

무산소 조건에서의 인섭취를 이용한 생물학적 영양염류 제거

이대성 · 전체욱 · 박종문

포항공과대학교 환경공학부

(1999년 12월 14일 접수, 2000년 2월 25일 채택)

Biological Nutrient Removal by Enhancing Anoxic Phosphate Uptake

Dae Sung Lee · Che Ok Jeon · Jong Moon Park

School of Environmental Engineering, Pohang University of Science and Technology

ABSTRACT

The feasibility of simultaneous phosphorus and nitrogen removal by enhancing anoxic phosphorus uptake was investigated in a sequencing batch reactor (SBR). By introducing an anoxic phase into an anaerobic-aerobic SBR (AO SBR), significant amounts of denitrifying phosphorus accumulating organisms (DPAOs) which can utilize nitrate as electron acceptor could be accumulated in the reactor (anaerobic-aerobic-anoxic-aerobic SBR, (AO)₂ SBR). A direct comparison of phosphorus uptake rate under anaerobic and aerobic conditions showed that the fraction of DPAOs in P-removing sludge were increased from 10% in the AO SBR to 64% in (AO)₂ SBR. The (AO)₂ SBR showed stable phosphorus and nitrogen removal efficiency; average removal efficiencies of TOC, total nitrogen, and phosphorus were 92%, 88%, and 100%, respectively. Results of the (AO)₂ SBR operation and batch tests showed that nitrite (up to 10 mg-N/L) was not detrimental to anoxic phosphorus uptake and could serve as good electron acceptor like nitrate.

Key Words : Phosphorus Removal, Anoxic Phosphorus Uptake, Sequencing Batch Reactor, Denitrifying Phosphorus Accumulating Organisms (DPAOs)

요 약 문

무산소 조건에서의 인섭취를 이용한 질소, 인 화합물의 동시 제거 가능성을 연속회분식반응기(SBR)를 사용하여 고찰하였다. 혐기-호기상의 AO SBR 반응기에 점차적으로 무산소상을 도입함으로써 질산염을 전자수용체로 사용하여 탈질이 가능한 인섭취 미생물(DPAOs)을 다량으로 축적하였다(혐기-호기-무산소-호기상의 (AO)₂ SBR). 무산소상과 호기상에서의 인섭취율을 비교해 보았을 때, 전체 인 제거 미생물 내에서 DPAOs의 비율이 약 10%에서 64%까지 증가하였다. (AO)₂ SBR은 안정된 질소, 인 제거 성능을 보였으며, 유기물질, 질소, 인 화합물의 제거율은 각각 92%, 88%, 100%였다. (AO)₂ SBR의 운전결과와 회분식 실험으로부터 아질산염은 무산소상에서의 인 제거 반응에 어떠한 악영향도 미치지 않으며, 오히려 질산염과 함께 전자수용체로 사용되어짐을 알 수 있었다.

주제어 : 인 제거, 무산소 조건에서의 인섭취, 연속회분식반응기, 탈질 가능한 인축적 미생물

1. 서 론

생물학적 인 제거 공정은 인을 생리학적 필요량보다 과도하게 세포내에 축적시켜 제거하는 방법이다. 인을 축적하는 미생물, 즉, PAOs(phosphorus accumulating organisms)는 혐기성 상태에서 세포내에 축적되어 있던 poly-P를 분해할 때 발생하는 에너지를 이용하여 아세트산과 같은 휘발성 지방산을 섭취한 후, PHB(Poly-β-hydroxy-butyrate)와 PHV(Poly-β-hydroxy-valerate) 등을 합성하여 체내에 저장한다. 이때 poly-P에서 유리된 ortho-P는 세포외로 방출된다. 혐기성 상태에서 호기성 상태로 바뀌면 인 제거 미생물은 산소를 전자수용체로 사용하여 저장해 두었던 PHB, PHV를 분해하여 ATP를 합성하고 이를 이용하여 ortho-P를 과다 섭취, poly-P로 합성하여 세포내에 저장한다.¹⁾ 이러한 현상을 인의 과잉섭취(phosphorus luxury uptake)라고 한다.

