

고밀도 해산어 양식장 순환수로부터 유기물 및 암모니아질소 동시 제거

정병곤 · 김문태 · 이현모*

군산대학교 환경공학과 · 동의공업대학 환경정보시스템과*

Simultaneous Removal of Carbon and Ammonia Nitrogen from Recirculation Water in High Density Seawater Aquaculture Farm

Byung-Gon Jeong · Mun-Tae Kim · Heon-Mo Lee*

Dep't of Environmental Engineering, Kunsan National University

Dep't of Environmental System Eng., Dongeui Institute of Technology*

Abstract

Treatability tests were conducted using EMC process to study the feasibility of applying this process as recycling-water treatment system in high density seawater aquaculture farm. To study the effect of organic and ammonia nitrogen loading on system performance, hydraulic retention time of reactor was reduced gradually from 12hr to 10min. The conclusions are can be summarized as follows.

When the system HRT was reduced from 12hr to 10 min gradually, there was little noticeable change(reduction) in ammonia nitrogen removal efficiencies until 2hr of HRT, however, removal efficiencies were decreased dramatically when the system was operated under the HRT of less than 2hr. In case of organics(COD), there was no dramatic deterioration in removal efficiencies depending on HRT reduction. More than 90% of removal efficiencies were maintained successfully when the system was operated at the HRT of 10 min.

In case of system performance depending on media packing ratio in reactor, there was little difference in each reactor performance depending on media packing ratio in reactor when the reactors were operated under the HRT of longer than 1hr, however, differences in reactor performances were considerably evident when the reactors were operated under the HRT of shorter than 1hr. That is, the more reactor was packed , the better reactor performed. When comparing reactor performance among 25%, 50%, 75% packed reactor, it can be judged that media packing ratio more than 50% plays no significant role in increasing reactor performance. For this reason, packing the media less than 50% is more reasonable way in view of economic.

Such a tendency well agreed with the variation of ammonia-nitrogen removal efficiencies according to the media packing ratio in reactors at each HRT. Difference in effluent ammonia-nitrogen concentration between 50% media packing reactor and 75% media packing reactor was negligible. When comparing with the results of 25% packing reactor, difference was not so great.

key words : Carbon, Nitrogen, Recirculation water, seawater aquaculture farm

I. 서 론

일반적으로 고밀도 양식장의 사육조는 어류의 양에 비하여 면적이 좁기 때문에 인위적인 환경관리가 쉽고 목적에 따라 생산성 증대를 위한 수온 등 일부 환경요인의 조절이 가능하여 자연환경에서는 양식이 불가능하거나 생산성이 낮은 어류를 대량 생산할 수 있다는 이점이 있다. 특히 우리나라의 경우 저수온기가 길어 월동을 위해 가온과 보온으로 필요한 온도를 유지하여야 하고 양식 가능한 연안이 제한되어 있어 수질환경관리가 인위적으로 가능한 순환여과식 고밀도 양식의 필요성이 고조되고 있음을 주지의 사실이다. 지금까지 외국에서 개발되어 시도되고 있는 순환식 어류양식에 이용되는 고밀도 사육수의 정화방법으로는 덴마크의 경우 회전원판법의 일종인 Euromatic Bio-drum을 개발하여 송어양식에 적용하고 있으며, 독일의 경우 활성 슬러지법의 일종인 Ahrensburg system을 이용하고 있으나 소요면적이 크게 요구되는 단점을 내포하고 있으며¹⁾ 1978년에는 Metz Mannheim사가 미생물 이용방식에 의한 어류 고밀도 양식 시스템의 개발에 착수하여 1986년에 전세계의 양식산업에 패키지 시스템을 판매하기 시작한바 있으나²⁾ 현 단계는 담수어에 적용되고 있는 실정이고 그 구조가 복잡하고 고도의 운전기술이 요구되며 고가이기 때문에 우리나라 양식 현장에서는 아직은 그 적용이 어렵다고 할 수 있다. 우리나라의 경우 비교적 관리가 용이하고 효율이 높은 것으로 평가되고 있는 폭기식 잠수여상을 포함한 회전원판법(RBC) 등이 고밀도 양식어장의 수처리 방법으로 주로 설치 운영되고 있으며 이러한 수처리 시스템의 효율등에 대한 연구결과

