

사질토양에서의 과산화수소 및 미생물에 의한
Benzene의 이동 및 분해특성

백두성 · 박춘화 · 김동주 · 김희성* · 이한웅** · 박용근**

고려대학교 이과대학 지구환경과학과 · *순천제일대학 토목공학과 · **고려대학교 생명공학원

**Transport and Degradation of Benzene affected by Hydrogen Peroxide and
Microorganism in a Sandy Soil**

Doo-Sung Baek · Choon-Hwa Park · Dong-Ju Kim · Hee-Sung Kim* ·
Han-Woong Lee** · Yong-Keun Park**

Dept. of Earth and Environmental Sciences, Korea University

**Graduate School of Biotechnology, Korea University*

***Department of Civil Engineering, Sunchon First College*

ABSTRACT

Benzene, one of the aromatic hydrocarbons, can be degraded by physical, chemical and biological processes in aquifers. This study aimed at analyzing separately the three different forms of degradation by performing column tests. Column tests using KCl and benzene as tracers were conducted for four different cases: 1) no hydrogen peroxide and no microorganism; 2) hydrogen peroxide only; 3) microorganism only; 4) hydrogen peroxide and microorganism to investigate the sorption and degradation of benzene. The observed BTCs of KCl and benzene in all cases showed that the arrival times of the peaks of both tracers coincided well but the peak concentration of benzene was much lower than that of KCl. This reveals that a predominant process affecting the transport of benzene in a sandy soil is an irreversible sorption and/or degradation rather than retardation. Decay of benzene through sorption and degradation increased with the addition of hydrogen peroxide and/or microorganism. Dissolved oxygen decreased with the increase of benzene in all cases indicating that degradation of benzene was also influenced by dissolved oxygen. For BTCs with the addition of microorganisms (case 3 and case 4), microorganism showed much lower concentrations compared to the initial levels and an increasing tendency with time although concentrations of benzene returned to zero, indicating a possible retardation of microorganism due to reversible and irreversible sorption to the particle surfaces.

Key Words : Sandy Soil, Hydrogen peroxide, Microorganism, Benzene, Degradation

요약문

방향족 탄화수소계 화합물중 하나인 benzene은 대수층내에서 물리, 화학, 생물학적 작용에 의하여 분해될 수 있다. 본 연구의 목적은 주상실험을 통하여 세가지 서로 다른 형태의 분해를 분석하는 것이다. 사질토양에서 benzene의 이동특성을 고찰하기 위하여 KCl 및 benzene을 추적자로 사용한 서로 다른 네 가지 경우 (case 1: 과산화수소수와 미생물을 모두 적용하지 않은 경우, case 2: 과산화수소만, case 3: 미생물만, case 4: 과산화수소와 미생물을 모두 적용)의 주상실험이 수행되었다. 모든 경우의 주상실험에서 도출된 KCl 및 benzene의 파과곡선에서 첨두농도의 도달시간은 거의 일치하였고 benzene의 첨두농도가 KCl의 값보다 매우 낮았다. 이 결과로부터 benzene의 운송에서 가장 큰 영향을 미치는 것은 자연현상이 아닌 비가역 흡착 및 분해에 의한 감쇄작용임을 알 수 있었다. 흡착 및 분해에 의한 benzene의 감쇄작용은 과산화수소 및 미생물을 첨가하였을 때 증가하였다. 모든 경우의 주상실험에서 용존산소는 benzene의 농도가 증가할수록 감소하였으며 이것은 benzene의 분해에 의하여 용존산소가 소모되었음을 의미한다. 미생물을 첨가한 주상실험 결과 (case 3과 case 4) 침출수에서의 미생물의 농도는 초기 주입농도보다 매우 낮았고, benzene이 파과한 후에도 시간이 지남에 따라 증가하였으며 이것은 토양 표면으로의 가역 및 비가역 흡착에 의한 미생물의 자연현상에 기인한 것이라고 사료된다.

