

전자선을 이용한 하수처리장 방류수내 대장균군 살균

김유리[†] · 한범수 · 김진규 · 강호^{*}

이비테크(주)
충남대학교 환경공학과*

Disinfection of Total Coliforms in Sewage Treatment Effluent using Electron Beam

Yuri Kim[†] · Bumsoo Han · Jinkyu Kim · Ho Kang^{*}

EB Tech Co., Ltd.

Department of Environmental Engineering, Chungnam National University*

(Received 14 April 2004, Accepted 16 June 2004)

Abstract : The use of electron beam irradiation was investigated to disinfect total coliforms in the secondary sewage treatment effluent. Unchlorinated secondary effluent was irradiated at different dose of 0.2~1.0 kGy by 1 MeV, ELV-4 Model electron beam accelerator. It is interesting to note that a 100 % reduction in total coliforms and total colonies were achieved until a dose of approximately 0.8 kGy. Even at low dose of 0.2 kGy, the total coliforms and total colonies were successfully inactivated to the level of satisfying the new effluent discharge guideline. Besides disinfection of total coliforms, approximately a 50% removal in biochemical oxygen demand was pronounced at a dose of 0.2 kGy. More than 20 % removal in suspended solids and turbidity was also observed at a dose of 1.0 kGy. The application of electron beam irradiation appeared to be one of options to reuse sewage treatment effluent as agricultural or industrial water.

Keywords : Electron beam, Disinfection, Total coliforms, Total colonies, Secondary sewage treatment effluent, Dose

1. 서 론

하수처리장 방류수 수질기준 중 대장균군을 규제하지 않았으나 국민의 보건향상 및 생태계보호 차원에서 방류수 수질기준에 대장균군이 신설되어 2003년 1월 1일부터 시행됨에 따라 각 지자체에서는 살균공정을 설치 계획 중에 있다. 살균방법은 처리장의 시설규모, 방류수역의 특성, 하수처리과정에서의 대장균군 제거효율 등을 감안하여 결정되어야 하나, 현재까지 소독공정은 염소소독, 자외선소독, 오존살균등에 국한되어 있는 실정이다. 그러나 염소소독의 경우는 소독부산물인 트리할로메탄의 위해성과 수생생물에 대한 영향으로 반드시 탈염소설비등의 대책을 강구해야 하며, 자외선 소독의 경우는 대규모 처리장에 설치시 램프의 주기적인 교체가 필요하고 처리수내 탁도나 색도 등이 존재할 경우 소독효율이 떨어지는 문제점이 있다. 따라서 2차 오염물의 발생이 없고, 유량변동에 쉽게 대처할 수 있는 효율적인 살균공정의 개발이 매우 절실한 실정이다.

전자선을 이용한 살균처리기술은 하수 슬러지 내 포함되어 있는 박테리아, 바이러스, 기생충 등을 효과적으로 사멸시키기 위해 주로 적용되었다. 또한 소화된 슬러지에 전자선을 조사할 경우 슬러지의 농축성이 향상될 뿐 아니라 탈

수에도 긍정적인 효과를 미치는 것으로 보고된 바 있다 (Lessel, 1994). 일반적으로 병원균을 완전 사멸시키거나 혹은 동물체에 질병을 유발하는 바이러스 등을 무능화시키기 위해서는 2~5 kGy의 선량범위가 적합하고, 내생포자가 형성된 경우나, 알 등의 완전제거를 위해서는 10 kGy 가량의 선량이 필요한 것으로 보고되고 있다. 일부 국가에서 감마선과 전자선을 이용한 슬러지의 멸균방법이 파일럿 규모 혹은 실플랜트에서 이용되고 있다. 전자선 조사를 통한 살균공정은 대표적으로 미국의 Boston의 Deer Island의 하수처리장, 독일의 University of Stuttgart Hohenheim에서 이루어졌으며, 일본 Takasaki 원자력연구소에서는 탈수 슬러지에 전자선을 조사하여 퇴비화 속도를 가속하고자 하는 연구가 진행된 바 있다.

