



# 상수처리에서 염소 및 오존산화를 이용한 색도제거

## Chromaticity removal by chlorine and ozone oxidation in water treatment

이정훈<sup>1,2</sup>·김진근<sup>1\*</sup>

Jeonghoon Lee<sup>1,2</sup>·Jinkeun Kim<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>제주대학교 환경공학과, <sup>2</sup>제주도개발공사

<sup>1</sup>Dept. of Environmental Engineering, Jeju National University, <sup>2</sup>Jeju Province Development Corporation

### ABSTRACT

Optimal processes to remove chromaticity at E water treatment plant(WTP) mainly caused by algae of E lake in Jeju island were investigated based on lab-tests of chlorine and ozone oxidation. 42.9% of chromaticity of filtered water was removed by chlorine oxidation under pH 7.0~8.0, dose of 1.0 mg/L with contact time of 30~60 min. On the other hand, chromaticity removal was 71.4% when post-ozone dose of 0.9~1.9 mg/L and pH 9.0, while it was increased to 86.7% under post-ozone dose of 3.1~7.3 mg/L and pH 9.0. However, there was no significant chromaticity removal efficiency increase when ozone doses were higher than 5.0 mg/L regardless of feeding point(i.e., pre-ozonation and post-ozonation) and pHs(i.e., 7.0 and 9.0.) under the experimental conditions. Based on the results, chlorine oxidation using existing chlorination facilities at the WTP is recommended for lower chromaticity while ozone oxidation is recommended for higher chromaticity by installing new ozone feeding facilities.

**Key words:** Chlorine oxidation, Chromaticity removal, Ozone oxidation, Water Treatment

**주제어:** 염소산화, 색도제거, 오존산화, 상수처리

## 1. 서 론

자연수는 조류, 천연유기물질(NOM, natural organic matter), 망간 등에 의해서 색을 띠 수 있는데, 이를 나타내는 지표가 색도이다. 색도는 일반적으로 지표수 중에서도 정체된 호소수나 습지대에서 높게 나타나며, 강과 하천에서는 지표를 흘러가면서 일어나는 자정작용이나 산화반응 등에 의해서 색도가 일부 제거되어 상대적으로 낮게 나타난다. 일반적인 정수처리 공정(취수-응집-침전-여과-소독)에서 주요 제거대상 물질은 입자물질이므로, 용존성 물질인 색도 성분은 제거율이 낮아 색도가 높은 물은 정수장의 상수원수

로서 좋다고 할 수 없다(Yu and Cho, 2005).

수돗물에서의 색도 발생은 수질에 대한 안전성보다는 소비자에게 심미적으로 부정적인 영향을 주어 수돗물에 대한 전반적인 신뢰도 저하를 유발할 수 있다. 즉, 사람이 눈으로 인지할 수 있을 정도의 색도가 나타나는 물은 음용수로서 안전하지 않다고 할 수는 없지만 소비자로 하여금 색도로 인한 수돗물의 신뢰도를 떨어트릴 우려가 있다.

색도는 수생생물, 무기화학물질, 미네랄, 금속물질(망간, 철 등), 토양, 식물 등에 기인한 유기물질의 분해반응 등에서 발생 할 수 있으며, 수중에서의 색도는 겉보기 색도(apparent color)와 진색도(true color)로 구분한다(AWWA, 2010). 색도의 먹는 물 수질기준은 5도 이하이며, 시험결과 표시한계는 1도, 시험결과 표시자릿수는 '0'의 자리수이다(MOE, 2015b). 색도는 수질

Received 16 May 2016, revised 4 July 2016, accepted 1 August 2017

\*Corresponding author: Jinkeun Kim(E-mail: [kjinkeun@jejunu.ac.kr](mailto:kjinkeun@jejunu.ac.kr))

pp. 273-279

pp. 281-287

pp. 289-296

pp. 297-301

pp. 303-310

pp. 311-319

pp. 321-328

pp. 329-338

pp. 339-346

pp. 347-356

pp. 357-362

오염공정시험기준 주해에 제시되어 있는 방법으로 0.45  $\mu\text{m}$  유리섬유여과지(GF/C)를 이용하여 여과 후 측정된 값, 즉 진색도를 의미한다.