가 보고되고 있으나^{3,4,5)} 대부분이 미생물의 메디아 부착의 어려움은 물론 처리 시스템에 있어서도 비경제적으로 설계 운전되고 있어 영세 양식업의 운영비를 더욱 가중시키고 있는 실정이다⁶⁾. 따라서 유지관리가 비교적 간단하고 설치 및 운전이 단순하면서도 안정적인 효율을 낼 수 있는 새로운 처리장치의 개발이 시급한 실정이다. 이에 대한 해결책으로 제시되는 방법중의 하나는 이러한 박테리아를 gel 내에 강제적으로 고정시켜 처리하는 방법이다. Entrapped Microbial Cell(EMC)공정이라 불리는 이 방법은 폐수처리분야에의 적용은 비교적 새로운 개념이기는 하나 이 공법은 의약품, 식품산업등에 광범위하게 적용되어져 온 것들이다. 기존 폐수처리공정의 대안으로 EMC공정은 몇 가지 장점을 가지고 있는데 예를들면 고액분리의 문제를 해결할 수 있고 생물 반응조의 크기를 줄일 수 있다는 점등이다.^{6,7,8)} 그 외에도 EMC공정은 반응조 내 세포체류시간을 증가시킬 수 있고 세포를 저해물질이나 공정인자 변동 등으로부터 보호할 수 있으며 원하는 종류의 미생물을 반응조내 유지시킬 수 있고 슬러지 생성량이 적으며 공정운전 중단시간 미생물을 저장 보관 할 수 있고 또 필요할 때 빠른 기간내에 원래의 활성으로 회복시킬 수 있는 장점등이 있다. 기존 생물막 반응조에 비해 이러한 EMC공정이 갖는 독특한 장점은 처리시설의 운전 및 유지보수가 기존 생물막 공정에 비해 비교적 간단하므로^{9,10)} 특히 양식장 순환수와 같은 소규모 처리시설에 적합할것으로 판단된다.

따라서 본 연구에서는 고밀도 양식장의 재순환수의 생물학적 처리에 있어서 가장 문제가 되는 유기물 및 암모니아 질소의 동시제거를 위하여 EMC공정 적용시 처리도 실험을 통한 그 가능성

확인에 연구의 목적을 두었다. 이를 위하여 본 실험에서는 gel 충진율을 달리한 3개의 반응조를 비교 운전하면서 부하량에 따른 운전효율 변화를 살펴보기 위하여 반응조 HRT를 변화시켜가며 그에 따른 유기물 및 암모니아 질소 제거효율을 조사하여 EMC 공정을 이용한 단일 반응조내에서 유기물 및 암모니아 질소 동시제거에 관하여 연구하였다.

II. 장치 및 방법

1. 미생물 순차 및 고정화

도시하수 처리장내 활성 슬러지 공정으로부터 가져온 활성 슬러지를 Fill and Draw방식으로 운전되는 호기성 반응조에 식종한 후 조제된 인조합성 배지¹¹⁾를 주입하면서 질산화 박테리아를 enrichment culture technique을 이용하여 배양하였다. 실험실에서 이와같은 방식으로 1개월간 배양시킨 질산화 박테리아는 cellulose triacetate를 고

정화 담체로 이용하여 Yang and See¹²⁾에 의하여 제안된 entrapping방법을 사용하여 entrapping시켰다. 즉, Fig. 1에 나타내 놓은바와 같이 원심분리시킨 배양세포를 methylene chloride에 용해시킨 cellulose triacetate에 가한후 이를 다시 혼합시켜 틀에 집어넣은 다음 toluene으로 경화시켰다. 경화된 fiber는 가로 10mm, 세로 10mm, 두께 10mm로 잘라서 반응조에 투입시켜 사용하였다.

2. 실험장치 및 운전방법

1) 실험장치

EMC공정을 사용하여 유기물 및 질소 동시제거에 관한 특성 및 운전방법등을 평가하기 위하여 본 연구에 사용될 실험장치의 개략도는 Fig. 2와 같다.