전자선 조사를 통한 하수처리장 처리수의 대장균 제거는 브라질에서 기초연구로 효과를 보고한 바 있다. 연구결과에 따르면 처리하지 않은 생활하수에 3~4 kGy의 전자선 조사로 초기 대장균군을 5 Log까지 감소시킬 수 있었고, 대상 생활하수를 임의성 라군에서 처리한 후 3 kGy의 전자선을 조사할 경우 용존산소의 농도가 높기 때문에 보다 효과적으로 대장균군의 양을 줄일 수 있는 것으로 밝혀졌다. 또한 방사선의 일종인 감마선을 하수에 조사하여 수중에서 각종 라디컬을 생성시켜 미생물을 소독하는 방법으로 기존의 소독방법에 비해 높은 소독효과를 기대할 수 있다. 유

* To whom correspondence should be addressed.
yrkim@eb-tech.com

(1999)의 결과에 의하면 하수처리장의 유출수의 경우 0.5 kGy의 낮은 선량에서 미생물의 재증식 억제를 위한 완전 사멸이 이루어졌으며, 감마선 단독조사시 보다는 감마선과 오존을 병행할 경우 라디칼 생성이 더욱 활성화되므로 방사선 조사량을 크게 감소시킬 수 있는 것으로 나타났다.

본 연구에서는 하수처리장 처리수에 전자선을 조사하여 물의 방사분해를 유도하고 이를 통해 생성된 각종 라디칼 반응에 의한 대장균군과 일반세균을 제거하는 원리를 이용한 새로운 살균공정을 연구하고자 한다.

2. 실험장치 및 방법

2.1. 실험장치

대장균군 제거를 위한 전자선 조사공법의 타당성을 검토하기 위하여 D시 하수처리장의 2차 침전지 유출수를 대상으로 40일간 연속실험을 실시하였다.

전자선 조사는 아비테크(주)가 보유하고 있는 1 MeV급, 40 kW, ELV-4 모델의 전자가속기를 이용하였으며, 대상시료를 저장조 1로 부터 펌프하여 노즐타입의 관을 통해 전자선 인출창에 노출시키는 방법을 사용하였다. 전자선 조사 선량은 전자가속기의 조사체에 대한 흡수선량을 측정하기 위해 중크롬산염 흡수선량을 이용하여 Fig. 1의 실험장치로 실험을 수행하였다.

중크롬산염 용액 0.0003M $K_2Cr_2O_7$ 과 0.1M의 $HClO_4$ 를 조제하여 UV 분광계 440 nm에서 최대 흡수량을 측정하여 검량선을 작성하였으며, 대장균군 살균처리에 이용한 흡수 선량은 0.2 kGy, 0.5 kGy, 0.8 kGy 및 1.0 kGy로 설정하였고, 이때 운전될 전자가속기의 빔전류는 1.5 mA, 3.8 mA, 7.6 mA 및 10.1 mA로 측정되었다.

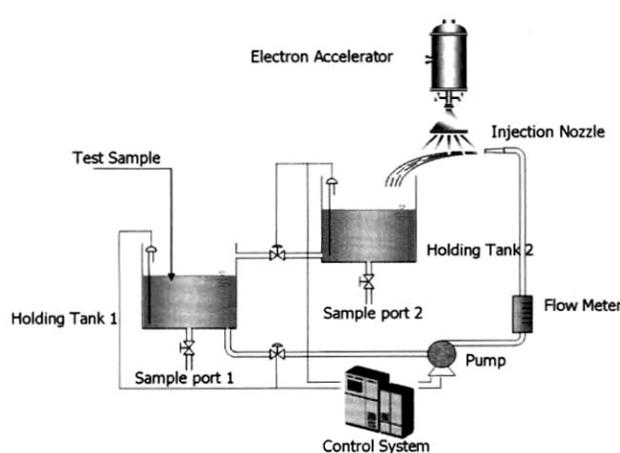


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus.

