

論 文

쓰레기 매립장 침출수 중 질소저감방안

Anaerobic Treatment of Nitrate in Landfill Leachate

권영호* · 김호주**

Young Ho Kwon* · Ho Ju Kim**

Abstract

On this study, removal ability of nitrate was researched in the anaerobic zone arounding collection pipes in landfill.

Stability state time of column was after 20 days and 20~90ml/day in flux. In this time, removal rate of phosphate was about 80%.

Removal ability and average removal rate of CODCr is 36g/m³ · d, 25.3%, respectively.

It was that reactor is able to remove more nitrate. Maximum nitrate removal ability was 4.83g/m³ · d.

I. 서 론

폐기물은 사회·경제활동에서 그 효용가치가 상실된 것으로 인류역사의 시작으로부터 공존하여 왔으나 인구증가와 산업발달으로 인하여 대량 소비, 폐기 등으로 인구가 집중되고 산업화가 급격히 진행됨에 따라 그 문제가 심각하여 하나의 사회문제가 되고 있다. 이러한 폐기물问题是 그 발생으로부터 수거방법 및 처리과정에 이르기까지 전 과정이 서로 복잡하게 연관되어 사회적 문제로 대두되고 있다.

발생된 폐기물을 처리하는 방법으로는 단순 투기방법, 협기성 매립방법과 위생매립방법이

있으며 위생매립방법에는 환경·위생적 처분의 개량형 협기성 위생매립, 준호기성 매립방법 및 호기성 매립방법 등이 있다.

매립처리의 목적은 생활환경의 보전상 지장이 발생하지 아니한 방법으로 폐기물을 적절히 저류하고, 또한 자연계의 대사기능을 이용한 쓰레기 매립충내 유기물을 물리적·생화학적으로 무기화, 토양화(안정화)하는 것이다. 안정화는 장기적인 관점에서 토지이용 및 매립지 주변 2차 환경오염방지에 필수 요건이다.

매립장 내부에서 발생하는 주요한 현상은 미생물작용에 의한 유기물의 분해, 물리화학적 상호작용에 의한 무기물·유기물의 용해와 흡·탈착, 화학적 작용에 의한 반응, 물리적 작용에 의한 오탁물질 및 가스의 이동 등이다.

이때 발생되는 침출수는 유기·무기물질 등을 다량 포함한 고농도의 폐수로서 독성물질을

* 서남대학교 공과대학 환경공학과 교수

** 전북대학교 공과대학 토목환경공학과

포함한 복잡한 화합물로 구성되어 있고, 이러한 물질들은 종종 지하수나 인근 지표수에 오염을 일으키는 요인이 되고 있어 최근 들어 침출수 내의 유기물 처리와 더불어 매립장의 안정화를 조기에 실현하기 위한 준호기성 매립지의 건설이 주목되고 있다.

준호기성 매립지는 침출수 집배수관의 양측 말단 부를 대기애 개방하게 됨으로써 침출수 집배수관 내에 다량의 신선한 공기가 자연 풍될 수 있어 집배수관 근방에서 호기성 zone의 형성^{1,10)}을 도모하게 되고 이를 통과하는 침출수 중의 TOC 및 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 등의 오탁성분을 호기성 미생물의 대사에 의해 제거될 수 있는 구조적 특징을 갖고 있다. 현재 준호기성 구조의 매립방법은 일본에 널리 보급되어 유기오탁성분의 제거효율 면에서 우수성과 효율성을 인정받아 건설 중인 곳도 있으나 아직 구조상 반응메커니즘에 대한 연구는 진행 중에 있다. 현재 우리나라에서도 준호기성의 매립을 시도하고 있으나 시공상의 문제와 유지관리 소홀로 기존의 개량형 협기성 매립장과 다를 바 없어 집배수관 근방에서의 침출수 정화능력을 충분히 발휘하지 못하고 있는 실정이다.

본 연구는 침출수 중의 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 의 제거 정도를 검토한 것으로 준호기성 매립장 구조내의 침출수 집배수관 근방에서의 질산화 능력에 따라 배출되는 침출수 중 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 의 잔존이 2차적인 수질오염을 발생시키는 바 매립장 내에서 침출수 중 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 의 저감방안을 제시하는데 그 목적이 있다.

II. 실험방법

2.1. 실험장치

본 실험에 사용된 장치는 Fig. 1과 같이 협기성 충진칼럼으로 이루어 졌으며 내경 200mm, 높이 500mm인 용적 15.70l인 투명한 아크릴원통을 사용하여 제작하였다.

반응조내에는 입경 40~50mm, 비중 2.69 g/cm³의 충진재(쇄석)를 넣었으며 반응조는 항온을 유지시키기 위해 항온조 내에 설치하였

고 반응조내 부피비는 Table 1과 같다.

유입폐수는 Master Flex Tubing Pump에 의해서 연속적으로 반응조에 유입되도록 하였으며 탈기되는 질소가스등이 배출되도록 상부에 배출구를 만들었다.

2.2. 실험재료

1) 식종 미생물

미생물증식을 위해 축산농가의 토양을 20cm 깊이에서 채취하여 증류수로 교반 후 상동액(식종수라고 부른다)을 취하여 액상상태로 충진칼럼에 서서히 주입하였다.

2) 인공오수

인공오수는 준호기성 매립장의 침출수 집배수관 근방에서 산화된 침출수와 비슷한 농도로 하여 탄소분은 CH_3COOH , 질소분은 KNO_3 , 인분은

KH_2PO_4 를 사용하였으며 주입량은 30ml/day로 연속주입 하였으며 그 농도는 Table 2.와 같다.

