

축산폐수의 후처리공정으로서 SBR 적용시 운전인자에 따른 질소와 인의 제거특성에 관한 연구

최건열[†] · 이영신

한서대학교 환경공학과

(2009. 5. 7. 접수/2009. 5. 18. 수정/2009. 6. 2. 채택)

A Study on the Removal of Nitrogen and Phosphorus by Operation Mode for Livestock Wastewater Treatment Post-process Using SBR

Gun-Youl Choi[†] · Young-Shin Lee

Department of Environmental Engineering Hanseo University

(Received May 7, 2009/Revised May 18, 2009/Accepted June 2, 2009)

ABSTRACT

This study examined the removal efficiency of the nitrogen and phosphorus in order to compensate for the combined process of ATAD(Autothermal Thermophilic Aerobic Digestion) and EGSB(Expended Granular Sludge Bed), which are treatment methods for livestock wastewater, by introducing SBR(Sequencing Batch Reactor) as post-treatment process. The analysis on the treatment efficiency of each operation mode showed that, in the case of T-N, the treatment efficiency were 67.1% and 74.2% for Run-1 and Run-2, respectively, and in the case of T-P, the values were 71.2 and 74.1, respectively, which are indicating that the treatment efficacy is higher in the condition of Run-1, in which the time period of Anoxic and Aerobic segments were increased. In addition, the result of analyzing removal characteristics of nitrogen and phosphorus by Influx load showed that removal efficiency of nitrogen was better in the case of high influx load than in the case of low influx load. Regardless of Influx load, phosphorus showed constant influx concentration, so that removal efficiency of phosphorus was influenced littler by Influx load than that of nitrogen. This study also fed methanol as an external carbon source and performed experiment to induce denitrification under anoxic condition by using nitrate among nitrogen compounds of SBR reactor, and the results showed that intermittent feeding was more effective in Nitrogen Removal than composite feeding.

Keywords: livestock, SBR, sluge adaptable, external carbon, operation mode

I. 서 론

우리나라는 급속한 경제성장과 더불어 모든 산업들이 집약적 산업화 구도로 진보하고 있는 실정이며, 축산업 또한 이와 함께 발전되었다. 축산폐수의 발생량은 산업 폐수 및 생활하수에 비해 비교적 소량이지만 유기물질의 농도가 높아 수계에 대한 오염부하량은 전체의 8%에 달한다고 보고되고 있다.¹⁾ 이러한 축산폐수는 그 발생원, 수거방법, 급여사료 등에 따른 발생폐수의 성상

변동폭이 크며, 고농도의 유기물과 영양염을 함유하고 있어 방류수역에 배출되어 하천과 호소의 수질을 오염시키고 악취와 병원균 번식 등의 수질환경에 미치는 영향이 크다.

이러한 수질환경에 미치는 영향을 최소화하기 위한 일반적인 축산폐수 처리방법은 저장액비화법 또는 톱밥발효를 이용하여 처리하고 있으나, 처리시설의 운전 및 전문적인 관리가 되지 않고 있어 일정 지역별로 공동처리하는 방안을 추진하고 있다.²⁾ 하지만 공동처리방안은 수거방법과 처리공정이 쉽지 않고 운전 및 비용면에서 많은 문제점을 지니고 있어 효율적으로 축산폐수를 처리할 수 있는 공정의 개발과 적용이 시급히 필요한 실정이다.

[†]Corresponding author : Department of Environmental Engineering Hanseo University
Tel: 82-41-688-5006, Fax: 82-41-688-5006
E-mail : chlrsjduf@naver.com

이에, 축산폐수와 같은 고농도 유기성폐수처리의 문제점을 인식하고 효율적인 축산폐수처리공정개발을 위해 최근까지 개발되어 입증된 공법을 적용하여 축산폐수의 새로운 기술로 전환하고자 많은 연구가 진행되고 있다.

