

## 재순환 충전탑식 반응기를 이용한 효율적 탈질

<sup>1</sup>김성홍 · <sup>2</sup>송승훈 · <sup>3</sup>박재연 · †<sup>2,4</sup>유영제

<sup>1</sup>SK(주) 의약개발팀, <sup>2</sup>서울대학교 협동과정 생물화학공학전공

<sup>3</sup>한국과학기술연구원 수질환경및 복원 연구 센터, <sup>4</sup>서울대학교 응용화학부

(접수 : 2004. 3. 9., 게재승인 : 2004. 4. 25.)

## Recycled packed-bed reactor for efficient denitrification

Sung Hong Kim<sup>1</sup>, Seung Hoon Song<sup>2</sup>, Jae Yeon Park<sup>3</sup>, and Young Je Yoo<sup>2,4†</sup>

<sup>1</sup>Bio-Pharmaceutical Research Team, SK Corporation, Daejeon 305-712,

<sup>2</sup>Interdisciplinary Program for Biochemical Engineering and Biotechnology,

<sup>3</sup>KIST, Water Environment and Remediation Research Center, Seoul

<sup>4</sup>School of Chemical Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

(Received : 2004. 3. 9., Accepted : 2004. 4. 25.)

Recycled packed-bed reactor employing immobilized microorganism was suggested in this paper for efficient denitrification. In the batch reactor, the effects of initial oxidation-reduction potential and nitrate concentration on denitrification were investigated. As the initial oxidation-reduction potential was decreased to -70 mV from +40 mV, the removal rate of nitrate was increased to 3.33 from 1.25 mg NO<sub>3</sub>-N/min under the experimental conditions. As the initial nitrate-N concentration was increased to 200 mg/l, the removal rate of nitrate was proportional to the concentration of nitrate. When the concentration of nitrate-N was 400 mg/min, nitrite was detected, and when the initial nitrate-N concentration was reached at 1,000 mg/l, it took longer time for the complete nitrate removal. In order to decrease the initial oxidation-reduction potential and the nitrate-N concentration in the feed stream, the effluent was recycled to the influent stream in the packed-bed reactor. In the case of recycling, the initial oxidation-reduction potential was decreased to 30 mV from 150 mV, and the initial nitrate concentration could be decreased to 85 from 120 mg NO<sub>3</sub>-N/l. As the result of recycling, the removal rate of nitrate was increased to 91.7% from 49.2%.

**Key Words** : Oxidation-reduction potential, packed-bed reactor, nitrate removal, nitrate reductase, wastewater treatment

### 서론

하천으로 유입된 오수와 산업 폐수 내에는 탄소성 유기물질과 함께 질소와 인 등의 영양 물질이 많이 포함되어 있다. 이들 중에서도 질소는 부영양화를 촉진하며 수생 생물에 대한 암모니아성 질소의 독성 뿐만 아니라, 많은 산소 소모를 가져올 수 있어 어패류 폐사의 원인이 되어 죽은 강물을 만들 수 있다. 특히, 상수에서 질산성질소(NO<sub>3</sub>-N)의 농도가 높을 경우에는 건강에 치명적인 영향을 미칠 수 있다. 그러므로 식수로 사용하

기에 적합한 수준의 수질을 만들기 위해서는 질산성질소의 농도를 충분히 낮출 수 있는 효율적인 공정이 필요하게 된다.

질산성질소의 제거 방법에는 화학적인 환원, 역삼투압법, 전기투석, 이온 교환 수지 및 생물학적인 탈질법 등이 있다(1-4). 이들 중에서 탈질 효율이 가장 좋은 것은 이온교환 수지법이나, 농축된 질산성질소의 배출 문제와 이온교환수지의 재생에 별도의 화학약품의 사용이 필요하므로 비용이 많이 든다. 반면, 생물학적 탈질법은 환경친화적인 공정으로 탈질 효율이 비교적 우수할 뿐만 아니라 전체적인 처리 비용도 이온교환수지법에 비해 저렴하다(5).