2.2. 분석항목 및 방법

하수처리장 방류수중의 대장균군은 최적확수법이 아닌 1 ml당 함유되어 있는 대장균군 농도를 기준으로 하고 있으므로 수질오염공정시험법상의 평판집락법을 이용하였으며, 중온성 일반세균도 함께 분석하였다. 또한 방류수 중에 전

자선 조사로 인해 생성된 산화 혹은 환원성 라디칼들이 생물처리공정에서 제거되지 않은 오염물질의 분해에 어떠한 영향을 미치는지 평가하기 위하여 방류수 수질기준상의 규제항목인 BOD, COD, SS, T-N, T-P농도를 분석하였다. 또한 DNA 분석을 위한 전기영동법은 SDS-PAGE로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 대상시료의 성상

본 연구는 D시 하수처리장 방류수의 채수기간 동안의 오염물질 농도분포를 Table 1에 나타내었다. BOD와 COD의 경우 평균농도는 각각 10.1 mg/L, 10.8 mg/L로 나타났으며, SS농도는 평균 5.6 mg/L로 방류수 수질기준을 만족하는 양호한 수질을 나타내었다. 또한 T-N과 T-P 농도는 17.1 mg/L, 0.5 mg/L로 나타나 현재까지 고도처리시설이 도입되지 않아 활성슬러지법으로 운영되고 있음에도 불구하고 채수기간 동안 영양염류 중 인의 농도가 매우 낮은 상태로 방류됨을 알 수 있다.

Table 1. Characteristics of secondary effluent from a sewage treatment plant

Parameters	Max.	Min.	Aver.
	02.7.8~02.9.6 (40 day)		
BOD (mg/l)	21.2	7.2	10.1
COD (mg/l)	14.8	8.8	10.8
SS (mg/l)	12.8	1.7	5.6
T-N (mg/l)	19.6	12.6	17.1
T-P (mg/l)	1.1	0.2	0.49
Total coliforms (개/ml)	14,000	800	4,200
Total colonies (개/ml)	820,000	140,000	440,000

한편, 대장균군의 경우 최저 800 개/ml, 최고 14,000 개/ml로 채수시기에 따라 매우 큰 변화를 보였으며, 평균 4,200 개/ml로 나타나 2003년 1월 1일부터 방류수내 대장균군의 농도가 3,000 개/ml 이하로 규제됨을 감안할 때 소독공정의 도입이 필요함을 알 수 있다. 또한 방류수내 일반세균의 경우도 평균 440,000 개/ml로 높은 농도를 보이고 있어 대장균군 뿐 아니라 병원균 및 각종 미생물로부터 방류수역의 생태계를 보호 및 안전한 상수원을 확보하기 위해서는 방류 전 소독공정을 통해 위생성을 확보하는 것이 필요하다.

3.2. 전자선 조사에 따른 대장균군의 DNA 변화

전자선은 전리방사선의 일종으로 방사선으로부터 에너지가 생체에 흡수될 경우 여기 또는 전리가 일어나는데, 여기는 원자 또는 분자내의 전자를 그 원자와 분자에서 방출하지 않고 보다 높은 에너지 수준으로 옮기는 것을 의미한다. 방사선이 충분한 에너지를 가지고 있으면서, 1개 또는 그 이상의 전자를 원자와 분자에서 방출할 수 있는 경우,

그 방사선을 전리방사선이라고 하며 이들은 다량의 에너지를 국소적으로 방출 할 수 있다는 점에서 중요하다. 각 전리마다 소비되는 에너지는 약 33 eV인데 C=C 결합이 가지는 에너지는 4.9 eV이므로 이것은 강한 화학결합을 분해할 수 있는 에너지가 될 수 있다.

방사선이 생물체에 조사될 경우 물리학적 단계는 원자의 외곽전자를 떼어내는 이온화과정으로부터 시작되며, 이온화과정을 통하여 전자는 에너지를 잃게 되고, 여기작용을 일으키며 소멸하게 되는데, 이 과정에는 대개 10^{-16} 초~ 10^{-12} 초가 소요된다. 화학적 단계는 자유라디칼, 이온라디칼 및 여기상태의 분자등이 형성되는 과정을 말한다. 물분자의 이온화과정을 거쳐 자유라디칼이 형성되며, 자유라디칼이 세포내의 핵산 결합을 끊는 등의 효과를 나타낸다. 이온라디칼의 수명은 10^{-10} sec, 자유라디칼의 수명은 10^{-6} sec 정도이고, 이상의 과정은 10^3 sec 이내에 완료되며, 이와 같이 라디칼 형성과정을 거쳐 방사선이 세포에 영향을 미치는 것을 간접효과라고 한다. 방사선에 의한 이온화 과정에서 나온 전자가 직접 세포에 작용하거나, 또는 조사된 방사선이 직접 세포에 작용할 수 있는데, 이러한 경우를 직접효과라고 한다. 방사선을 생물체에 조사 한 경우 위의 두 반응이 동시에 일어나지만, 에너지에 따라 반응의 우위가 달