이러한 축산폐수처리공정 중 유²⁾는 미생물활성을 이용하여 병원균을 사멸할 수 있는 고온호기성소화조(ATAD, Autothermal Thermophilic Aaerobic Digestion)와 화학적 처리를 위한 응집처리공정, 고농도 유기성폐수처리가 가능한 상향류형 혐기성슬러지 처리(USAB, Upflow Anaerobic Sludge Bed)의 변형된 형태인 팽창성 입자 슬러지상 공정(EGSB, Expanded Granular Sludge Bed) 시스템의 조합공정으로 축산폐수의 공동처리에 적용하는 방안을 연구하였으나 축산폐수의 특성상 고농도의 유기물로 인한 질소 및 인의 제거성능이 높지 않아 효과적인 대체기술이 필요한 것으로 나타났다.

따라서 질소와 인의 제거효율이 높은 생물학적 처리공정을 하고자 질소와 인의 동시제거가 가능하며, 축산폐수와 같이 성상이나 유량변화가 심한 폐수에 대한 충격부하에 적용하는 능력이 우수한 공정을 검토한 결과 시간분할에 의한 처리방법인 SBR을 선택하였다.

SBR는 한 개의 반응조 내의 원수를 유입시켜서 반응 및 침전후 처리수를 방류하는 생물학적 반응조로 하나의 반응조가 폭기조, 침전조, 탈질산소조의 3가지 조건을 수행하여 부지확보면에서 경제적이다.³⁾

또한 SBR 공정은 국내·외에서 소규모 하수처리장의 영양염류 제거 공정으로 가장 효과적인 공정으로 인식되어 있으며, 이미 국내에서도 고도처리를 위하여 현재 많이 사용되고 있는 공정이다.⁴⁾

이에, 본 연구에서는 축산폐수처리를 위해 ATAD와 응집, EGSB 조합공정의 후단공정으로 연속회분식반응조(SBR)를 적용시 질소, 인 처리효율 향상을 위한 최적의 운전조건 및 인자를 파악함으로써, 후처리공정으로 활용가능성에 대해 평가해 보고자 하였다.

II. 연구방법

1. 축산폐수

본 실험에서 사용된 축산폐수는 충남 서산의 ○○종돈장에서 발생하는 축산폐수를 처리하기 위해 Fig. 1과 같이 주 처리 공정으로 ATAD와 응집처리 후 EGSB 공정을 거친 유출수를 사용하였으며, 원수의 성상은 Table 1과 같다.

원수의 성상을 살펴보면 고농도 축산폐수 특성상 주

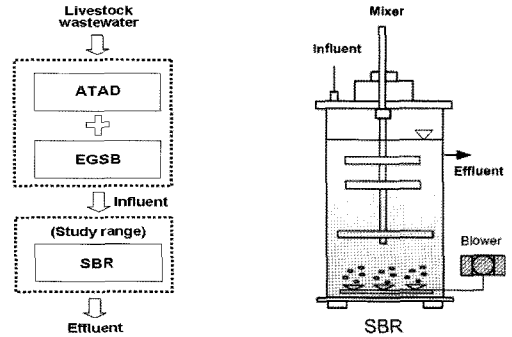


Fig. 1. Schematic diagram of SBR.

Table 1. Characteristics of livestock waste water used in this experiment

Parameter	Min.	Max.	Ave.
T-N(mg/l)	140.2	263.5	185.3
T-P(mg/l)	12.3	30.2	17.0
NH ₄ -N(mg/l)	82.1	155.8	109.1
NOx-N(mg/l)	24.0	46.4	32.1
PO ₄ -P(mg/l)	8.2	16.1	10.3

처리 공정만으로 T-N, T-P가 완벽히 제거되지 않은 상태로 평균농도가 각각 185.3 mg/l, 17.0 mg/l로 나타났다. 원수중 T-N는 주로 암모늄(NH₄-N) 형태로 존재하는 것으로 나타났다.

2. 실험장치

본 연구에 사용된 연속회분식반응조(SBR) 반응조는 Fig. 1과 같은 실험실 규모의 반응조로 5 mm의 투명아크릴로 제작하였다.

반응조의 총용적은 Table 2와 같이 약 2,500 ml로 반응조 내 미생물(MLSS)의 농도는 4,140~5,530 mg/l로 유지하였으며, 미생물과 유기물의 충분한 접촉이 일어날 수 있도록 교반모터를 설치하여 교반하였다.

호기(Aerobic) 조건에서는 충분한 DO유지를 위해 반응조 하부에 산기관을 사용하여 충분한 산소가 유지될 수 있도록 공급하였다.

