

삼상유동층 반응기를 이용한 양어장 순환수 처리에 관한 연구

이병헌 · 김정숙 · 강임석*

부산수산대학교 환경공학과 · *Iowa 대학교 토목공학과

Recycling Water Treatment of Aquaculture by Using Three Phase Fluidized Bed Reactor

Byung-hun LEE, Jeong-sook KIM, and Im-suk KANG*

Department of Environmental Engineering, National Fisheries University of Pusan, Pusan 608-737, Korea
*Department of Civil Engineering, Iowa State University, Ames, Iowa USA

ABSTRACT

The objective of the present study were to evaluate nitrification characteristics and determine optimum treatment conditions of three phase fluidized bed reactor for recycling water treatment of aquaculture.

When the loading rates were 2.739-0.086 kg COD/m³/day and 1.575-0.128 kg NH₄-N/m³/day, COD and ammonia removal efficiencies were 56.3-94.7% and 67.3-92.6%, respectively. The maximum removal rates of COD and ammonia were 1200 mg/ℓ/day and 488 mg/ℓ/day, respectively. Ammonia removal rates were more than 90% beyond 1hr HRT. The ammonia removal efficiency was sensitive to the variation of media concentration and air flowrate.

서 론

우리나라의 양식장은 한정된 호소 및 저수지의 수면적으로 인한 양식부지의 제한과 동절기의 수온저하에 의하여 양식어류의 생산력에 제한을 받고 있다. 또한 양식장의 자가오염배출은 식수와 농업 및 공업용수로 사용되는 댐이나 저수지의 수질을 오염시키기도 하므로 양식장에 대한 규제가 강화되고 있다. 이러한 어려운 환경에서 우리나라 어류 양식업의 발전을 위한 해결책으로서 순환여과식 사육시스템을 이용한 고밀도 사육시스템이 제시되고 있다(김 1980).

현재 순환여과식 사육시스템은 각종 어류사육의 실험적 단계를 벗어나 산업체에 적용되고 있다. 순환수 재이용의 경우 적정 온도보존 등의 장점이 있지만 지속적인 배설물 및 사료에 의하여 수질이 악화되므로 적절한 수처리가 요구된다. 특히, 어류의 배설물이나 사료에 의해 발생하는 암모니아는 어류의 성장을 저해하거나 치사시키기 때문에 사육조내의 비이온성 암모니아를 미국환경보호청에서는 0.02 mg/l 이하로 유지하도록 권장하고 있다(Rogers and Klemetson 1985). 또한 사육조내의 용존유기물은 타가영양성 미생물에 의해 분해되면서 물속의 용존산소를 소모시키고 질산화에 억제작용을 한다. 부유성 고형물질은 어종이나 크기에 따라 영향이 틀리기는 하나 어류에 스트레스를 주어 질병을 유발시키고, 질병에 대한 저항력을 감소시키므로(Muncy *et al.* 1979 ; EIFAC 1965) 25 mg/l 이하로 권장하고 있다.

고밀도 양어장의 수질관리를 위한 양어장 순환수 처리공법으로 사용되는 것은 활성슬러지법(Meske 1976), 살수여상법(Rogers and Klemetson 1985), 침지여상법(Nijhof and Bovendeur 1990 ; Carmignani and Bennelt 1977), 수경법(Lewis *et al.* 1978) 및 회전원판공법(Antonie *et al.* 1974 ; 임 1993)이 많이 이용되고 있다. 최근에는 처리공법의 효율증대를 위하여 유동층공법(Jewell and Cummings 1990)에 의한 양어장 순환수의 처리에 대한 연구도 진행중이다.

유동층공법은 반응기내에 투입된 비교적 크기가 작은 매디아에 미생물을 부착시키고 매디아를 유동시켜 운전하기 때문에 공극폐쇄현상이나 폐수가 한 유로로만 흐르는 단회로 현상이 방지되고 폐수와 미생물막의 접촉을 촉진시키고 고농도의 미생물을 유지시키므로, 짧은 수리학적 체류시간(HRT)에도 고농도의 유기성 폐수를 효과적으로 처리할 수 있다(Cooper 1981). 또 미생물이 매디아에 부착되어 있어 매디아로부터 직접 슬러지를 처리할 수 있기 때문에 슬러지의 반송이 필요없고, 최종 침전지의 부피를 감소시킬 수 있다. 또한 같은 용량의 반응조라 할지라도 반응기를 수직으로 시공하므로 설치면적이 적게 소요되는 잇점이 있다(Theodore 1980).