2.3. 실험방법

1) 반응조 운전

충진칼럼에 인공오수를 유입하여 칼럼내 산소 유입을 차단하고 준비된 식종수를 0.25 l 씩 약 10분간 인공오수와 같이 유입하여 칼럼내에

Table 1. Volumn in Set up

Volumn(Total)	15.70l
Volumn(Stone)	8.63l
Volumn(Liquid)	5.50l
Volumn(Gas)	1.57l

Table 2. Synthetic Wastewater for the Enrichment Cultivation

Components	Concentration (g/l)	
CH_3COOH	2,509.6	7,700mg/l as COD
KNO_3	1.089	150mg/l as $\text{NO}_3^- \text{-N}$
KH_2PO_4	0.638	150mg/l as $\text{PO}_4^{2-} \text{-P}$

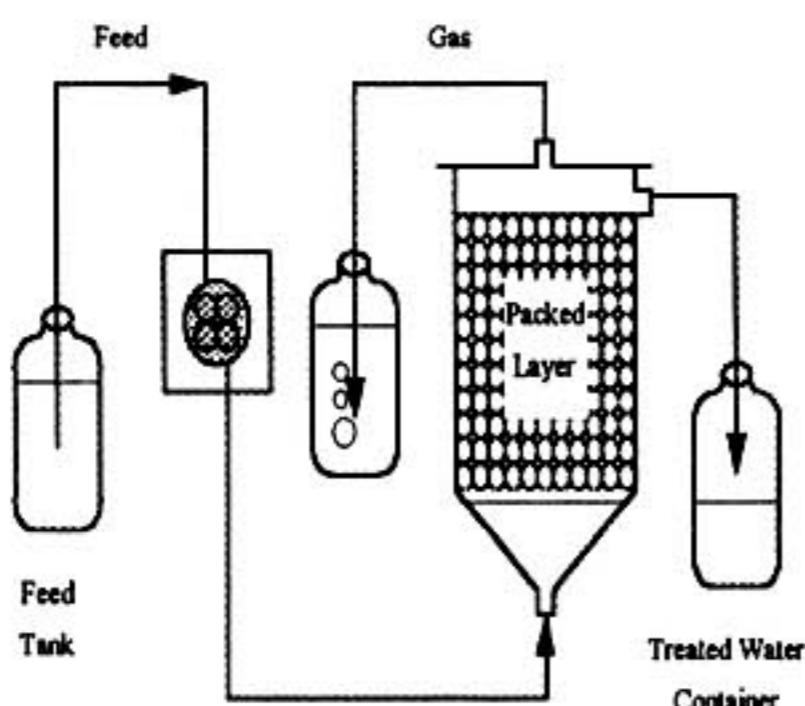


Fig. 1. Experimental Set up

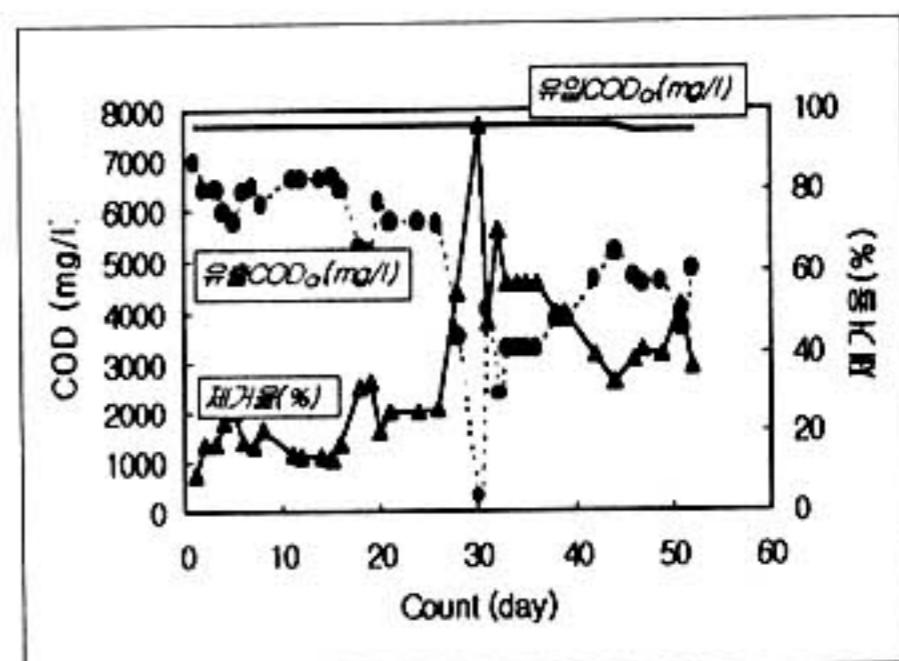


Fig. 2. Experimental Condition and Results for CODCr

탈질균을 식종하였다.

본 연구는 과량의 탄소원과 인을 실험초기에 주입하여 최종적으로 NO_3^- -N이 탈질 되는 과정에서 질소의 제거 정도를 관찰하는 것으로 하였다.

2) 분석방법

본 연구의 시료분석 방법 및 장치는 Table 3에 나타내었으며 수질분석은 Standard Method와 수질오염공정시험법에 준하여 실시하였다.

III. 실험결과 및 정상상태 고찰

본 연구는 준호기성 매립장에 개설된 침출수집배수관 근방의 침출수가 쇄석층(준호기성영역)을 벗어난 혐기성 영역에서의 질소제거 효

과를 알아보기 위한 실험이다. 쇄석을 충전한 모의 칼럼내의 COD, NO_3^- -N등의 실험결과는 다음과 같았다.

3. 1. 정상상태 고찰

부하변동은 오탁분의 농도와 유입수량의 변동으로 조절 할 수 있으나 본 실험 기간 중에는 유입수량의 조절에 많은 어려움으로 그 변화 폭이 커졌으며 본 연구에서는 유량변동이 20~90ml/day 범위의 자료만을 대상으로 하였다.