'90년대 초기까지만 해도 상술한 인 제거 기작에 있어 질산염은 전자수용체로 쓰여질 수 없다고 여겨졌다. 하지만 그 후 여러 연구자들에 의해서 무산소 조건하에서도 인을 과량 섭취할 수 있는 DPAOs(denitrifying phosphorus accumulating organisms)의 존재가 확인되고 있다.²⁻⁴⁾ DPAOs에 의한 인 제거 기작은 전통적인 혐기-호기상에서의 PAOs가 나타내는 기작과 매우 유사하며, 단지 산소

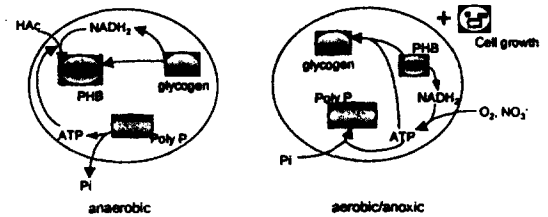


Fig. 1. A schematic diagram of the metabolism of DPAOs.

대신에 질산염이 전자수용체로 사용되어져 세포내에 저장된 PHB와 PHV를 분해한다는 점에서 차이가 있다(Fig. 1). 이러한 DPAOs는 질산염을 전혀 경험하지 못한 슬러지내에서도 존재하는 것으로 볼 때, PAOs 중에서 외부환경에 의해서 탈질능이 활성화된 균종으로 여겨진다.⁵⁾ 하 · 폐수내 질소, 인 제거에 있어 DPAOs를 이용하면 인 제거와 질산염이 질소가스로 배출되는 탈질반응이 동시에 일어나므로 PAOs에 비해서 매우 큰 장점을 지닌다. 일반적으로 탈질반응과 인 제거반응에 관여하는 미생물들이 제각기 유기물질을 필요로 하지만 하수내의 유기성 탄소물질의 농도는 부족한 실정이다. 따라서 DPAOs를 질소, 인 제거 공정에 도입하면 하수내 유기물질이 인 제거 반응과 탈질반응에 구분되어 사용될 필요가 없기 때문에 상대적으로 낮은 BOD를 포함하는 하수의 효과적인 처리가 가능하게 된다. 또한 이와 같은 하수내 유기물질의 이중적 사용은 슬러지 발생

량을 감소시키고 산소대신에 질산염을 전자수용체로 사용함으로써 산기에 필요한 에너지를 절감시킬 수 있게 한다.

본 연구에서는 전통적인 혐기상-호기상의 순서로 운전되고 있는 연속회분식공정(AO SBR)에 점차적으로 무산소상을 도입하여 공정내에 존재하는 DPAOs의 성장과 활성을 최대화하고, 낮은 유기물질을 함유한 하수에서의 효과적인 질소, 인 제거를 기하고자 하였다.

2. 실험장치 및 방법

2.1. AO SBR

AO SBR은 5리터 반응기(working volume: 4리터)를 사용하였다(Fig. 2). 반응기의 한 주기는 8시

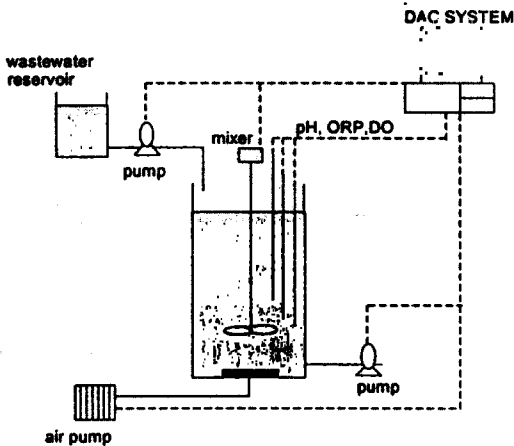


Fig. 2. Schematic diagram of SBR system (dotted line: data flow).

간으로 하였고, 각 단계의 유지시간은 각각 유입 10분, 혐기 반응 2시간, 호기 반응 4시간 30분, 침전 1시간, 유출 및 휴지 20분으로 하였다. 반응기의 유입단계에서 2리터의 폐수가 들어가고 유출단계에서 2리터의 처리수가 방출되도록 하였고 호기적 조건 마지막 단계에서 일부의 슬러지를 제거해 줌으로써 SRT가 약 12일로 유지되도록 하였다. 반응 온도는 항온조를 사용하여 20±1℃로 유지하였다. 유입수의 COD(CH₃COOH), 인(PO₄³⁻-P) 및 질소(NH₄⁺-N)의 농도는 각각 합성폐수를 사용하여 600 mg/L, 15 mg-P/L, 40 mg-N로 하였다. DAC(data acquisition and control) 시스템을 자체 제작하여 SBR 운전을 자동제어 하였다.