수중의 조류 또한 색도 발생의 원인이 될 수 있다. 조류(algae)는 수중에서 부유하면서 엽록소-a로 광합성을 통해 생식하는 식물성 플랑크톤을 말한다(MOE, 2015a). 조류에 의한 색도는 1차적으로 조류 체내에 가지고 있는 색소에 의해서 발생된다. 이뿐만 아니라 조류에 의해 분비되는 대사산물에 의해서도 나타난다. 수질오염공정시험기준에서 규정한 색도측정방법에 의하면 조류 체내에서 나타내는 색은 0.45  $\mu\text{m}$  GF/C에 여과되지만 조류의 대사산물은 GF/C를 통과하여 색도를 나타낼 것이다. 조류체내에서 나타내는 색에 비해서는 적은 양이지만 색을 낸다는 의미에서 매우 중요하다. 또한 조류 개체수에 따라서 색도의 차이가 뚜렷이 달라지며, 조류의 종에 따라서도 달라질 수 있다.

제주도의 대표적인 지표수 상수원인 E저수지는 준공후 약 45년간 사용하고 있어, 호소내 퇴적물에 의한 오염물질의 용출 및 영양염류의 지속적인 유입 등에 기인한 부영양화현상과 이에 기인한 조류개체수 증가, 색도 증가 현상 등이 발생 할 수 있다. 실제 2013년 3월에는 E저수지에서 색도가 40 도 이상으로 높게 측정되어 수질저하 현상이 일어났으며 이러한 현상이 반복적으로 발생한다면 정수장에서 색도제거에 대한 대책이 필요할 것으로 판단되었다. 제주도 E저수지의 경우 색도, 조류개체수, Chl-a, TOC, 철, 망간, 탁도, SS 등의 다양한 수질항목을 모니터링하고 수질인자간의 상관관계를 분석한 결과 E저수지의 색도 발생은 조류 개체수와 가장 상관성이 높은 것으로 조사되었다(JPWRH, 2015; Lee, 2016).

본 연구에서는 제주도 E정수장에 유입된 색도물질을 처리하기 위한 방안으로 현재 E정수장에서 운영중인 염소 산화처리방법과 추가적인 대안공정으로 고려할 수 있는 오존 산화처리방법을 통해 색도제거에 관한 lab-test를 실시하고 색도제거율을 비교 분석하여 E정수장에 적합한 처리공정 및 운전조건을 제시하고자 하였다.

## 2. 연구대상 및 방법

본 연구에서는 최대 저수용량이 100,000  $\text{m}^3$ 인 제주도 E저수지를 상수원으로 하는 E정수장(Q=15,000

$\text{m}^3/\text{d}$ )에서 원수의 색도를 제거하기 위한 추가 공정과 최적 운전 조건을 연구하였다.

E저수지는 최대수심이 7.5 m, 만수위가 해발 596 m로 제주도 한라산 중턱에 위치하고 있으며 대부분 용천수를 저수하여 집중호우기를 제외하면 원수의 탁도가 매우 낮은 수준으로 유지되고 있다. 시료수는 E저수지에서 색도가 상대적으로 높은 수심 1 m에서 채수하였다(JPWRH, 2015; Lee, 2016).

E정수장의 수처리 공정은 고탁도시기를 제외하고는 대부분 응집제 주입없이 압력식 급속모래여과기를 이용하여 입자물질을 제거하고, 후속되는 완속여과지에서 입자물질, 유기물 등을 제거하는 공정으로 구성되어 있다. 이후 여과수는 차아염소산칼슘( $\text{Ca}(\text{ClO})_2$ )으로 소독한 후 정수지를 통해 자연유하방식에 의해 수용가에 공급하고 있다(JPWRH, 2015).

본 연구에서 색도제거 효율평가는 염소산화와 오존산화에 대해서 실시하였다. 염소산화 실험은 E정수장에서 사용되는 고상의 차아염소산칼슘을 대신하여 액상의 차아염소산나트륨( $\text{NaOCl}$ )을 사용하여 실시하였다. E정수장에서 완속여과지 유출수를 대상으로 염소 소독을 실시하는 현장 여건을 고려하여, 본 연구에 사용한 시료 또한 E저수지 원수를 0.45  $\mu\text{m}$  GF/C로 여과하여 사용하였다.