본 연구는 공기를 반응기에 직접 주입하는 삼상유동층 반응기를 양어장 순환수 처리장치로 설치하여 암모니아제거 및 유기물질 제거특성을 정량화하고 최적운전방법을 도출하는 것이 목적이다.

재료 및 방법

실험장치

본 연구의 실험장치는 Fig. 1과 같다. 생물학적 유동층 반응조는 3 mm 두께의 원통아크릴을 사용하여 제작하였고 총용적은 1.76 l이다. 내부에 내경 3.6 cm의 draft tube를 통해 공기를 공급하였다. 생물학적 유동층 반응기의 반응조직경과 draft tube 직경비는 1.88:1이며, 상향로와 하향로의 면적비가 1:2.16, 반응조 직경은 6.4 cm이고 Height/ Diameter는 10.9이다. 기질주입은 ISM 021-0030 (Cole-Parmer Instrument Company)과 호스를 사용하였으며 반응조의 내부에는 잘 발달된 무수한 미세공으로 이루어진 무정형 탄소의 집합체인 0.71-0.84 mm 정도의 입상활성탄을 사용하였다. 활성탄의 물성치는 Table 1과 같다.

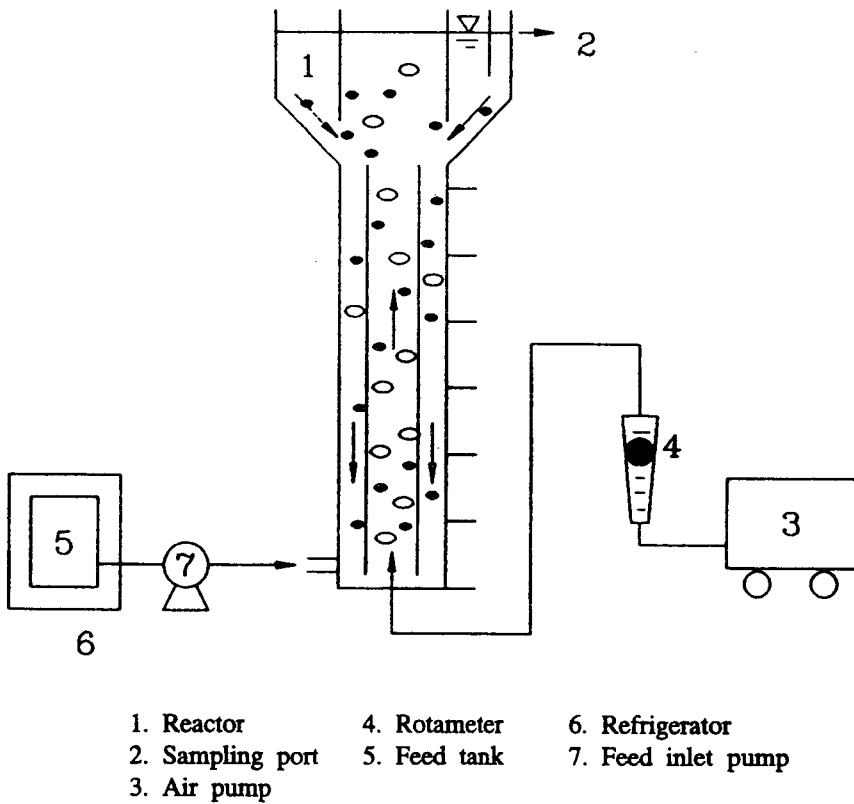


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus.

Table 1. Specification of coconut shell activated carbons

Contents	Values
Moisture, %	1.7
Volatile matter, %	1.4
Ash, %	1.7
Bulk density, g/cc	0.44
Hardness	97.4
Iodine value, mg/g	1140
MB adsorption, ml/g	250
Surface area, M ² /g	1180

시료조제

본 연구에 사용한 인공양식수는 Table 2와 같다. 유기물질원으로는 포도당(glucose)을 사용하였으며 암모니아원으로는 염화암모늄(NH_4Cl)을 사용하였고 질산화시 소모되는 알칼리도의 보충을 위하여 중탄산나트륨(NaHCO_3)을 필요량 주입하였다. 기질조제에 필요한 희석수는 미량원소의 공급을 위하여 수돗물을 사용하였다.

