

부영양화 호소에서의 우점종 조류 제거를 위한 DAF 기술

DAF Technology for Various Kind of Plankton Removal from Eutrophic Lakes

Kazuo Taki^{1,*} · Yoriumi Ishiyama¹ · 독고 석² · 김학수³

Kazuo Taki^{1,*} · Yoriumi Ishiyama¹ · Dockko, Seok² · Kim, Haksu³

1 Department of Life and Environmental Sciences, Chiba Institute of Technology, Japan

2 Woosuk University, Dept. of Environmental Eng.

3 Myoungji College, Dept. of Civil Eng.

(2003년 11월 25일 접수; 2004년 2월 18일 최종수정논문채택)

Abstract

Major species of Lake Deganuma has varied depending on the season. Namely, there are *Micractinium pusillum*, *chlorella* sp., *Scenedesmus* sp. shown up in spring season, *Microcystis aeruginosa*, *Microcystis wesenbergii*, *Anabena spiroides* in summer and autumn season and *Cyclotephanos invisitatus*, *Diatoma* in winter season in the Lake. As the number of plankton increased, the zeta potential on their surface of them decreased. For this reason, they were dispersed in the lake though the population increased. Zeta potential of *M. aeruginosa* showed -20mV when their outer size got smaller. As for coagulant dosing in DAF, large amount of coagulant was effective to get lots of sludge during water treatment.

Key words: DAF, plankton, eutrophic, microbubble, zeta potential of algae

주제어: 용존공기부상법, 플랑크톤, 부영양화, 미세기포, 조류의 제타전위

1. 서론

폐쇄성 호소에 있어 부영양화 현상에 의한 수질 악화는 식물플랑크톤의 이상증식이 주된 요인이며 이러한 것이 악취·이취미 발생의 문제가 되고 있다. 특히 여름철에 발생하는 녹조현상은 다른 수생생물의 폐사나 경관의 악화와 악취 등 이수면에 있어도 다양

한 피해를 가져오는 것으로 알려져 있다. 그 원인의 하나는 바다 저질층 중에 함유된 다량의 유기물이다. 본 논문은 이러한 저질을 개선하기 위한 방안에 관한 연구이다.

본 연구에서는 부영양화된 호소에 있어서 식물플랑크톤의 중에 있어서 계절적인 변화와 우점적 식물플랑크톤 입자의 표면전하특성을 밝히는 것을 목적으로 한다. 또한 저층부 퇴적토에 함유되는 유기물을 효과적

*Corresponding author Email taki@ce.it-chiba.ac.jp (Taki, K)

으로 제거하기 위하여 미세기포를 이용한 용존공기부상법(DAF)의 최적운전조건에 대해서 검토를 실시하였다.

2 조류의 천이와 표면전하

2.1. 부영양화 호소에 있어서의 플랑크톤 종의 계절적 천이

1988년부터 1992년까지 5년간에 걸쳐 대가누마(手賀沼)호소의 수질 실험데이터 2)~5)를 기초로 호소내의 남조·규조·녹조류의 개체수의 천이를 조사하였다.

각 망별 별개체수를 매월 리서치도로서 나타낸 것이 Fig. 1~3이다. 여기 그림내부의 방사축은 호수물 1ml당 남조·규조·녹조류의 각각의 개체수를 나타낸다. 이들의 그림에서 나타난 바와 같이 춘계(4~6월)는 녹조류, 하계부터 추계(6월 하순~9달)에 걸쳐 남조류, 늦가을부터 동계(10월~1월)에 걸쳐 규조류가 우점적으로 발생하고 있는 것을 보이고 있다. 또한 5월부터 6월의 짧은 기간에 있어서도 규조류가 항상 출현하고 있는 것이 나타났다. 그러나 그 값은 추계에서 동계까지의 발생량에 비해 적다. 즉 녹조류는 감소하여 남조류가 우점화하는 동안의 5월에서 6월까지의 짧은 기간에 나타나는 것을 의미한다. 또한 춘계의 녹조류는 5월에 최대 개체수(94,000(개/ml))를 나타내며, 남조류의 경우 8월 하순에 117,000(개/ml), 규조류는 1월에 127,000(개/ml)을 갖는 이른바

폭발적인 증가와 쇠퇴의 성질을 지닌다.

