

침출수 재순환과 생물학적 단축질소제거공정을 병합한 매립지 조기안정화 기술 연구

신언빈 · 정진욱* · 배우근[†]** · 김승진** · 백승천**

ERM Korea Ltd. · *삼성엔지니어링 기술연구소 · **한양대학교 토목공학과

(2005년 9월 12일 접수, 2007년 9월 20일 채택)

Innovative Technology of Landfill Stabilization Combining Leachate Recirculation with Shortcut Biological Nitrogen Removal Technology

Eon Bin Shin · Jinwook Chung* · Wookeun Bae[†]** · Seung Jin Kim** · Seung Cheon Bae**

ERM Korea Ltd. · *Samsung Engineering Ltd. · **Department of Civil Engineering, Hanyang University

ABSTRACT : A leachate containing an elevated concentration of organic and inorganic compounds has the potential to contaminate adjacent soils and groundwater as well as downgradient areas of the watershed. Moreover high-strength ammonium concentrations in leachate can be toxic to aquatic ecological systems as well as consuming dissolved oxygen, due to ammonium oxidation, and thereby causing eutrophication of the watershed. In response to these concerns landfill stabilization and leachate treatment are required to reduce contaminant loading and minimize effects on the environment. Compared with other treatment technologies, leachate recirculation technology is most effective for the pre-treatment of leachate and the acceleration of waste stabilization processes in a landfill. However, leachate recirculation that accelerates the decomposition of readily degradable organic matter might also be generating high-strength ammonium in the leachate. Since most landfill leachate having high concentrations of nitrogen also contain insufficient quantities of the organic carbon required for complete denitrification, we combined a shortcut biological nitrogen removal (SBNR) technology in order to solve the problem associated with the inability to denitrify the oxidized ammonium due to the lack of carbon sources. The accumulation of nitrite was successfully achieved at a 0.8 ratio of $\text{NO}_2\text{-N}/\text{NO}_x\text{-N}$ in an on-site reactor of the sequencing batch reactor (SBR) type that had operated for six hours in an aeration phase. The $\text{NO}_x\text{-N}$ ratio in leachate produced following SBR treatment was reduced in the landfill and the denitrification mechanism is implied sulfur-based autotrophic denitrification and/or heterotrophic denitrification. The combined leachate recirculation with SBNR proved an effective technology for landfill stabilization and nitrogen removal in leachate.

Key Words : Landfill Stabilization, Leachate Recirculation, Shortcut Biological Nitrogen Removal (SBNR), Sulfate Reduction

요약 : 본 연구는 침출수 재순환 공법과 산소요구량과 탄소요구량의 절감이 가능한 단축질소제거공법(shortcut biological nitrogen removal: SBNR)을 병합하여 침출수중의 암모니아와 유기물을 효과적으로 제거하는 방안에 대해 부피 약 200 m²의 pilot 규모 매립지를 만들어 연구하였다. 매립지에서 발생한 침출수는 연속회분식반응기(sequencing batch reactor: SBR)형태의 on-site reactor에서 암모니아성 질소를 아질산으로 부분질산화 시킨 후 매립지로 재유입시켜 지중탈질(in-situ denitrification)을 유도하였다. 침출수는 매립면적에 따른 년평균 강우량을 기준으로 약 221 L/cycle을 주당 3회 재순환 하였다. 그 결과 반응시간은 약 6시간으로 운전하였을 때 $\text{NO}_2\text{-N}/\text{NO}_x\text{-N}$ 의 비는 약 0.8에 이르러 효과적인 아질산 축적을 이룰 수 있었으며 온도저하로 인해 질산화의 저해가 일어나기 이전의 질산화 효율은 약 80%에 달하여 단축질소제거공정을 위한 아질산 축적이 가능함을 보여주었다. 이와 같이 SBR을 통해 질산화하여 재순환한 침출수의 $\text{NO}_x\text{-N}$ 는 모형 매립지 내에서 모두 제거할 수 있었으며, 침출수에 비교적 높은 농도의 황산염이 존재하여 황산염환원 및 황을 이용한 독립영양탈질반응이 매우 중요한 반응기전이 되는 것으로 나타났다. 따라서 침출수 재순환 공법과 단축질소제거공법을 병합한 조기안정화 기술은 매립지의 조기안정화와 침출수의 질소제거에 효과적인 공법으로 사용할 수 있을 것이라 사료된다.

주제어 : 단축질소제거, 매립지 조기안정화, 침출수 재순환, 황산염 환원

1. 서론

인간 활동의 양과 질적 가치의 추구가 높아짐에 따라 현대 산업사회는 대량생산 및 대량소비화 되어 가고 있다. 그 결과 폐기물 발생량이 급격히 증가하고 있으며, 성상도 다양해지고 있다. 매립은 폐기물의 처리단가가 저렴하고 특별한 처

리기술을 필요로 하지 않고 일시에 대량처분이 가능한 장점이 있으나, 매립부지의 선정과 폐기물분해 과정에서 발생하는 침출수와 가스 등이 문제점으로 지적되고 있다. 국내에서는 2000년 이후 쓰레기종량제 실시 및 재활용정책에 힘입어 매립처리율이 42%로 줄어드는 한편 재활용률이 44%로 증가하는 등 바람직한 폐기물처리구조로 변화되고 있으나 아직까지도 매립처리에 대한 의존도가 높은 실정이다.¹⁾ 한편 매립지에서 발생하는 침출수의 수질은 폐기물의 조성, 매립방법, 매립후 경과기간, 기후 등 여러 가지 요소에 따라 매