Table 2. Synthetic feedstock solution

Composition	mg/ℓ
Glucose	20
NaHPO_4	40
NaHCO_3	125
MnSO_4	2
NH_4Cl	As need

실험방법

본 실험의 유동층반응기에 투입된 활성슬러지는 부산시내에서 가동중인 음료수 제조공장 처리장의 반송슬러지를 42번체를 사용하여 헹잡물을 제거한 후 사용하였으며 pH 저하를 막기위해 일정량의 NaHCO_3 를 주입하여 pH를 7 이상으로 운전하였다. 유기물질 농도를 약 20 mg COD/ℓ로 조제하여 HRT를 10 min-6hr 으로 변화시켜서 유기물질 부하를 0.086-2.739 kg COD/ m^3 /day로 단계적으로 증가시켜 실험을 행했다. 또한 암모니아성 질소 농도를 4.21-18.35 mg $\text{NH}_4^+-\text{N}/\ell$ 로 변화시켜 암모니아 부하를 0.040-1.575 kg $\text{NH}_4^+-\text{N}/\text{m}^3$ /day 변화시켜 가면서 암모니아 제거특성에 대해 검토하였다.

활성탄 88 g, 150 g을 각각 반응조에 투입하여 메디아 농도를 50 g/ℓ와 85 g/ℓ로 운전하므로써 메디아 농도에 따른 영향을 파악하였다. 운전온도는 $25 \pm 1^\circ\text{C}$ 로 운전하였고 유입공기량은 반응기부피당 $0.85 \pm 0.05 \ell/\ell/\text{min}$ 으로 주입하였으며 HRT 2hr에서는 공기주입율을 0.57 $\ell/\ell/\text{min}$ 으로 줄여 유기물질 및 암모니아 제거율을 비교, 검토하였다.

분석방법

모든 수질분석은 Standard Methods (APHA *et al.* 1989)에 의하여 수행하였으며 Standard methods의 여러 방법중 COD는 Open reflux method로, NH_4^+-N 는 Ammonia-selective electrode method로 수행하였다.

결 과

미생물막 형성 및 농도측정

실험에 사용한 미생물은 본 실험에 사용한 시료를 수일간에 걸쳐 잘 순양시킨 다음 반응기 전 용

삼상유동층 반응기를 이용한 양어장 순환수 처리에 관한 연구

적 % 정도까지 채우고 나머지는 수도수를 채우고 난뒤 회분식으로 시료를 주입하면서 운전하여 10 일간에 걸쳐 미생물을 활성탄에 부착시켰다. 3일후 부터 미생물막이 형성된 것을 가시적으로 확인할 수 있었다. 실험시작 10일후 부터 연속적으로 시료를 주입하여 실험을 행하였다. 미생물농도는 각 시료채취구에서 활성탄을 채취하여 MLSS를 측정하여 구하였다. 연속운전시작시 측정한 미생물의 초기MLSS농도는 2,500 mg/ℓ 였으며 반응조의 정상운전시에는 MLSS를 5,000-6,000 mg/ℓ 로 유지 하였다.

유기물질제거

Table 3은 3상 유동층반응기의 COD부하에 따른 유입원수와 처리수의 농도, 평균제거효율을 나타 낸 것이다. 각 실험단계별 유입, 유출농도를 나타낸 것으로 유입수의 농도는 18.95-22.50 mg COD/ℓ 로 거의 일정하게 유지하여 2.739-0.086 kg COD/m³/day 유기물질 부하범위에서 56.3-94.7%의 SCOD 제거효율을 얻었다. Fig. 2는 운전기간동안의 COD 농도변화를 나타낸 것이다. Fig. 3은 매 디아 농도가 50 g/ℓ와 85 g/ℓ 일 경우의 유기물질 부하에 따른 SCOD 제거효율을 나타낸 것이다. 매 디아의 농도가 85 g/ℓ 의 경우 유기물질 부하율이 2.739-0.139 kg COD/m³/day에서 56.3-94.7%로 유기물질 부하가 증가할수록 SCOD 제거효율이 낮아지는 현상을 볼 수 있다.