여기서 대가누마 호소에 있어서의 우점종은 춘계에는 녹조류의 *Micractinium pusillum*, *Chlorella sp.*, *Scenedesmus sp.* 등이며, 하계에서 추계기간에는 남조류의 *Microcystis aeruginosa*, *Microcystis wesenbergii*, *Anabena spiroides* 등이며, 동계에는 규조류의 *Cyclotella choctawhatcheeana*, *Diatoma* 등으로 구분되어 발생하고 있다.

2.2. 플랑크톤의 증식과 호수 pH값과의 관계

다음은 pH의 계절적 변동을 Fig. 4에 시기별로 나타내었다. Fig. 1~3은 각 계절에 있어서의 우점조류 결과를 횡축상에 화살표로 나타낸다.

그림으로부터 어떠한 조류의 경우에도 개체수의

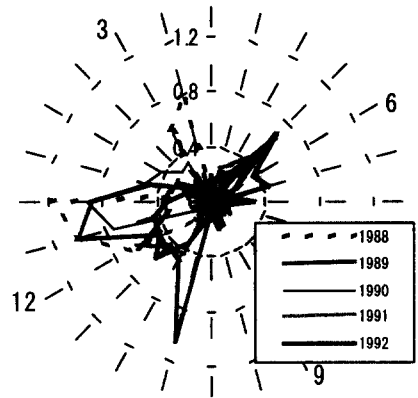


Fig. 2. Monthly annual change of the number of diatoms individuals.

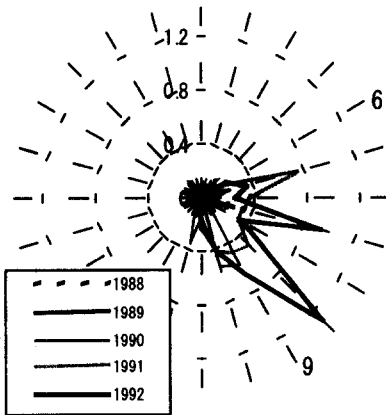


Fig. 1. Monthly annual change of the number of cyanobacter individuals.

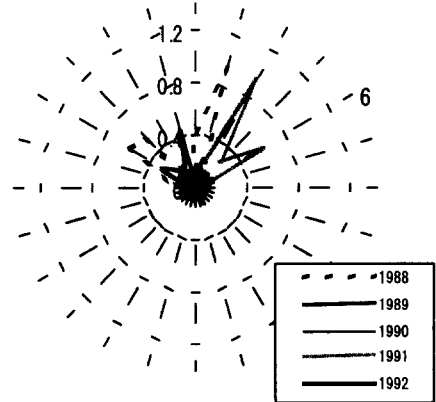


Fig. 3. Monthly annual change of the number of green algae individuals.

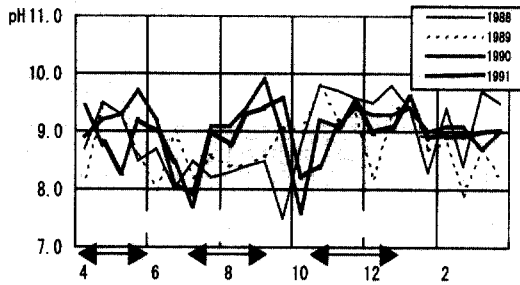


Fig. 4. A secular change of pH.

증식이 호소내의 pH값을 높이고 있는 것을 알 수 있다. 이것은 조류의 탄소 동화 작용에 의해 호수가 알칼리성이 되어 pH가 상승하게 된다고 보여진다. 또한 Fig. 1~3 및 Fig. 4로부터 각 조류의 개체수의 최대치는 pH값이 피크가 되기 직전에 나타나는 사실이 특징적이다. 즉, 조류의 증식기 직후에 pH가 최대치를 나타냄을 알 수 있다.