2.2. (AO)₂ SBR

10개월 가량의 안정적인 질소, 인 제거 성능(질소: 76%, 인: 100%)을 보이던 AO SBR 반응기에 Fig. 3과 같이 단계적으로 무산소상을 도입하면서 동시에 유입수 부하량과 SRT를 조절하였다. 엄격한 무산소 조건을 유지하기 위하여 반응액 상부로 질소가스를 불어 넣었다. 무산소상에서 질산염을 소비하면서 안정적인 인섭취 현상을 보이는 단계 IV에서의 SBR반응기의 한 주기는 8시간이었으며, 혐기상 1시간 30분, 호기상 1시간 30분, 무산소상 2시간 30분, 호기상 1시간, 침전 및 유출 1시간 30분으로 유지되었다. 유입수의 COD, 인(PO₄³⁻-P) 및 질소(NH₄⁺-N)의 농도는 각각 300 mg/L, 10 mg-P/L, 30 mg-N/L이었다. 이러한 혐기-호기-무산소-호기상의 순서로 운전되는 SBR을 (AO)₂ SBR이라고 명하였다(Fig. 4).

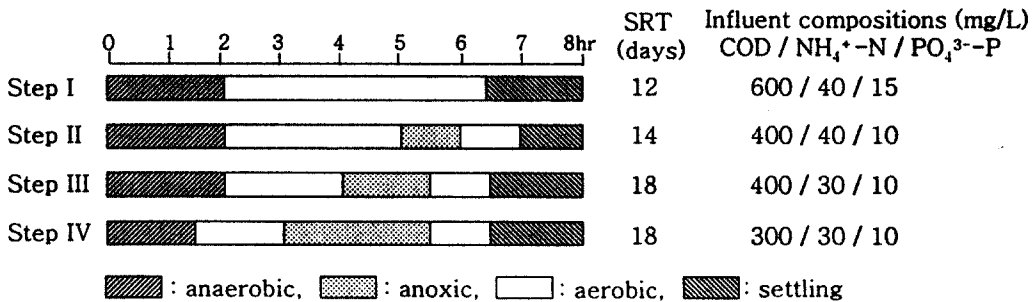


Fig. 3. Operational conditions in the SBR.

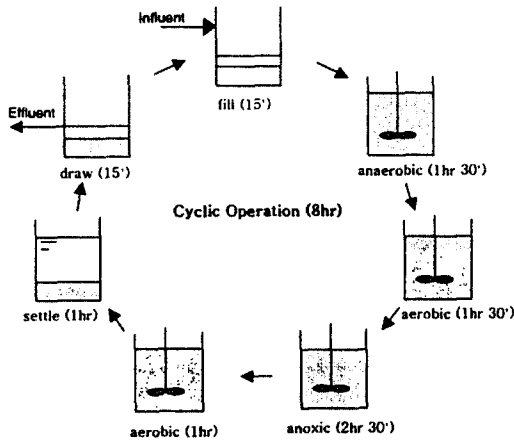


Fig. 4. Cyclic operation of (AO)₂ SBR.

3. 결과 및 고찰

3.1. (AO)₂ SBR 운전결과

Fig. 5는 각 단계에서 혐기상 마지막 시점에서의 인농도와 유출수내 인, 질산염, 아질산염 농도의 일일 변화를 나타낸다. 단계 II에서는 유출수내 인과 아질산염 각각 0.5~1.8 mg-P/L, 0.5~2.5 mg-N/L 가량 검출되었으며 무산소상에서의 인섭취 현상은 나타나지 않았다. SRT를 12일에서 18일로 늘리고 유입수내 암모니아 농도를 감소시켰을 때, 무산소상에서의 인섭취가 조금씩 일어나기 시작했다(단계 III). 단계 IV에서는 처음 30일간 무산소 조건에서의 인섭취가 두드러지게 증가하면서 유출수내 질산염의 농도가 점차적으로 감소하였으며, 그 후 무산소상에서의 인섭취가 안정적으로 지속되었다. 이 때 (AO)₂ SBR의 유기물질, 질소, 인 화합물의 제거율은 각각 92%, 88%, 100%였다.