Table 3. Summary of operating results during the steady state conditions. Air flowrates of all phases were 0.85 ℓ/ℓ/min

Phase	Loading Rate		HRT (hr)	Influent (mg/ℓ)		Effluent (mg/ℓ)	
	kg COD/m ³ /day	kg NH ₄ -N/m ³ /day		COD	NH ₄ -N	SCOD	NH ₄ -N
1**	0.086	0.040	6.13	22.0	10.09	2.5 (88.4)*	2.81 (72.2)
2	0.173	0.087	3.00	21.6	10.90	2.7 (87.5)	5.30 (51.4)
3	0.265	0.133	2.04	22.5	11.33	3.0 (86.6)	5.31 (53.1)
4	0.488	0.256	1.05	21.4	11.21	4.2 (80.2)	6.29 (43.9)
5***	0.139	0.128	3.43	19.9	18.35	1.1 (94.7)	1.60 (91.3)
6	0.235	0.198	2.18	21.3	18.02	2.0 (90.6)	3.11 (82.7)
7	0.258	0.159	2.07	22.3	13.71	1.4 (93.9)	1.02 (92.6)
8	0.410	0.293	1.20	20.5	14.64	1.9 (90.6)	3.73 (74.5)
9	1.749	0.389	0.26	19.0	4.21	4.8 (74.9)	0.31 (92.6)
10	1.702	1.575	0.27	19.2	17.72	5.5 (71.6)	5.50 (69.0)
11	2.739	0.692	0.17	19.4	4.90	8.5 (56.3)	1.60 (67.3)

* Percent Removal Efficiencies

** Media Concentrations of phase 1 to 4 were 50 g/ℓ

*** Media Concentrations of phase 5 to 11 were 85 g/ℓ

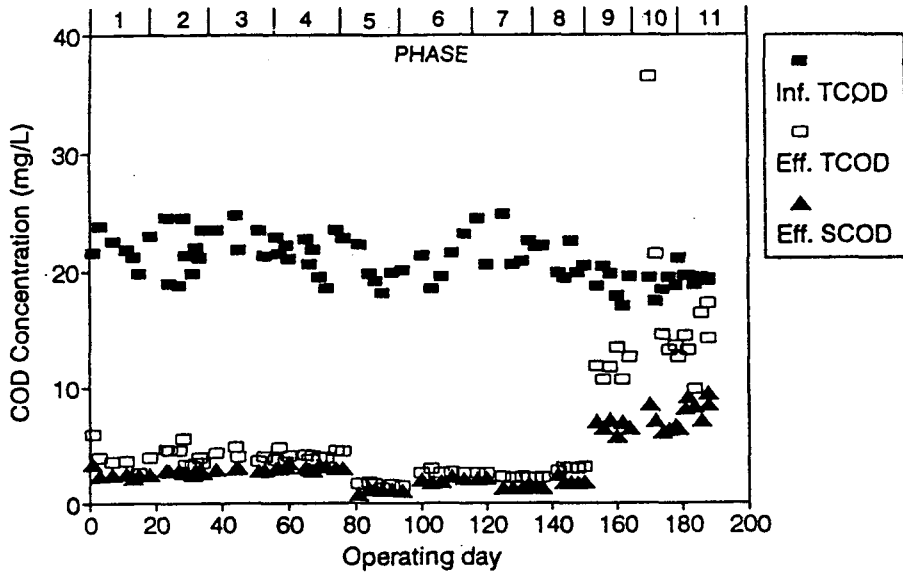


Fig. 2. Variation of COD concentrations during operation periods.

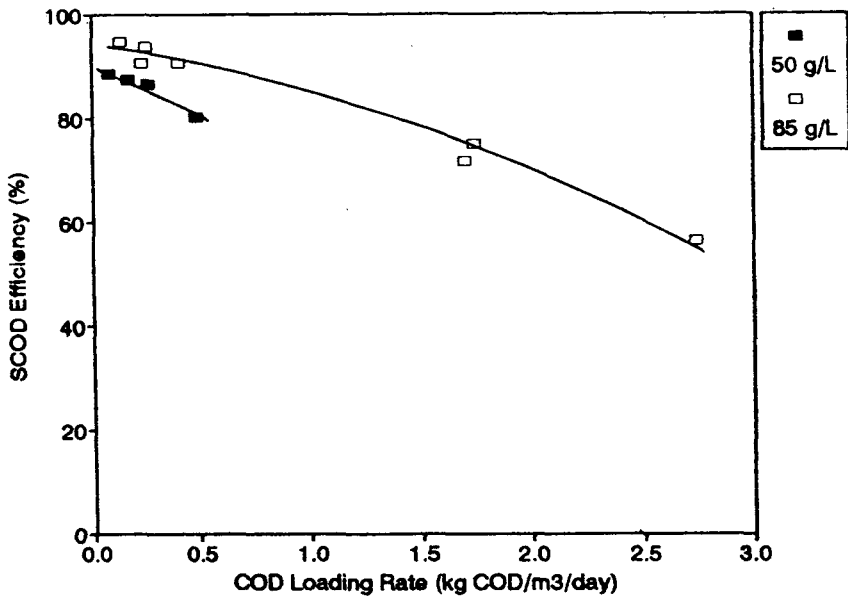


Fig. 3. COD removal efficiencies versus organic loading rates.