라져 저에너지의 방사선의 경우는 간접반응이 우세하고, 고에너지 방사선의 경우는 직접반응이 주를 이루는 것으로 알려져 있다. 본 연구에서 활용하고자 하는 전자선의 경우는 저에너지 방사선이므로, 물의 방사분해에 따라 형성되는 라디칼이 세포에 작용하는 간접작용이 지배적이다.

본 연구에서는 소독효율의 주된 평가인자인 대장균군 중 *E.coli*를 액체배지에서 배양한 후 전자선을 조사하여 전기영동을 통해 전자선 조사전후 *E.coli* 배양체의 DNA 분포를 평가하였다. Fig. 2에 나타낸 바와 같이 *E.coli*의 뚜렷한 DNA 띠가 전자선을 조사한 후에는 매우 희미한 띠만이 남아 있음을 알 수 있다. 이는 전자선 조사로 인해 *E.coli* 배양체의 DNA가 상당부분이 결손되었기 때문으로 보이며 DNA의 크기는 10 kbp 이상이었다. DNA의 처리 전후는 전자선 처리 전후의 전자선에 의한 영향으로 판단된다.

3.3. 전자선 조사에 따른 살균효과

미생물학적인 측면에서 안정된 수질을 확보하기 위하여 D시 하수처리장의 방류수를 대상으로 0.2~1.0 kGy 범위로 전자선을 조사한 후 대장균군 및 일반세균 농도를 평가하였다. Fig. 3에 나타낸 바와 같이 채수시기에 따라 방류수 내 대장균군 농도가 크게 변화함에도 불구하고 0.2 kGy 조사 후 대장균군 농도는 평균 290 개/ml로 92%의 제거효율을 나타냈으며, 특히 제거효율이 80%수준으로 낮았던 경우에도 대장균군 농도가 특정지역의 규제수준인 1,000개/ml를 훨씬 밀도는 안정적인 수질을 나타내어 매우 효과적인 소독공정임을 알 수 있다.

0.5 kGy 조사시는 평균 4,200 개/ml이던 대장균군 농도가 50 개/ml까지 감소하여 98.9%의 높은 제거효율을 나타내었으며, 0.8 kGy 이상의 선량으로 조사한 경우는 검출농도 이하로 감소하는 것으로 나타났다. 한편 전자선 조사선량과 생존하는 대장균군 수의 관계를 도시하면 Fig. 4(a)와 같이 지수함수 형태의 선량효과곡선을 얻을 수 있다. 대장균의 사멸은 전자선 조사선량을 증가시키면 지수적으로 감소하

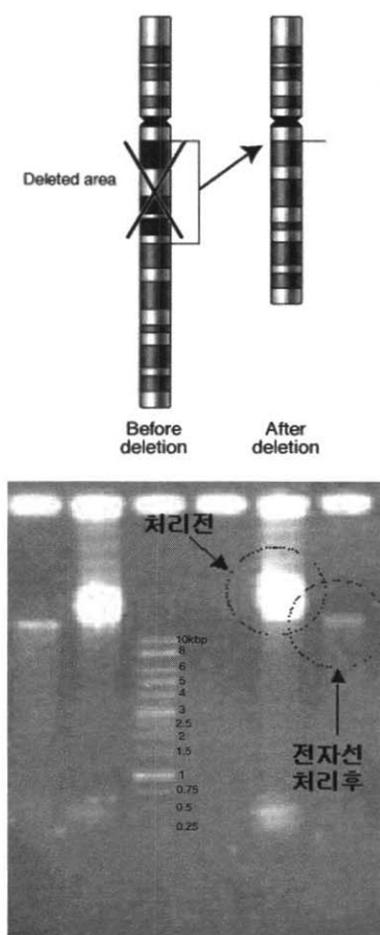


Fig. 2. Variation of DNA at *E.coli* before and after electron beam irradiation(electrophoresis).