2.3. 식물플랑크톤의 입자 표면 전하 특성

조류의 활성도 차이는 조류 입자 표면전하 특성에도 영향을 주고 있다. 이를 파악하기 위하여 조류입자의 전기 화학적 특성(제타 전위)과 그 입자가 번식하고 있는 호소수의 pH값의 관계를 알기 위하여 다음과 같은 실험을 수행하였다.

(1) 입자 표면 전하 계측 장치 및 방법

대표적인 조류입자로는 하절기 녹조를 형성하는 남조류의 *Microcystis aeruginosa*, *Anabaena spiroidis*, 동절기에 많이 나타나는 규조류의 *Cyclotella choctawhatcheeana* 및 녹조류의 *Micractinium pusillum*를 이용하였다. 식물플랑크톤은 치바현의 데가누마, 인바누마(印旛沼)에서 채취한 후 배양액 중에서 단순 배양하여 제타전위 실험을 실시하였다. 여기서 조류 배양은 M11 배양지에서 실시하였다. M11 배양지의 구성은 Table. 1에 나타나 있다. 이외에 벤토나이트입자, 미세기포(입경 $\phi 20 \sim 30 \mu\text{m}$)를 이용하여 측정하였다. 또한 제타전위 실험에서는 N/100HCl 용액 및 N/100 NaOH 용액을 이용하여 배양액의 pH를 7.0, 7.5, 8.5, 9.5, 10.5, 11.5의 6 단계로 조정하였다.

입자 표면의 제타 전위는 제타전위 계측장치(ZECCOM ZC-2000)를 이용하여 전기영동법에 의

Table. 1. Composition of culture solution (M11).

NaNO ₃	10ma
K ₂ HPO ₄	1ma
MaSO ₄ 7H ₂ O	7.5ma
CaCl ₂ 2H ₂ O	4ma
Na ₂ CO ₃	3ma
FaSO ₄ 7H ₂ O	0.1ma
Na ₂ EDTA 2H ₂ O	0.1ma
Distilled water	100ml

해 계측하였다. 다음의 식을 이용하여 컴퓨터 화상처리 시스템에 의해 복수입자의 영동속도를 동시에 읽어 식으로부터 입자의 제타전위를 구하였다.

$$\zeta = \frac{4\pi\eta}{\epsilon} \cdot \frac{u}{E} \quad (1)$$

여기서 ζ : 제타전위(mV), 배양액의 점성계수(poise), 배양액의 유전율, u : 입자의 영동도(cm/sec), E : 전기장의 강도(mV)이다. (1) 식을 실용단위계로 나타내면,

$$\zeta = \frac{4\pi\eta}{\epsilon} \cdot U \times 300 \times 300 \times 1000 \quad (2)$$

여기서: 전기영동도($w/(v/l)$), V : 전압(mV), L : 전극간 거리(cm)이다. 식에서 수치(300 및 1000)는 단위 환산 값이다.

(2) pH가 다른 배양액 중에서의 해초류 입자의 표면 전하 특성

조류를 포함한 각종 입자의 제타전위 값의 변화를 여러 가지의 pH값을 갖는 배양액에 대해서 정리한 것이 Fig. 5이다. 그림에서 각 입자의 제타전위 값의 변동폭은 *M. aeruginosa*가 $-25 \sim -37\text{mV}$, *C. invisitatus*에서는 $-20 \sim -25\text{mV}$, *A. spiroidis*는 $-20 \sim -30\text{mV}$, 벤토나이트는 $-36 \sim -46\text{mV}$, 미세기포(microbubble)는 $-1 \sim -26\text{mV}$ 였다. 또한 전위의 최저값을 나타내는 pH값은 *M. aeruginosa*로 pH 10.5, *C. invisitatus*로 pH 8.5, *A. spiroidis*로 pH 9.0, 벤토나이트입자로 pH 8.0, 미세기포로 pH 8.0인 것을 알 수 있다. 이 때의 전하의 극값은 *M. aeruginosa*는 37mV, *C. invisitatus*는

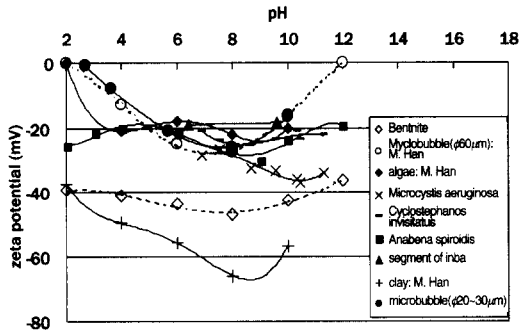


Fig. 5. relationship between pH and zeta potential.