본 실험의 혐기성 쇄석 칼럼이 정상적인 유기오탁 제거를 나타낸 것은 Fig. 2 와 Fig. 4에 나타난 바와 같이 20일 이후로 추정되며 이

Table 3. Analytical Methods

ITEMS	Analytical Methods	Equipments
pH	pH meter	ORION Model 720A
BOD ₅	Winkler' Azide Modification	
CODCr	K ₂ Cr ₂ O ₇ Reflux Method	HITACHI U-2000
T-N	220nm Spectrophotometer	
NH ₄ -N	Indo-phenol Method, 640nm Spectrophotometer	HITACHI U-2000 WATERS 431
NO ₃ -N	Ion Chromatography	Flow rate: 1.2ml/min Column: IC-PACTM ANION INJECTION VOLUMN: 10 μ l
T-P	Ascorbic Acid Method, 880nm Spectrophotometer	HITACHI U-2000

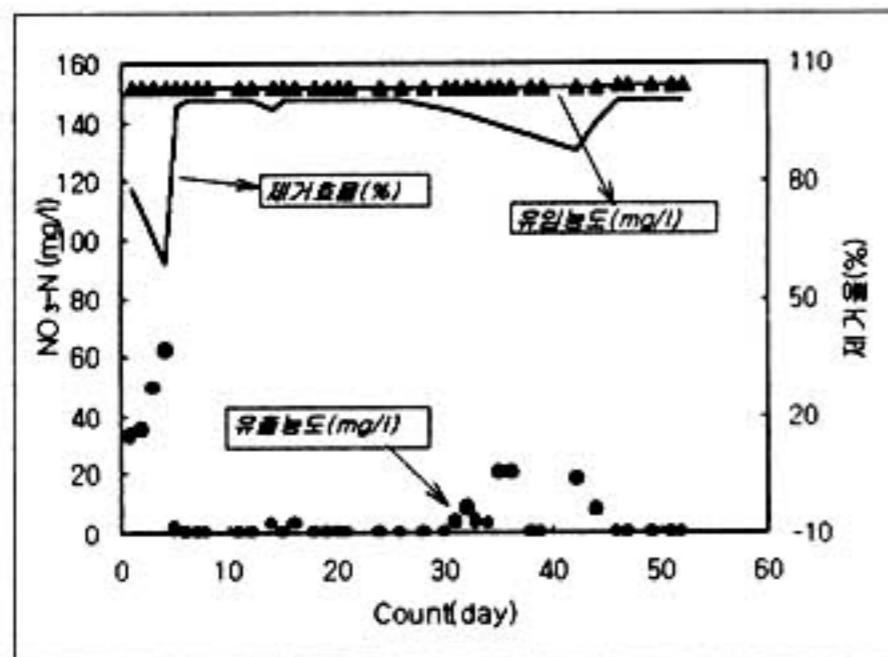


Fig. 3. Experimental Condition and Results for NO_3^- -N

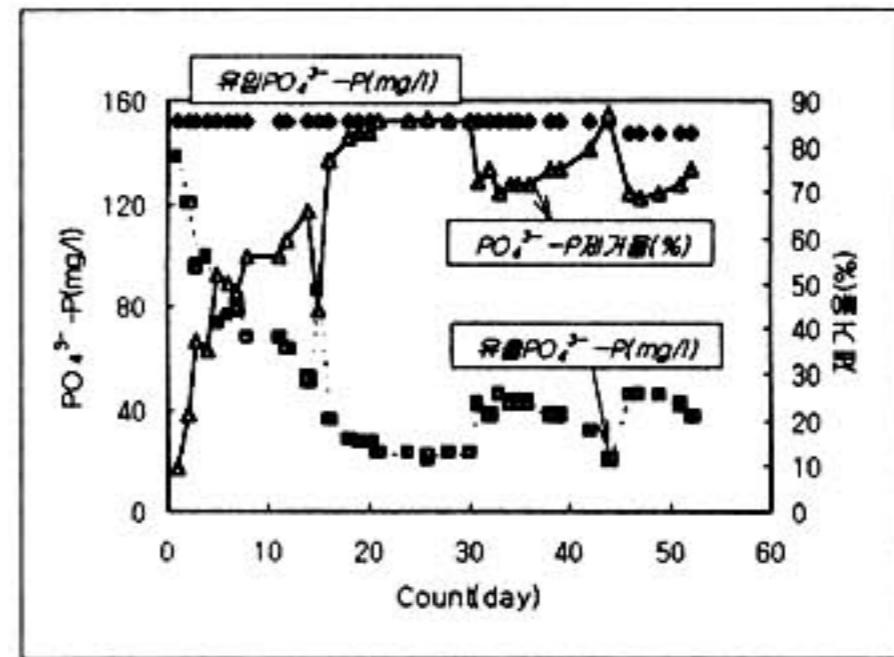


Fig. 4. Experimental Condition and Results for PO_4^{3-} -P

때 PO_4^{3-} -P의 제거율은 80% 정도 였다.

NO_3^- -N의 제거정도는 Fig. 3에서 보는 바와 같이 유입 NO_3^- -N에 대하여 거의 제거가 이루어지고 있으며 약간의 제거능력 저하는 유입수량의 변동에 따른 HRT의 영향으로 생각된다.