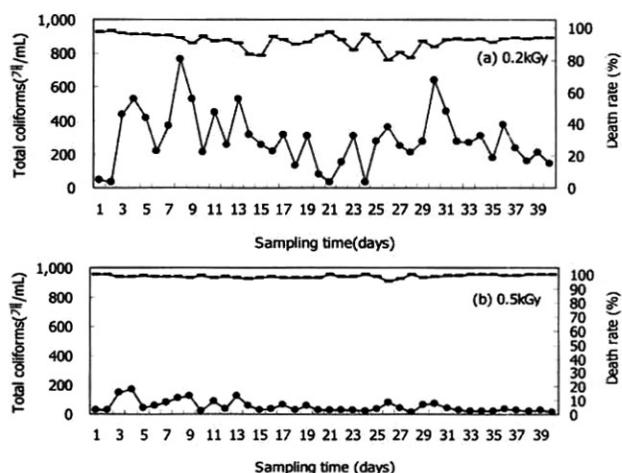


Fig. 3. Removal of total coliforms in secondary effluent by electron beam as a function of absorbed dose (● : total coliforms, — : % removal)

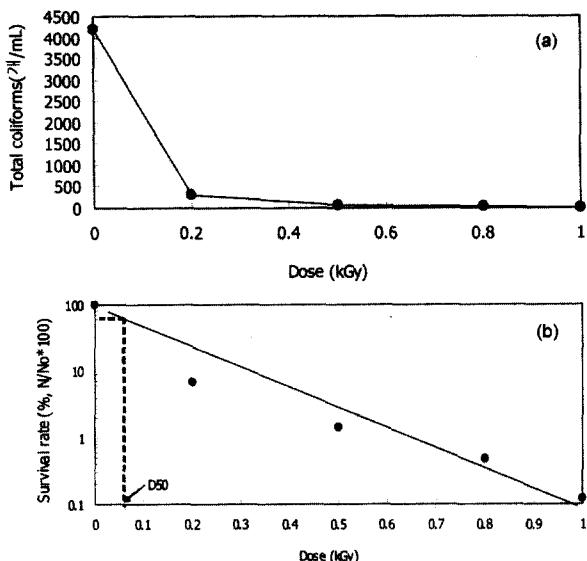


Fig. 4. Average total coliforms number(a) and survival rate(b) in secondary effluent by electron beam as a function of absorbed dose.

는 경향을 보이며, 따라서 각 조사선량별 생존율(N/N_0)의 %를 대수눈금을 취하면 Fig. 4(b)와 같은 일정한 기울기를 갖는 직선형태를 얻을 수 있다. 이 직선식으로 부터 전자선의 조사선량과 대장균군의 생존 개체수와 관계를 도출할 수 있다.

$$\frac{N}{N_0} = e^{-kD} = e^{-\frac{D}{D_0}} \quad \text{또는} \quad \ln \frac{N}{N_0} = -kD \quad (1)$$

식 (1)에서 N_0 은 조사를 개시했을 때의 대장균군 수이고, N 은 조사선량 D 를 받은 후 생존하는 대장균군의 수이며, k 는 직선의 기울기로부터 결정되는 비례상수이다. 이 k 는 불활성화 계수이며, 전자선 조사에 대한 대장균군의 민감도를 의미하는 상수로서 k 의 역수인 $1/k$ 는 D_0 로 표시되며, 불활성화 선량이라고 한다. 이상과 같은 관계를 통해 목표하는 수준까지 대장균군 수를 감소시키고자 할 때 요구되는 조사선량을 쉽게 계산할 수 있다.