3. 실험방법

본 연구에서는 SBR 유입수와 처리수에 대하여 5개 항목을 분석하였으며, 분석방법은 수질오염 공정시험법⁵⁾과 U.S. Standard Method⁶⁾에 준하여 T-N, T-P는

Table 2. Specifications of reactor units used for experiment

Reactor	Volume (ml)	MLSS (mg/l)
SBR	2,500	4,140~5,530

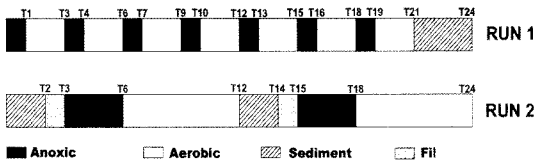


Fig. 2. Time variation of operation mode.

고압멸균기(Autoclave)를 이용하여 전처리 하였으며, NH₄-N, NO_x-N, PO₄-P는 GF/C 여지로 여과 후 분석하였다.

SBR 실험운전조건은 원수 유입의 경우 반응조에 부착된 정량펌프를 이용하여 일정한 유량을 유지시키며 유입시켰으며, SBR 운전시 무산소(Anoxic), 호기(Aerobic) 구간의 시간분배에 따른 질소와 인의 제거효율을 알아보기 위하여 먼저 Run-1 조건에서는 산소(Anoxic), 호기(Aerobic) 구간을 세분화시켜 여러 Cycle로 운전하였으며, Run-2 조건에서는 Run-1과 비교하여 무산소(Anoxic), 호기(Aerobic) 구간을 길게 운전하여 질소와 인의 제거 효율을 알아보았다.

각 구간별 운전모드는 Fig. 2와 같이 Run-1의 경우 간헐포기모드로 Anoxic(1 hr)-Aerobic(2 hr) 7cycle, Sediment/Discharge(3 hr) 조건으로 운전하였으며, Run-2의 경우 Sediment(2hr)-Fill(1 hr)-Anoxic(3 hr)-Aerobic(6 hr) 2 cycle의 조건으로 각각의 운전mode에 따른 질소와 인의 처리효율을 분석하였다.

이때 무산소(Anoxic)구간은 반응조에 남아있는 질소 산화물이 유입수의 탄소원과 반응하여 탈질이 일어남과 동시에 인의 방출을 도모하였으며, 호기(Aerobic)구간에서는 주입된 유입수 내의 유기물 및 암모늄(NH₄-N)을 산화시킴과 동시에 미생물의 인 과잉섭취를 도모하였다.⁷⁾

유입(Fill) 구간에서는 1 cycle 시간 단축을 위하여 단 시간에 시료를 채울 수 있도록 하였다.

또한, 유입부하에 따른 질소와 인의 처리효율, 외부탄소원의 주입방법에 따른 질소변화를 통하여 연속회분식반응조(SBR) 운전시 각각의 운전조건에 따른 질소와 인의 처리효율을 알아보았다.

III. 결과 및 고찰

1. 운전mode 변경에 따른 처리효율

연속회분식반응조(SBR)의 운전주기의 변화에 따른 질소와 인의 처리효율을 분석하기 위해 Run-1의 경우 무산소(Anoxic), 호기(Aerobic)를 세분화하여 7 cycle를 반복하여 하였으며, Run-2의 경우는 Run-1 보다 무산

Table 3. Operation result of SBR operation mode change

Item	Run1		Run2	
	Influent (mg/l)	Effluent (mg/l)	Influent (mg/l)	Effluent (mg/l)
T-N	185.3	61.0	190.2	48.9
T-P	17.0	4.9	20.1	5.2
NO _x -N	32.1	23.5	32.5	9.3
NH ₄ -N	109.1	17.0	105.9	6.8
PO ₄ -P	10.3	2.7	13.1	2.8

소(Anoxic) 및 호기(Aerobic) 기간을 증가시켜 운전하였다. 각각의 운전주기 변화에 따른 운전결과는 Table 3과 같다.

1) 운전mode 변경에 따른 T-N 제거

연속회분식반응조(SBR)의 운전 mode 변경에 따른 T-N의 제거에 미치는 영향을 파악하기 위하여 Run-1, Run-2 조건으로 운전결과 Fig. 3과 같다.