3.2. CODCr 제거

CODCr 제거량과 CODCr 제거효율은 다음과 같이 구하였다

$$\text{COD}_{\text{Cr}} \text{ 제거량 } [\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}]$$

$$= \text{유입COD}_{\text{Cr}} \text{ 부하 } [\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}]$$

$$- \text{유출 COD}_{\text{Cr}} \text{ 부하 } [\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}]$$

$$\text{유입COD}_{\text{Cr}} \text{ 부하 } [\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}]$$

$$= \text{공급수량 } [l/\text{day}] \times$$

$$\text{유입COD}_{\text{Cr}} \text{ 농도 } [\text{g}/l] / V (\text{m}^3)$$

$$\text{COD 제거효율 } (\%)$$

$$= [1 - \frac{\text{유출COD}_{\text{Cr}} (\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day})}{\text{유입 COD}_{\text{Cr}} (\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day})}] \times 100$$

상기 식을 이용하여 Fig. 5에서와 같이 본 실험에서의 COD_{Cr} 평균 제거 능력은 $24.77 \text{ g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$ 이고, 제거율은 상기 식에 의하여 산정 하여 보면 평균 55% 정도이며, 이 중 유입수량이 $20 \sim 90 \text{ ml}/\text{day}$ 범위에 속하는 data를 경과 시간과 유입부하에 따른 제거정도를 나타내면 Fig. 6과 같다.

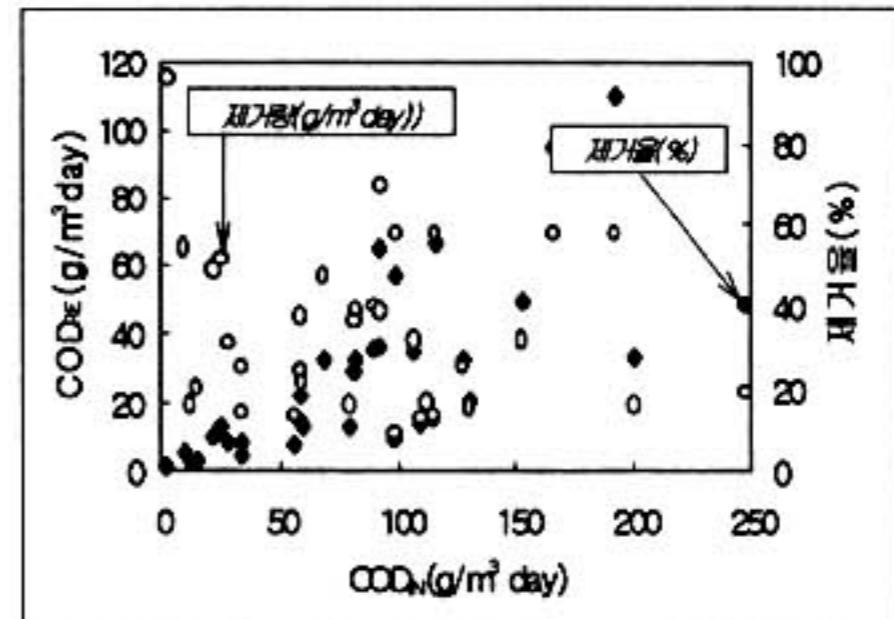


Fig. 5. COD_{IN} Load($\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$) versus CODRE Removal rateand Ability($\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$)

Fig. 7에서는 Fig. 6의 값들을 유입 부하량에 따른 제거 부하량이며, 실선은 COD_{Cr} 의 제거 능력을 나타낸 것으로 COD_{Cr} 이 약 $36 \text{ g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$ 정도

제거됨을 알 수 있었고 20일전의 COD_{Cr} 제거에 있어서는 완전한 혼기성 상태로의 정상상태도달에 미흡했던 것으로 사료된다.

다음으로 Fig. 7과 같은 조건으로 20일 이후의 data를 고려하면 Fig. 8에 보이는 바와 같이 평균 COD_{Cr} 제거량은 $28.9 \text{ g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$ 이었으며 평균 제거율은 65.3%였다.

Metcalf와 Eddy²²⁾에 따르면 질산화를 위한 최적의 pH값의 범위는 6.5~7.9인데 본 실험의 반응조에서의 pH가 Fig. 9에서와 같이 8.2~8.7의 범위였다.

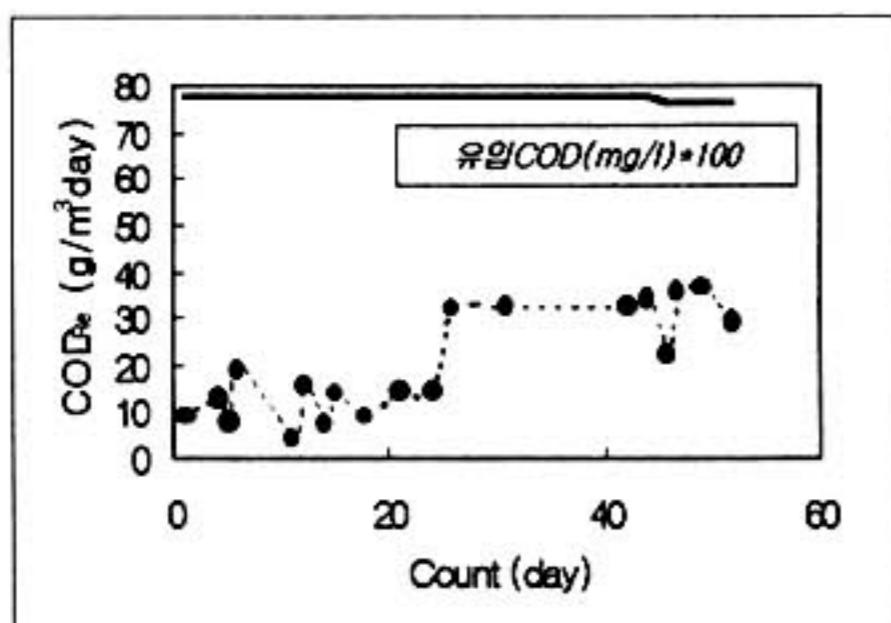


Fig. 6. COD_{Cr} Removal Ability(g/m³ · day) versus Count(day)