Fig. 4(b)에 도시한 바와 같이 대장균군수를 초기개체수의 절반으로 줄이는데 필요한 선량(D_0)은 0.5 kGy내외인 것으로 나타났으며, 본 연구에서 적용한 가장 낮은 선량인 0.2 kGy에서는 생존율이 10 %미만으로 매우 암호한 살균효율을 얻을 수 있음을 보여주고 있다.

일반세균의 경우 Fig. 5와 Fig. 6에 나타낸 바와 같이 조사시기별로 다소 차이를 보이고 있으나, 평균 440,000 개/ml의 높은 농도를 보인 방류수에 0.2 kGy의 전자선을 조사한 경우 20,000 개/ml까지 감소하여 95%의 높은 사멸율을 나타내었다. 0.5 kGy 조사후에는 평균 3,000 개/ml로 99.2%의 제거효율을 나타내었으며, 0.8 kGy이상의 선량에서는 1,000 개/ml 미만으로 일반세균의 대부분이 사멸되어 병원균등 위생학적 측면에서 문제시될 수 있는 대부분의 미생물들이 살균될 수 있음을 보여주었다.

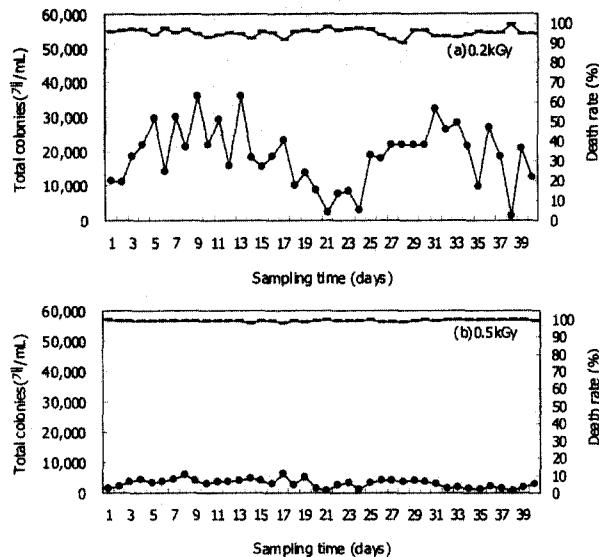


Fig. 5. Removal of total colonies in secondary effluent by electron beam as a function of absorbed dose. (● : total colonies, — : % removal)

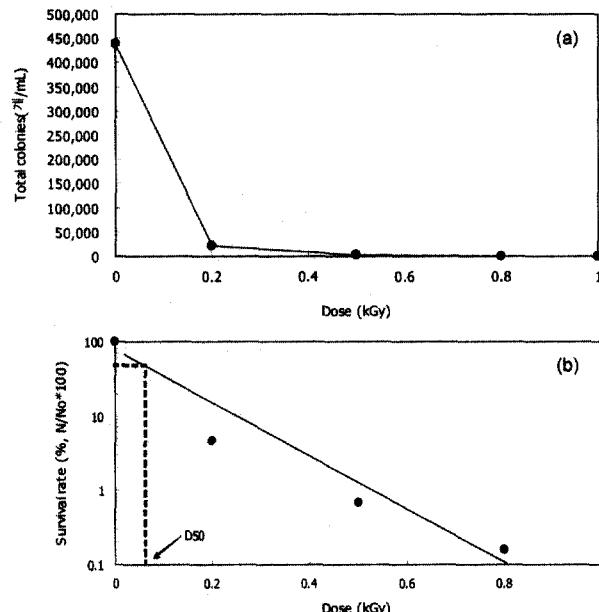


Fig. 6. Average total colonies number(a) and survival rate (b) in secondary effluent by electron beam as a function of absorbed dose.

또한, 전자선 조사처리후의 살균된 대장균군의 회복력을 판단하기 위하여 조사처리수를 7일간 채취하여 대장균군을 측정한 결과 다시 회복 될 가능성은 나타나지 않았다.