생물학적 탈질에는 여러 종류의 탈질 효소에 의한 연속 반응의 결과로 질산성질소를 질소 가스로 환원시켜 대기로 배출시킨다(6). 무산소 조건에서 많은 미생물들은 세포의 성장과 유지를 위한 에너지를 얻기 위해서 산소 대신에 질산성질소를 전자수용체로 이용함으로써 탈질을 가능

† Corresponding Author : School of Chemical Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

Tel : +82-2-880-7411, Fax : +82-2-887-1659

E-mail : yjyoo@snu.ac.kr

하게 한다(7). 일반적으로 탈질관련 효소의 생합성과 반응은 호기 조건에서 저해를 받음으로 탈질 과정은 혐기 조건에서 수행한다. 이와 같은 탈질공정의 운전변수로 용존산소는 매우 중요한 인자 중의 하나이다. 그러나 때로는 용존산소의 농도가 매우 낮을 때는 측정이 어려워 상업적인 용존산소 전극으로는 용존산소의 변화를 지속적으로 관찰하기가 어렵다. 그래서 매우 낮은 용존산소가 존재할 경우에는 산화환원전위 (oxidation-reduction potential)의 측정으로 대신할 수 있다(8). 특히 미생물을 이용한 탈질에 있어서 산화환원전위가 매우 중요한 운전변수임이 많은 연구에서 발표되고 있다(9, 10).

또한 반응기에서 미생물에 의한 탈질 효율을 증가시키기 위해서는 많은 미생물을 안정적으로 공급하는 것이 가장 중요한 요소 중의 하나이다. 산업적으로 반응기에서 미생물의 농도를 높게 유지하기 위해서는 담체의 표면에 부착시키는 방법과 담체 내부에 포괄 고정화시키는 방법이 사용되고 있다(11). 이들 방법 중에서 포괄 고정화 방법이 더 많이 이용되고 있는데, 고정화 담체에도 한천, 알지네이트, 키토산 등의 다양한 물질이 이용되고 있으나, 최근에는 미생물에 무독하며 가격이 비교적 저렴한 polyvinyl alcohol (PVA)를 많이 사용하고 있다(12).

본 연구에서는 미생물이 고정된 담체를 이용한 충전탑식 반응기에서의 탈질 효율을 향상시키기 위해 초기 산화환원전위와 초기 질산성질소 농도가 탈질에 미치는 영향을 연구하여 충전탑식 반응기에서 유출수의 재순환을 통해 초기 산화환원전위를 낮춤으로써 탈질 효율을 향상시킬 수 있는 결과를 보고한다.

## 재료 및 방법

### 미생물 배양 및 담체 제조

김포 매립지의 활성 오니에서 질산성질소를 환원시킬 수 있는 능력을 가진 미생물을 선별하였으며, 이를 형태학, 생화학 및 생리학적 특성의 검사를 통해 *Ochrobactrum anthropi* SY509으로 동정하였다. 이 미생물은 30°C, pH 7.0, 500 ml 플라스크에서 배양하였으며, 배지 조건 등은 Song(13)의 조건과 동일하게 하였다.

또한, 본 연구의 회분식 반응기와 충전탑식 반응기에 사용한 고정화 미생물 담체의 제조는 다음과 같다(14). 먼저 혐기 조건에서 배양하여 탈질 능력을 향상시킨 미생물을 20분간 원심분리하여 분리하였다. 분리한 미생물은 증류수로 두 번 세척한 후 즉시 고정화에 사용하였다. 즉, 증류수에 다시 미생물을 현탁시키고, 20 ml의 PVA (polyvinyl alcohol) 용액과 완전히 혼합시키고, 여기에 Xanthan gum을 첨가한 후 무독성, 비이온성 계면활성제인 Tween20을 포함한 boric acid에 미생물 현탁액을 한 방울씩 떨어트리면서 구 모양의 비드형 담체를 제조하였다. 실온에서 약 2시간 동안 교반해주면서 미생물 담체가 어느 정도 굳기가 이루어지면, 증류수에 옮긴 후 약 1시간 동안 반응하지 않고 남은 boric acid와 인산기들을 세척하였다. 미생물 고정화 동안에도 질산성질소의 환원력을 유지하기 위하여 약간의 포도당과 질산성질소를 PVA용액과 boric acid에 각각 첨가하였다.

