378(1998).
4. Lukasik, J., Cheng, Y.-F., Lu, F., Tamplin, M., and Farrah, S. R., "Removal of microorganisms from water by columns containing sand coated with ferric and aluminum hydroxides," *Water Res.*, **33**, 769～777(1999).
5. Gannon, J. T., Manilal, V. B., and Alexander, M., "Relationship between cell surface properties and transport of bacteria through soil," *Appl. Environ. Microbiol.*, **57**, 190～193(1991).
6. Fontes, D. E., Mills, A. L., Hornberger, G. M., and Herman, J. S., "Physical and chemical factors influencing transport of microorganisms through porous media," *Appl. Environ. Microbiol.*, **57**, 2473～2481(1991).
7. Yee, N., Fein, J. B., and Daughney, C. J., "Experimental study of the pH, ionic strength, and reversibility behavior of bacteria-mineral adsorption," *Geochim. Cosmochim. Acta*, **64**, 609～617(2000).
8. Jiang, D., Huang, Q., Cai, P., Rong, X., and Chen, W., "Adsorption of *Pseudomonas putida* on clay minerals and iron oxide," *Colloids. Surf. B*, **54**, 217～221(2007).
9. Ams, D. A., Fein, J. B., Dong, H., and Maurice, P. A., "Experimental measurements of the adsorption of *Bacillus subtilis* and *Pseudomonas mendocina* onto Fe-oxyhydroixde-coated and uncoated quartz grains," *Geomicrobiol. J.*, **21**, 511～519(2004).
10. Johnson, B. B., Ivanov, A. V., Antzutkin, O. N., and Forsling, W., "31P nuclear magnetic resonance study of the adsorption of phosphate and phenyl phosphate on γ-Al_2O_3," *Langmuir.*, **18**, 1104～1111(2002).
11. Kim, Y. and Kirkpatrick, R. J., "An investigation of phosphate adsorbed on aluminum oxyhydroxide and oxide phases by nuclear magnetic resonance," *Eur. J. Soil. Sci.*, **55**, 243～251(2004).
12. Persson, P., Nilsson, N., and Sjöberg, S., "Structure and bonding of orthophosphate ions at the iron oxide-aqueous interface," *J. Colloid. Interf. Sci.*, **177**, 263～275(1996).
13. Arai, Y. and Sparks, D. L, "ATR-FTIR spectroscopic investigation on phosphate adsorption mechanisms at the ferric hydrite-water interface," *J. Colloid. Interf. Sci.*, **241**, 317～326(2001).
14. Yao, W. and Millero, F. J., "Adsorption of phosphate on manganese dioxide in seawater," *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 536～541(1996).
15. Kawashima, M., Tainaka, Y., Hori, T., Koyama, M., and Takamatsu, T., "Phosphate adsorption onto hydrous manganese(IV) oxide in the presence of divalent cations," *Water Res.*, **20**, 471～475(1986).
16. Hornberger, G. M., Mills, A. L., and Herman, J. S., "Bacterial transport in porous media: evaluation of a model using laboratory observations," *Water Resour. Res.*, **28**, 915～938(1992).
17. Toride, N., Leij, F. J., and van Genuchten, M. Th., "The CXTFIT code for estimating transport parameters from laboratory or field tracer experiments," Research Report No. 137, US Salinity Laboratory.
18. Scholl, M. A., Mills, A. L., Herman, J. S., and Hornberger, G. M., "The influence of mineralogy and solution chemistry on the attachment of bacteria to representative aquifer materials," *J. Contam. Hydrol.*, **6**, 321～336(1990).
19. Redman, J. A., Walker, S. L., and Elimelech, M., "Bacterial adhesion and transport in porous media: Role of the secondary energy minimum," *Environ. Sci. Technol.*, **38**, 1777～1785(2004).
20. Choi, N. C., Kim, D. J., and Kim, S. B., "Quantification of bacterial mass recovery as a function of pore-water velocity and ionic strength," *Res. Microbiol.*, **158**, 70～78(2007).
21. Johnson, W. P., Martin, M. J., Gross, M. J., and Logan, B. E., "Facilitation of bacterial transport through porous media by changes in solution and surface properties," *Colloid. Surf. A*, **107**, 263～271(1996).
22. Appenzeller, B. M. R., Duval, Y. B., Thomas, F., and Block, J. C., "Influence of phosphate on bacterial adhesion onto iron oxyhydroxide in drinking water," *Environ. Sci. Technol.*, **36**, 646～652(2002).
23. Zhuang, J. and Jin, Y., "Virus retention and transport through Al-oxide coated sand columns: effects of ionic strength and composition," *J. Contam. Hydrol.*, **60**, 192～209(2003).