주제어 : 사질토양, 과산화수소, 미생물, 벤젠, 분해

1. 서 론

최근들어 토양 및 지하수의 오염은 심각한 환경문제로 대두되고 있다. 특히 주유소나 지하유류저장탱크에서 유출되는 탄화수소계 화합물에 의한 오염은 암이나 돌연변이 등의 유발원으로 작용하여 관심이 집중되고 있으며, 유류오염의 복원에 있어서 탄화수소계 화합물의 이동 및 분해 특성을 파악하는 것은 중요한 선결과제라고 할 수 있다.

Benzene은 휘발유내 성분중 가장 용해도가 높은 탄화수소계 화합물로서 (25°C에서 1780 mg/L) 대수층에서 유류의 오염범위를 파악하는데 추적자로서 사용될 수 있다(Hadley and Armstrong, 1991). 백과김(1999)은 사질토양에서의 batch 실험 및 주상실험을 수행하므로써 benzene의 운송은 자연효과가 아닌 비가역 흡착에 의한 감쇄현상에 의해 지배된다고 보고하였다. 최진호 등(1997)에 의하면 석유로 오염된 토양은 과산화수소를 이용하여 펜톤유사반응에 의해 처리할 수 있으며, 김창희 등(1999)은 과산화수소가 생

분해에 있어서의 산소공급원으로 활용될 수 있다고 보고하였다. Hendry *et al.* (1997)은 사질토양에서 미생물 흡착의 역할에 대하여 연구하였으며, 주상실험 결과 미생물의 가역 및 비가역 흡착이 발생하였다고 보고하였다.

휘발유, 경유 등의 탄화수소계 화합물은 산소가 있는 조건에서 쉽게 생분해되며(Lee *et al.*, 1987), 그중 특히 benzene, toluene, ethylbenzene 그리고 xylene 등이 잘 분해된다. Baker *et al.* (1987)은 사질대수층에서의 현장실험에서 주입된 7.6 mg/L의 BTEX 화합물이 생분해에 의하여 434일 후에는 완전히 제거되었으며 이것은 실내에서의 미생물 실험에 의한 연구결과와도 일치한다고 보고하였고, Chiang *et al.* (1989)의 연구에 의하면 충분한 산소가 공급되는 microcosm에서 BTEX의 제거율은 80~100 %로 나타났다. 본 연구의 목적은 사질토양에서의 대류, 화산, 흡착, 분해와 같은 benzene의 이동특성을 파악하고, 과산화수소 및 미생물이 benzene의 분해에 미치는 영향을 분석하며, 용존산소의 농도에 따른 미생물

의 분포를 조사하는 것이다. 이를 위하여 과산화수소 및 유류분해 미생물의 유무에 따른 주상실험을 수행하여 비교 분석하였다.

2. 이 론

Benzene은 반응성 유기오염물로서 다공성 매질에서 지연, 감소 혹은 분해작용을 일으키며, Local Equilibrium Assumption (LEA)을 도입할 때 일차원 운송방정식은 다음과 같다(Parker and van Genuchten, 1984).

$$R \frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V \frac{\partial C}{\partial x} - \mu C \quad (1a)$$

$$R = 1 + \frac{\rho_b}{\theta} K_d \quad (1b)$$

여기에서 C는 용질의 농도 (g/L), R은 지연계수 (-), D는 확산계수 (cm^2/min), V는 공극수의 속도 (cm/min), μ 는 감쇄계수 (1/min), t는 시간 (min), x는 거리 (cm), ρ_b 는 용적밀도 (g/cm^3), θ 는 함수율 (-), 그리고 K_d (mL/g)는 분배계수이다. 비가역 일차비평형 흡착모델은 다음과 같다:

$$\frac{\partial S}{\partial t} = kC_{eq} \quad (2)$$

여기에서 S는 흡착된 용질의 양 ($\mu\text{g}/\text{g}$), k는 일차감쇄율상수 ($\text{mL}/\text{g} \cdot \text{min}$), C_{eq} 는 평형농도 (mg/L)이며, 감쇄계수 μ 는 다음 식과 같이 표현된다.