[†] Corresponding author
E-mail: wkbae@hanyang.ac.kr
Tel: 031-400-5148

Fax: 031-417-8139

우 다르나 대체적으로 유기물질, 무기물질 및 질소화합물의 농도는 높은 반면 인화합물이나 중금속의 농도는 상대적으로 낮아 매립지에서 발생하는 침출수의 주요 오염물질은 유기물질과 질소화합물이라 할 수 있다.²⁻⁴⁾ 또한 이러한 침출수는 주변 토양과 지하수, 그리고 인근 하천의 오염원으로 작용할 뿐만 아니라 고령의 매립지에서 발생한 침출수는 암모니아 농도가 높아 수생태계에 독성을 줄 수 있고, 부영양화 등으로 어패류의 폐사를 초래할 가능성이 높다.⁵⁾

기존의 매립지는 단순 저장(storage)과 차단(containment)으로 관리되어 왔으나, 최근에는 매립지에 생물반응기 개념을 도입하여 매립지의 안정화기간 단축, 환경부하의 저감, 그리고 매립부지 활용 등을 위한 보다 적극적인 매립지 관리 기술에 대한 연구가 진행되고 있다. 이러한 매립지는 주변환경으로의 침출수 이동을 최소화하고 매립가스의 발생속도 조건을 조절하는 것이 중요하며, 가장 효과적이고 간단한 방법은 침출수 재순환이라 할 수 있다.⁶⁻⁸⁾ 그러나 우리나라의 경우 현행 국내 폐기물 관련법상 침출수 재순환이 금지되어 있어 재순환 관련 연구는 거의 수행된 바 없으며, 최근에서야 유기성 폐기물의 직매립과 더불어 침출수 재순환에 대한 관심이 증가하고 있는 실정이다. 한편 침출수 재순환은 유기물질의 분해를 가속화하여 매립지의 안정화기간을 단축시키는 경제적인 방법인 반면 암모니아성 질소가 고농도로 축적되는 문제점이 있다. 이에 침출수에 함유된 암모니아성 질소를 생물학적으로 처리하기 위한 연구가 수행되었으나, 침출수의 C/N비가 낮은 경우 원활한 탈질을 위해 외부탄소원이 필요한 실정이다.^{5,9-15)} 따라서 본 연구에서는 매립지의 조기안정화를 위한 침출수 재순환 공법과 생물학적 질소제거 시 상대적으로 산소요구량(질산화 대비 25%)과 탄소요구량(질산성 질소 대비 40%)의 절감이 가능한 단축질소제거공법(shortcut biological nitrogen removal: SBNR)¹⁶⁻²⁰⁾을 병합하여 침출수의 암모니아성 질소를 아질산으로 부분산화 시킨 후, 매립지내로 재순환하여 탈질을 유도하는 새로운 개념의 조기 안정화 방안을 연구하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1. 실험장치

수도권 매립지내 ‘침출수 재순환 및 단축질소제거공정을 병합한 조기안정화 연구’를 수행하기 위해 Fig. 1과 같이 pilot 규모의 반응기를 설계·운전하였다.

2.1.1. 모형 매립조

매립폐기물의 혐기분해와 탈질반응이 일어나는 매립조는 7×7×6 m의 콘크리트 구조물이며 폐기물의 높이는 약 4 m에 달하며, 매립폐기물은 수도권 매립지 제1공구 C블럭의 생활폐기물로 총폐기물의 부피는 196 m³이었다. 매립지에서 발생하는 침출수 집수조는 1.2×1.2×4 m의 콘크리트 구조물이며, 침출수의 누출과 지하수 오염을 차단하기 위해 내벽과 바닥에 차수막 시트를 설치하였다. 매립지 바닥과 폐기물 사이에는 자갈과 부직포를 설치한 후 폐기물을 충전하였으며, 폐기물 상부는 부직포를 덮고 자갈 사이에 재순환되는 침출수가 매립지에 균등하게 살포될 수 있도록 하기 위한 분배관(spray pipe)을 설치하였다. 약 1.3 m의 높이로 복토를 하였으며 벽면에 의해 강우가 과도하게 유입되어 침출수가 희석되는 것을 방지하기 위해 우수배제 시설을 설치하였다.

2.1.2. 침출수 처리시설

단축질소제거 공정을 위한 침출수 처리시설은 운전이 비교적 쉬우며 소요 부지 면적이 작고 오염물질의 부하변동에 비교적 잘 적응하는 SBR을 선택하여 단축질소제거 공정을 적용하고자 하였다. 매립지 집수조의 침출수는 유량조정조를 거쳐 SBR에 유입되며 SBR에서 반응이 끝난 침출수는 재순환 저류조를 거쳐 다시 매립지로 주입된다. 유량조정조와 재순환 저류조는 유효 용량 0.288 m³로 동일하게 구성하였다. 유량 조정조는 집수조의 하부에서 수증펌프에 의해 침출수가 유입되며 유입량은 수위센서에 의해 조절이 가능하도록 하였다. 재순환 저류조는 SBR의 처리수가 유입되며 재