3.4. 전자선 조사에 의한 방류수내 오염물질의 변화

전자선 조사에 따른 방류수 수질 변화를 BOD, COD, TOC 등의 유기물농도변화와 SS, T-N 및 T-P의 농도를 평가하였다. 전자선을 조사하게 되면 앞서 기술한 바와 같이 대장균군 뿐 아니라 일반세균도 대부분이 사멸되므로, 전자선 조사시료의 BOD를 별도의 식종없이 측정할 경우 시료

내에 생분해성 유기물의 분해를 담당하는 호기성박테리아가 거의 존재하지 않게 되어, BOD가 과소평가될 수 있다. 따라서, 전자선 조사 후 시료의 BOD를 측정하기 위해서 전자선을 조사하지 않은 원 방류수내 미생물을 집균하여 식종한 후 실험하였다.

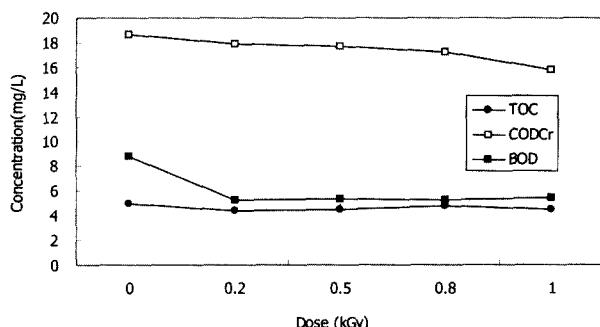


Fig. 7. Variation of organic concentration in secondary effluent by electron beam.

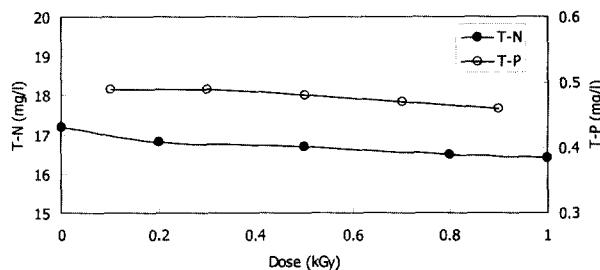


Fig. 8. Variation of nutrient concentration in secondary effluent by electron beam.

Fig. 7에 나타낸 바와 같이 BOD 농도는 0.2 kGy 조사시 50% 이상 크게 감소하고, 전자선조사량이 1.0 kGy까지 증가함에 따라 농도 감소폭이 완만해지는 경향을 나타내었다. COD와 TOC의 경우 측정한 값은 큰 변화를 보이지 않았다. 이와 같은 결과는 1 kGy 미만의 낮은 전자선 조사선량 조건에서도 방류수내 BOD를 절반수준으로 감소시킬 수 있으나, COD 및 TOC를 감소시키기 위해서는 보다 높은 선량을 조사하여 무기화를 유도해야 함을 보여주는 결과이다.

한편, Fig. 8에 나타낸 바와 같이 전자선 조사에 따른 방류수내 부유물질 농도는 시료별 차이가 매우 크지만, SS와 탁도 모두 1 kGy 조사시 평균 20 %내외의 감소폭을 나타내었으며, T-N과 T-P 농도는 조사전후의 차이가 거의 없는 것으로 나타났지만, 이는 전자선을 방류수 살균목적으로 조사하였으므로 1 kGy 미만의 낮은 선량을 사용하였기 때문이다.

4. 결론

하수처리장 방류수내 대장균군의 농도는 800 개/mL ~ 13,500 개/mL 범위로 채수일자별로 매우 큰 차이를 보였으며 평균 4,200 개/mL로 나타나 미생물학적 측면에서 안정

된 방류수질을 확보하기 위해서는 소독공정의 도입이 필요한 것으로 나타났다. 이에 전자선을 0.2 kGy ~ 1.0 kGy 범위로 조사한 결과 0.2 kGy 조사시 대장균군은 평균 290개/mL로 평균 92% 이상 크게 감소하여 향후 적용될 방류수 수질기준을 만족하는 것을 알 수 있으며, 0.8 kGy 이상에서는 검출한계인 1개/mL당 30개 미만으로 나타났다. 또한 일반세균의 경우도 평균 440,000 개/mL에 달하던 것이 0.2 kGy 조사시 20,000 개/mL, 0.5 kGy 조사시 3,100 개/mL, 1 kGy 조사시는 290 개/mL까지 감소하는 등 소량의 전자선 조사로도 방류수내 미생물의 살균효과를 충분히 달성할 수 있는 것으로 나타났다.