Run-1의 T-N의 제거율은 약 67%, Run-2의 경우 약 74%의 제거율을 보여 폭기 기간을 세분화하여 운전한 Run-1 보다 Anoxic, Aerobic 구간의 반응 시간이 길게 유지되었던 Run-2 조건에서 T-N 제거율이 높은 것으로 나타났다.

홍⁸⁾의 연구에서는 폭기 기간이 길게 유지되었던 운전조건에서 NH₄-N의 제거율이 우수한 것으로 나타났으며, 이⁹⁾의 연구에서는 무산소(Anoxic) 구간의 반응 시간이 증가(0, 70, 100, 130 min)하였는데 이에 따라 T-N 제거율은 무산소(Anoxic) 구간의 가장 길게 유지되었던 130 min에서 T-N제거율이 높은 것으로 연구되어 연속회분식반응조(SBR) 운전조건 중 무산소(Anoxic), 호기(Aerobic) 구간이 길게 유지된 운전조건에서 T-N 제거율이 높은 것을 알 수 있었다.

운전 mode 변경에 따른 T-N의 형태별 제거율을 보면 Fig. 3과 같이 암모늄(NH₄-N)의 경우 Run-1이

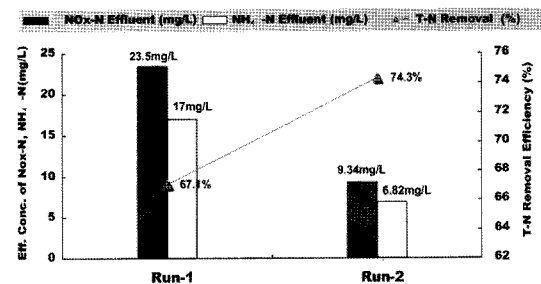


Fig. 3. Effluent concentration of NO_x, NH₄ and removal ratio of T-N.

84%, Run-2 조건에서 약 93%의 제거율을 보였는데 이는 Run-2 조건에서 폭기시간이 Run-1보다 길게 유지되면서 질산화가 원활하게 이루어져 NH₄-N 제거율이 높은 것으로 사료된다. 산화질소(NO_x-N)의 경우 Run-1 조건에서는 26.3%, Run-2 조건에서 약 71%의 제거율을 나타냈는데 이는 탈질을 유도하는 무산소(Anoxic) 기간이 세분화된 Run-1의 경우 충분한 탈질이 일어날 수 있는 시간을 만족하지 않아 Run-2 조건과 비교하여 낮은 제거율을 보인 것으로 사료된다. 이에 T-N제거율을 높이기 위해 외부탄소원의 투입여부도 고려해야 할 대상으로 사료된다.

2) 운전mode 변경에 따른 T-P 제거

연속회분식반응조(SBR)의 운전구간 중 무산소(Anoxic) 구간에서의 인의 용출을 유도하고 호기(Aerobic) 구간에서 인 섭취를 유도하기 위하여 각각의 무산소(Anoxic), 호기(Aerobic) 구간의 시간을 변화시켜 운전한 결과 T-P의 제거율은 Fig. 4와 같다. T-P의 제거율을 보면 Run-1 조건에서 71.2%, Run-2 조건에서 74.1%로 무산소(Anoxic), 호기(Aerobic) 구간을 세분화시킨 Run-1과 비교하여 각각의 구간을 길게 유지되었던 Run-2 조건에서 제거 효율이 높은 것으로 나타났다.

T-P의 형태별 제거율을 살펴보면 PO₄-P 역시 무산소(Anoxic), 호기(Aerobic) 구간을 길게 유지되었던 Run-2조건이 각각의 구간을 세분화시킨 Run-1조건 보다 효율이 높은 것으로 나타났다.

이는 무산소(Anoxic) 구간이 길게 유지되었던 운전 조건에서 충분한 인 방출을 유도하여 T-P 제거율이 높은 것으로 보고하였다.

본 연구에서도 무산소(Anoxic) 구간이 길게 유지되었던 Run-2 조건에서 T-P의 제거율이 높은 것으로 나타났으나, T-N의 제거율과 비교하여 볼 때 제거효율이 적은 것으로 나타났다.