25mV, *A. spiroidis*는 -30.3mV였다. 또한 전하의 극값을 나타내는 pH값으로부터 멀어지는 것에 따라 pH값의 증대 또는 감소에 따라 입자 표면의 전위는 상승하는 경향을 나타내고 있다.

여기서 조류의 우점력을 얻기 위해서는 증식력을 높여 한층 더 개체의 분산성을 강하게 유지하는 것이 필요하다. 조류의 활성도의 고조와 함께 pH값이 상승하여 더욱 증식된 조류 입자는 종의 우점력을 얻기 위해서 분산성을 강하게 하는 것이라고 생각된다. 즉, 플랑크톤이 증식(개체수 증가) 하는 것에 따라 입자 표면의 제타전위 값은 감소하여 입자집단의 분산화를 일으킨다. 한층 더 증식이 진행되면 조류의 탄소동화작용에 의해 호수는 과도한 pH값을 나타내게 된다. 그리고 마지막에는 조류의 활성도가 저하되어 개체끼리의 응집화가 진행되어 Fig. 5와 같이 제타전위가 0의 방향으로 증대하는 것으로 사료된다.

(3) 입자의 크기와 표면 전하

여기서 Fig. 6은 남조류의 *M. aeruginosa*, Fig. 7은 규조류의 *C. invisitatus*, Fig. 8은 녹조류의 *Micractinium pusillum*에 대해서, 그 입경과 제타전위와의 관계에 대해서, 각각의 실험 데이터를 정리해 나타낸 것이 Fig. 6-8이다.

그림으로부터 *M. aeruginosa*의 제타전위값은 입자 지름이 작을 수록 표면전위는 높고, -20mV의 값을 나타냄을 알 수 있다. 또한, 입자 지름의 증대와 함께 그 전위는 직선적으로 감소하여 -42mV를 최소값을 하며 그 때의 입경은 8 μ m 정도이다. 그러므로 *M. aeruginosa*에 대해서는 입경이 8~9 μ m의 것이 pH 10.

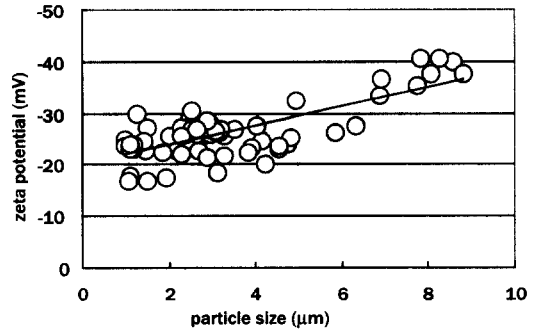


Fig. 6. Particle size and zeta potential on *Microcystis aeruginosa*.

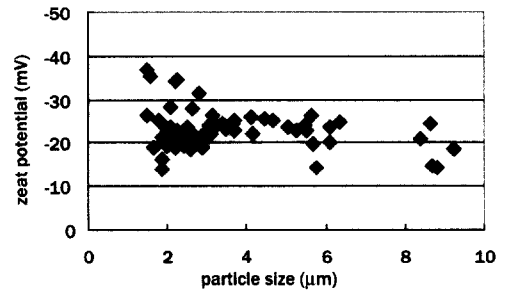


Fig. 7. Particle size and zeta potential on *Cyclostephanos invisitatus*.