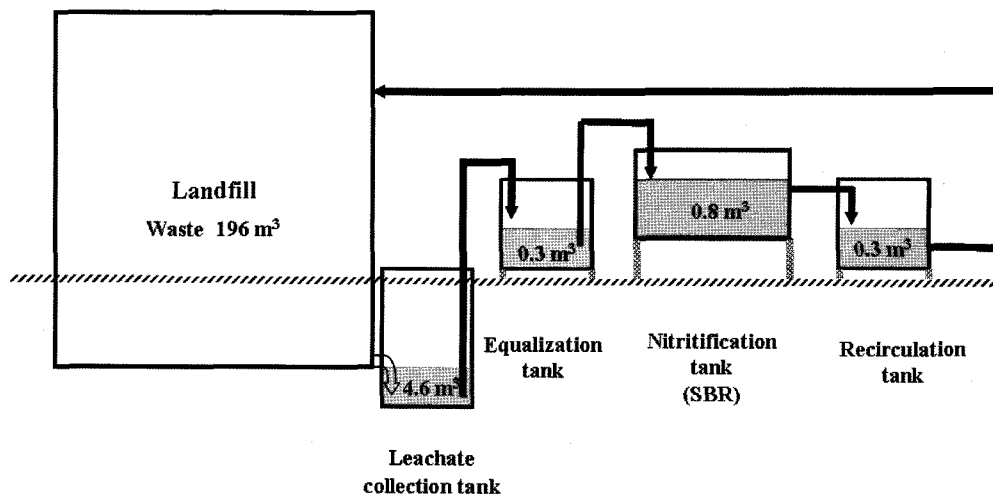


Fig. 1. Schematic and photograph of pilot plant.

순환 펌프는 타이머에 의해 작동된다. 재순환량의 설정은 작동 타이머와 수위센서에 의해 조절이 가능하도록 하였다. SBR은 1.2×0.9×0.9 m이며 배출 수위를 조절할 수 있도록 구성하여 침출수의 유기물 및 암모니아의 농도에 따라 용량을 달리 조절할 수 있도록 설계되었다. SBR의 총 유효 용량은 배출지점이 가장 높을 경우 약 831.6 L이며 최대 처리량은 약 97.2 L/cycle이 된다. 중간지점에서 배출할 경우에 최대 처리량은 약 280.8 L/cycle이며, 하부지점에서 배출할 경우 약 529.2 L/cycle이 최대 처리량이 된다. 또한 반응기 내부에 T자 형태의 파이프를 제작, 설치하여 배출시 미생물의 유실을 방지하고자 하였다.

2.2. 실험 방법

2.2.1. 침출수 원수조제 및 미생물 식종

본 연구는 매립연령이 5~10년 정도 되는 사용종료매립지의 침출수를 대상으로 하고자 하였으며, 이를 위해 매립연령이 5~10년 사이, soluble chemical oxygen demand(SCOD_{Cr})와 NH₄⁺-N 농도가 각각 약 156 mg/L, 200 mg/L로 조사된 Y 사용종료매립지 침출수를 참고하였다. 그러나 본 연구에 이용된 모형매립조 침출수의 SCOD_{Cr}과 NH₄⁺-N 농도는 각각 약 255 mg/L, 56 mg/L 정도로 NH₄⁺-N 농도가 참고 매립지보다 낮게 나타나 질소원의 추가가 필요하였다. 이에 SCOD_{Cr}와 NH₄⁺-N 농도가 각각 약 1,964 mg/L, 1,754 mg/L인 수도권 매립지 침출수를 tap water로 약 10배 정도 희석하여 참고 매립지 침출수와 유사한 농도로 갖도록 하였다. 이렇게 희석한 침출수는 모형매립지를 비롯한 각 반응기에 주입·혼합하여 초기 침출수로 하였다. SBR의 식종에는 수도권 매립지 침출수 처리시설의 질산화조 슬러지(혼합액 부유고형물(mixed liquor suspended solids: MLSS) 농도=18,580 mg/L)가 사용되었다. 식종 후 SBR의 MLSS 농도는 약 6,100 mg/L였으며 혼합액 휘발성 부유고형물(mixed liquor volatile suspended solids: MLVSS) 농도는 3,640 mg/L로 측정되었다. 원수 조제 후 각 반응기의 침출수 특성을 측정된 결과 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Initial concentration of leachate fed to pilot plant

Parameter	Leachate collection tank	Equalization tank	SBR	Leachate recirculation tank
pH	7.5	8.1	8.0	8.0
SCOD _{Cr} (mg/L)	325.0	235.0	385.0	198.0
BOD ₅ (mg/L)	19.0	13.0	12.0	13.5
NH ₄ ⁺ -N(mg/L)	158.0	188.0	126.0	172.0
Cl ⁻ (mg/L)	858.9	460.1	1289.5	404.7
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	150.6	97.2	158.1	119.9
Alkalinity(mg/L)	1415	910	880	770