### 분석방법

회분식 반응기와 충전탑식 반응기 내의 pH와 산화환원전위량은 각각 pH 전극 및 ORP 전극 (Phoenix Electrode Co.)으로 연속 측정하였으며, 미생물 담체에 의한 탈질의 정도를 확인하기 위하여 일정 시간 간격으로 일회용 주사기를 이용하여 약 2 ml의 시료를 채취하였다. 채취한 시료는 즉시 15분간 원심분리하였고, 상등액을 이온크로마토그래피 (Water 432)를 사용하여 질산성질소 (nitrate 및 nitrite)의 농도를 측정하였다. 이온크로마토그래피 분석에 사용한 용매는 sodium borate/gluconate 용액, n-butanol, acetonitrile 등을 사용하였다 (10).

### 회분식 반응

탈질에 있어서 폐수의 초기 산화환원전위 및 질산성질소의 농도에 따른 탈질의 특성을 살펴보기 위한 회분식 반응기의 실험 조건은 다음과 같다. 먼저, 회분식 반응 연구에 사용한 합성폐수의 조성은 Table 1과 같으며, 초기 질산성질소의 농도 조건에 따라 포도당의 농도를 1 : 5의 비율로 첨가하였다. 또한 250 ml 반응기에서 질소 가스를 충분히 불어넣어 미리 혐기 조건을 만들고, 초기 산화환원전위를 원하는 수준까지 떨어뜨린 후 미생물 담체 50 ml가 들어있는 다른 250 ml 반응기로 펌프를 통해 합성 폐수 150 ml를 이송시켰다. 시간이 지남에 따라 회분식 반응기 내에 부착된 pH meter와 ORP meter를 이용하여 합성폐수의 상태를 파악하며, 일정 시간 간격으로 2 ml의 시료를 채취하여 15분간 원심분리 후 이온크로마토그래피로 nitrate 및 nitrite의 농도를 측정하였다.

### 미생물 담체를 이용한 충전탑식 반응

앞에서 수행한 회분식 반응기의 결과를 바탕으로, 유출수의 일부를 유입수로 재순환시켜 유입수의 산화환원전위를 낮춤으로 인한 탈질의 효율 향상을 확인하기 위하여 충전탑식 연속 반응 실험을 수행하였다. 이때 사용한 합성폐수의 조성은 회분식 반응 실험과 같이 Table 1에 나와있는 조건과 같으며, 초기 nitrate의 농도는 120 mg/l, 포도당의 농도는 600 mg/l로 하였다. Fig. 1에는 recycle이 있는 경우의 충전탑식 반응기의 모식도를 나타내었다.

Table 1. Composition of the synthetic wastewater in batch reactor and packed-bed reactor

Components	Concentration (mg/l)
NaHCO <sub>3</sub>	250
K <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub>	27
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	34.5
CaCl <sub>2</sub> · 2H <sub>2</sub> O	10
MgSO <sub>4</sub> · 7H <sub>2</sub> O	50
MnCl <sub>2</sub> · 4H <sub>2</sub> O	5
ZnSO <sub>4</sub> · 7H <sub>2</sub> O	5
FeSO <sub>4</sub> · 7H <sub>2</sub> O	50

반응기의 유입과 유출 지점, 그리고 재순환이 있는 경우는 합류 지점 후의 농도를 각각 측정하기 위하여 세 곳에서 시료를 채취하였으며, 충전탑식 반응기에 부착된 pH meter와 ORP meter를 이용하여 실시간으로 반응기 내의 상태를 파악하였다. 그리고, 일정시간마다 2 ml씩 채취한 시료는 15분간

원심분리 후 이온크로마토그래피로 nitrate 및 nitrite 의 농도를 측정하였다. 처음 24시간동안에는 유출수의 재순환없이 합성 폐수의 초기 질산성질소의 농도를 120 mg/l, pH 7.0으로 일정하게 4 ml/min의 속도로 반응기에 유입시켰다. 유출수의 산화환원전위가 일정하게 정상 상태에 이른 것을 확인한 후, 유출수 중에서 2 ml/min의 속도로 일정하게 유입수로 재순환시킴으로 유입되는 합성폐수의 초기 산화환원전위를 낮게 유지하였다.