반응조는 용량 1.2 l로서 직경 6.4cm, 높이 40cm 의 아크릴 원통을 사용하여 제작하였으며

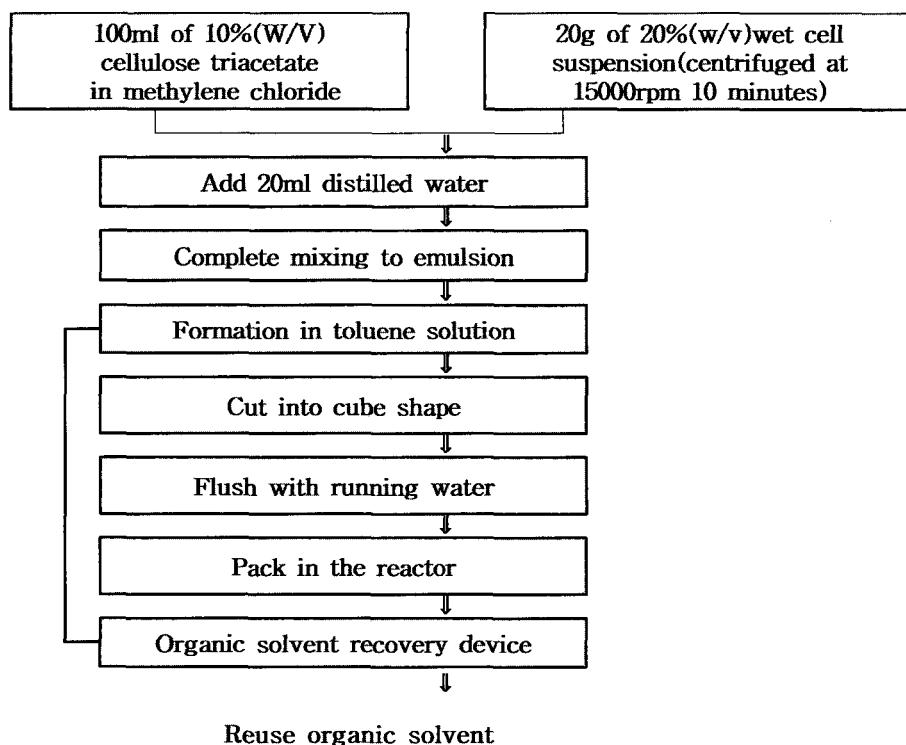


Fig.1. Entrapped mixed microbial cell techniques.

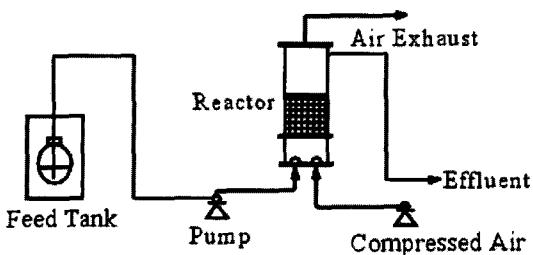


Fig. 2. Diagram of experimental set-up.

메디아 충진율에 따른 처리효율 비교를 위하여 3개의 반응조에 메디아 총의 부피를 반응조 용적의 각각 25%, 50%, 75% 씩 충진하였다. 메디아 충진 층 상하부에는 플라스틱 mesh를 설치하여 메디아가 부상되어 나가는 것을 방지하였다. 실험기간중 반응조는 운전 온도차에 의한 오차를 방지하기 위해 일정온도 ($20^{\circ}\text{C} \pm 0.5$)의 항온실에 반응조를 설치하여 운전하였다.

합성유입폐수는 매일 새로 조제하여 생분해를 최소화시켰으며 약 50 l 용량의 플라스틱 용기에 채워 미량 유량 조절펌프(Watson Marlow 505S)를 이용하여 주어진 HRT에 맞게 반응조 바닥에서 상향류 형태로 유입시켰으며 유출수 반송은 실시하지 않았다. 또한 조류나 광합성 박테리아의 성장을 방지하기 위하여 반응조 투명 부분은 알루미늄 호일등으로 감싸서 운전하였다.

2) 운전방법

운전 방법은 메디아 충진율에 따른 처리효율 변화와 유입 부하량 변화에 따른 처리효율 변화를 살펴보기 위하여 반응조 HRT를 12hr, 8hr, 4hr, 2hr, 1hr, 30min, 20min, 10min으로 단축시키면서 실험하였다. 이러한 운전방법에 따라 반응조에 가해진 유기물 부하는 $18.4\text{g COD/m}^3/\text{d} \sim 1324.8\text{g COD/m}^3/\text{d}$ 였으며 총질소 부하는 $10.46\text{g T-N/m}^3/\text{d} \sim 753.12\text{g T-N/m}^3/\text{d}$ 였다.