염소산화 실험은 먼저 차아염소산나트륨을 100 mg/L으로 제조하고 여과한 시료 100 mL를 등근바닥 플라스크에 옮겨 담은 후 유리잔류염소 농도 기준으로 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8, 1.0, 1.5 mg/L가 되도록 주입하였다. 주입 후에는 주입구를 밀봉하여 균일하게 섞고 30분간 정치 한 후 잔류염소 농도와 색도를 측정하였다. 같은 방법으로 NaOH와 황산을 이용하여 pH를 7.0, 8.0, 9.0 조건으로 만든 후 pH에 따른 색도제거와 염소소모량에 대한 실험을 실시하였다. 또한 접촉 시간에 따른 색도제거율과 염소소모량을 알아보기 위하여 유리잔류염소 주입농도 1.0 mg/L에서 접촉시간을 1, 3, 5, 10, 20, 30, 60, 120분으로 나누어 위와 같은 방법으로 실험을 하였다. 잔류염소의 측정은 pocket colorimeter(HACH, USA)를 사용하여 실시하였다(Lee, 2016).

오존산화 실험은 원수를 대상으로 하는 전오존과 여과수를 대상으로 하는 후오존으로 구분하였다. 이를 위해 원수를 0.45  $\mu\text{m}$  GF/C 여과 전후로 나누어 실험을 실시하였다. 또한 pH의 변화에 따른 산화효율

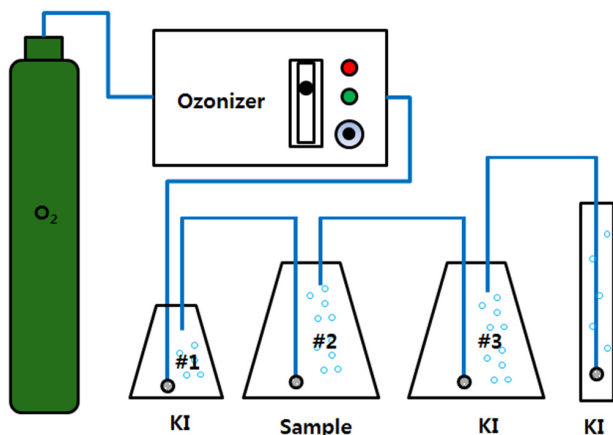


Fig. 1. Schematic of ozone experimental system.

비교 평가를 위하여 pH 7.0, 9.0 조건에서 색도 제거율을 분석하였다. 오존농도의 측정은 Standard methods에 제시되어 있는 KI방법을 이용하여 측정하였으며 (APHA et al., 2012), 오존발생기는 Ozonia사의 LAB2B를 사용하였다.

오존산화 실험은 두 단계로 나누어 진행하였으며, 첫 번째 단계에서는 오존발생기에서 발생하는 오존의 발생량이 같은 압력조건에서 동일하게 발생되는지를 평가하기 위한 재현성 평가 실험을 실시하였고, 두 번째 단계는 발생된 오존이 시료 안에 얼마만큼 용해되어 색도를 제거하는지에 대한 본 실험을 실시하였다. 용해되어 산화반응을 일으키는 오존의 양은 재현성 실험에서 얻은 오존량에서 본 실험에서 용해되고 나온 배오존의 차이로 산출하였다. 오존발생기를 가동하였을 때 말단

까지 배오존이 발생하는지를 알아보기 위하여 실험장치 말단에는 500 mL 매스실린더에 증류수 490 mL를 넣고 제조한 KI용액 10 mL를 넣어 500 mL로 하고 황산용액 2.5 mL를 주입하여 색의 변화를 관찰 하였다. 또한 각 플라스크에 오존 주입구에는 디퓨저를 연결하여 오존이 시료와 KI용액에 잘 용해될 수 있게 하였다. Fig. 1은 오존실험 장치 모식도이다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 염소산화 처리를 이용한 색도제거

E정수장에서의 염소산화는 소독을 위한 후염소처리 공정이며 정수지 전단에서 실시되고 있다. 따라서 본 연구에서도 현장 여건을 감안하여, 원수를 0.45  $\mu\text{m}$  GF/C에 여과한 시료를 대상으로 차아염소산나트륨 (NaOCl)의 주입률을 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8, 1.0, 1.5 mg/L로 하고 염소와의 접촉시간을 30분으로 하면서 pH 변화에 따른 색도 제거율을 평가하였다.

Table 1은 원수수질 및 실험조건을 나타내고 있으며, Table 2, 3, 4는 각각 pH 7.0, 8.0, 9.0에서의 염소주입률, 잔류염소, 염소소모량, 색도, 색도 제거율이며 Table 5는 pH 8.0, 염소주입농도 1.0 mg/L의 동일 조건에서 접촉시간에 따른 잔류염소, 염소소모량, 색도, 색도제거율에 대한 결과표이다.