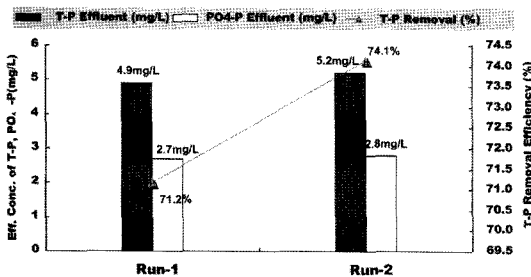


Fig. 4. Effluent concentration of T-P, PO₄-P and removal ratio of T-P.

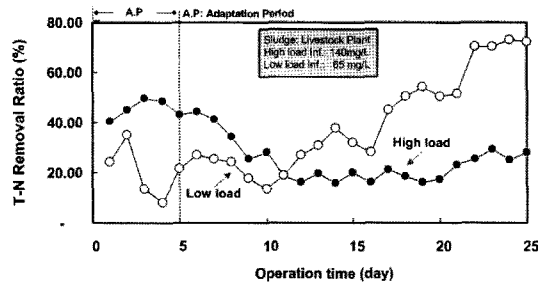


Fig. 5. Removal ratio of T-N according to influent load.

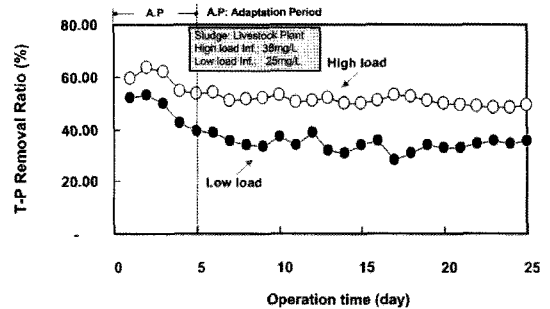


Fig. 6. Removal ratio of T-P according to influent load.

2. 유입부하에 따른 질소와 인의 제거특성

SBR공정으로 유입되는 유입수의 부하가 일정하지 않아 유입부하에 따른 질소와 인의 제거특성을 검토한 결과 Fig. 5, Fig. 6과 같은 결론을 얻었다.

유입부하에 따른 질소와 인의 제거특성을 검토한 결과 T-N의 경우 저부하로 반응조 유입시 슬러지 순유기간 4일동안 약 8.1%의 낮은 제거율을 보였지만 운전시간이 증가함에 따라 제거율이 약 72.4%까지 상승하는 것으로 나타났다. 하지만 고부하로 SBR 공정으로 유입시 초기부터 T-N 제거율이 감소하여 약 28.1%까지 제거율이 감소하였다.

이는 유입부하에 따른 질소 제거효율은 저부하로 유입시 고부하로 유입되는 경우보다 질소 제거율이 높은 것으로 볼 수 있다.

반면, 유입부하에 따른 T-P의 제거율을 살펴보면 유입부하에 관계없이 유출농도가 초기 슬러지 적응기간인 5일동안 감소하다가 가동시간 9일이 경과한 후 일정하게 유지되는 것으로 조사되었는데 이는 T-P제거에 있어 유입부하에 따른 제거효율은 질소에 비해 영향을 적게 받는다는 결론을 얻을 수 있었다.

3. 외부탄소원 주입방법에 따른 질소변화

외부탄소원의 주입은 무산소(Anoxic) 구간을 단축시키는 효과와 함께 완전탈질을 할 수 있다는 장점을 가

진다. 원수 중의 COD 농도와 SS 분율에 따라 다르기는 하나 일반적으로 탈질에 충분한 내부탄소를 가지지 못한다.⁸⁾ 이에, 무산소(Anoxic) 조건에서 질소제거를 높이기 위해 SBR 운전모드 Run-1, 2중 질소제거율이 낮은 Run-1 조건에서 외부탄소원으로 메탄올을 주입하여 회분식 실험을 수행하였다. 운전방법은 기존 SBR 운전 조건과 같이 유입수의 충격부하를 최소화하기 위해 무산소(Anoxic)-호기(Aerobic) 과정동안 연속적으로 주입하고, 무산소(1 hr)-호기(2 hr)의 7 cycle과 침전/유출(3 hr)의 방법으로 운전하였다. 외부탄소원의 주입방식은 외부탄소원을 무산소 조건일 때 분할해서 외부탄소원을 주입하는 간헐주입(Intermittent Feeding)식 방법과, 유입수와 외부탄소원을 섞어서 주입하는 혼합주입(Mixed Influent Feeding)식 방식으로 나누어 외부탄소원의 주입방법에 따른 질소변화를 알아보았다.