$$\mu = k \frac{\rho_b}{\theta} \quad (3)$$

감쇄현상은 공극수내의 용질이 토양입자에 흡착되거나 분해됨으로써 용액내의 용질의 농도가 감소하는 것을 말하며, 본 연구에서는 비가역성 흡착에 의한 감쇄, 과산화수소에 의한 분해, 그리고 미생물에 의한 분해의 세 가지 요소로 구분하여 고찰하였다.

3. 실험방법 및 재료

3.1 주상실험

본 연구에 사용된 토양시료는 입경 0.5 mm 이하의 사질토양으로서, organic carbon content는 0.05 %였으며 직경 7.4 cm, 높이 20 cm의 아크릴 실린더 4개에 각각 균질하게 성형되었으며 공극율은 0.34, 용적밀도는 1.75 g/cm³이었다. 순간주입 주상실험의 추적자로서 보존성 화학물질인 KCl과 반응성 화학물질인 benzene을 혼합한 용액을 사용하였다. 과산화수소 및 미생물 유무에 따라서 순간주입 주상실험이 수행되었으며, 실험조건은 Table 1과 같다. 실험에 사용된 미생물은 *Pseudomonas* sp.로서, benzene으로 오염된 사질토양에서 성장하는 미생물 중에서 적응시간이 비교적 빠르고 ampicillin, kanamycin, tetracycline 같은 항생제에 내성이 있어 주상실험의 추적자로 사용하기에 적절한 종을 선택하였다. 분리선별된 미생물은 benzene을 영양분으로 하여 농축배양되었고, 사질토양내 자생미생물의 농도와 같은 10⁵ CFU/mL가 되도록 추적자에 혼합되었으며 이때의 온도는 25°C, pH는 7.0이었다. 과산화수소는 추적자 주입 전후의 용탈수

Table 1. Experimental conditions of column tests

Column test	Tracer Conc.			Hydrogen Peroxide Conc. (%)	Specific flux (cm/day)
	KCl (g/L)	Benzene (g/L)	Microorganism (CFU/mL)		
BTC1	10	1	0	0	222
BTC2	10	1	0	0.025	203
BTC3	10	0.5	1.0 × 10 ⁵	0	38
BTC4	10	0.5	1.0 × 10 ⁵	0.025	10

에 혼합되었으며 과산화수소의 농도 (0.025 %)는 미생물에 대한 과산화수소의 독성을 알아보기 위한 예비 실험으로부터 결정되었다.

주상실험은 일정 수두의 정상류 상태에서 수행되었으며 토양시료 표면에 100 mL의 추적자를 순간주입하였고 주입이 끝난 후 용탈수로 1 cm 높이의 수두를 부과하였다. 순간주입후 시료하부 바닥면으로부터 배출되는 침출수로부터 KCl, benzene, 용존산소 (DO), 미생물의 파과곡선 (BTC)을 획득하였다. KCl과 benzene의 농도는 전기전도도와 농도의 상관관계에 대한 검정곡선과 High Performance Liquid Chromatography (HPLC)를 이용하여 분석하였다. 용존산소의 농도는 Orion 835A DO-meter로 측정하였고 온도와 용존산소의 상관관계를 이용하여 20°C에서의 값으로 보정하였으며, 미생물의 개체수는 Plate counting 방법 (Bruce *et al.*, 1999)을 이용하여 산정하였다.