Fig. 2에서 색도 제거율은 염소의 주입농도가 증가할수록 pH가 낮을수록 증가하는 것으로 나타났다. 염소주

Table 1. Raw water qualities and experimental conditions

Chromaticity (°)	pH	Temperature (°C)	Oxidizer	Chlorine dosage
7	8.0	18.4	NaOCl	0.3~1.5 mg/L

Table 2. Experimental results of chlorination at pH 7.0

No.	Chlorine dosage (mg/L)	Residual chlorine (mg/L)	Chromaticity (°)	Chlorine consumption (mg/L)	Chromaticity removal (%)
1	0.3	0.08	6	0.22	14.3
2	0.4	0.17	6	0.23	14.3
3	0.5	0.24	6	0.26	14.3
4	0.6	0.29	5	0.31	28.6
5	0.8	0.42	5	0.38	28.6
6	1.0	0.51	4	0.49	42.9
7	1.5	0.81	4	0.69	42.9

**Table 3.** Experimental results of chlorination at pH 8.0

No.	Chlorine dosage (mg/L)	Residual chlorine (mg/L)	Chromaticity (°)	Chlorine consumption (mg/L)	Chromaticity removal (%)
1	0.3	0.09	6	0.21	14.3
2	0.4	0.18	6	0.22	14.3
3	0.5	0.26	6	0.24	14.3
4	0.6	0.31	5	0.29	28.6
5	0.8	0.44	5	0.36	28.6
6	1.0	0.58	5	0.42	28.6
7	1.5	0.95	4	0.55	42.9

**Table 4.** Experimental results of chlorination at pH 9.0

No.	Chlorine dosage (mg/L)	Residual chlorine (mg/L)	Chromaticity (°)	Chlorine consumption (mg/L)	Chromaticity removal (%)
1	0.3	0.18	7	0.12	0.0
2	0.4	0.27	6	0.13	14.3
3	0.5	0.37	6	0.13	14.3
4	0.6	0.45	6	0.15	14.3
5	0.8	0.63	5	0.17	28.6
6	1.0	0.81	5	0.19	28.6
7	1.5	1.25	5	0.25	28.6

**Table 5.** Experimental results with contact time(pH-8.0)

No.	Contact time(min)	Residual chlorine (mg/L)	Chromaticity (°)	Chlorine consumption (mg/L)	Chromaticity removal (%)
1	1	0.84	6	0.16	14.3
2	3	0.62	6	0.38	14.3
3	5	0.58	5	0.42	28.6
4	10	0.55	5	0.45	28.6
5	20	0.50	5	0.50	28.6
6	30	0.46	5	0.54	28.6
7	60	0.42	4	0.58	42.9
8	120	0.39	4	0.61	42.9

입농도가 높을수록 양호한 제거율을 나타냈지만 주입 농도를 1.0 mg/L 이상으로 하였을 경우에는 색도제거율의 변화가 미미한 것으로 나타났다. pH 7.0, 8.0, 9.0에서의 색도 제거율을 평가한 결과, pH가 7.0일 때 색도제거율이 상대적으로 좋은 것으로 나타났다. 이는 pH가 낮을수록 OCl<sup>-</sup> 보다 HOCl의 비율이 높아지기 때문에 산화력이 상승하여 나타나는 결과로 판단된다.

한편, Fig. 3은 pH와 염소주입농도 변화에 따른 염소소모량을 나타내며, 동일 염소주입농도에서 pH가

낮을수록 염소소모량이 증가하였는데, 이는 pH가 낮을수록 염소의 산화력이 증가하여 색도제거율이 증가됨에 따라 나타나는 현상이라고 판단된다.

접촉시간에 따른 색도제거 효율을 나타낸 Fig. 4에서는 접촉시간이 60분 이상일 경우에는 뚜렷한 색도의 변화가 없는 것으로 나타났다. 따라서, 실험조건에서 E정수장에 적용 가능한 최적주입농도는 1.0 mg/L이며, 최적접촉시간은 30~60분으로 판단되며, 이때 색도제거율은 42.9%로 분석되었다.