3) 시료의 조제 및 분석방법

반응조의 운전특성을 평가하기 위하여 실험에 사용될 영양염류는 Rogers and Klemetsen¹¹⁾이 사용한 것과 유사한 성분으로 성상은 Table 1과 같다. 실험이 시작되고 난후부터 각각의 운전조건에

Table 1. Composition of feed solution

Constituents	Concentration
Yeast extract	10
Urea	5
Na ₂ HPO ₄	40
NaHCO ₃	125
MnSO ₄	2
NH ₄ Cl	38.21

대한 분석방법은 Standard Method¹³⁾를 기준으로 하였다.

III. 결과 및 고찰

1. 유기물 제거

생물막을 이용한 공정의 경우 반응조내 미생물량의 증가에 따라 기질제거속도가 증가하나, 고정화 담체를 이용할 경우 반응조내 충진되는 충진량에 따라 비용증가가 예상되므로 적정 수준의 충진량을 선택하는 것이 바람직하다. 각 반응조의 고정화 담체의 충진율을 25%, 50% 및 75%로 하여 HRT를 12, 8, 4, 2, 1hr 및 30min, 20min, 10min 감소시키면서 운전한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 HRT를 감소시켜가면서 실험을 수행한 결과 충진율 공히 유출수 COD농도는 점차 증가하는 경향을 나타내었으며 고정화 담체의 충진율이 증가할수록 유출수 COD농도가 낮게 나타나는 경향을 보이나 그 값의 정도는 미미한 수준으로 낮게 나타났다.

Fig. 4는 HRT에 따른 평균 COD 제거효율을 나타낸것으로 그림에서 알 수 있는 바와 같이 충진율 25%의 경우 HRT 1시간까지 94% 이상의 제거효율을 보이며 HRT를 30분, 20분 및 10분으로 감소시켜감에 따라 제거효율이 미미한 감소 경향을 보이나 전반적으로 90%이상의 제거효율을 나타내어 낮은 HRT에서도 유기물 제거에 우수함을 보여주고 있다.

충진율 50%로 운전한 경우 충진율 25%의 경우와 유사한 경향을 보이나 전 HRT에서 94%이상의 제거율을 나타내었으며 충진율 75%로 운전한 경우 충진율 50%로 운전한 경우와 유사한 경향을

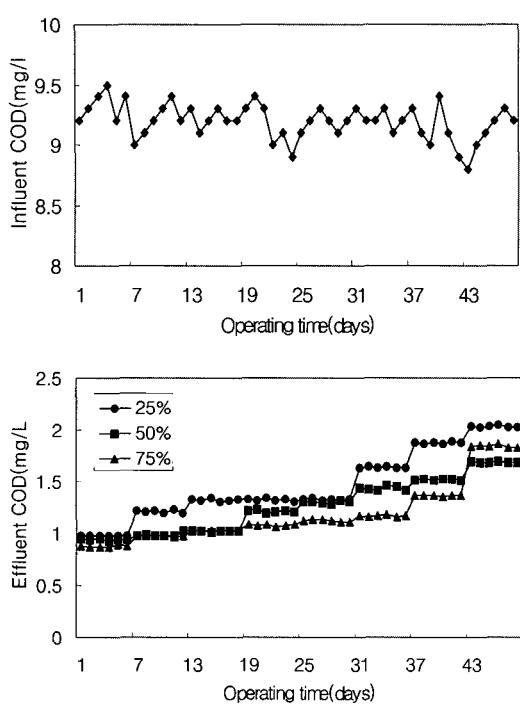


Fig.3. Variation of Influent and effluent COD depending on HRT in packed reactor.