3.2 자료분석

사질토양의 운송특성을 나타내는 대류계수 (V)나 확산계수 (D)와 같은 운송 파라미터는 KCl의 파과곡선으로부터 식 (1)의 해석해인 CXTFIT 프로그램 (Parker and van Genuchten, 1984)을 이용하여 비선형 최적역산법에 의하여 추정할 수 있다. 본 연구에서 대류계수는 토양시료의 길이를 첨두농도의 도달시간으로 나누어 산정하였고, CXTFIT 프로그램을 이용하여 확산계수를 추정하였다. 운송 파라미터 (V , D)를 이용하여 benzene의 BTC에서 나타난 농도저하

를 모사할 수 있는 감쇄계수 (μ)를 추정하였다. 또한 KCl에 대한 benzene의 질량회복도 (Mass Recovery)를 산정함으로써 KCl에 대한 benzene의 감소비율을 비교하여 감쇄현상에서 비가역 흡착, 과산화수소에 의한 분해, 미생물에 의한 분해가 차지하는 비율을 고찰하였다. 질량회복도는 추적자 주입농도와 주입시간의 곱에 대한 파과곡선의 면적의 비로부터 산정되었다.

$$\text{Mass recovery (\%)} = \frac{\int_0^\infty C dt}{C_0 \cdot t_0} \times 100 \quad (4)$$

4. 결과 및 토의

과산화수소 및 미생물 유무에 따른 파과곡선은 Fig. 1과 같다. 모든 실험조건에서 KCl과 benzene의 첨두농도의 도달시간은 거의 일치하였고 benzene의 첨두농도가 KCl의 첨두농도보다 감소됨을 알 수 있었다. 첨두농도의 도달시간이 일치한다는 결과는 자연효과가 일어나지 않았다는 것을 지시하며 benzene 첨두농도의 감소는 감쇄현상에 의한 것이라고 사료된다. KCl에 대한 benzene의 첨두농도의 비율은 과산화수소와 미생물을 모두 적용하지 않은 BTC1에서 0.48로 나타났으며 과산화수소만을 적용한 BTC2에서 0.30, 미생물만을 적용한 BTC3에서 0.26, 과산화수소와 미생물을 모두 적용한 BTC4에서 0.10으로 가장 적게 나타났다. 이는 감쇄현상이 비가역흡착만 일어나는 경우보다는 과산화수소나 미생물에 의한 분해가 같이 일어나는 경우에 더 크게 나타난다는 것을 의미한다.

Table 2. Transport parameters and mass recoveries of KCl and Benzene

	V (cm/min)	D (cm ² /min)	Coefficient of Determination (R ²)	μ (1/min)	Relative decay amount (-)	Mass Recovery of KCl (%)	Mass Recovery of Benzene (%)	Mass Recovery Ratio of Benzene to KCl
BTC1	0.44	0.47	0.92	0.0080	1.92	134	87	0.65
BTC2	0.40	0.23	0.79	0.0140	3.36	141	55	0.39
BTC3	0.13	0.31	0.89	0.0095	5.23	80	32	0.40
BTC4	0.05	0.08	0.88	0.0058	12.72	100	22	0.22

보존성 화학물질인 KCl 파과곡선으로부터 추정된 대류계수 (V)와 확산계수 (D)는 Table 2와 같다. KCl로부터 획득한 V , D 와 감쇄계수를 이용하여 benzene의 파과곡선을 최적화한 결과 추정된 감쇄계수는 BTC4, 1, 3, 2의 순으로 증가하였다. 감쇄율이 가장 높은 BTC4에서 가장 작은 감쇄계수가 추정되었는데, 이는 감쇄계수가 식 (3)에서 나타난 바와 같이

일차 감쇄율상수 k 에 비례하고 k 는 시간에 반비례하 이기 때문이다(식 (2)). 감쇄계수에 실험에 소요된 시 간을 곱하여 계산된 상대 감소량 (Relative decay amount)은 BTC1, 2, 3, 4의 순으로 증가하여 첨두 농도의 감소율과 유사한 경향을 나타내었다(Table 2).