2.2.2. Pilot plant 운전조건

재순환율과 빈도는 매립폐기물의 조성, 압밀도, 수분 함유량, 매립고, 기후 상태 등에 따라 다르게 적용하는 것이 바람직하나 본 연구에서는 침출수 재순환 양과 빈도는 기존 문헌의 연구결과를 바탕으로 산정하여 운전하였다. 강²¹⁾은 매립지 안정화에 대한 최적 재순환율의 영향에 관한 연구에서 평균 강우량 중 20%를 매립지에 유입되는 양이라 가정하였을 때⁴⁾ 재순환 양은 주당 우수 유입량의 5배로 하였을 때 가장 효과적이었다고 하였다. 또한 침출수 재순환 양과 빈도를 정기적으로 변화시킨 결과 빈도를 증가시킬수록 매립폐기물의 안정화가 가속된다고 하였으며 주당 4회가 최적 재순환 빈도라는 연구도 있었다.²²⁾ 따라서 본 연구에서는 매립면적에 따른 년 평균 강우량을 재순환 양으로 하였으며, 재순환 빈도는 주당 3회로 하였다. 그러나 침출수 재순환 양과 빈도는 곧 SBR의 처리량과 운전 빈도가 된다. 따라서 침출수 재순환 양과 빈도는 SBR의 운전 조건과 연계하여 설정하여야 한다. 최근 5년간의 강우량은 평균 1,393.5 mm이며 모형 매립조의 면적 49 m²을 기준으로 기존 문헌에 따라 재순환 양을 산정하면 재순환양은 약 263 L/cycle이며, 주당 재순환 빈도는 3회로 설정하였다. 그러나 운전 초기에는 SBR의 안정화를 도모하기 위해 유입되는 침출수의 농도와 및 처리효율을 분석하여 재순환양과 빈도를 다소 조절하여 재순환양을 약 221 L/cycle로 운전하였다.

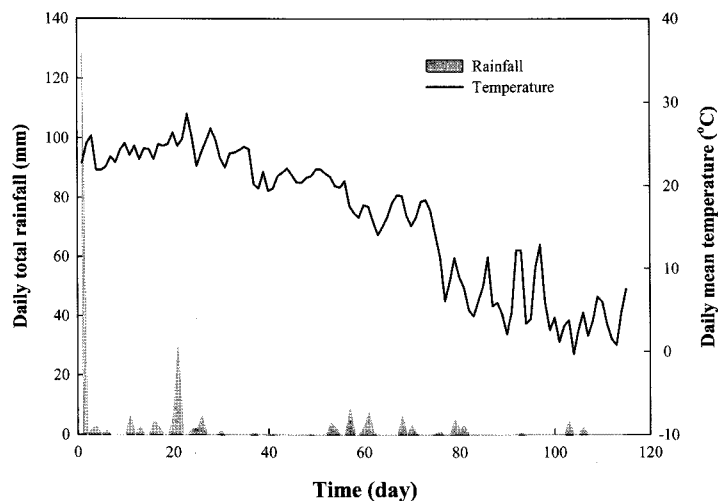


Fig. 2. Daily rainfall and temperature during operational periods.

2.2.3. 강우량 및 온도 조절

Pilot plant 운전기간동안의 강우량과 온도의 변화를 Fig. 2에 나타내었다. 실험은 여름철 우기 시에 시작되어 초겨울 건기 시까지 진행되었다. 운전초기에는 일평균 온도가 최고 31°C까지 상승하였으며, 운전 70여일 제부터 서서히 낮아지기 시작하여, 110일 후에는 10°C 이하로 낮아졌고 운전 137일 후에는 일평균 온도가 -0.3°C까지 떨어졌으며, 온도 조절을 위한 별도의 시설은 설치하지 않았다. 우시 기 최고 강우량은 127 mm를 나타내었는데, 이는 매립면적 대비 약 6.2 m³에 해당하는 양이다. 우기 시 이와 같은 과도한 강우로 인한 침출수의 발생 및 회석효과를 방지하기 위해 강우 방지 시설을 설치하였다.

2.2.4. 분석방법

매립지 내의 침출수 체류시간은 재순환 양과 빈도 그리고 강우량 등에 따라서 매립폐기물의 수분함량의 변화에 따라 달라지며 흐름은 매립폐기물의 안정화와 질소제거 효율과의 영향을 파악하는 것에 유용하다. 본 연구가 수행된 pilot plant 시설 반경 1 km 이내에 설치된 자동기상측정장비(Automatic weather station, AWS)를 이용하여 강우량과 온도 등을 측정하였으며, 수동 수위측정장치를 이용하여 집수조의 수위를 기록하여 침출수 발생량을 산정하였다. 침출수의 모든 분석 방법은 Standard method²³⁾에 준하여 실시하였으며, pH, ORP, DO, SCOD_{Cr}, NH₄⁺-N, NO₂⁻-N, NO₃⁻-N, Cl⁻, SO₄²⁻, alkalinity 등을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 모형 매립지에서의 침출수의 거동

3.1.1. 모형 매립지내의 침출수 체류시간

본 연구에서 침출수 재순환에 의한 모형 매립지내의 침출수 흐름은 과도한 강우의 영향을 받지 않고, 단지 재순환 양과 빈도에 의한 흐름의 영향만을 고려하고자 하였다. 기존의 운전과 강우 등의 영향으로 모형 매립지의 매립폐기물은 이미 포화함수율(field capacity)에 이른 것으로 가정하여, 침출수를 재순환하였을 때 매립지에서의 순수 체류시간을 측정하였다. 일정량의 침출수(약 106 L)를 재순환 분배관을 통해 모형 매립지 내부로 주입 후 일정 시간 동안 집수조에 발생된 침출수의 수위를 측정하였다. 재순환 침출수를 주입할 경우 106 L를 기준으로 약 10시간 이상으로 비교적 짧은 체류시간이 소요됨을 알 수 있었다. 이때의 시간당 침출수 발생량은 평균 10.2 L/hr로 계산되었다. 이후 약 1980 L를 주입한 경우에는 전체 주입량이 배출되는 데에는 약 263시간이 소요되었으며, 시간당 최대 발생량은 약 29.8 L/hr였으나 서서히 감소하여 최종에는 약 1.1 L/hr로 계산되었다.