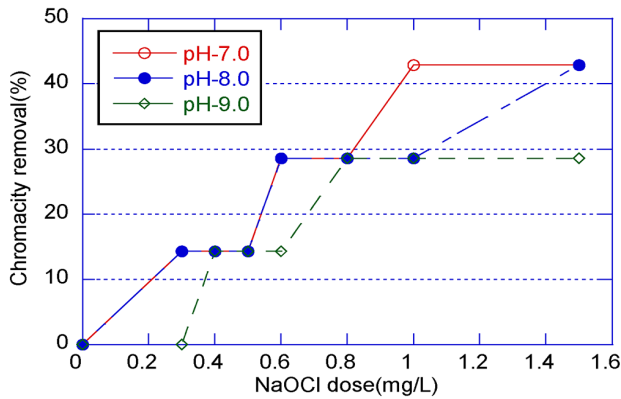


Fig. 2. Chromaticity removal with NaOCl dosage(0.3 ~ 1.5 mg/L) and pH(7.0~9.0).

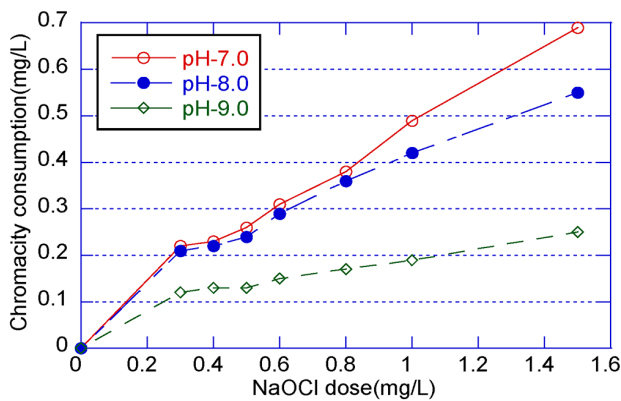


Fig. 3. Chlorine consumption with NaOCl dosage(0.3 ~ 1.5 mg/L) and pH(7.0~9.0).

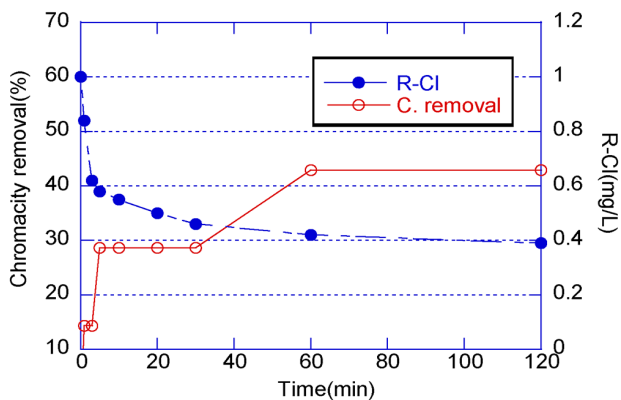


Fig. 4. Chromaticity changes under various contact times (pH=8.0, chlorine dosage=1.0 mg/L).

한편, 실제 정수장에서 염소산화물을 통해 색도를 제거할 경우에는 후염소 공정뿐만 아니라 전염소주입 공정을 통해서도 일정 부분 대응이 가능하므로, E정

수장의 경우 원수의 색도가 10 도 정도까지는 염소산화를 통하여 먹는물 수질기준인 5 도 이하 수준으로 생산할 수 있을 것으로 판단된다.

### 3.2 오존산화 처리를 이용한 색도제거

오존산화 실험은 원수를 사용하여 pH, 오존주입농도, 주입지점(여과 전·후) 변경 등에 따른 색도 제거율을 비교하였다. Table 6, 7은 pH 7.0 조건에서 각각 여과 전·후의 오존주입농도에 따른 색도와 색도제거율을 나타내었으며 Table 8, 9는 pH 9.0 조건에서 각각 여과 전·후의 오존주입농도에 따른 색도와 색도제거율을 나타내었다.

Fig. 5는 pH 7.0에서 전오존 및 후오존 산화에서 오존 주입률별 색도 제거율을 나타내고 있다. 오존의 주입률이 증가할수록 색도 제거율은 증가되었으며, 후오존의 경우가 전오존의 경우와 비교하여 색도 제거율이 높았는데 이는 후오존 처리의 경우 여과공정을 통해 피산화물질의 농도가 감소함에 따라 상대적으로 색도 제거율이 향상되는 것으로 판단된다. Fig. 6은 pH 9.0에서의 전오존 및 후오존 산화에서 오존 주입률별 색도 제거율을 나타내며, pH 7.0 조건에서의 실험과 유사한 결과를 나타내고 있다. 한편 pH 7.0, 9.0에서 색도 제거율을 비교하면, 염소산화 실험과는 반대로 pH가 높을수록 색도 제거율이 증가하는 것으로 나타났다.