암모니아성 질소제거

Fig. 4는 Table 3의 조건으로, 운전기간동안의 암모니아성 질소 농도변화를 나타낸 것이다. Fig. 5는 미디어 농도가 50 g/l 와 85 g/l 일 경우의 암모니아성 질소부하에 따른 암모니아성 질소제거효율을 나타낸 것이다. 미디어 농도가 85 g/l 의 경우 1.575-0.128 kg NH₄⁺-N/m³/day에서 67.3-92.6%의 암모니아성 질소제거효율을 얻었으며 암모니아성 질소부하가 증가함에 따라 암모니아의 제거효율은 0.3 kg NH₄⁺-N/m³/day이상의 부하율에서 점점 낮아지는 경향을 보이고 있었다.

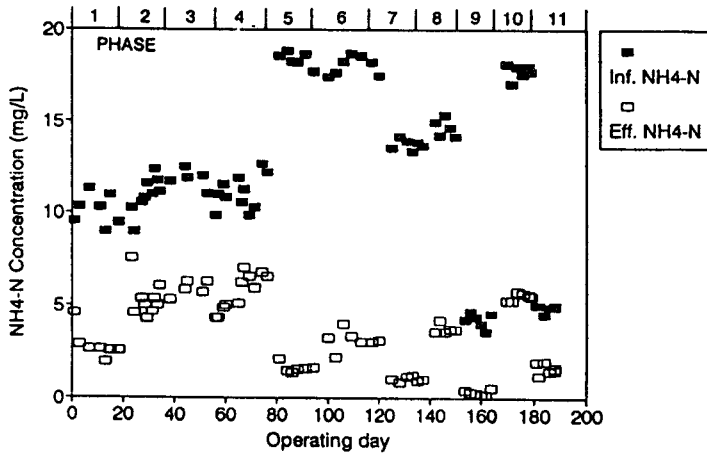


Fig. 4. Variation of NH₄⁺-N concentrations during operation periods.

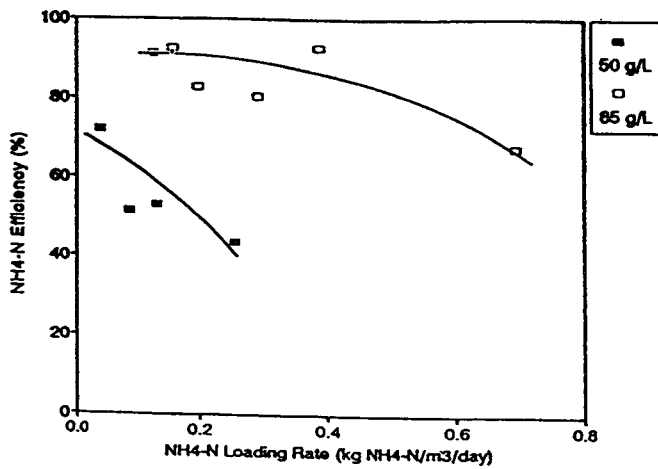


Fig. 5. NH₄⁺-N removal efficiencies versus NH₄⁺-N loading rate.