3.1.2. 모형 매립지내 침출수의 체류시간 확보

Yuen et al.은 실규모의 매립지에서 침출수를 주입하였을 때 동일한 침출수량이 매립지 밖으로 배출되면 그 계획은

현장수분함량에 이르렀다고 판단할 수 있다고 하였다. 그러나 실규모의 매립지에서는 부득이하게 사구역(dead zone)이 존재하게 되며, 그러한 경우 침출수 또는 수분을 주입하여도 수로현상(channeling)으로 인해 수분이 닿을 수 없게 된다. 그러므로 수분의 체류시간은 작아지게 되는 것이다.²⁴⁾ Zeiss와 Major도 이러한 사구역 영향으로 인해 수분의 체류시간이 매우 적은 값을 가진다고 보고하였다.²⁵⁾ 따라서 모형 매립지에서 이와 같이 침출수의 체류시간이 작은 것은 모형 매립지가 이미 현장수분함량(Field capacity)에 도달하였으며 적지 않은 사구역이 존재하는 것으로 판단할 수 있다. 그러나 매립지에서 배출되는 침출수를 조절할 수 있으면 매립지 하부를 완전히 포화시킬 수 있어 사구역이 존재하지 않게 되므로 매립폐기물과 재순환 침출수의 원활한 반응을 도모한다. 따라서 침출수 재순환을 통한 매립지내의 혐기반응의 촉진과 원활한 탈질반응을 유도하고자 집수조의 수위를 침출수 배출관의 높이 이상으로 상승시켜 침출수 발생속도를 늦추고, 매립지 하부를 비포화 구역에서 포화구역으로 전환하여 보다 원활한 반응을 유도하고자 하였다. 집수조의 수위는 침출수의 발생속도와 집수조에서 유량조정조로 이송하는 양과 빈도에 영향을 받는다. 운전 40여일 이후 일정량의 재순환 양과 빈도로 운전됨에 따라 집수조의 수위는 평균 약 2.7 m로 유지할 수 있었다. 집수조의 수위 상승으로 침출수의 시간당 발생량은 운전기간 전체 평균 5.67 L/hr인 것으로 계산되었다. 따라서 집수조의 수위를 침출수 배출관의 수위보다 높게 설정하여 침출수의 발생속도를 감소시킬 수 있었으며 매립지 하부를 어느 정도 포화구역으로 유지할 수 있었다.

Fig. 3은 운전기간동안의 강우량과 재순환 양 그리고 침출수 발생량과 집수조의 수위 변화를 나타낸 것이다. 누적 침출수 발생량과 누적 침출수 재순환 양은 운전 초기 누적 침출수 재순환 양이 누적 발생량을 초과하였으며, 약 40일 이후에는 누적 침출수 발생량이 누적 재순환 양을 초과하였다. 모형 매립지는 운전기간 전 포화함수율에 이르렀다고 가정하였을 때, 이는 모형 매립지 상부에 강우배제시설을 설치하였으나 우기기간의 집중호우로 인해 모형 매립지내 강우가 다소 유입된 것으로 판단된다. 누적 침출수 발생량은 운전 115일을 기준으로 약 1,132 L를 초과하였으며 이는 모형 매립지 면적에 해당하는 강우량의 5.3%에 이르는 양이다.

3.2. SBR을 이용한 침출수의 아질산 축적

3.2.1. 포기시간에 따른 SBR 내 아질산 축적정도 평가

생물학적 단축질소제거 공정에서 아질산 축적을 일으키기 위해선 암모니아의 산화를 유지하며 아질산에서 질산으로의 산화를 저해하여야 한다. 기존 문헌의 결과를 바탕으로 유입시의 비이온화 암모니아(Free ammonia, FA)의 농도 조절과 낮은 용존산소(dissolved oxygen, DO), 그리고 SBR의 운전시간의 조절로 아질산 축적을 이루고자 하였다.