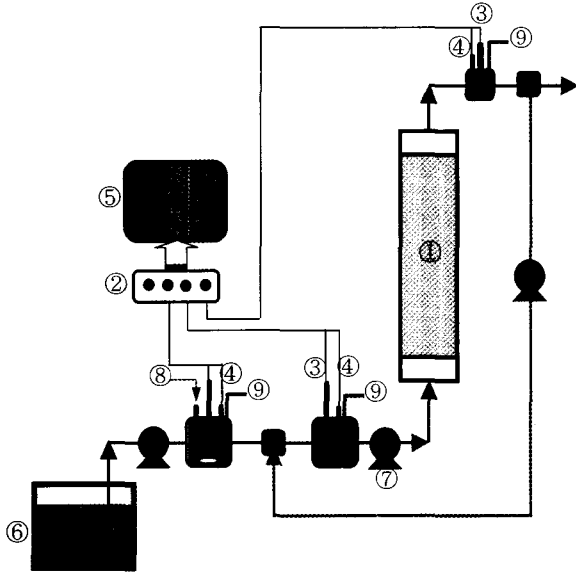


Figure 1. Schematic diagram of packed-bed reactor system (recycle system). ① packed-bed reactor; ② ORP/pH meter; ③ ORP probe; ④ pH probe; ⑤ monitor; ⑥ feeding water; ⑦ pump; ⑧ nitrogen purging; ⑨ sampling port

결과 및 고찰

회분식 반응기에서의 초기 산화환원전위의 영향

미생물 담체를 이용한 회분식 반응기에서 초기 산화환원전위가 탈질의 효율에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 초기 산화환원전위를 +40 mV에서 -70 mV까지 변화시켜 보았다. 이때 담체내의 미생물의 농도는 증가되지 않고 거의 일정한 수준 (1.15 mg-DCW/bead)으로 유지되었다. 본 연구에서는 외부에서 산화환원전위를 미리 낮춘 합성폐수를 미생물 담체가 들어있는 반응기에 이송시켜 탈질변화를 비교하였다. Table 2에 나와 있는 결과와 같이, 먼저 질산성질소를 완전히 제거하는데 소요되는 시간을 살펴보면, 합성폐수의 초기 산화환원전위가 +40 mV에서 -70 mV로 낮아질수록 질산성질소의 완전 제거에 필요한 시간이 적어짐을 알 수 있었다. 이는 고정화시키지 않은 미생물을 사용할 경우에도, 산화환원전위가 낮은 환경에서 탈질 반응이 잘 일어난다는 과거의 연구결과와 같은 경향을 보여주고 있다(10). 초기 산화환원전위가 +40 mV에서 -70 mV으로 낮아질수록 질산성질소의 제거 속도가 1.25 mg/min에서 3.33 mg/min으로 증가하였으며, 반면에 초기 산화환원전위가 +40 mV로 높은 경우에는 nitrate의 환원 반응 도중에 nitrite가 최대 66 mg NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N/l까지 축적됐으며, 이에 따라 질산성질소를 완전히 제거하는데 더 많은 시간이

필요하였고, 질산성질소의 제거 속도가 1.25 mg/min로 상대적으로 낮아짐을 알 수 있었다. 일반적으로 탈질공정에서 nitrite는 nitrate가 질소가스로 전환되는 동안에 나타나는 중간 산물로서 미생물 내에서 높은 nitrate reductase의 활성에 의해 nitrate의 환원으로 생성되는 nitrite는 즉각적으로 환원이 된다. 본 연구 결과에서 초기 산화환원전위가 높아질수록 nitrite의 검출이 증가되는 것으로 미루어 높은 산화환원전위 조건에서 미생물 내의 nitrite reductase의 활성이 저해받아 nitrite의 축적이 증가된 것으로 추정할 수 있는데, 이것은 초기 산화환원전위가 탈질 관련 효소의 활성에 영향을 준다는 Song(10)의 연구 결과에 의해서도 뒷받침된다. 즉, 초기 질산성질소의 농도가 100 mg/l로 비교적 낮은 경우에도 초기 산화환원전위가 높은 경우에는 nitrite reductase의 저해로 인해, 환원된 nitrite가 다시 질소로 환원 반응이 빠르게 일어나지 않고, nitrite가 축적이 되어 합성 폐수에서 검출이 됨을 알 수 있었다. 이와같이 초기 산화환원전위가 낮아질수록 탈질에 필요한 시간이 짧아져 탈질 효율이 증가하게 되지만 초기 산화환원전위가 높아지면 nitrite reductase의 활성 저해로 인해 nitrite가 축적이 되어 전체적인 탈질 효율이 낮아지기 때문에, 초기 산화환원전위를 낮추는 것이 nitrite reductase의 저해 작용없이 탈질 제거 속도를 높일 수 있는 방법임을 알 수 있었다.