한편, 오존의 주입농도가 3.0 mg/L 이상이 되면 pH 7.0, 9.0 두 조건에서 모두 색도제거율이 71.43% 이상이 되는 것을 알 수 있었다. 색도 제거율이 가장 높은

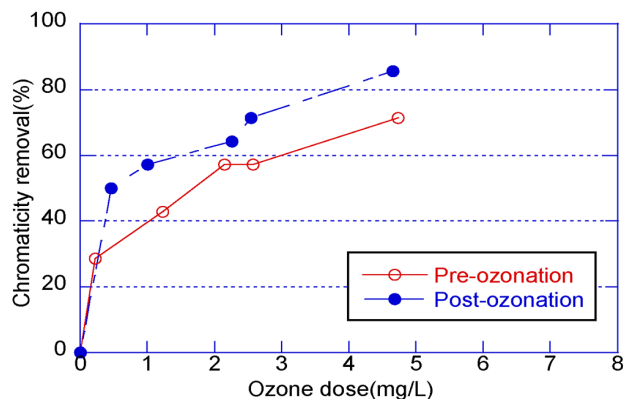


Fig. 5. Chromaticity removal with pre-ozonation and post-ozonation(pH 7.0).

pp. 273-279

pp. 281-287

pp. 289-296

pp. 297-301

pp. 303-310

pp. 311-319

pp. 321-328

pp. 329-338

pp. 339-346

pp. 347-356

pp. 357-362

조건인 pH 9.0에서는 후오존주입 농도가 0.9~1.9 mg/L에서는 색도가 71.43%가 제거되었으며, 후오존주입 농도가 3.1~7.3 mg/L에서는 85.71%가 제거되었다.

**Table 6.** Chromaticity removal with pre-ozonation(pH 7.0)

No.	Ozone dosage (mg/L)	Chromaticity (°)	Chromaticity removal (%)
1	0.220	5	28.6
2	1.230	4	42.9
3	2.150	3	57.1
4	2.573	3	57.1
5	4.732	2	71.4

**Table 7.** Chromaticity removal with post-ozonation(pH 7.0)

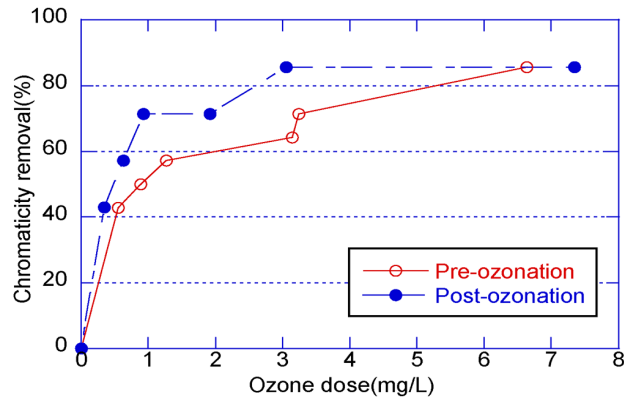
No.	Ozone dosage (mg/L)	Chromaticity (°)	Chromaticity removal (%)
1	0.459	3.5	50.0
2	1.005	3	57.1
3	2.255	2.5	64.3
4	2.542	2	71.4
5	4.657	1	85.7

**Table 8.** Chromaticity removal with pre-ozonation(pH 9.0)

No.	Ozone dosage (mg/L)	Chromaticity (°)	Chromaticity removal (%)
1	0.553	4	42.9
2	0.885	3.5	50.0
3	1.271	3	57.1
4	3.146	2.5	64.3
5	3.243	2	71.4
6	6.634	1	85.7

**Table 9.** Chromaticity removal with post-ozonation(pH 9.0)

No.	Ozone dosage (mg/L)	Chromaticity (°)	Chromaticity removal (%)
1	0.343	4	43.0
2	0.625	3	57.1
3	0.931	2	71.4
4	1.918	2	71.4
5	3.051	1	85.7
6	7.348	1	85.7



**Fig. 6.** Chromaticity removal with pre-ozonation and post-ozonation(pH 9.0).

### 3.3 염소 및 오존산화를 이용한 색도제거 효율 비교 및 현장 적용방안

여과수에 대한 염소산화와 오존산화를 이용한 색도 제거율은 주입농도 1.0 mg/L, pH 7.0 조건에서 각각 42.9%, 57.1%로 나타났다. 산화제 주입농도를 0.5 mg/L로 낮추었을 때는 염소산화는 14.3%, 오존산화는 약 50%의 색도제거율을 나타냈다. 또한 산화제 농도를 1.0 mg/L 이상으로 주입했을 경우 염소산화의 경우 42.9%에서 더 이상 증가하지 않았으나 오존산화의 경우는 약 85.7%까지 제거율이 상승하였다.