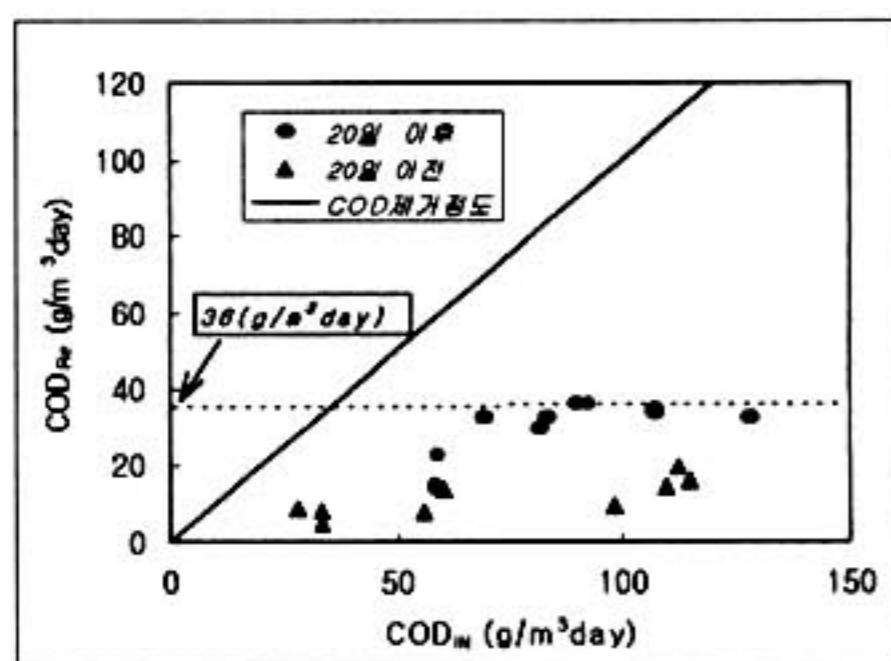


Fig. 7. COD_{Cr} Removal Ability (g/m³ · day) versus COD_{IN} Load (g/m³ · day)

상기 식을 이용하여 Fig. 10에서 NO₃⁻-N 유입부하량과 NO₃⁻-N 제거량을 시간별로 나타낸 결과 평균제거능력은 1.594g/m³ · day이고, 유출수중의 NO₃⁻-N 제거정도와 T-P농도를 고려 할 때 실험경과 약 15~20일째로 추정하여 제거량을 상기식에 의하여 산정하여 보면 평균 98% 정도이다.

COD와 마찬가지로 유입수량이 20~90ml/day 범위에 속하는 data를 경과 시간에 따른 NO₃⁻-N 제거정도를 나타내면 Fig. 11과 같다.

COD의 data와 차이가 있는 것은 COD는 유입 유량에 비하여 유입 농도량이 높아 변동폭이 낮은 반면 NO₃⁻-N는 유입유량에 비하여 유입농도가 작아 상대적으로 변동폭이 큰 이유로 사료되며 20일 이전 값과 이후 값을 비교하여

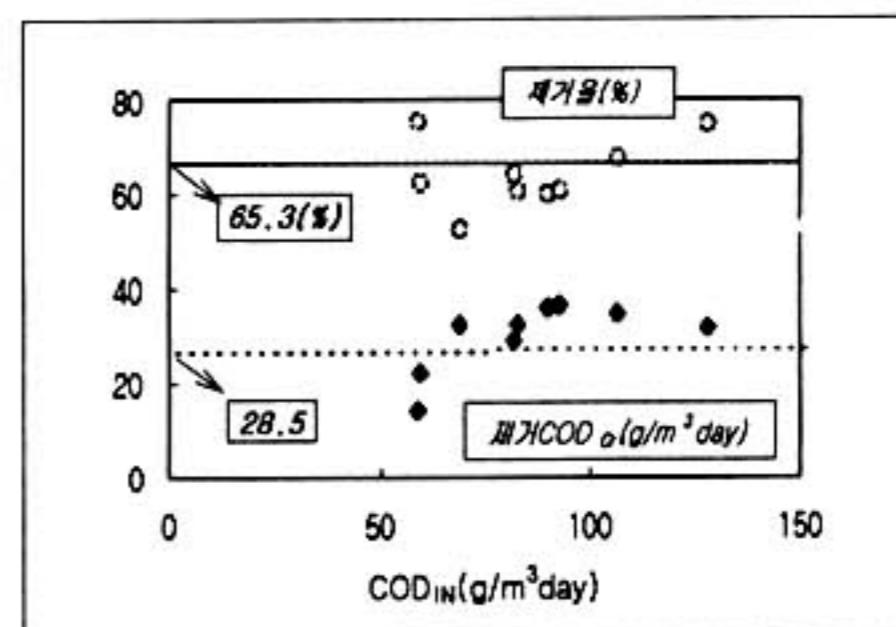


Fig. 8. Average Removal Rate(%) and Ability(g/m³ · day)

3.3. NO₃⁻-N 제거

NO₃⁻-N 제거량과 NO₃⁻-N 제거효율은 다음과 같이 구하였다.

$$\text{NO}_3^{\text{-}}\text{-N 제거량} [\text{g}/\text{m}^3 \text{ day}]$$

$$= \text{유입 } \text{NO}_3^{\text{-}}\text{-N 부하} [\text{g}/\text{m}^3 \text{ day}] - \text{유출 } \text{NO}_3^{\text{-}}\text{-N} [\text{g}/\text{m}^3 \text{ day}]$$

$$\text{유입 } \text{NO}_3^{\text{-}}\text{-N 부하} [\text{g}/\text{m}^3 \text{ day}]$$

$$= \text{공급수량} [\text{l}/\text{day}] \times \text{유입 } \text{NO}_3^{\text{-}}\text{-N 농도} [\text{g}/\text{l}] / V (\text{m}^3)$$

$$\text{NO}_3^{\text{-}}\text{-N 제거효율} (%)$$

$$= [1 - \frac{\text{유출 } \text{NO}_3^{\text{-}}\text{-N} (\text{g}/\text{m}^3 \text{ day})}{\text{유입 } \text{NO}_3^{\text{-}}\text{-N} (\text{g}/\text{m}^3 \text{ day})}] \times 100]$$