KCl에 대한 benzene의 질량회복도가 Table 2에

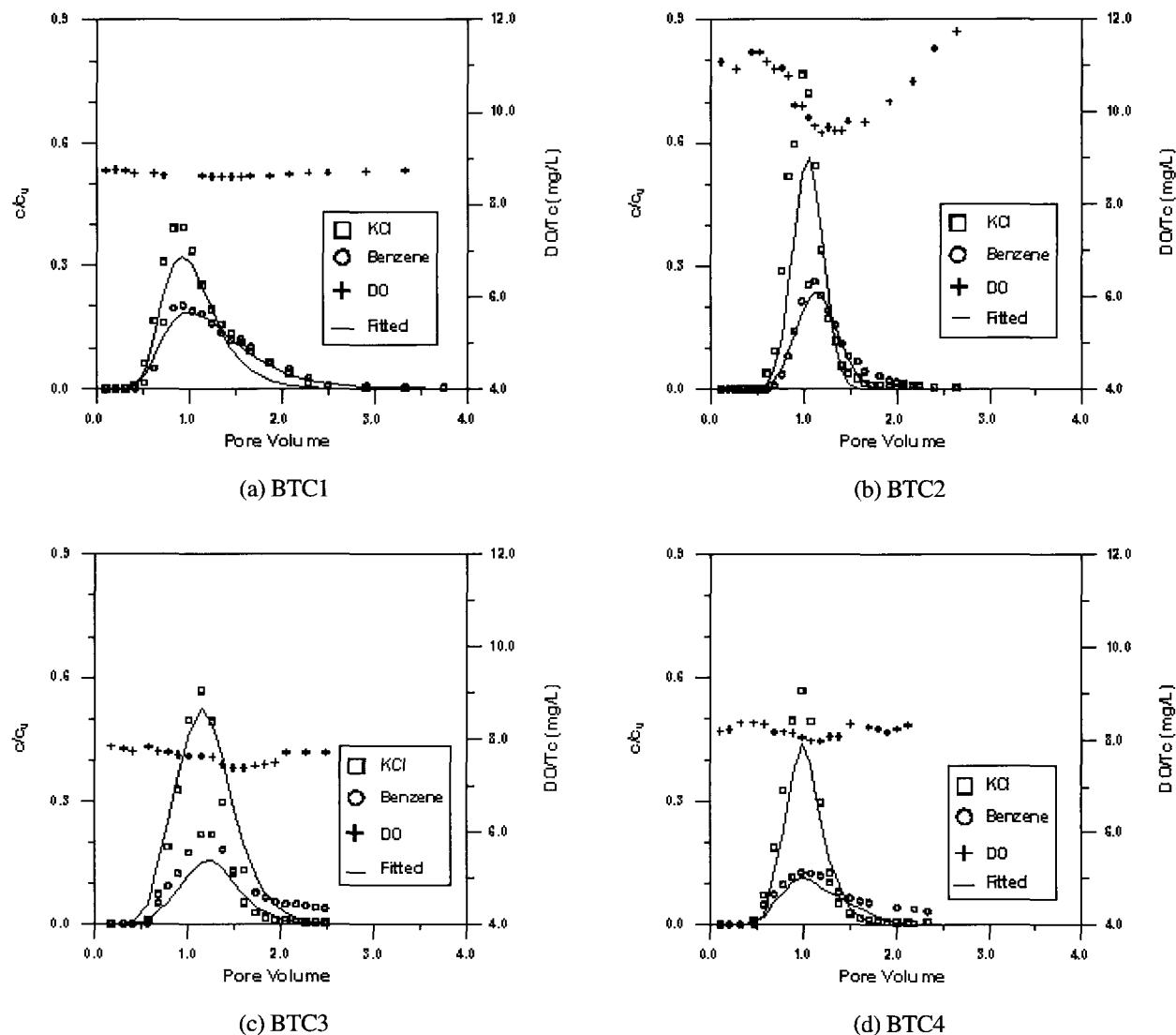


Fig. 1. BTCs of KCl and benzene for a sandy soil column obtained from four different cases regarding the presence of hydrogen peroxide and microorganism ((a) no hydrogen peroxide and no microorganism, (b) hydrogen peroxide only, (c) microorganism only, (d) hydrogen peroxide and microorganism).