침출수 조제 주입과 미생물 주입 후 SBR의 침출수 질산화 정도를 알아보기 위해 지속적으로 침출수의 농도변화를 측정하였다. 초기 126 mg/L의 NH₄⁺-N가 3.3 mg/L로 전환되는

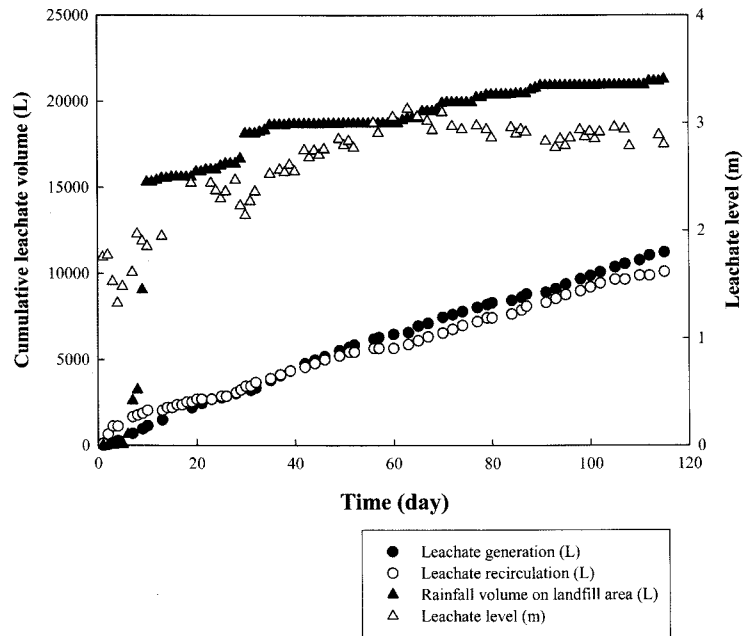


Fig. 3. Cumulative rainfall, leachate generation and recirculation volume under various leachate levels.

데 약 8일의 시간의 소요되었으며 이때의 $\text{NO}_2\text{-N}$ 의 농도는 81.3 mg/L, $\text{NO}_3\text{-N}$ 의 농도는 53.3 mg/L가 생성되었다. 운전 기간 동안의 pH는 8.1에서 7.3으로 감소하였으며, DO는 0.1 ~ 1.7 mg/L, MLSS는 약 7,000 mg/L로 유지하였다. SBR에서 질산화가 시작된 이후 SBR의 반응 시간과 유입부하를 조절 해가며 아질산 축적을 효과적으로 수행할 수 있는 운전조건 을 찾아가 하였다. SBR 운전 18일째 반응시간(포기시간)을 18시간으로 하였을 때, 질산화율은 높았으나 암모니아성 질 소가 대부분 $\text{NO}_3\text{-N}$ 로 전환되는 것을 알 수 있었다. 18시간 의 반응에서 $\text{NO}_2\text{-N}$ 의 농도는 8시간에서 최대값을 보였다. 이때의 SBR의 원수 유입비는 0.57이었으며, 초기 FA 농도 는 3.0 mg/L이었다(Fig. 4(a) 참조). SBR 반응기 내의 $\text{NO}_2\text{-N}$ 의 축적을 위해 반응시간을 8시간 이하로 하여 운전하였다. 재순환량을 고려한 유입비를 조정 한 후 반응시간을 6시간으 로 설정하여 운전하였다(Fig. 4(b) 참조). 며칠 간 반응시간 을 6시간으로 운전한 결과 SBR내의 $\text{NO}_2\text{-N}$ 는 반응초기부 터 $\text{NO}_3\text{-N}$ 보다 확연히 높은 농도로 존재하였으며 반응시간 종료 후 $\text{NO}_2\text{-N} / \text{NO}_x\text{-N}$ 비도 약 0.8에 이르렀다. 초기 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 의 농도가 100 mg/L 이하로 낮았음에도 불구하고 이 와 같이 $\text{NO}_2\text{-N}$ 의 축적이 이루어진 것은 유입수의 황산염 (SO_4^{2-}) 농도 상승이 영향을 미친 것으로 판단된다. 일반 활 성슬러지 공정에서 SO_4^{2-} 의 농도가 500 mg/L 이상일 경우 질 산화가 저해를 받을 수 있으며,²⁶⁾ SBR 운전 29일 이후 유 입수의 SO_4^{2-} 농도가 574 mg/L까지 상승해 있었다.

3.2.2. SBR 유입원수의 농도 및 운전인자의 변화

3.2.2.1. 질소와 SCOD_{Cr} 농도

SBR 운전 38일째부터 $\text{NO}_2\text{-N}$ 축적을 위한 SBR 운전 조 건을 6시간으로 하여 지속적으로 운전하였다. SBR 유입원수 에는 운전 초기 $\text{NO}_2\text{-N}$ 과 $\text{NO}_3\text{-N}$ 가 낮은 농도로 다소 존재