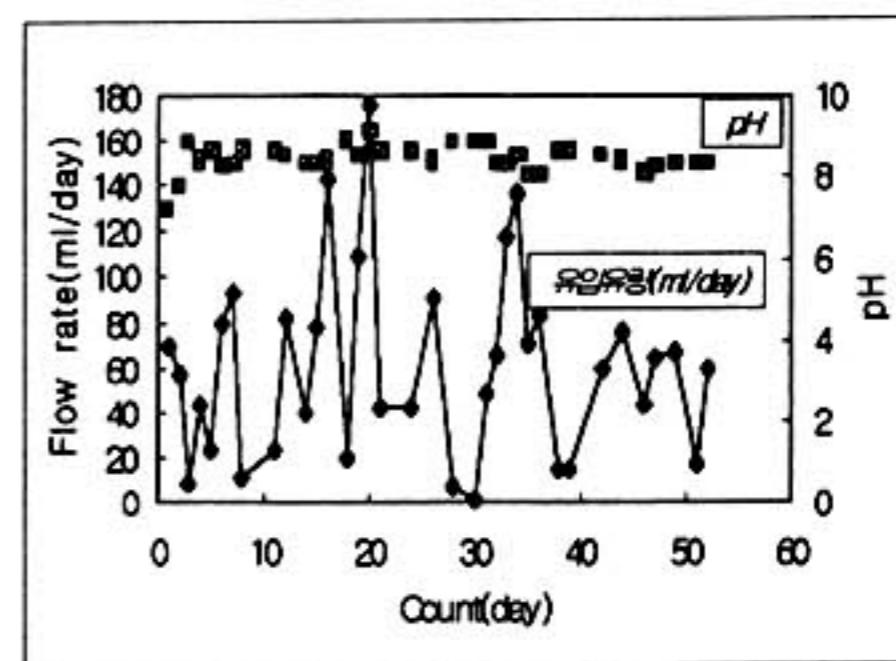


Fig. 9. Experimental Condition for Leachate Flow rate and pH

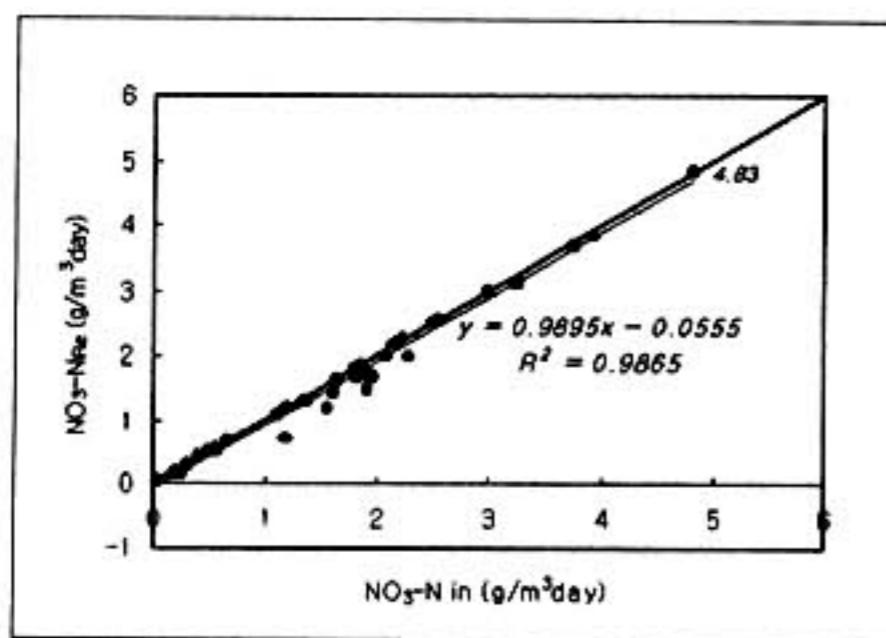


Fig. 10. NO_3^- -NIN Load($\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$) versus Removal NO_3^- -N Ability ($\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$)

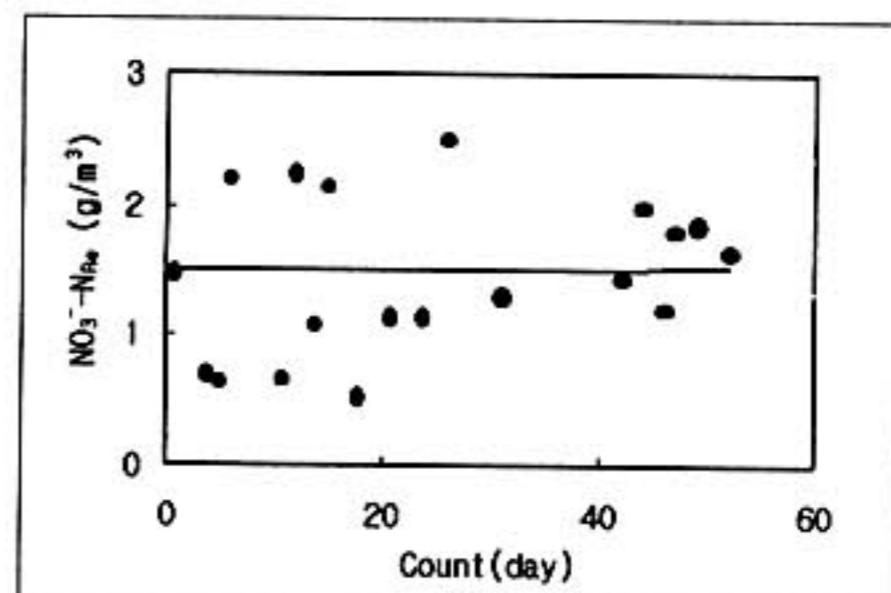


Fig. 11. NO_3^- -N Removal Ability ($\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$)

Fig. 12에 나타냈다.