고 찰

Fig. 6은 HRT에 따른 SCOD 제거효율을 나타낸 것으로 HRT가 커질수록 SCOD의 처리효율이 증가하는 경향을 보이고 있으며 매디아 농도가 85 g/l 일시 수리학적 부하 141.2-7.0 m³/m³/day에서 56.3-94.7%의 COD 제거효율을 나타내었다. 또한 유입수의 유량과 유출수의 COD 농도를 이용하여 계산한 반응조 용적당 COD 제거율은 최대 1200 mg COD/l/day를 보였다. 이것은 Rogers and Klemetson (1985)이 회전원판법(RBC, Rotating Biological Contactor)으로 양어장 순환수처리를 행하여 19.4-5.5 m³/m³/day에서 87.3-94.3%의 COD 제거효율을 얻은 결과와 비교할 시 상당히 높은 것을 알 수 있고, 또한 Jewell and Cummings (1990)이 팽윤층공법(Expanded Bed Reactor)으로 양어장 순환수 처리를 행하여 얻은 400 mg BOD/l/day과 비교할 시 본 연구의 유동층공법이 높은 유기물질 제거능력을 갖고 있음을 알 수 있다. Fig. 6에서 90% 이상의 유기물질 제거효율을 얻기 위해서는 1.5 hr 이상의 HRT가 요구되는 것을 알 수 있는데 안(1993)은 고농도 합성폐수를 기질로 사용하여 유동층공법으로 80-10 kg COD/m³/day에서 70% 이상의 COD 제거효율을 얻었는데 본 유동층공법이 부하가 낮음에도 제거효율이 낮은 것은 매디아농도, 산소공급방식, 미생물농도등의 차이에서 기인된 것으로 생각된다.

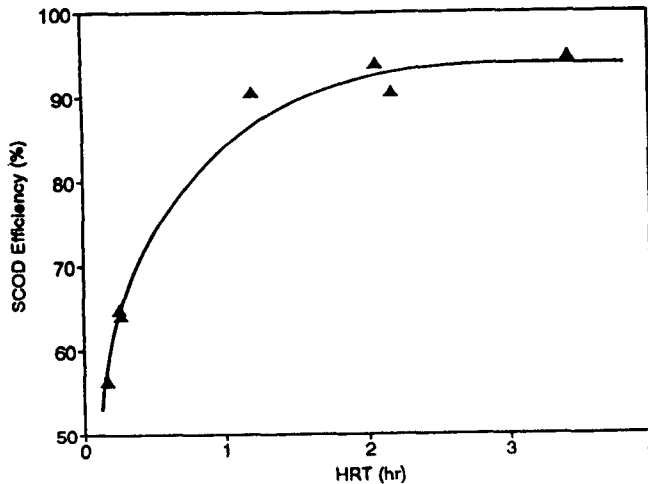


Fig. 6. COD removal efficiencies versus HRT.

본 연구에서 암모니아성 질소제거량은 11.2-488 mg NH₄⁺-N/l/day로 Jewell and Cummings (1990)의 40 mg NH₄⁺-N/l/day 보다 높은 것을 알 수 있었으나 Tjihuis *et al.*(1992)가 삼상유동층공법으로 실험한 결과 최대질산화율이 6 kg N/l/day 라고 발표한 값과 비교해보면 질소제거량이 낮은 것을 알 수 있는데, 이것은 Tjihuis가 반응기의 매디아 농도를 175 g/l로 본 연구에 비해 높게 유지하였으며, 암모니아 부하도 10 kg/l/day로 높게 주입하는 것등에 의한 영향으로 사료된다. Fig. 7은 HRT에 따른 암모니아성 질소제거효율을 나타낸 것으로 매디아 농도가 85 g/l 일시 수리학적

체류시간이 0.17-3.43 hr일때 67.3-91.3%의 암모니아성 질소제거효율 나타냈는데 이것은 이(1992)가 수리학적 체류시간이 0.8-3.4 hr일때 암모니아성 질소제거효율이 65-79%라고 발표한 것 보다 높은 제거효율을 나타내고 있다.

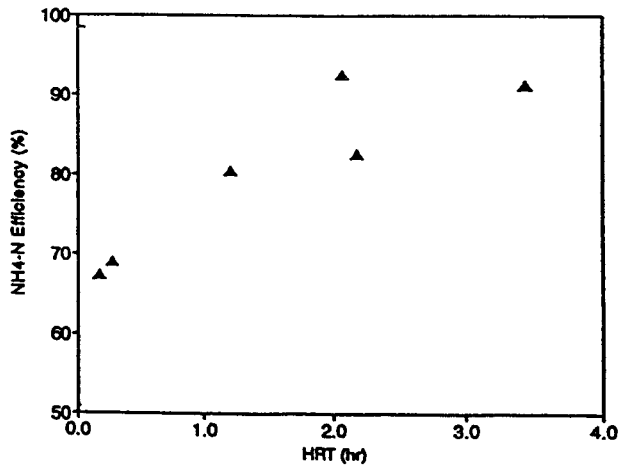


Fig. 7. NH₄⁺-N removal efficiencies versus HRT.