색도제거 효율은 동일 실험 조건에서 오존산화가 염소산화에 비하여 우수한 것으로 분석되었다. 하지만 연구대상인 E정수장의 경우 오존주입 설비가 설치되어 있지 않으므로 오존산화공정을 신규로 도입하기 위해서는 초기 설치비 및 운전비용 등이 고려되어야 할 것이다. 염소산화의 경우에는 E정수장에서 기존에 소독 용도로 시설을 운영하고 있으므로 추가적인 시설이 필요 없어 경제적인 측면에서도 유용한 방법으로 판단된다. 따라서 저농도의 색도가 유입될 경우에는 기존에 설치된 염소산화공정의 효율화를 통해서 대응하고 고농도의 색도가 유입 될 경우 오존산화 공정의 도입을 검토하는 것이 바람직할 것으로 판단된다.

## 4. 결 론

본 연구에서는 제주도 E저수지에 발생한 색도를 E정수장에서 제거하기 위해서 염소 및 오존산화 lab-test를 통해 색도제거율을 평가하고 적합한 정수처리공정을



도출하고자 하였으며, 결론은 다음과 같다.

1) 염소산화처리를 이용한 색도제거 실험 결과 최적주입농도는 1.0 mg/L이며, 접촉시간은 30~60분으로 나타났다. 최적 염소주입농도와 접촉시간에서 pH 7~8 조건이라면 여과수의 색도를 42.9% 제거할 수 있을 것으로 분석되었다.

2) 오존산화에서는 전·후오존과, pH 7.0, 9.0 조건에서 모두 주입농도가 5.0 mg/L 이상에서는 색도 제거율에 대한 큰 변화는 없는 것으로 분석되어, 정수처리공정에 적용할 때에는 오존주입농도를 5.0 mg/L 이하로 설정하는 것이 운영 효율화 측면에서 타당할 것으로 판단된다.

3) 색도제거율이 가장 높은 오존산화 실험조건은 pH 9.0, 후오존처리에서 나타났으며 pH 9.0, 후오존주입 농도가 0.9~1.9 mg/L에서는 색도가 71.4%가 제거되었으며, 후오존주입 농도가 3.1~7.3 mg/L에서는 85.7% 제거되었다.

4) E정수장에서 10도 이하의 색도가 유입될 경우에는 현 정수처리공정(염소산화)의 효율화(주입농도 증가, 주입지점 다변화 등)를 통해서 대응이 가능하지만 10도 이상의 색도가 유입될 경우에는 오존산화 공정의 도입을 적극적으로 검토할 필요가 있는 것으로 판단된다.

## 사 사

이 논문은 2017학년도 제주대학교 교원성과지원사업에 의하여 연구되었음

## Reference

- APHA(American Public Health Association), AWWA(American Water Works Association), WEF(Water Environment Federation) (2012). Standards Methods For the Examination of Water and Wastewater, 22nd Ed. pp. 2-50~2-21.
- AWWA (2010). Water Quality, 4th Ed.
- JPWRH(Jeju Province Water Resources Headquarters) (2015). www.jejuwater.go.kr
- Lee, J.H. (2016). A Study on Identification of Chromaticity Cause in Eoseungsaeng Lake and Water Treatment Method, Master's Thesis, Jeju National University.
- MOE(Ministry of Environment) (2015a). Annual Reports on Occurrence and Response of Algae in 2014.
- MOE (2015b). Korean Standards Methods For the Examination of Water Pollution.
- Yu, M.J., Cho, Y.M. (2005). Water Treatment, Donghwa, pp. 426~428.

pp. 273-279

pp. 281-287

pp. 289-296

pp. 297-301

pp. 303-310

pp. 311-319

pp. 321-328

pp. 329-338

pp. 339-346

pp. 347-356

pp. 357-362