반응조의 C/N비는 2.93, COD용적부하(COD loading rate)는 0.034 g CODcr/L · day, HRT는 5 day, MLSS는 2,650 mg/l, DO는 2.17~2.85 mg/l로 유지하여 외부탄소원으로 액상 메탄올(CH₃OH)을 분할주입 또는 혼합주입하여 이용하였다. 각 조건에서 실시된 샘플을 채취하여, NO_x-N, NH₃-N를 분석한 결과 Fig. 7, Fig. 8과 같다.

외부탄소원인 메탄올을 SBR반응조에 유입되는 유입수와 혼합주입(Mixed Influent Feeding) 한 결과 NH₄-N의 경우 최종 유출수의 농도가 10 mg/l로 약 80%의

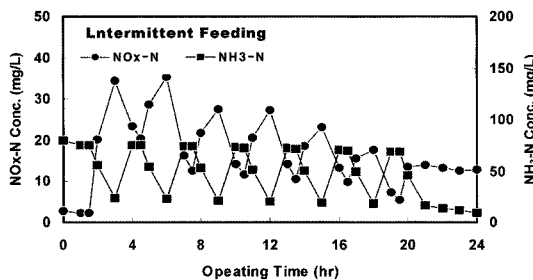


Fig. 7. Variation of T-N by intermittent feeding.

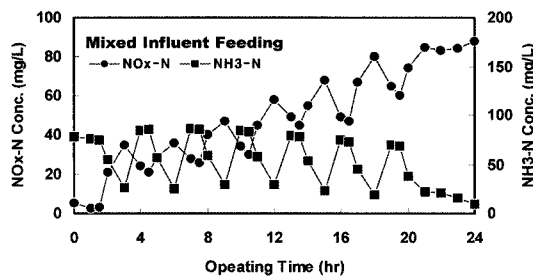


Fig. 8. Variation of T-N by mixed influent feeding.

제거효율을 보인 반면, NO_x-N의 경우 운전시간이 증가함에 따라 점차적으로 축적되어 운전초기에 비교하여 약 82 mg/l 농도가 증가하여 오히려 질소제거에 저해하고 있는 것이 뚜렷이 나타났다. 반면, 외부탄소원을 간헐주입 할 경우 NH₄-N의 경우 혼합주입 방식과 비교하여 제거효율이 약 87%로 비슷한 제거효율을 보였으나, NO_x-N의 경우 혼합주입방식과 다르게 운전시간이 증가함에 따라 NO_x-N 축적이 더 이상 진행되지 않고 질소가 제거되어 최종유출수의 농도가 약 12 mg/l로 높은 제거효율을 나타냈다.

전¹⁰⁾의 연구에서도 무산소구간에서 완전탈질을 유도하기 위해 외부탄소원의 주입방법에 따른 탈질율을 분석한 결과 반응조내 말단주입한 경우 질산화와 함께 NO_x-N이 점차 축적되어 탈질을 방해하는 것으로 나타났다으며, 외부탄소원을 분할주입 했을 경우 더 이상의 NO_x-N 축적이 일어나지 않아 탈질을 유도한다는 결과를 얻어 외부탄소원을 분할주입했을 경우가 말단주입했을 경우보다 질소제거 효율이 좋은 것으로 나타났다.

이상의 실험결과로부터 같은 양의 외부탄소원이라도 투입방법에 따라 공정효율이 크게 달라짐을 알 수 있었다.

IV. 결 론

본 연구에서는 축산폐수 처리를 위한 조합공정의 효율을 향상시키기 위해 후처리공정으로 연속회분식반응조(SBR)의 최적 운전조건을 얻기 위해 운전 Mode 변경, 유입부하의 변화에 따른 질소와 인의 제거성능, 외부탄소원의 주입방법에 따른 질소변화를 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 운전 Mode 변경에 따른 연속회분식반응조(SBR)의 운전결과 T-N 경우 Run-1이 약 67.1%, Run2의 경우 74.3%, T-P의 경우 Run-1이 71.2%, Run-2조건에서 74.1%의 제거율로 나타나 무산소(Anoxic), 호기(Aerobic) 구간 시간을 증가시킨 Run-2에서 제거율이 높은 것으로 나타났다.