보여 고정화 담체의 충진율 50%이상에서는 거의 비슷한 제거효율을 나타내었다. 이와 같이 짧은 HRT에서도 유기물에 대하여 높은 제거율을 보이는 이유는 고정화 담체로 인한 반응조내에 고농도의 미생물농도를 유지할 수 있기 때문인 것으로

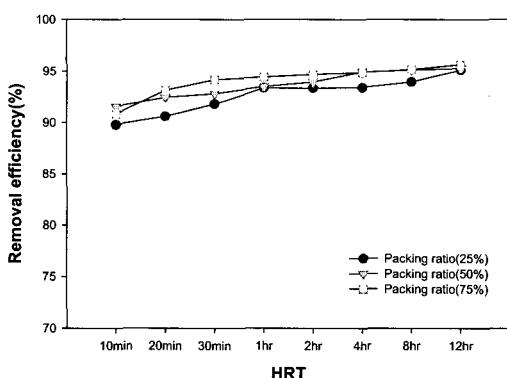


Fig. 4. Variation of COD removal efficiency depending on HRT and media packing ratio.

판단된다. 角野 등¹⁴⁾은 활성슬러지를 고정화하여 높은 유기물 부하에서 제거능력이 높음을 보고하였고, 橋本獎 등¹⁵⁾은 미생물 포괄고정화 방법이 활성슬러지법에 비해 5~6배정도 높은 유기물 부하에서도 처리가 가능한 것으로 보고하였다.

이상의 결과를 통하여 메디아 충진율에 따른 반응조 운전효율변화를 보면 HRT가 1시간보다 긴 경우에는 메디아 충진율에 따른 제거효율 변화가 극히 미미하였으나 1시간 이하의 체류시간에서는 그 차가 상당히 크게 나타나 충진량이 많을수록 제거효율이 높게 나타났다. 그러나 이 역시 25%와 50% 충진 반응조에서의 제거효율 변화보다는 50%와 75% 충진 반응조에서 제거효율 변화가 적게나타나 50% 이상의 메디아 충진이 반응조 운전 효율 측면에서는 큰 역할을 하지 못함을 나타내었다. 따라서 경제성등을 고려할 경우 25%정도만을 충진 시키는 것이 오히려 합리적이라고 판단된다.

2. 질산화 특성

고정화 담체의 충진율을 25%, 50% 및 75%로 하여 HRT에 따른 유입수 및 유출수의 NH₄-N 농도 변화를 Fig. 5에 나타내었으며 HRT에 따른 평균 NH₄-N 제거효율을 Fig. 6에 나타내었다.

그림에서 알 수 있는 바와 같이 충진율에 관계 없이 HRT 2시간 이상에서는 97%이상의 제거율을 보이나 HRT를 1시간, 30분, 20분 및 10분으로 감소시켜감에 따라 NH₄-N의 제거율이 급격한 감소 현상을 보였는데 이러한 현상은 담체 충진율이 작은 반응조에서 크게 나타났다. 충진율 75% 경우 HRT 20분에서 급격한 감소현상을 보이며 HRT 10분에서 충진율 25, 50%의 반응조와 제거효율이 비슷하게 나타났다. 이러한 현상은 충진율이 높은 반응조에서 장기간 운전으로 인한 고정화 담체의 막힘현상에 기인한 단회로 현상인 것으로 판단된다.

Tanaka 등¹⁶⁾은 폴리에틸렌그리콜에 활성슬러지를 고정화하여 암모니아질소가 95~260 mg NH₄⁺-N/l 함유되어 있는 폐수를 체류시간 6시간에서 98%의 질산화를 보고한바 있어 고정화 담체를 이용한 공정의 경우 유기물 제거 뿐만아니라 암모니아제거에도 우수한 것으로 판단된다.

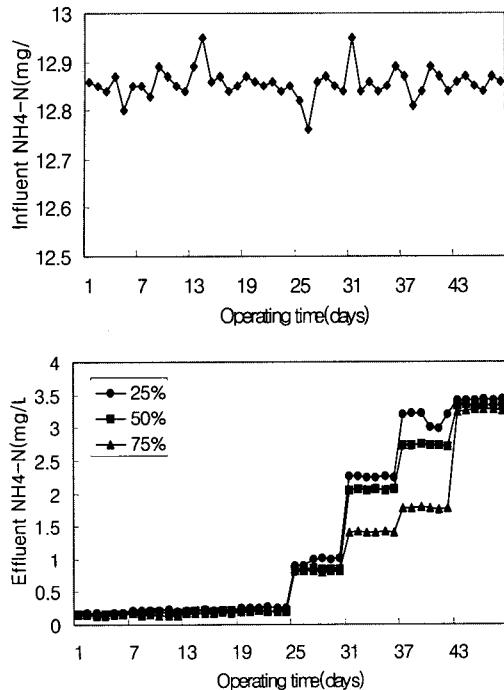


Fig. 5. Variation of Influent and effluent $\text{NH}_4\text{-N}$ depending on HRT in packed reactor.