한편, 전자선 조사에 따른 방류수 수질 변화를 BOD, COD, TOC 등의 유기물 농도변화와 SS, TN 및 TP 농도를 토대로 평가한 결과 BOD 농도는 0.2 kGy 조사시 50% 이상 크게 감소하고, 전자선 조사량이 1.0 kGy까지 증가함에 따라 농도 감소폭이 완만해지는 경향을 나타내었으며, COD와 TOC 농도의 변화의 경우 조사량이 증가하면서 감소하는 경향을 보였으나 미미하였다. 이는 1 kGy 미만의 낮은 전자선 조사선량 조건에서도 방류수내 BOD를 절반수준으로 감소시킬 수 있으며 COD 및 TOC를 감소시키기 위해서는 보다 높은 선량을 조사하여 무기화를 유도해야 함을 보여주는 결과이다. 한편, 전자선 조사에 따른 방류수내 부유물질 농도는 시료별 차이가 매우 크지만, SS와 탁도 모두 1 kGy 조사시 평균 20 %내외의 감소폭을 나타내었으며, T-N, T-P 농도와 이온농도의 변화는 미미하였다.

하수처리장 방류수에 전자선을 조사시 0.2 kGy의 낮은 선량으로도 대장균군을 효과적으로 살균시킬 수 있으며, BOD와 부유물질 또한 감소하므로 유출 수질의 향상에도 기여할 수 있을 것으로 판단된다. 전자선 조사의 경우 기존 공정에 비해 짧은 시간에 대량처리가 가능하므로 중소 규모 뿐만 아니라 대규모 도시하수처리장의 살균공정으로 적용성이 매우 클 것으로 사료된다.

사사

본 연구는 대전·충남지역 대전환경기술개발센터의 2002년도 환경기술연구개발사업의 산학협동연구사업에 의해서 연구가 수행되었으며, 연구비 지원에 감사드립니다.

참고문헌

- 유대현, 박상숙, 정영도, 김종배, 이면주, 강준원, γ -ray 조사를 통한 하수처리장 배출수내 미생물살균에 관한 연구, 대한환경공학회지, 21(4), pp. 635-641 (1999).
- 조일형, 문일영, 이홍근, 조경덕, TiO₂/UV 및 TiO₂/태양광 시스템에서 *E.coli*의 광촉매 살균, 대한환경공학회지, 23(7), pp. 1219-1229 (2001).
- 환경부, 하수처리장 소독시설 설치사업 업무처리 일반 지침 (2002).
- John E.Thompson and Ernest R. Blatchley, Toxicity effects of γ -irradiated wastewater effluents, *Wat. Res.*,

- 33(9), pp. 2053-2058 (1999).
5. Lessel T and Suess A, Ten year experience in operation of sewage sludge treatment plant using gamma irradiation, *Radiat. Phys. Chem.*, **24**(1), pp. 13-16 (1984).
 6. Makni, H, Disinfection of secondary effluents by infiltration percolation, *Wat. Sci Tech.*, **43**(12), pp. 175-178 (2001).
 7. Pei Xu, Marie-Laure Janex, Philippe Savoy, Arnaud Cockx, Valentina Lazarova, Wastewater disinfection by ozone : main parameters for process design, *Wat. Res.*, **36**(5), pp. 1043-1055 (2002).
 8. Steven W. Till, Simon J. Judd and Bob McLoughlin, Reduction of fecal coliform bacteria in sewage effluents using a microporous polymeric membrane, *Wat. Res.*, **32**(5), pp. 1417-1422 (1998).
 9. Stampi, S; De Luca, G; Zanetti, F, Evaluation of the efficiency of peracetic acid in the disinfection of sewage effluents, *Journal of Applied Microbiology*, **91**(5), pp. 833-838 (2001).
 10. Wang, T, Waite, T.D, Kurucz C, and Cooper, W.J, Oxidant reduction and biodegradability improvement of paper mill effluent by irradiation, *Wat. Res.*, **28**(1), pp. 237-241 (1994).