Table 2. Effects of the initial ORP on nitrate and nitrite removal in batch reactor - Initial concentration of nitrate-N is 100 mg/l and initial pH is 7.0

Initial ORP (mV)	Removal time (min)	Maximum concentration of detected nitrite (NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N mg/l)	Removal rate (NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N mg/min)
+40	80	66	1.25
-20	35	23	2.86
-50	35	0	2.86
-70	30	0	3.33

회분식 반응기에서의 초기 질산성질소 농도의 영향

미생물 담체를 이용한 회분식 반응기에서 초기 질산성질소 농도가 탈질 효율에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 Table 3에서와 같이 회분식 반응기에서는 초기 질산성질소 농도를 50 mg/l에서 1,000 mg/l까지 변화시켜 보았다.

Table 3. Effects of the initial nitrate concentration on nitrate and nitrite removal in batch reactor - Initial ORP is -50 mV and initial pH is 7.0

Initial nitrate concentration (NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N mg/l)	Removal time (min)	Maximum concentration of detected nitrite (NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N mg/l)	Removal rate (NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N mg/min)
50	25	0	2.00
100	35	0	2.86
200	60	0	3.33
400	120	1.5	3.33
1,000	320	380	3.13

질산성질소의 농도가 200 mg/l 이하인 비교적 낮은 범위에서 초기 질산성질소의 농도가 증가함에 따라 질산성질소의 완전제거에 걸리는 시간은 증가하였지만, 전체적인 탈질 속도는 2.0 mg/min에서 3.33 mg/min으로 증가함을 알 수 있었

다. 또한 초기 질산성질소 농도 200 mg/l까지는 탈질 과정에서 nitrite가 검출되지 않았다. 반면에 초기 질산성질소의 농도가 400 mg/l로 증가한 경우에는 전체적인 탈질 속도는 3.33 mg/min으로 최고 속도를 유지하였지만, 탈질 과정에서 nitrite가 검출되기 시작하였으며, 초기 질산성질소의 농도가 1,000 mg/l인 경우에는 탈질 중간에 생성되는 nitrite의 양이 380 mg/l까지 축적되었다가 제거됨을 알 수 있었으며, 질산성질소의 제거 속도는 감소함을 알 수 있었다.

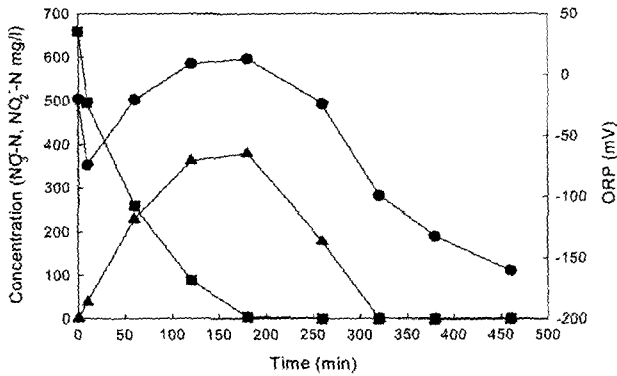


Figure 2. Initial nitrate effect on denitrification in batch reactor - initial nitrate-N concentration is 1,000 mg/l and pH is 7.0: (■) NO<sub>3</sub>-N; (▲) NO<sub>2</sub>-N; (●) ORP.

Fig. 2에서 보는 바와 같이 초기 질산성질소의 농도가 1,000 mg/l로 높은 경우에는 nitrate의 환원으로 생성되는 nitrite가 nitrite reductase의 저해로 인하여 빠르게 환원이 되지 않고, 회분식 반응기 내에서 380 mg/l까지 축적되어 검출됨을 알 수 있었다. 미생물에 의한 생물학적인 탈질 공정은 전자공여체가 요구되며, 미생물 내에서 NADH에 의해서 만들어지는 전자는 탈질관련 효소들에 의해서 서로 경쟁적으로 이용되는데 고농도의 nitrate 조건에서는 nitrate의 환원을 위한 nitrate reductase의 활성이 높아지게 되고 이때 사용되는 전자가 주로 nitrate reductase에 의해서 우선 사용되므로 nitrite reductase로는 더 적은 양의 전자가 이동함으로써 nitrite reductase의 활성이 낮아지게 되어 nitrite의 축적이 증가하게 된다(15). 또한, 반응 초기에는 nitrate의 환원으로 인하여 회분식 반응기내의 산화환원전위가 -74.2 mV까지 감소하다가, nitrite가 축적되기 시작하면서 다시 산화환원전위가 서서히 증가하여 12.8 mV에 이르렀으며, 축적되었던 nitrite의 환원과 동시에 산화환원전위도 같이 감소함을 알 수 있었다.