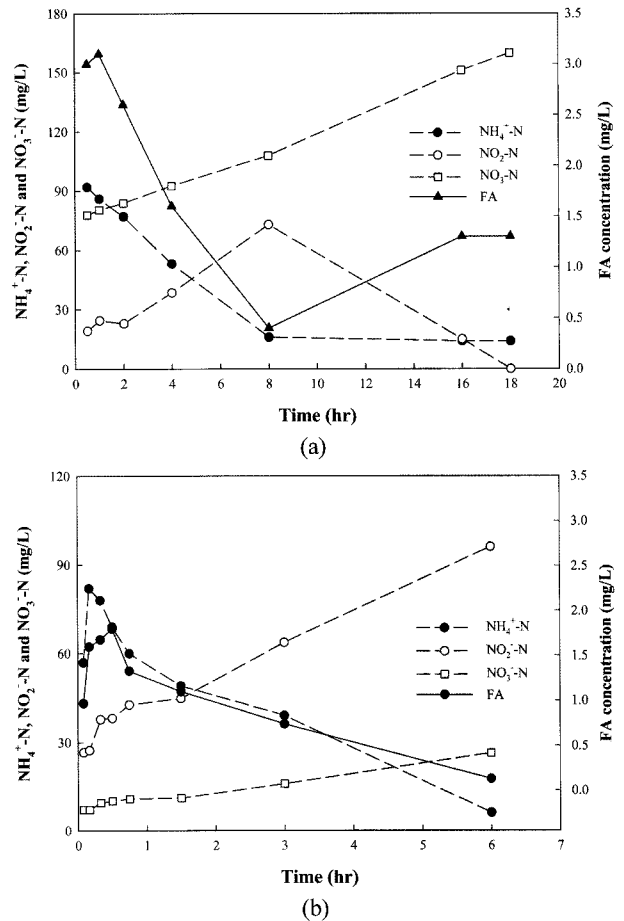


Fig. 4. Profiles of nitrogenous species and FA concentrations during aeration period (a) 18 hr and (b) 6 hr.

하였으나 운전 20일 이후에는 나타나지 않았다. SCOD_{Cr} 와 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 는 초기 급격히 상승하였으나 이후 서서히 감소하는

경향을 보였으며 운전 100일 이후에는 다소 상승하는 경향을 나타내었다. 이는 SBR 운전 38일 쯤부터 높은 질산화율로 운전되어 아질산 축적이 안정적으로 이루어진데 따른 매립지 내에서의 탈질 반응의 영향으로 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 농도가 지속적으로 감소되는 것으로 판단된다.

3.2.2.2. pH와 온도

유입원수의 온도는 초기 29.5°C의 높은 온도로 SBR의 아질산 축적에 유리한 조건이었으나, 계절의 변화에 따라 서서히 낮아져 90여일째는 10°C 이하로 떨어져 SBR의 생물학적 반응을 어렵게 하였다. pH는 초기 약 8에서 최저 6.7까지 서서히 낮아졌는데 이것은 재순환의 영향에 따라 매립 폐기물의 유기물 분해, 황산염환원 또는 황을 이용한 독립 영양탈질이 진행되는 것으로 예측할 수 있었다.

3.2.3. SBR 운전결과

3.2.3.1. 질산화 효율 및 아질산 축적

초기 100 mg/L 이상의 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 유입 농도로 운전된 SBR은 50여일까지는 80% 이상의 질산화 효율을 보였으나 74일 쯤부터 질산화율은 급격히 감소하여 94일 이후 질산화율은 10% 미만으로 질산화가 이루어지지 않는 결과를 나타내고 있다. 이때의 주변 대기 온도는 최저 약 4°C였으며, SBR의 수온은 약 10°C 이하로 저하되어 이로 인해 미생물의 활성이 저하된 때문인 것으로 판단된다.

Fig. 5는 SBR의 처리수의 $\text{NO}_2^-\text{-N}$, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 그리고 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 의 농도와 유입수의 FA 농도를 나타낸 것이다. 처리수의 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 의 농도가 다소 높았던 36일째 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 의 농도 역시 증가하기 시작하여 38일째 $\text{NO}_2^-\text{-N}$ 의 농도가 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 의 농도를 초과하였다. 이때 SBR의 FA의 유입농도는 각각 4.3, 3.2 mg/L로 아질산 산화균(nitrite oxidizer)이 저해를 받기 시작하는 농도 범위 0.1~1.0 mg/L²⁷⁾를 초과함으로써 아질산의 축적이 일어난 것으로 판단된다. 온도저하로 질산화의 저해가 일어나기 전에 80% 이상의 질산화율로 운전되었을 때 $\text{NO}_2^-\text{-N}/\text{NO}_x\text{-N}$ 의 비는 최대 0.86으로 효과적인 아질산 축적을 이룰 수 있었다.

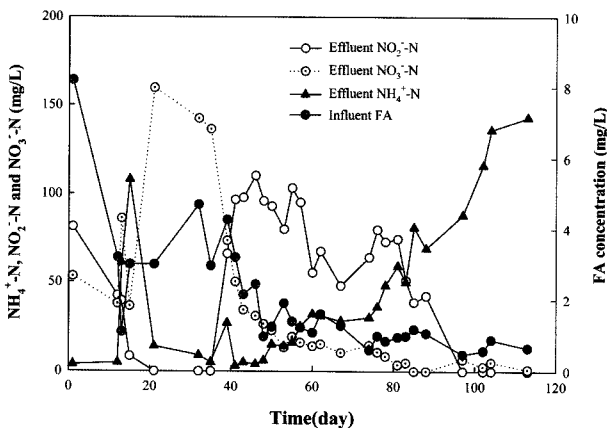
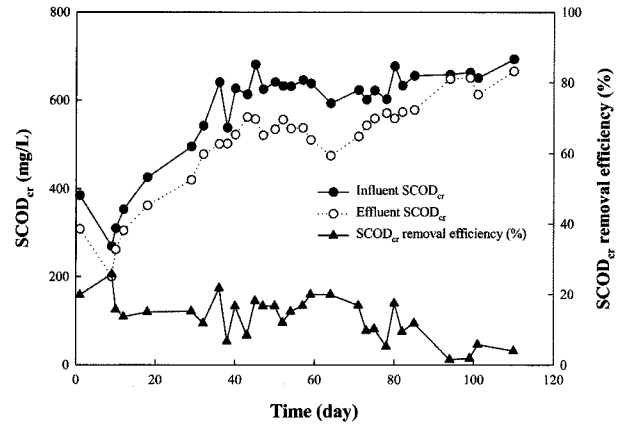
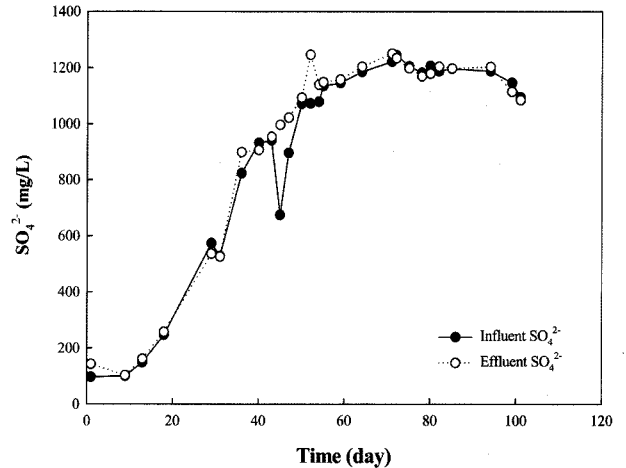