그 결과 20일 이후 NO_3^- -N의 평균제거량은 $1.55\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$ 이고 제거율은 거의 100%에 가깝게 제거가 되었다. Fig. 12에서와 같이 유입되는 NO_3^- -N 모두가 반응조 내에서 거의 제거가 되었으며 이는 반응조 내에서의 NO_3^- -N의 부하율을 증가시켜도 칼럼내에서 제거할 수 있는 여력이 남아 있음을 알 수 있다.

3.4. 침출수 중 COD 와 N의 관계

침출수의 질산화 및 탈질에 있어서 중요한 인자 중의 하나가 COD/N 비이며 이론적인 COD/N 비는 질산성질소(NO_3^- -N)의 경우 2.86인데, 본 실험에서는 Fig. 13에서 보는 바와 같이 20일 전의 그룹과 후의 그룹의 경향이 점차 감소 추세에 있음은 충분한 NO_3^- -N의 제거능력이 있는 반면 유입 NO_3^- -N이 제거능력 이하로 유입되었음을 알 수 있다. 또한 NO_3^- -N이 100%정도의 제거율을 갖고 CODRe/ NO_3^- -NRe의 제거 비율이 점차로 감소하는 것은 COD 제거에 있어서 혼기성 소화분에 의한 탄소분의 제거가 정상적인 상태로 유지되기 시작함과 동시에 탈질에 필요한 탄소원으로서의 역할을 충분히 하고 있음을 알 수 있다.

IV. 결 론

본 연구는 준호기성 매립장에 개설된 침출수

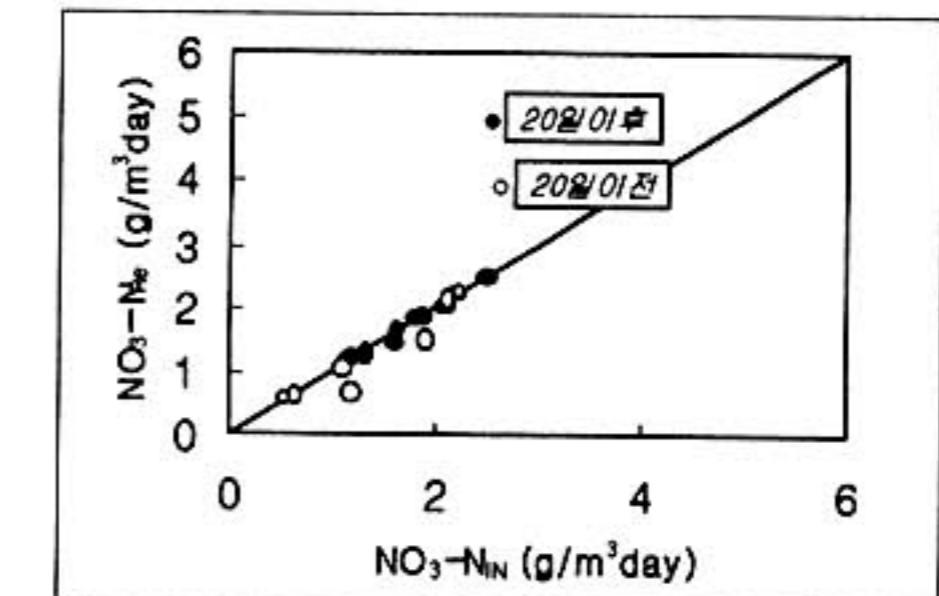


Fig. 12. NO_3^- -N Inflow Load($\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$) versus NO_3^- -N Removal Ability ($\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{day}$)

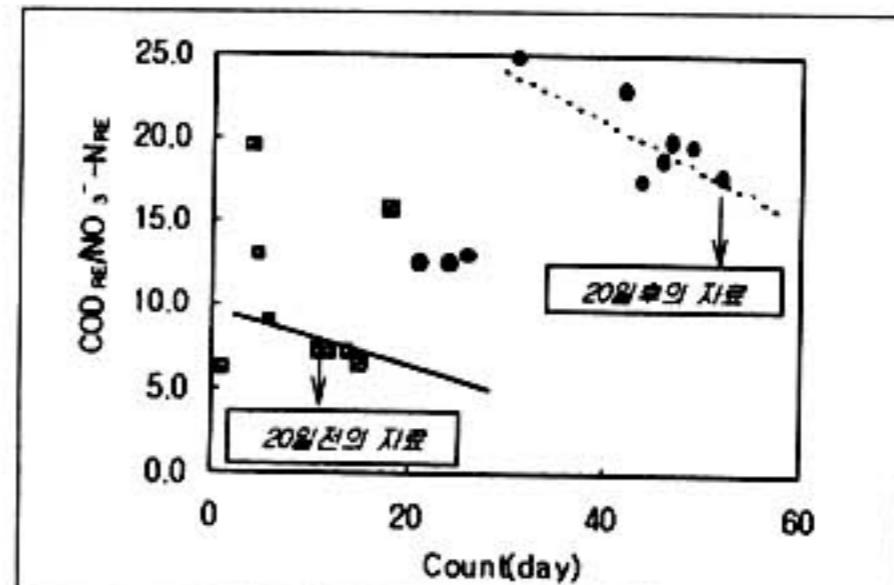


Fig. 13. CODRe/ NO_3^- -NRe Ratio

집배수관 근방의 침출수가 쇄석층(준호기성 영역)을 벗어난 혼기성 영역에서의 질소제거 효과를 알아보기 위한 실험으로 쇄석을 충전한 모의 칼럼내의 인공오수를 COD, NO_3^- -N 등의 실험결과는 다음과 같았다.