(AO)₂ SBR에서의 전형적인 TOC, 질소, 인 농도 변화는 Fig. 6과 같다. 혐기상에서는 유입수내 TOC가 빠르게 사용되면서 반응기내 인의 농도가 55 mg-P/L까지 증가하고, 뒤이은 호기조건에서는 인섭취가 빠른 속도로 일어나면서, 유입수내 암모니아가 아질산염과 질산염으로 전환되고 있다. 무산소상에서는 질산염과 아질산염의 농도가 감소하면서 상당량의 인섭취가 일어나고 있음을 알 수 있다. 무산소상에서 질산염과 아질산염을 사용한 인섭취 속

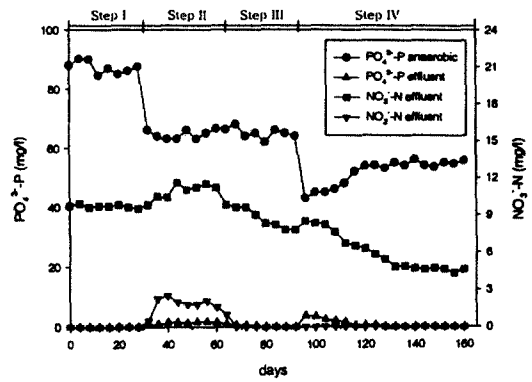


Fig. 5. Daily variation of PO₄³⁻-P, NO₃⁻-N and NO₂⁻-N concentrations in the effluent and PO₄³⁻-P at the end of the anaerobic phase.

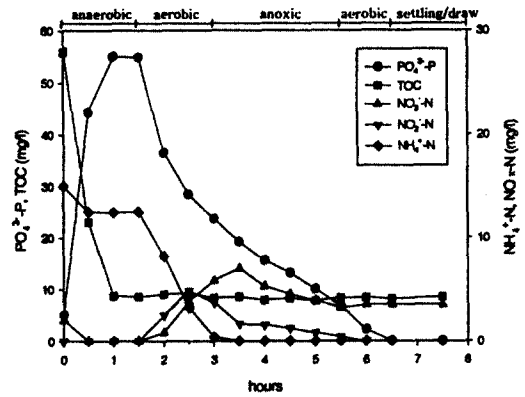


Fig. 6. Typical profile of TOC, PO₄³⁻-P, NH₄⁺-N, NO₃⁻-N and NO₂⁻-N concentrations in the (AO)₂ SBR during the step IV.

도는 2.1 mg-P/mg-N · h로 나타났다. 무산소상의 초기에 질산염이 증가하는 것은 앞의 호기상에서 남아 있던 반응기내 잔존 산소를 사용하여 아질산염이 질산염으로 전환되었기 때문이다. 마지막 호기상에서는 반응기내 인이 완전히 제거되는 것을 알 수 있다. 또한, AO SBR내에서의 휘발성 부유물질량(VSS)이 2.65 g-VSS/L이었으나 무산소상을 도입한 (AO)₂ SBR에서의 휘발성 부유물질량은 1.48 g-VSS/L로 나타났다. 유출수내 미생물량이 아주 작다고 가정하고 미생물 생산계수 Y를 계산해 본 결과, Y_{AO} = 0.63, Y_{(AO)2} = 0.59로 나타났으며, AO SBR, (AO)₂ SBR의 일일 폐슬러지 발생량은 휘발성 부유

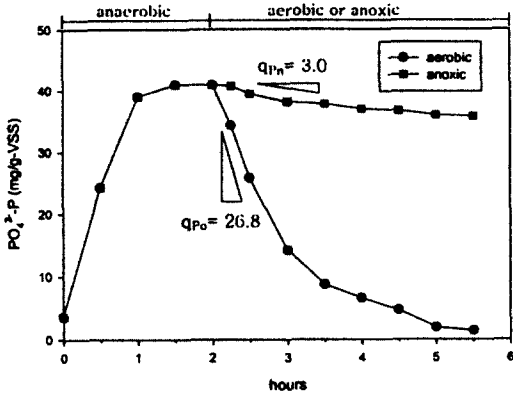


Fig. 7. Phosphorus uptake tests under aerobic and anoxic conditions with the sludge from the AO SBR (VSS= 2.65 g/L).

물질을 기준으로 각각 886 mg/d, 320 mg/d였다. 이로부터 DPAOs를 질소, 인 제거 공정에 도입함으로써 상당량의 슬러지 발생량 감소효과를 얻을 수 있음을 알 수 있다.

3.2. (AO)₂ SBR내의 DPAOs

호기상과 무산소상에서의 인 섭취속도를 비교함으로써 인 제거에 관여하는 PAOs내에서의 DPAOs의 상대적인 양을 간접적으로 측정할 수 있다. 이 방법은 일반적인 PAOs는 무산소상에서 활성을 나타내지 않는 반면, DPAOs는 무산소상과 호기상에서 동일한 활성을 나타내는 사실에 기인한다.⁶⁾ AO SBR과 이 반응기에 무산소상을 도입한 (AO)₂ SBR 내에서 각각의 PAOs와 DPAOs의 상대적인 양을 비교해 보았다.