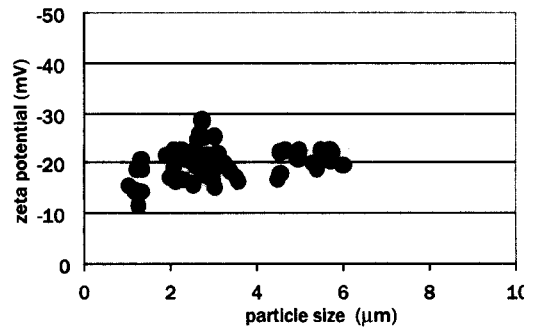


Fig. 8. Particle size and zeta potential on *Micractinium pusillum*.

5 정도의 호소수에서 가장 활성도를 높여 분열과 증식을 일으킨다고 말할 수 있다. 이 때의 우점화의 능력은 녹조류나 규조류보다 높다고 볼 수가 있다.

한편, Fig. 7과 Fig. 8에 나타나는 *C. invisitatus* 및 *M. pusillum*의 제타전위값은 입경에 관계없이 -10~-25mV 부근에 분산하는 것이 특징적이다.

이상으로 입자의 전하는 pH의 영향을 받을 수 있다. 호소수의 pH제어에 의해 식물플랑크톤 입

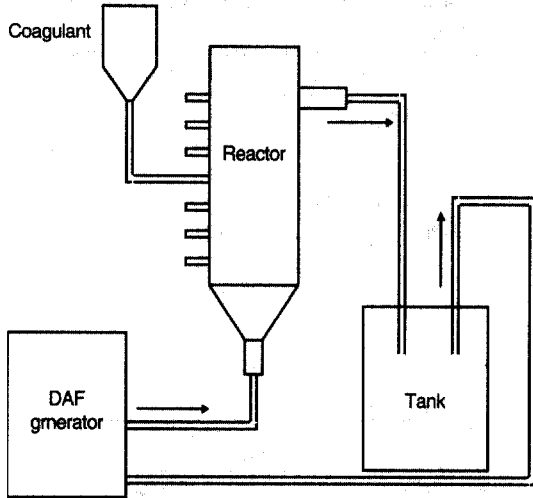


Fig. 9. DAF equipment.

자의 자기응집성을 높이면서 회수 제거하는 것이 부영양화 호소의 빈영양화에 의 전환방법으로서 검토되어야 한다고 판단된다.

3. 용존공기부상(DAF) 처리

3.1. 미세기포에 의한 호소수 및 저층 퇴적토내 유기질입자의 분리실험

Fig. 9는 DAF처리장치의 개요를 나타낸다. 실험순서로서 먼저 최초로 반응조에 수도물 50L를 채우고 반응조 하부로부터 기포발생장치로 만들어 미세기포를 연속적으로 불어넣는다. 마지막으로 반응조 상부로 저층 퇴적토 7kg(고습윤)를 투입하여 유기질 입자의 분리 제거의 상태를 고찰하였다. 저층 퇴적토는 부영양화 호소인 데가누마의 저질토를 반응조내의 유기물(주로 조류입자)과 미세기포와의 응집성을 유지시키기 위해서 황산제 2철(농도: 200mg/L)을 4L 응집제로 이용했다. 황산제 2철을 Table 1과 같이 DAF 처리 후 10분마다 4회에 나누어 주입하였다. 여기서, RUN 1은 응집제를 첨가하지 않는 경우의 실험을 말한다.

채수는 10분마다 반응조 상부로 부상 축적한 미세한 유기물 슬러지와 중간 하층수를 채수했다.

분석은 중간 하층수에 대해 SS(부유물질량), 부상

Table 2.

	泥投入後	10分後	20分後	30分後
RUN1	0	0	0	0
RUN2	1.5	1.0	1.0	0.5
RUN3	0.5	0.5	2.5	0.5
RUN4	2.5	0.5	0.5	0.5
RUN5-1	0.5	1.0	2.0	0.5
RUN5-2	0.5	1.0	2.0	0.5

(單位: L)

슬러지에서는 SS와 IL(강열감량) 공장배수 시험 방법 JIS-K 0102에 준해 실시 하였다.