1. 본 실험에서 정상적인 유기오탁 제거를 나타낸 것은 20일 이후로 추정되며 유량이 20~90ml/day 범위이고 이 때 PO_4^{3-} -P의 제거율은 80% 정도 였다.

2. 실험 전(全) 기간의 COD_{Cr} 의 제거능력은 24.77g/ $\text{m}^3 \cdot \text{day}$ 이고, 유입 유량 20~90ml/day 범위에서 COD_{Cr} 의 제거능력은 약 36g/ $\text{m}^3 \cdot \text{day}$ 정도였다.

또한, 20일 이후의 평균 COD_{Cr} 제거량은 28.9g/ $\text{m}^3 \cdot \text{day}$ 이었으며 평균 제거율은 65.3%였다.

3. 유출수중의 NO_3^- -N제거정도와 T-P농도를 고려 할 때 실험경과 약 15~20일째로 추정한 제거량은 평균 98% 정도이고, COD와 마찬가지로 유입수량이 20~90ml/day 범위에 속하는 data의 NO_3^- -N 제거정도는 평균제거량 1.55g/ $\text{m}^3 \cdot \text{day}$ 이다.

4. NO_3^- -N가 100% 정도의 제거율을 갖고 $\text{COD}_{\text{Re}}/\text{NO}_3^- \text{N}_{\text{Re}}$ 의 제거비율이 점차로 감소하는 것은 COD 제거에 있어서 혼기성 소화분에 의한 탄소분의 제거가 정상적인 상태로 유지되고 탈질에 필요한 탄소원이 충분할 때 였다.

参考文献

1. 金英圭:準好氣性廢棄物埋立地における浸出水安定化に関する基礎的研究(1995. 12)
2. 松藤康司:活性化覆土による淨化機能と新しい最終處分システム, 廢棄物學會誌, Vol 6, No 4, pp.278-284(1995).
3. 田中信壽, 高畠恒志, 神山 一:廢棄物埋立處分場における大氣中酸素の廢棄物層への浸入深さとフラックスについて, 衛生工學研究論文集 第22卷, pp.37-47(1986).
4. 朴撤, 楠田哲也:埋立廢棄物の通氣性が 浸出水水質の安定化に 及ぼす影響について, 廢棄物學會誌, Vol. 5, No. 1, pp.19~28(1994).
5. 신항식, 정연구, 김종오: 모형매립조를 이용한 폐기물의 분해 증진연구, 한국폐기물학회지, 제10권, 제2호, pp. 129~136(1993)
6. 이신우, 윤인상 외 3명: 생활쓰레기의 매립방식과 침출수 재순환이 안정화에 미치는 영향, 한국폐기물학회지, 제11권, 제3호, pp. 437(1994)
7. Ehrig, H.J.:Laboratory scale tests for anaerobic degradation of municipal solid waste, Proceedings from International Solid Wastes and Public Cleansing Association Congress, Philadelphia, pp. 15-20 (1984).
8. ALFRED P. LEUSCHNER: Enhancement of Degradation: Laboratory Scale Experiments, Sanitary Land-filling:Process, Technology and Environmental Impact, pp. 83-102.
9. 田中信壽, 神山 一:嫌氣性混合ごみ埋立層中の可溶性汚濁物生成過程に関する研究, 衛生工學論文集, 第24卷, pp. 189~197(1988)
10. 田中信壽:埋立地浸出水の水量水質問題と準好氣性埋立構造, 廢棄物學會誌, Vol 4, No 1, pp. 41-46(1993).
11. 田中信壽, 松藤敏彦:廢棄物埋立層における不飽和水分移動特性とその測定法に関する研究, 廢棄物學會論文誌, Vol. 4, No. 3, pp. 107-115(1993)
12. 田中信壽, 松藤敏彦:廢棄物埋立層内の降雨不飽和浸透流れによる非反応性溶質輸送(混合)現象への擴散モデルや2成分モデルの適用性, 廢棄物學會論文誌, Vol 5, No 1, pp. 1-10(1994)
13. 권철웅, 조순행, 최영수, 하동윤, 윤계섭:고령화된 매립지에서 발생되는 침출수의 처리방안, 대한환경공학회지, J. of KSEE Vol. 19, No. 3, pp. 325~336(1997)
14. 高見澤一:バイオリアクターとしての廢棄物埋立處分地, 廢棄物學會誌, Vol. 6, No. 4, pp. 273-277(1995).
15. 松藤康司:廢棄物埋立の微生物分解過程に関する研究, 關東學院大學學位論文(1992).
16. Barnes, D. & Bliss, P.J.: Biological Control of Nitrogen In Wastewater Treatment, E & F.N, Spon(1983).
17. Painter, H.A., Wat. Res., Vol. 4, pp.393-450(1970).
18. Borchardt, J.A.: Nitrification in the Activated Sludge Process: In "The Activated Sludge Process in Sewage Treatment Theory and Application", Univ. of Michigan, Dept. of Civil Eng., Ann Arbor, Mich.(1966).
19. Shammas, N.K.: Interaction of Temperature, pH and Biomass on the Nitrification Process, Journal WPCF, Vol. 58, No. 1, pp. 52-59(1986).
20. G.H. Tao, S.W. Chen, J.J. Hu, G.W. Gu and A. Koenig, Anaerobic Treatment of Leachate from

- Municipal Landfill, Proceedings of the Asia-Pacific Conference on Sustainable Energy and Environmental Technology, pp.510-517.
21. 홍성철, 도시 쓰레기 매립지 침출수의 생물학적 처리, 한국폐기물학회지, 제14권, pp. 822- 831(1997).
22. Metcalf and Eddy, Inc., Design of Nitrification and Denitrification Facilities, EPA Technology Transfer Seminar Publication (1973).