이상의 결과와 같이 초기 질산성질소의 농도가 비교적 낮은 200 mg/l까지는 nitrite의 축적없이 질산성질소의 제거 속도가 증가하지만, 질산성질소의 농도가 400 mg/l로 증가하면 질산성질소의 제거 속도에는 영향이 없지만 nitrite의 축적이 생기기 시작하고, 질산성질소의 농도가 1,000 mg/l에 이르면 질산성질소의 제거 속도가 감소할 뿐만 아니라, 비교적 많은 양의 nitrite가 축적이 되었다가 다시 제거됨을 알 수 있었다. 그러므로 질산성질소의 효율적인 제거를 위해서 nitrite reductase의 저해 없이 질산성질소의 제거를 효율적으로 할 수 있도록, 초기 질산성질소의 농도를 200 mg/l이하로 유지하는 것이 중요하다.

충전탑식 반응기에서 질산성질소 제거 효율 향상을 위한 재순환

회분식 반응기에서의 결과를 바탕으로 충전탑식 반응기에서의 질산성질소 제거 실험을 수행하였다. Table 2에서 살펴본 것과 같이 초기 산화환원전위가 낮을수록 탈질 효율이 증가한다는 결과를 얻었으며, 충전탑식 반응기에서 탈질 반응이 일어난 후의 유출수의 산화환원전위는 유입수의 산화환원전위에 비해서 현저히 낮기 때문에 초기의 산화환원전위를 낮추기 위해 유출수의 일부를 유입수로 재순환시켰다. 충전탑식 반응기의 구성은 Fig. 1과 같았으며, 충전탑식 반응기에서 처음 24시간동안은 유출수의 재순환없이 실험을 수행하였다. 합성 폐수의 초기 이송 속도는 4 ml/min이었고, 반응기의 부피는 100 ml이었으며, 머무름 시간은 25분이었다.

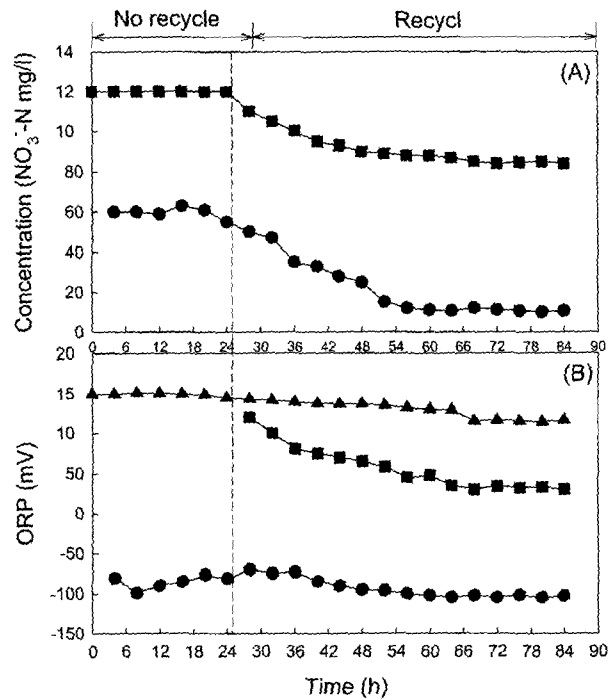


Figure 3. Time course of nitrate reduction and ORP change in packed-bed reactor - with recycle at 24 hours:

(A): (■) input nitrate-N, (●) output nitrate-N  
(B): (▲) raw ORP, (■) input (recycled + raw) ORP, (●) output ORP