3.2. DAF에 의한 SS와 IL의 변화

각 실험에 있어서 중간하층수의 SS의 변화율이 Fig. 10에 나타나 있다. 그림에서 RUN 1의 SS에는 응집제를 첨가하고 있지 않기 때문에 큰 변화는 없었다. 한편, RUN 2나 RUN 4와 같이 초기에 다량으로 첨가하면 초기에 분리성이 높아져서 중간 하층수 내의 SS가 적게 되는데 반해 서서히 첨가량을 늘려가는 RUN 3나 RUN 5에서는 SS가 높게 나타났다.

다음에 각 실험계에 있어서의 샘플링한 부상 슬러지의 SS와 IL의 비교는 각각 Fig. 11, Fig. 12에 나타낸다. 부상 슬러지의 SS를 보고 볼 때, Fig. 11보다 RUN 2는 부상 슬러지가 가장 적고 119.8g/였다. 초기 첨가량이 많은 RUN 2와 같은 패턴에서는, DAF 처리가 충분히 진행하지 않는 채 미세 유기물은 부상 슬러지와 저층 퇴적토로 분리되어 유기물은 부상 슬러지로 충분히 회수되지 않는 것을 나타내고 있다.

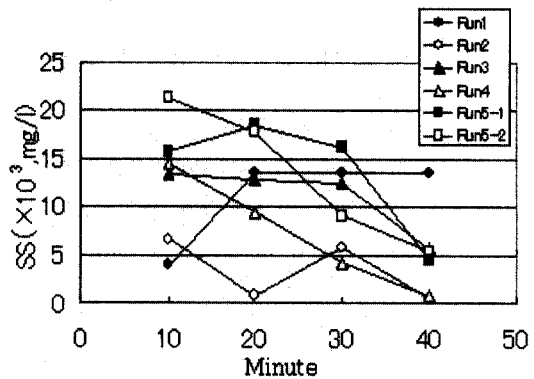


Fig. 10. SS Concentration of time elapsed in water layer.

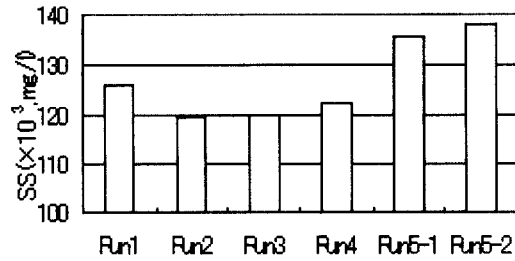


Fig. 11. Suspended Solid in froth.

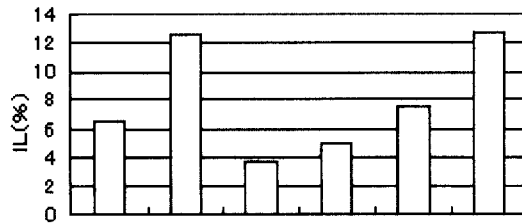


Fig. 12. Ignition Loss in froth.

이에 반하여 서서히 증가된 RUN 5에서는 회수된 부상슬러지가 138.2g/l로서 가장 많이 나왔다. 이것은 DAF 처리가 진행되고 있는 상태로 부상슬러지와 저층 퇴적으로 분리되었기 때문에 부상 슬러지로 회수가 용이하였음을 보여주는 결과라고 판단된다.

DAF 처리 후의 회수된 부상 슬러지의 IL은 Fig. 12에서 RUN 2와 RUN 5-2가 가장 높으며 약 12% 정도를 나타내고 있다. 한편 Run 3과 RUN 4는 약 5% 정도로 낮은 편이다. 이것은 응집제를 지나치게 넣으며 부상 분리 효율이 저하되는 것이라 판단된다. 즉, 가교효과에 의해 유기물이 Float로 부상되지 않고 저질토에 침강·퇴적하였기 때문이라고 사료된다.

3.3. 댐 호수의 플랑크톤 등의 탁질 SS와 제타 전위

댐 호수의 탁수에 대해서 다음과 같은 조건을 설정하여 각각 제타전위를 측정하여 「외관상으로 깨끗한 상태」의 지표로서 SS와 탁도를 측정하였다. 실험은 이하의 3조건으로 실시하였다.