Table 3. Dissolved oxygen concentrations of column tests

	Initial DO (mg/L)	peak DO (mg/L)	Difference (mg/L)	Specific flux relative to BTC4
BTC1	8.74	8.59	0.15	22.2
BTC2	11.08	9.53	1.15	20.3
BTC3	7.73	7.38	0.35	3.8
BTC4	8.36	7.97	0.39	1.0

나타나 있으며, BTC1, 2, 3, 4의 순으로 감소하였다. 그러나 보존성 화학물질의 경우에도 질량회복도가 항상 100 %가 되는 것은 아니므로 KCl의 질량회복도에 대하여 환산된 benzene의 질량회복도로부터 감쇄비율을 산정하였으며, 첨두농도의 감소율과 유사한 경향을 나타내었다. 이것은 비가역 흡착, 과산화수소 및 미생물에 의한 분해 등에서 기인한 감쇄작용에 의한 것으로 사료되며, 각각의 파과곡선에서의 감쇄비율은 35 %, 61 %, 60 % 그리고 78 %로 나타났다. BTC1의 감쇄비율인 35 %는 비가역 흡착에 의한 것이며, BTC2의 61 %는 비가역 흡착 및 과산화수소에 의한 분해의 결과이므로 과산화수소는 26 %를 분해시켰고, BTC3에서 미생물에 의한 분해는 25 %를 차지한다. 과산화수소 및 미생물을 모두 적용한 BTC4의 감쇄비율은 앞의 세가지 요소의 합인 86 %가 아닌 78 %였으며 이것은 과산화수소와 미생물 각각을 적용할 때보다 분해효율이 약 8 % 적게 나타났음을 의미한다. 그러므로 유류오염의 복원에는 자연적인 흡착에 의한 감쇄 및 확산에 의한 농도저하를 고려해야 하고, 과산화수소나 미생물 첨가, 혹은 동시 적용 등 복원기법에 따른 분해율을 결정하는 것이 중요하다고 사료된다.

용존산소 농도의 변화는 benzene의 모든 경우에 파과곡선과 대칭적인 양상을 보여 benzene의 농도가 증가할 때 용존산소의 농도는 감소하였으며, 이것은 benzene의 분해에 용존산소가 소모됨을 의미한다 (Fig. 1). Chiang *et al.* (1989)은 현장실험을 통하여 용존산소는 지하수의 BTX 농도와 반비례하며 용존산소가 0.9 ppm 이상일 때 BTX는 검출되지 않았다고 보고하였다. 초기 용존산소 농도는 공극유속이 빠른 BTC1, 2가 BTC3, 4보다 큰 값을 보였으며, 과산화

수소를 적용한 BTC2, 4에서 BTC1, 3보다 큰 값을 보였다. 이로부터 공극유속이 빠를수록 용존산소가 많으며, 유사한 공극유속에서는 과산화수소를 적용한 경우 용존산소 농도가 높게 나타남을 알 수 있었다 (Table 3). 초기 용존산소와 첨두 용존산소 농도의 차이, 즉 산소 소모율은 공극유속이 빠르고 과산화수소를 적용한 BTC3에서 가장 높았고, 과산화수소와 미생물을 모두 적용하지 않은 BTC1에서 가장 낮았다. 미생물을 적용한 BTC3, 4에서는 BTC1보다 높았는데 그 중 과산화수소와 미생물을 모두 적용한 BTC4에서 다소 높았다.