Fig. 7은 암모니아 부하에 따른 제거율을 나타낸 것으로 부하량 $0.30\text{kg NH}_4^+\text{-N/m}^3\text{-day}$, HRT 1시간 까지는 제거율 93%이상으로 암모니아 질소의 산화가 잘일어남을 알 수 있으며 그 이상의 부하량에서 암모니아 질소의 산화 정도가 감소하며 부하량 $1.85\text{ kg NH}_4^+\text{-N/m}^3\text{-day}$, HRT 10분에서 충

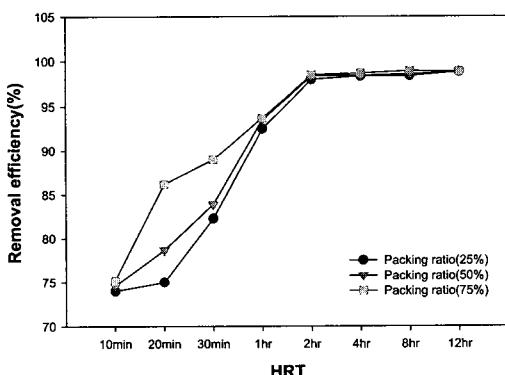


Fig. 6. Variation of $\text{NH}_3\text{-N}$ removal efficiency depending on HRT and media packing ratio.

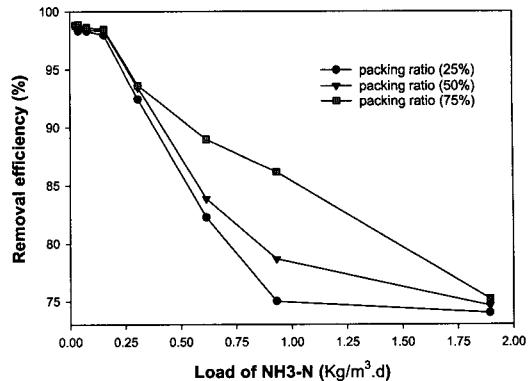


Fig. 7. Variation of $\text{NH}_3\text{-N}$ removal efficiencies according to volumetric loading.

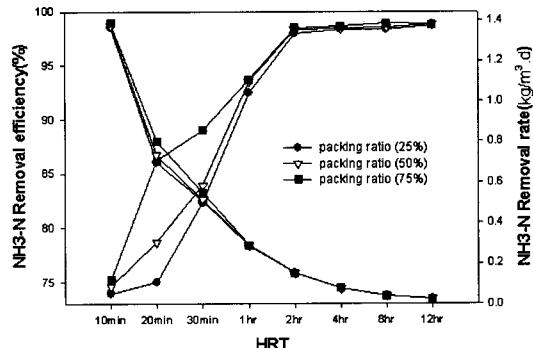


Fig. 8. Variation of ammonia removal efficiency and removal rate according to the HRT and media packing ratio.

진율 공히 75%정도의 제거율을 나타내었다.

또한 Fig. 8의 결과에서도 알 수 있는 바와 같이 암모니아 질소에 대하여 90%이상의 높은 제거율을 가지기 위해서는 고정화 담체의 충진율 25%로 하고 암모니아 질소 부하량 $0.30\text{kg NH}_4^+\text{-N/m}^3\text{-day}$, HRT 1시간까지 운전이 가능한 것으로 판단된다.