- ① 미처리 탁수(초기수)
 - ② 탁수+시판응집제A(0.1%, 0.5%, 1% 첨가)
 - ③ 탁수+시판응집제B(0.1%, 0.5%, 1% 첨가)
- 교반 하고 나서 30분 정지 후 각 샘플에 대해서 상

Table 3. The measurement result on zeta potential, SS and turbidity

測定項目	ゼータ電位(mV)	SS(mg/l)	탁도
미처리탁수	-42	75	69
0.1% 添加	-33	28	25
凝集劑A 0.5% 添加	-25	11	7.3
1.0% 添加	-19	9	5.9
凝集劑B 0.1% 添加	-27	20	14
0.5% 添加	-18	7	3.2
1.0% 添加	-17	7	2.9

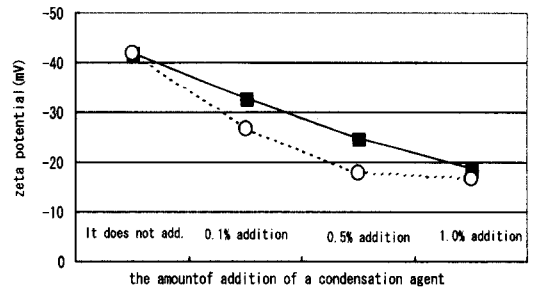


Fig. 13.

징액을 채취하여 제타전위, SS, 탁도를 측정하였다. 그 결과 Table. 3 과 Fig. 13의 결과를 얻었다.

Table. 3에서와 같이 미처리 탁수에 대해 제타 전위가 -40mV 정도로서 가장 크고 SS·탁도도 높게 나왔다. 응집제 A와 응집제 B를 비교하면 0.1%, 0.5%, 1.0%의 모두 농도 조건에 있어서 응집제A 보다 응집제B를 첨가한 검사대상 물체의 제타전위가 작아지며 또한 SS 및 탁도도 상당히 저하되는 결과를 얻었다. 이 결과로부터 외적으로 SS나 탁도가 낮은 시료는 제타전위의 절대치도 작아져서 외관상 제타전위에 직접적인 영향을 받는다는 것으로 알 수 있다. 여기서 응집제B의 0.5%과 1.0%의 결과를 비교하여 제타전위에서는 약 -18mV 전후로 변화가 없고 SS, 탁도도 명확한 차이가 없는 것으로부터 이 원수에는 응집제 0.5%의 첨가로도 처리가 충분하다고 보여진다.

4 결론

본 연구에서는 부영양화 호소에 있어서의 식물플랑크톤 종의 계절적인 변화를 조사하여 우점화된 조류입자의 표면전하특성을 규명하는 것과 저층 퇴적도

에 함유되는 유기물제거의 미세기포를 활용한 옹존공기 부상공정(DAF)의 최적운전조건에 대해서 검토하였다. 그 결과 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

1) 데가누마 호수에 있어서의 우점종은 계절마다 달라 봄철에 녹조류는 *Micractinium pusillum*, *Chlorella* sp., *Scenedesmus* sp. 등이며, 여름철로부터 가을철에는 남조류의 *Microcystis aeruginosa*, *Microcystis wesenbergii*, *Anabena spiroides* 등이며, 겨울철에는 규조류의 *Cyclotella choctawhatcheeana*, *Diatoma* 등이 주로 발생한다.

2) 각 조류의 개체수의 최대치는 pH값이 피크를 갖기 직전에 발현하는 것이 특징적이다. 즉 해초류의 증식이 직후에 pH가 최대치를 나타냄을 알 수 있다.

3) 플랑크톤이 증식(개체수가 증가) 하는 것에 따라 입자 표면의 제타전위 값은 감소하여 입자집단의 분산화를 일으킨다. 증식이 더욱 진행되면 조류의 탄산 동화 작용에 호수는 과도한 pH값을 나타내게 된다. 그리고 마지막에는 조류의 활성도가 저하되어 개체끼리 응집화가 진행되게 되어 제타전위가 0의 방향으로 증대하는 것으로 사료된다.