김(1990)은 선라이트(corrugated skylight plate)를 사용하여 인공양식수를 처리한 실험에서 수리학적 부하가 23.7 m³/m³/day일시 암모니아성 질소제거가 9.2%로 저조하다고 발표하였고 Rogers and Klemetson (1985)은 회전원판법으로 양어장 순환수처리를 행하여 19.4 m³/m³/day의 수리학적 부하에서 62.0%의 암모니아성 질소제거를 보인다고 하였으나 본 실험에서는 141.2 m³/m³/day로 운전하여도 67.3%의 상당히 높은 제거효율을 보이고 있어 삼상유동층공법을 양어장 순환수처리에 적용하는 경우 처리조의 용적을 감소시킬 수 있다.

Fig. 3과 Fig. 5에 의해 매디아 농도에 따른 영향을 살펴보면, 매디아 농도를 50 g/l로 실험을 행할 시 0.488-0.086 kg COD/m³/day와 0.256-0.040 kg NH₄⁺-N/m³/day에서 각각 85.9-88.4%와 43.9-72.2%의 제거효율을 얻었다. 그러나 매디아 농도를 85 g/l로 증가하여 실험을 행한결과 50 g/l와 거의 비슷한 부하율인 0.410-0.139 kg COD/m³/day와 0.293-0.128 kg NH₄⁺-N/m³/day에서 각각 90.6-93.7%와 74.5-92.6%의 제거효율을 얻었으며, 훨씬 높은 부하율인 2.739-1.720 kg COD/m³/day와 1.575-0.389 kg NH₄⁺-N/m³/day에서 각각 56.3-64.9%와 67.3-92.6%의 높은 제거효율을 얻었다. 매디아농도의 증가는 유기물질 및 질소제거효율을 증대시킬 수 있는데 이는 반응조내의 미생물량을 더 많이 확보할 수 있기 때문인 것으로 사료된다.

산소는 호기성 미생물의 대사작용을 위해서 반드시 공급되어야 하며 특히 삼상 유동층공법일 경우에는 매디아를 부유시킬 수 있는 양의 공기공급이 필요하다. 매디아는 초기 유동시에는 비교적 비중이 무거우나 미생물이 부착함에 따라 가벼워진다. 따라서 매디아 유동을 위해 공기주입율을 초기보다 적게 주입해도 매디아의 유동이 가능하다. 본 실험에서는 약 HRT 2 hr, COD 20 mg/l, NH₄⁺-N 14 mg/l으로 운전한 phase 7에서 공기주입율만 조정하여 그에 따른 유기물질, 암모니아성

질소제거효율을 검토하였다. Table 4는 유입, 유출의 농도와 제거효율을 나타낸 것으로 공기주입율을 낮추어 주입을 했을 경우 유기물질 제거측면에서는 효율저하 현상을 볼 수 없었으나 암모니아성 질소 제거효율은 약간 낮아지므로 암모니아성 질소제거를 위한 적절한 공기주입율이 요구된다.

Table 4. Summary of operating results at different air flowrate during the steady state conditions

Air ($\ell/\ell/\text{min}$)	Loading Rate		HRT (hr)	Influent (mg/ ℓ)		Effluent (mg/ ℓ)	
	kg COD/ m^3/day	kg $\text{NH}_4\text{-N}/\text{m}^3/\text{day}$		COD	$\text{NH}_4\text{-N}$	SCOD	$\text{NH}_4\text{-N}$
0.85	0.258	0.159	2.07	22.3	13.71	1.4 (93.9)*	1.02 (92.6)
0.57	0.267	0.163	2.02	22.5	13.80	1.4 (93.6)	1.81 (86.9)

* Percent removal efficiencies

요 약

본 연구는 삼상유동층 반응기를 양어장 순환수 처리장치로 설치하여 질산화제거를 정량화하고 최적운전방법을 도출하였다.

메디아 농도가 85 g/ ℓ 일시 유기물질 부하율이 2.739-0.086 kg COD/ m^3/day 인 유동층공법에서 56.3-94.7%의 SCOD 제거효율을 나타냈으며 SCOD 제거효율은 유기물질 부하가 증가할수록, HRT가 작을수록 낮아지는 경향을 보였다. 본 반응조의 최대 유기물질 제거율은 1,200 mg COD/ ℓ/day 였다. 암모니아성 질소부하율이 1.575-0.128 kg $\text{NH}_4^+\text{-N}/\text{m}^3/\text{day}$ 에서 67.3-92.6 %의 암모니아성 질소 제거효율을 얻었으며 암모니아성 질소제거량은 11.2-488 mg $\text{NH}_4^+\text{-N}/\ell/\text{day}$ 였다.