2. 유입부하에 따른 질소와 인 제거 특성을 분석한 결과 질소의 경우 유입수가 저부하로 유입될 경우 고부하로 유입될 경우 보다 질소 제거 효율에 있어 효과적으로 나타난 반면 인 제거 효율에 있어 유입 부하에 따른 영향은 질소 제거특성에 비해 영향을 적게 받는 것으로 나타났다.

3. 외부탄소원 주입방법에 따른 질소변화 분석결과 외부탄소원을 간헐 주입했을 경우가 혼합 주입에 비해 질소제거에 효과적인 것으로 나타나 같은 양의 외부탄소

원이라 도 주입방법에 따라 공정효율이 달라지는 것을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 2008년 한서대학교 교내연구비 지원에 의하여 수행된 연구로 이에 깊은 감사 드립니다.

참고문헌

1. Woo, H. J., Jun, B. H., Im, J. H. : Determination of ORP control structure to control aeration period in SBR for piggery wastewater treatment. *Journal of Korea Society on Water Quality*, **19**(1), 9-16, 2003.
2. Yu, J. W., Lee, Y. S. : A study on treatment for Livestock wastewater using EGSB and ATAD. *Journal of Korea Society of Environmental Engineers*, **1**(2), 945-950, 2005.
3. Lee, S. K., Song, Y. I., Kwak, P. J. : The change of organics and nutrients according to aerobic condition in SBR process. *Water and Waste Water Treatment*, **9**(3), 89-97, 2001.
4. Park, Y. S., Jeong, N. S., Kim, D. S. : A comparison of nutrients removal characteristics by the variation of organics in A₂O SBR and A₂O SBBR for the small sewerage system. *Korea Journal of Environmental Health*, **8**(5), 451-461, 2002.
5. Standard Methods. Donghwa publication, 2001.
6. APHA : Standard methods for examination of water and wastewater. 20th ed, APPA, Washington, 1998.
7. Shin, S. W., Ji, D. H., Lee, J. K., Lee, K. H. : Comparison of nitrogen removal characteristics and nitrification/denitrification rate in SBR using real and synthetic wastewater. *Journal of Korea Society of Water Science and Technology*, **15**(2), 47-55, 2007.
8. Hong, J. H., Kim, S. I. : Removal of nitrogen and phosphorus by change of operation cycle in SBR process. *Applied Chemistry*, **6**(2), 771-774, 2002.
9. Lee, K. H., Lee, J. K. : Characteristics of nitrogen state with the variation of time distribution in SBR process. *Korean Society of Civil Engineers*, **25**(2B), 173-179, 2005.
10. Jun, B. H., Poo, K. M., Choi, E. H., Lee, H. I., Kim, C. W. : High-performance SBR operation by optimized feeding method of external carbon source for piggery wastewater treatment. *Journal of Korea Society of Environmental Engineers*, **3**(11), 1957-1964, 2002.
11. Han, G. B., Park, D. K., Lee, H. G. : Study on behavior of organic, nitrogen, and phosphorus in the sequencing batch reactor. *Journal of Korea Environmental Science Society*, **6**(5), 521-529, 1997.
12. Rivas, F. J., Beltran, F. J., Gimeno, O., Alvarez, P. : Optimisation of Fenton's reagent usage as a pre-treatment for fermentation brines. *Journal of Hazardous Materials*, **96**(2-3), 277-290, 2003.
13. Bernet, N., Delgenes, N., Akunna, J. C., Delgenes, J. P., Moletta, R. : Combined anaerobic-aerobic SBR for the treatment of piggery wastewater. *Water Research*, **34**(2), 611-619, 2000.
14. Ra, C. S., Lo, K. V., Shin, J. S., Oh, J. S., Hong, B. J. : Biological nutrient removal with an internal organic carbon source in piggery wastewater treatment. *Water Research*, **34**(3), 965-973, 2002.