Fig. 7은 AO SBR내의 슬러지를 사용하여 호기상과 무산소상에서의 인섭취량을 측정한 회분식 실험 결과이다. 무산소상과 호기상에서의 인섭취 속도는 각각 3.0, 26.8 mg-P/g-VSS·h로 나타났다. 따라서 전체 PAOs에서 DPAOs가 약 10%를 차지함을 알 수 있다. 이로부터 엄격히 혐기-호기상으로만 운전된 AO SBR내에서도 무산소 조건에서 인을 섭취할 수 있는 미생물이 상당량 존재함을 알 수 있다. (AO)₂ SBR내에서의 실험결과는 Fig. 8과 같다. (AO)₂ SBR에서는 무산소상과 호기상에서의 인섭

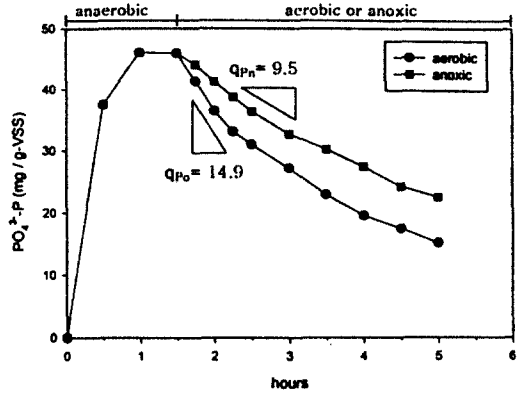


Fig. 8. Phosphorus uptake tests under aerobic and anoxic conditions with the sludge from the (AO)₂ SBR (VSS= 1.48 g/L).

취 속도가 각각 9.5, 14.9 mg-P/g-VSS·h였으며, 이는 전체 PAOs에서 DPAOs가 차지하는 비율이 64%까지 증가했음을 나타낸다. 위의 결과로부터 AO SBR내에 무산소상을 도입함으로써 비교적 쉽게 DPAOs를 측정할 수 있음을 알 수 있다.

3.3. 아질산염이 무산소상에서의 인섭취에 미치는 영향

아질산염이 무산소상에서 전자수용체로 사용될 수 있으나 없느냐에 대해서는 서로 상반된 의견이 제시되고 있다. 일부 연구자들이 아질산염은 DPAOs에 의해서 전자수용체로 사용될 수 없다고 보고하였으나, 최근 Meinhold 등은 낮은 농도(45 mg-N/L)의 아질산염이 전자수용체로 사용되었음을 보고하였다.⁷⁻⁹⁾ 현재 운전중인 (AO)₂ SBR에서는 일부의 아질산염이 무산소상에서 인섭취에 사용되는 것으로 나타났으며, 아질산염이 인섭취에 미치는 영향을 보다 자세히 조사하기 위하여 회분식 실험을 수행하였다(Fig. 9).

10 mg-N/L의 질산염을 무산소상의 초기에 사용한 경우, 질산염이 존재하는 동안은 인이 계속 섭취되었다. 10 mg-N/L의 아질산염을 사용하였을 때에도 이와 유사한 인섭취 속도와 아질산염 소비속도를 보였다. 5 mg-N/L의 질산염과 5 mg-N/L의 아질산염을 혼합하여 투여했을 때는 초기에 질산염이 아

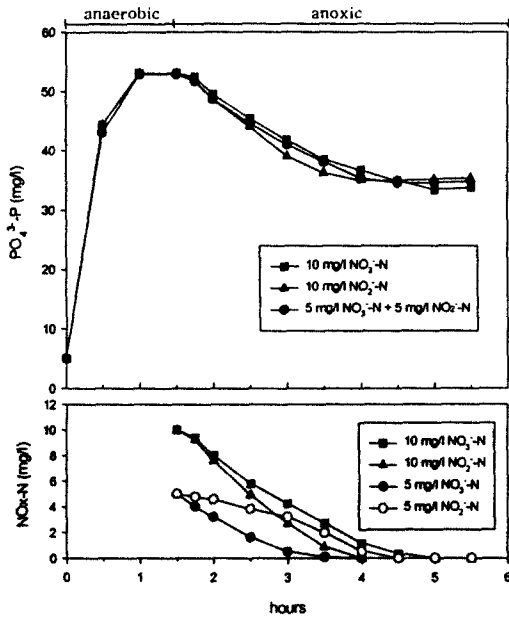


Fig. 9. The effect of nitrite on the anoxic phosphorus uptake.