메디아농도가 50 g/ ℓ 에 비해 85 g/ ℓ 에서 유기물질 제거 및 암모니아성 질소제거효율이 더 높았으며 메디아농도의 증가는 암모니아성 질소제거에 더 큰 효과를 보인다. 공기주입율은 일단 미생물이 부착을 하고 나면 유기물질 제거에 미치는 영향을 적으나 암모니아성 질소제거에 영향을 주므로 최소 유동가능한 공기주입율과 암모니아성 질소제거측면을 고려한 공기주입율의 산정이 요구된다.

감 사

본 연구는 부산수산대학교 해양산업개발연구소 93년도 연구지원비로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

Antonie, R. L., D. L. Kluge and J. H. Mieleke. 1974. Evaluation of a rotating disk wastewater

- treatment plant. J. WPCF. 46: 298-511.
- APHA, AWWA and WPCF. 1989. Standard methods for the examination of water and wastewater. 17th Ed.
- Carmignani, G. M. and J. P. Bennelt. 1977. Rapid start-up of a biological filter in a recirculating aquaculture system containing channel catfish. *Aquacult. Eng.* 3: 39-57.
- Cooper, P. F. 1981. The use of biological fluidized beds for the treatment of domestic and industrial wastewater. *The Chemical Engineer*. August/September: 373-376.
- EIFAC (European Inland Fisheries Advisory Committee). 1965. Waste quality criteria for European freshwater fish: Report on finely divided solids and inland fisheries. EIFAC, Working party on water quality for european freshwater fish. EIFAC Technical Paper 1: 1-21.
- Jewell, W. J. and R. J. Cummings. 1990. Expanded bed treatment of complete recycle aquaculture system. *Wat. Sci. & Tech.* 22: 443-450.
- Lewis, W. H., J. H. Yopp, H. L. Schramm, Jr. and A. M. Brandenburg. 1978. Use of hydroponics to maintain quality of recirculated water in fish culture system. *Trans. Am. Fish. Soc.* 107: 92-99.
- Meske, C. H. 1976. Fish culture in a recirculating system with water treatment by activated sludge. p. 527-531. In: Pillay, T. V. R. and W. A. Dill, *Advances in Aquaculture*
- Muncy, R. J., et al. 1979. Effects of suspended solid and sediment on reproduction and early life of warmwater fishes: a review. EPA-600/3-79-042, National Technical Information Service, Springfield, Virginia. 101.
- Nijhof, M. and J. Bovendeur. 1990. Fixed film nitrification characteristics in sea-water recirculating fish culture system. *J. Aquacult.* 87: 133-143
- Rogers, G. L. and S. L. Klemetson. 1985. Ammonia removal in selected aquaculture water reuse biofilters. *Aquacult. Eng.* 4: 135-154.
- Theodore, C. S. 1980. Fluidized Bed for Biological Wastewater Treatment. *ASCE*. 106: 227-241.
- Tijhuis, L., M. C. M. van Loosdrecht and J. J. Heijnen. 1992. Nitrification with biofilms on small suspended particles in airlift reactors. *Wat. Sci. & Tech.* 26: 2207-2211.
- 김도희. 1990. 잠수여상을 이용한 양어장 순환수중의 암모니아 제거. 공학석사 학위논문. 부산수산대학교 대학원. 환경공학과.
- 김인배. 1980. 순환여과식 사육수 정화 재사용 방법에 의한 Pilot 규모의 어류 양식 시험. 한국수산학회지 13: 195-206.
- 안갑환. 1993. 생물막 유동층 반응기를 이용한 호기성 폐수처리에 관한 연구. 공학박사 학위논문. 부산대학교 대학원. 화학공학과.
- 이기완. 1992. 생물학적 유동층을 이용한 어류양식 순환수의 처리시스템 개발. 동신대학교 공과대. 한국학술진흥재단 보고서.
- 임용승. 1993. 회전원판법을 이용한 저농도 암모니아 폐수의 질산화에 관한 연구. 공학석사 학위논문. 부산수산대학교 대학원. 환경공학과.