Fig. 3에서는 충전탑식 반응기에서 질산성질소의 제거 변화를 유출수의 재순환이 없었던 처음 24시간과 유출수 중에서 2 ml/min를 유입수로 재순환시킨 후 정상 상태에 이르는 동안의 결과를 그림으로 나타내었다. 유출수를 재순환시키기 전과 재순환시킨 후의 합성폐수의 처리량은 일정(4 ml/min)하며, 재순환에 의해서 2 ml/min가 초기의 4 ml/min과 합쳐지게 되므로 재순환 후의 충전탑식 반응기에서의 유입수는 6 ml/min이 되었다. 또한 유입수를 4 ml/min에서 6 ml/min으로 변화시켰기 때문에 정상상태에 도달하는데 약 24시간 정도가 소요되었다. 유출수의 재순환이 없었던 경우의 유입수의 질산성질소 농도는 120 mg/l, 산화환원전위는 150 mV이었고, 유출수의 질산성질소의 농도는 약 61 mg/l로 49.2%의 제거 효율을 보였으며, 유출수의 산화환원전위는 -70 mV이었다.

24시간이 되었을 때 유입수의 산화환원전위를 낮추고자 유출수 중 2 ml/min를 유입수로 재순환시켰다. 그 결과 재순환에 의해 유입수의 산화환원전위를 150 mV에서 30 mV로 낮출 수 있었으며, 유출수의 질산성질소의 농도는 61 mg/l에서 약 10 mg/l까지 낮출 수 있었다. 즉, 초기 합성폐수에서 120 mg/l 질산성질소가 재순환이 없는 일반적인 충전탑식 반응기에서 유입되는 질산성질소의 49.2%의 제거율을 보였지만, 유출수를 재순환시킴으로써 유입되는 질산성질소의 제거를 91.7%까지 향상시킬 수 있었다. 재순환을 시켰을 때 충전탑식 반응기 내에서 유입수의 속도가 증가하게 되지만 재순환에 의해서 유입수의 초기 농도도 낮아지게 되고 또한 초기의 산화환원전위를 낮출 수 있기 때문에 제거 효율이 증가 되었다. 또한 탈질 반응에 의해서 pH는 상승하게 되고 pH의 상승은 Nernst식에서 나타내는 것처럼 산화환원전위를 낮추는 인자가 되기도 한다(16, 17). 연구 결과 중 산화환원전위의 변화에 영향을 주는 인자 중에서 pH에 의한 영향을 확인하기 위해 충전탑식 반응기를 통과한 합성폐수의 pH를 비교해 본 결과 유입수의 pH를 7.0으로 유지했으며, 처리된 유출수의 pH는 약 7.7 정도로 상승했고, 재순환에 의해서 유입수의 pH가 약 7.2로 상승한 것으로 보아 pH의 상승도 유입수의 산화환원전위를 낮추어 전체적으로 처리 효율을 증가시키는데 기여하였다.

본 연구에서는 회분식 반응기에서 초기 산화환원전위가 낮아짐에 따라서 탈질 속도가 증가한다는 사실을 이용하여, 충전탑식 반응기에서 탈질 효율의 향상을 이루고자 하였다. 즉, 충전탑식 반응기의 유출수의 산화환원전위는 유입수보다 낮다는 것을 이용하여, 유출수의 일부를 유입수로 재순환시켜 유입수의 산화환원전위를 낮추어 줌으로써 질산성질소의 제거율을 49.2%에서 91.7%까지 증가시킬 수 있었다. 향후 재순환 충전탑식 반응기의 최적화를 위하여 수학적 모델링이 필요하다.

## 요 약

본 논문에서는 회분식 반응기에서 초기 산화환원전위가 +40 mV에서 -70 mV로 낮아짐에 따라 탈질 속도는 1.25 mg/min에서 3.33 mg/min으로 증가하였고, 또한 회분식 반응기에서 질산성질소의 농도가 200 mg/l까지 증가할수록 nitrite의 축적없이 탈질 속도가 초기 농도에 비례적으로 증가하였다. 반면, 질산성질소의 농도가 400 mg/l가 되면 탈질속도의 변화는 없으나 nitrite의 축적이 발생하기 시작하였으며, 질산성질소의 농도가 1,000 mg/l로 증가할 경우에는 많은 양의 nitrite가 축적이 되어 탈질의 저해가 발생하여 탈질 속도가 감소하였다. 회분식 반응기의 결과를 바탕으로, 충전탑식 반응기에서 유입수의 초기 산화환원전위를 낮추기 위하여 유출수를 재순환시킨 결과, 유입수의 초기 산화환원전위를 150 mV에서 30 mV로 낮출 수 있었고, 유입수의 초기 질산성질소의 농도를 120 mg/l에서 85 mg/l까지 낮출 수 있었다. 그 결과 충전탑식 반응기에서 유출되는 질산성질소의 농도가 재순환을 하기 전에는 약 61 mg/l이었으나, 유출수의 재순환으로 질산성질소의 농도를 10 mg/l까지 낮출 수 있었고, 질산성질소의 제거율을 49.2%에서 91.7%로 증가시킬 수 있었다.