Fig. 2는 BTC3과 4에서 시간별 미생물 농도 변화를 보여주고 있다. 두 경우 모두 미생물의 개체수는 benzene의 파과곡선과는 무관하게 실험시간이 진행됨에 따라 점차 증가하였으며, 주입용액에서의 농도인 10^5 CFU/mL보다 매우 낮은 값을 보였다. Hendry *et al.* (1997)이 수행한 미생물에 대한 주상실험에 의하면 토양 표면에서 가역 및 비가역 흡착에 의한 지연 현상이 발생하였으며, 본 연구에서 나타난 미생물 분포도 이러한 지연효과에 의한 것이라고 사료된다. 미생물의 농도는 과산화수소를 적용한 경우 (BTC4)가 그렇지 않은 경우 (BTC3)보다 더 높게 나타났으나 이는 주상실험에서 미생물 농도는 공극유속이 증가함에 따라 높아진다고 보고한 연구결과 (Wollum and Cassel, 1978; Smith *et al.*, 1985; and Tan *et al.*, 1994; Roger *et al.*, 1995)와 배치되며, 그 이유는 본 연구에서 BTC4의 경우 공극유속이 BTC3의 경우보다 낮아 미생물의 적응시간이 증가하였고 과산화수소가 산소공급원으로서 작용하여 미생물 성장을 촉진하였기 때문이라고 사료된다.

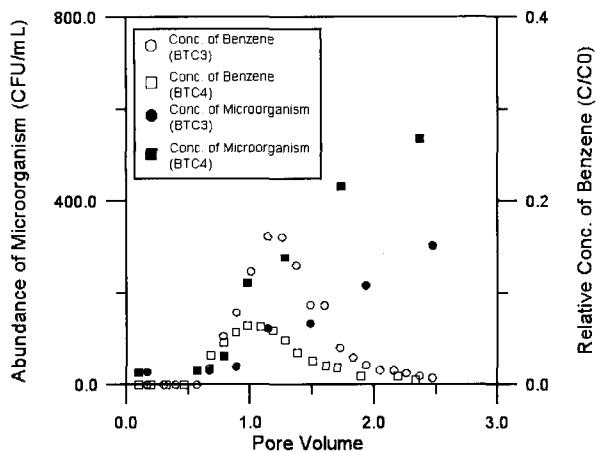


Fig. 2. BTCs of microorganism in comparison of benzene for BTC3 and BTC4 (BTC3: without hydrogen peroxide, BTC4: with hydrogen peroxide).

5. 결 론

Benzene의 흡착 및 분해특성을 알아보기 위하여 과산화수소 및 유류분해 미생물의 유무에 따른 주상실험을 수행였고, 감쇄현상을 비가역 흡착, 과산화수소에 의한 분해, 미생물에 의한 분해의 요소로 구분하여 고찰하였다. 모든 실험조건에서 동일한 첨두도달시간에 대하여 benzene의 첨두농도가 KCl의 첨두농도보다 감소되어 자연현상이 아닌 감쇄현상이 발생하였다. KCl에 대한 benzene의 첨두농도의 비율은 BTC1, 2, 3, 4의 순으로 나타났으며 이는 감쇄현상이 비가역 흡착만 일어나는 경우 (BTC1) 보다는 과산화수소 (BTC2)나 미생물 (BTC3) 혹은 과산화수소와 미생물을 동시에 적용한 경우 (BTC4)에 더 많이 발생한다는 것을 의미한다. 실험시간을 고려한 감쇄비율과 KCl에 대한 benzene의 질량회복도의 비도 과산화수소 및 미생물 조건에 따른 benzene의 감쇄현상과 유사한 양상을 나타내었다. 용존산소의 변화는 benzene의 파과곡선과 대칭적인 양상을 보였으며, benzene의 분해에 용존산소가 소모됨을 알 수 있었다. 시간별 미생물 농도는 파과곡선 실험시간이 진행됨에 따라 점차 증가하였으며 공극유속보다는 용존산소에 의한 영향이 미생

물 생장에 더 지배적인 것으로 나타났다.