4) *M. aeruginosa*의 입자표면 전위값은 입자 지름이 작을수록 높고 -20mV의 값을 나타내고 있다. 더욱이 입자 지름의 증대와 함께 그 전위는 직선적으로 감소하여 -42mV를 최소치로 그 때의 입경은 8 μ m 정도이다. 그러므로 *M. aeruginosa*에 대해서는 입경 8~9 μ m의 것이 pH 10.5 정도의 호소에서 가장 활성도를 높여 분열과 증식을 일으킨다고 말할 수 있다. 이 때 우점화의 능력은 녹조류나 규조류보다 높다고 볼 수 있다.

5) DAF 처리에 있어서 응집제를 증가시키는 것이 부상 슬러지량의 증대를 기대할 수 있다는 것이 판명되었다.

참고문헌

- Mooyoung Han(1998) zeta potential measurement of bubbles in DAF process and its effect on the removal efficiency, *J. of Civil Engineering*, KSCE, pp. 461-466.
- 치바현 환경부편 (1988) 공공용수역수질 측정 결과 317p.
- 치바현 환경부편 (1990) 공공용수역수질 측정결과 및 지하수의 수질측정결과 319p.

- 치바현 환경부편 (1991) 공공용수역수질 측정결과 및 지하수의 수질측정결과 305p.
- 치바현 환경부편 (1992) 공공용수역수질 측정결과 및 지하수의 수질측정 결과 303p.
- 山本晃敏, 石井祐一, 村上和仁, 瀧和夫(2002) 데가누마에 특이적으로 발생하는 조류개체가 가지는 표면전하특성, 제29회 토목학회 관동지부 기술연구발표회 강연집, pp. 1004-1005.
- 石山和湖, 瀧和夫, 村上和仁, 本田義則(2003) 부영양화 호소의 직접정화(2) 우점조류의 표면전하특성, 제37회 일본 수질환경계학회연회 강연집, p. 23.
- Xi Hu, K. Taki, K. Murakami, M. Han (2000) Coagulation Mechanism for Harmful Plankton Removal, Proceedings of the 2nd International Summer Symposium, International Activities Committee of JSCE.
- K. Murakami, X. Hu, M.Y. Han, H. Matsushima, T. Ishii, K. Taki (2000) Fundamental Study for Bioremediation in Eutrophicated Water Bodies: Estimation of Sedimental Treatment Efficiency by Phytoplanktonic Flora, pp. P17-4-1-4.
- X. Hu, M.Y. Han, K. Murakami, K. Taki(2000) Fundamental Study for Bioremediation in Eutrophicated Water Bodies: Proceedings of the 5th International Symposium on Environmental Biotechnology, International Society for Environmental Biotechnology Coagulation Mechanism on Harmful Plankton for Water Quality, pp. P17-5-1-4.
- M.Y. Han, W. Kim, K. Taki, K. Murakami, X. Hu(2000) Fundamental Study for Bioremediation in Eutrophicated Water Bodies: (3) Coagulation Mechanism in Several On-site Aalgae Removal Methods, Proceedings of the 5th International Symposium on Environmental Biotechnology, International Society for Environmental Biotechnology pp. P17-6-1-4.
- 相澤益男, 大倉一郎, 穴戸昌彦, 山田秀徳 저(1995) 생물 물리화학, 코단사, 191p.
- 北原文雄, 渡邊昌 저(1972) 계면전기현상 - 기초·측정·응용-, 공동설립 출판, 372p.
- 사단법인 일본화학회 저(1997) 현대 계면콜로이드화학의 기초, 마루젠, 286p.
- 佐藤敦久 저(1987) 수질환경계 공학 - 부유물질로부터 본 환경보전 - 기술보당출판, 247p.
- 末石富太郎, 住友恒, 山田淳, 和田安彦 저(1987) 위생 공학 카시마 출판, 318p.
- K. Taki (2002) Zeta potential on the surface of plankton cells and DAF technology, Proc. of International Workshop on Flotation in water and wastewater treatment, pp. 81-96.