## REFERENCES

- Teixeira, P. and R. Oliveira (2000), Denitrification by *Alcaligenes denitrificans* in a closed rotating biological contactor, *Biotechnol. Lett.* **22**, 1789-1792.
- Dahab, M. F and Y. E. Lee (1988), Nitrate removal from water supplies using biological denitrification, *J. WPCF.* **60**, 1670-1674.
- Knowles, R. (1982), Denitrification, *Microbiol. Rev.* **46**, 43-70.
- Lee, J. W., E. S. Choi, K. I. Gil, H. W. Lee, S. H. Lee, S. Y. Lee, and Y. K. Park (2001), Removal behavior of biological nitrogen and phosphorus, and prediction of microbial community composition with its function, in an anaerobic-anoxic system from weak sewage, *J. Microbiol. Biotechnol.* **11**, 994-1001.
- Sasaki, K., Y. Yamamoto, S. Ouchi, and Y. Mori (1996), Development of 2-reactor intermittent aeration activated sludge process for simultaneous removal of nitrogen and phosphorus, *Water Sci. Technol.* **34**, 111-118.
- Soares, M. I. M (1985), Biological Denitrification of Groundwater, *Water, Air, and Soil Pollution*, **123**, 183-193.
- Park, E. J., J. K. Seo, J. K. Kim, K. H. Suh, and S. K. Kim (2000), Denitrification Characteristics and Microorganism Composition of Acclimated Denitrifier Consortium. *J. Microbiol. Biotechnol.* **10**, 410-414.
- Zhao, H. W., D. S. Mavinic, W. K. Oldham, and F. A. Koch (1999), Controlling factors for simultaneous nitrification and denitrification in a two-stage intermittent aeration process treating domestic sewage, *Water Res.* **33**, 961-970.
- Chen, K. C., C. Y. Chen, J. W. Peng, and J. Y. Hwang (2003), Real-time control of an immobilized-cell reactor for wastewater treatment using ORP, *Water Res.* **36**, 230-238.
- Song, S. H., S. H. Yeom, S. S. Choi, and Y. J. Yoo (2003), Effect of oxidation-reduction potential on the denitrification by *Ochrobactrum anthropi* SY509, *J. Microbiol. Biotechnol.* **13**(3), 473-476.
- Brodelski, P. and E. J. Vandamme (1987), Immobilized cells systems In: *Biotechnology. A Comprehensive Treatise in 8 volumes*, Vol. 7a, VCH Verlag, Weinheim, 405-464.
- Powell, L. W. (1990), Immobilized biocatalyst technology. In: *Microbial Enzymes and Biotechnology*, Elsevier Applied Science, London, 369-394.
- Song, S. H., S. H. Yeom, S. S. Choi, and Y. J. Yoo (2002), Effect of aeration on denitrification by *Ochrobactrum anthropi* SY509, *Biotechnol. Bioprocess Eng.* **7**, 352-356.
- Song, S. H. (2004), Biosynthesis of Nitrate Reductase and Application for Biological Denitrification by *Ochrobactrum anthropi* SY509, Ph.D. Dissertation, Interdisciplinary Program for Biochemical Engineering and Biotechnology Graduate School, Seoul National University, Seoul, Korea.
- Thomsen, J., T. Geest, and R. Cox. (1994), Mass spectrometric studies of the effect of pH on the accumulation of intermediates in denitrification by *Paracoccus denitrificans*, *Appl. Environ. Micro.* **60**, 536-541.
- Glass, C. and J. Silverstein (1998), Denitrification kinetics of high nitrate concentration water: pH effect on inhibition and nitrite accumulation, *Wat. Res.* **32**, 831-839.
- Kim, S. H., S. H. Song, and Y. J. Yoo (2004), The pH as a control parameter for oxidation-reduction potential on the denitrification by *Ochrobactrum anthropi* SY509, *J. Microbiol. Biotechnol.* in press.