감사의 글

본 연구는 과학재단의 특정기초연구사업 (98-0703-03-01-3)의 재정적 지원으로 수행된 연구과제로, 연구비를 지원해주신 관계기관에 감사 드린다.

참 고 문 헌

1. 김창희, 김용수, 강순기, 공성호, "Soil Flushing과 Bioremediation 복원기술의 동시적용시 산소공급 원으로서의 과수적용에 관한 연구", 1999년도 대한지하수환경학회 한국토양환경학회 정기총회 및 춘계 공동 학술발표회, pp.76-77 (1999)
2. 백두성, 김동주, "사질토양에서의 Benzene의 이동 성에 관한 연구", 지하수환경학회지, 6(2), pp.95-100 (1999)
3. 최진호, 김재호, 공성호, "석유로 오염된 토양의 과수를 이용한 처리에 관한 연구", 한국토양환경학회지, 2(3), pp.49-57 (1997)
4. Baker, J. F., Patrick, G. C., and Major, D., "Natural Attenuation of Aromatic Hydrocarbons in a Shallow Sand Aquifer," *Ground Water Monitoring Rev.* 7, pp.64-71 (1987)
5. Bruce W., Lucy, K. J., Moore, N. J., Seastone, F. O., and Gannon, E. J., "Microbiological and Geochemical Characterization of Fluvially Deposited Sulfidic Mine Tailings", *Appl. Environ. Microbiol.*, 65, pp.1548-1555 (1999)
6. Chiang, C. Y., Salanitro, J. P., Chai, E. Y., Colthart, J. D., and Klein, C. L., "Aerobic Biodegradation of Benzene, Toluene, and Xylene in a Sandy Aquifer - Data Analysis and Computer Modeling", *Ground Water*, 27(6), pp.823-834 (1989)
7. Hadley, P. W., and Armstrong, R., "Where's the Benzene? - Examining California Ground-Water Quality Surveys", *Ground Water*, 29(1), pp.35-40

- (1991)
8. Hendry, M. J., Lawrence, J. R., and Maloszewski, P., "The Role of Sorption in the Transport of *Klebsiella oxygoca* Through Saturated Silica Sand" , *Groundwater*, **35**(4), pp.574-584 (1997)
 9. Lee, M. D., Jamison, V. W., and Raymond, R. L., "Applicability of in Situ Bioreclamation as a Remedial Action Alternative," in *Proceedings of the Petroleum Hydrocarbons and Organic Chemicals in Ground Water: Prevention, Detection and Restoration*, National Water Well Association, Houston, TX, pp.167-185 (1987)
 10. Hendry, M. J., Lawrence, J. R., and Maloszewski, P., "The Role of Sorption in the Transport of *Klebsiella oxygoca* Through Saturated Silica Sand" , *Groundwater*, **35**(4), pp.574-584 (1997)
 11. Parker J. C., and van Genuchten, M. Th., "Determining transport parameters from laboratory and field tracer experiments" , *Bull.* **84**-3, 96p., Virginia Agricultural Experiment Station, Blacksberg (1984)
 12. Roger, C. B., Li, S., Maguire, K. M., Yahya, M. T., Gerba, C. P., and Harvey, R. W., "Virus and Bacteria Transport in a Sandy Aquifer, Cape Cod, MA" , *Ground Water*, **33**(4), pp.653-661 (1995)
 13. Smith, M. S., Thomas, G. W., White, R. E., and Ritonga, D., "Transport of Escherichia coli through intact and disturbed soil columns" , *J. Environ. Qual.* **14**(1), pp.87-91 (1985)
 14. Tan, Y., Gannon, T., Baveye, P., and Alexander, M., "Transport of bacteria in an aquifer sand: Experiments and model simulations" , *Water Resour. Res.* **30**(12), pp.3243-3252 (1994)
 15. Wollum, A. G. and Cassel, D. K., "Transport of microorganism in sand columns" *Soil. Sci. Soc. Am. J.* **42**, pp.72-76 (1978)