질산염에 비하여 빠르게 소모되다가 질산염의 농도가 1 mg-N/L 이하로 감소하자 아질산염이 빠르게 사용되기 시작했다. 실험결과에 의하면 비교적 높은 농도인 10 mg-N/L까지의 아질산염은 질산염과 마찬가지로 전자수용체로 사용될 수 있었으며 무산소상에서의 인섭취에 어떠한 저해현상도 나타내지 않았다. 또한 질산염과 아질산염이 동시에 존재할 경우 질산염이 보다 우선적으로 사용되어짐을 알 수 있었다.

4. 결 론

본 연구는 인제거와 탈질반응을 동시에 일으키는 DPAOs를 질소, 인제거 공정에 도입하여 낮은 유기물 함량을 지닌 하수를 보다 효과적으로 처리하고자 수행하였으며, 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- 1) 일반적인 AO SBR 반응기내에 무산소상을 도입함으로써 DPAOs의 성장과 활성화를 얻을 수 있었으며, 이 때의 혐기-호기-무산소-호기상의 순서로 운전되는 (AO)₂ SBR은 안정된 유기물질, 질소, 인 화합물의 제거율(각각

92%, 88%, 100%)을 보였다.

- 2) 전체 PAOs내에서 DPAOs의 상대적인 양을 비교해 본 결과, AO SBR에서 10%를 차지했던 DPAOs가 (AO)₂ SBR에서는 64%까지 증가했음을 알 수 있었다.
- 3) 아질산염이 무산소 조건에서의 인섭취에 미치는 영향을 조사한 결과, 아질산염은 인섭취에 어떠한 저해 작용도 미치지 않으며, 적어도 10 mg-N/L까지는 질산염과 유사하게 전자수용체로 사용되는 것으로 나타났다.

사 사

이 논문은 1998년 한국학술진흥재단의 학술연구비에 의하여 지원되었음.

참 고 문 헌

1. Wentzel, M. C., Litter, L. H., Ekama, G. A., Loewenthal, R. E., and Marias, G. v. R., "Evaluation of biochemical models for biological phosphorus removal," *Wat. Sci. Technol.*, **23**(4/6), 567~576 (1991).
2. Kerrn-Jespersion, J. P. and Henze, M., "Biological phosphorus uptake under anoxic and aerobic conditions," *Water Res.*, **27**(4), 617~624 (1993).
3. Kuba, T., Smolders, G. J. F., van Loosdrecht, M. C. M., and Heijnen J. J., "Biological phosphorus removal from wastewater by anaerobic-aerobic sequencing batch reactor," *Wat. Sci. Tech.*, **27**, 241~252 (1993).
4. Barker, P. S. and Dold, P. L., "Denitrification behaviour in biological excess phosphorus removal activated sludge systems," *Water Res.*, **30**(4), 769~780 (1996).
5. Wachtmeister, A., Kuba, T., van Loos-

- drecht, M. C. M., and Heijnen, J. J., "A sludge characterization assay for aerobic and denitrifying phosphorus removing sludge," *Water Res.*, **31**(3), 471~478 (1997).
6. Brdjanovic, D., van Loosdrecht M. C. M., Hooijmans, C. M., Mino, T., Alaerts, G. J., and Heijnen J. J., "Innovative methods for sludge characterization in biological phosphorus removal systems," *Wat. Sci. Tech.*, **39**(6), 37~43 (1999).
7. Comeau, Y., Oldham, W. K., and Hall, K. J., "Dynamics of carbon reserves in biological dephosphatation of wastewater," in *Proceedings of an IAWPRC specialized conference in Rome on Biological Phosphorus Removal from Wastewaters*, Rome, Italy, p. 3955 (1987).
8. Kuba, T., van Loosdrecht, M. C. M., and Heijnen J. J., "Phosphorus and nitrogen removal with minimal COD requirement by integration of denitrifying dephosphatation and nitrification in a two sludge system," *Water Res.*, **30**(7), 1702~1710 (1996).
9. Meinhold, J., Arnold, E., and Isaacs, S., "Effect of nitrite on anoxic phosphate uptake in biological phosphorus removal activated sludge," *Water Res.*, **33**(8), 1871~1883(1999).