IV. 결 론

EMC(Entrapped-Microbial-Cell) 공정을 고밀도 순환여과식 해산어 양식장의 순환수 처리에 적용하기 위하여 처리도 실현을 수행해본 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 반응조 HRT를 12hr에서 10분까지 줄여가며 실험해본 결과 HRT 2시간까지는 수리학적 체류 시간 변화에 따른 제거효율 변화가 거의 없었으나 그 이하의 체류시간에서는 체류시간 단축에 따른 제거효율의 감소가 비교적 크게 나타났다.
2. COD의 경우에는 체류시간 단축에 따른 급격한 제거효율의 변화가 관측되지 않았으며 10분 정도의 체류시간에서도 90%이상의 제거효율을 나타내었다.
3. 암모니아 질소 부하량 $0.30\text{g kg NH}_4^+ \text{-N/m}^3\text{-day}$, HRT 1시간 까지는 제거율 93% 보였고 부하량 $1.85\text{kg NH}_4^+ \text{-N/m}^3\text{-day}$, HRT 10분에서 75%로 감소하였다.
4. 메디아 충진율에 따른 반응조 운전효율변화를 보면 HRT가 1시간보다 긴 경우에는 메디아 충진율에 따른 제거효율 변화가 극히 미미하였으나 1시간 이하의 체류시간에서는 그 차가 상당히 크게 나타나 충진량이 많을수록 제거효율이 높게 나타났으나 50%이상의 메디아 충진이 반응조 운전효율 측면에서는 큰 역할을 하지 못함을 나타내어 경제성등을 고려할 경우 25%정도 만을 충진 시키는 것이 오히려 합리적이라 판단된다.
5. 이석모, 김도희, 송교육 : 순환여과식 양식장의 암모니아 제거를 위한 최적 수리학적 부하. 한수지, 25(3), 176, 1992.
6. Yang, B. S., Lee, H. M. and Jeong, B. G. : Water Quality Control in the Semiclosed Culture System Growing a Flounder. *Paralichthys Olivaceus*, Bull. Korean Fish. Soc, 25(3), 197-204, 1992.
7. Yang, P. Y. and M. L. Wang. : Packed-Entrapped-Mixed-Microbial Cells for Small Wastewater Treatment. *Wat. Sci. Tech*, 22(3/4), 343-350, 1990.
8. Yang., P. Y. and M. L. Wang. : Entrapment of Microbial Cells for Wastewater Treatment. In *Wastewater Treatment by Immobilized Cell*, (Edited by Tyagi, R. D. and K. Uemvu), CRC Press, 45-77, 1990.
9. Lin Y-F and K-C Chen. : Denitrification by Immobilized Sludge with Polyvinyl Alcohol Gels. *Wat. Sci. Tech*, 28(7), 159-164, 1993.
10. Yang, P. Y., Zhang, Z.Q. and Jeong, B.G. : Simultaneous removal of carbon and nitrogen an entrapped-mixed-microbial-cell process. *Water Research*, Vol. 31, No.10, pp. 2617-2625, 1997.
11. Yang, P. Y. and B. G. Jeong. : Entrapped Mixed Microbial Cell Technology for Wastewater Treatment and Reuse/Desposal in Hawaii. *Proceedings of th IAWQ Asia-Pacific Regional Conference*, Asian Waterqual' 97, May 20-23, 1997.
12. Rogers and Klemetson. : Ammonia Removal in Selected Aquaculture Water Reuse Biofilter. *Aquaculture Engineering*. 4, 135-154, 1976.
13. Yang, P. Y. and T. S. See : Packed Entrapped Mixed Microbial Cell Process for Removal of Phenol and its Compounds. *J. Environ. Sci. Health*, A26(8), 1491-1521, 1991.

사 사

본 연구는 군산대학교 해양과학대학 학술 연구기금 및 수산과학연구소의 지원하에 수행 되었습니다. 본 연구를 후원해 주셔서 감사 합니다.

참 고 문 헌

1. 이정렬 : 양어 사육수의 여과 시스템 및 기계화. 한국 송어 양식 25주년 기념집, 156-173, 1990.
2. Mewis, N. : Metz Mannheim의 물고기 양식의 첨단 신기술. 한국 송어양식 25주년 기념집, 197-207, 1990.
3. 김인배, 김병기, 지영옥 : 여과지에 따른 암모

13. APHA :*Standard Methods for The Examination of Water and Wastewater*, American Public Health Association, Washington, D. C., 1995.
14. 角野, 中島 : 包括固定化生物を用いた廃水處理技術, 用水と廃水, 27, 10, 52-54, 1985.
15. 橋本獎, 古川憲治 : 活性汚泥の固定化とその淨化機能に關する研究, 下水道協會誌, 22,253, 42-50, 1985.
16. Tanaka, K., Tada, M., Kimata, Harada, S., Fujii, Y., Nori, N., Emori, H. : Development of new nitrogen removal systems using nitrifying bacteria immobilized in synthetic resin pellets, Wat. Sci. Tech., 23, 681-690, 1991.