Fig. 5. $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_2^-\text{-N}$ and $\text{NO}_3^-\text{-N}$ concentration in effluent of SBR.



(a)



(b)

Fig. 6. Removal efficiencies of SCOD_{Cr} and sulfate using SBR.

3.2.3.2. 유기물과 황산염 농도

SBR에서의 SCOD_{Cr} 는 Fig. 6(a)에서와 같이 운전기간중 평균 14.9%의 제거율을 보였으며 온도가 저하된 94일 이후에는 5% 이하의 낮은 효율을 보였다. 황산염의 농도만으로 황화합물(H_2S , S^{2-} , S , $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$)의 산화 정도를 정확히 나타내기는 어려우나 SBR에서 질산화 과정을 거친 이후 황산염 농도 변화는 미미한 것으로 나타났다(Fig. 6(b) 참조).

3.3. 침출수 재순환을 통한 오염물질의 변화

3.3.1. 침출수 재순환을 통한 침출수의 질소 농도 변화

Fig. 7(a)는 모형 매립지에서 발생하는 침출수의 $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_2^-\text{-N}$, 그리고 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 를 나타낸 것이다. 모형 매립지에서 발생한 침출수의 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 는 초기 269 mg/L까지 증가하였으나 이후 서서히 감소하는 경향을 보여 64일째 134 mg/L까지 감소하였다. 그러나 64일째 이후는 감소하는 경향이 비교적 작았으며 99일 이후에는 다시 증가하는 경향을 보여 120일째는 177 mg/L까지 상승하였다. Fig. 5와 비교하였을 때에도 50여일 이후 재순환 침출수는 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 의 농도가 조금씩 증가하고, 이어서 온도 저하로 질산화가 이루어지지 않아 94일 이후엔 질산화가 10% 미만이었다. 이와 같이 매립지에서

발생하는 침출수는 60여일 재부터 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 의 농도가 증가하는 경향을 보이고 있다. 따라서 침출수를 질산화 하지 않고 재순환하는 경우 침출수의 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 의 농도의 감소를 기대하기 어렵다는 것을 알 수 있다.

3.3.2. 침출수 재순환을 통한 침출수의 황산염 농도와 알칼리도 변화

Fig. 7(b)는 모형 매립지에서 발생하는 침출수의 alkalinity (as CaCO_3)와 황산염(SO_4^{2-}) 그리고 염이온(Cl^-)의 농도를 나타낸 것이다. Alkalinity는 초기 2,850 mg/L까지 증가하였으나 이후 최저 1,590 mg/L에서 최대 2,910 mg/L의 농도로 감소와 증가를 반복하였다. Alkalinity는 CaCO_3 로 환산하면 이론적으로 질산화시 암모니아성 질소 1 mg 당 CaCO_3 7.14 mg이 감소되며, 종속영양탈질의 경우 아질산성 질소 또는 질산성 질소 1 mg 탈질시 3.57 mg의 CaCO_3 가 생성되고, 황을 이용한 독립영양탈질시에는 4.57 mg이 감소된다. 또한 매립 폐기물이 분해되어 매탄화 되어가거나 황산염환원에 의한 유기물의 분해가 이루어질 경우 alkalinity는 증가한다. 따라서 모형 매립지내에서 종속영양탈질 또는 황을 이용한 독립영

양탈질반응만 이루어진다면 발생하는 침출수는 탈질반응에 의해서 alkalinity 농도가 크게 감소하여야 하나 Fig. 13에서와 같이 alkalinity는 농도차이는 컸으나 감소와 증가를 반복하는 것으로 나타났다. 이는 매립지내에서 탈질 반응만이 아닌 혐기분해 또는 황산염환원 반응에 의해 alkalinity가 생성되는 것으로 판단할 수 있다.

3.3.3. 질산화 효율에 따른 모형 매립지내 반응 기전 추정

3.3.3.1. $\text{NO}_x\text{-N}$ 와 알칼리도의 변화 분석

Fig. 8(a)에서 SBR 처리수의 $\text{NO}_x\text{-N}$ 의 농도와 alkalinity, 그리고 모형 매립지에서 발생한 침출수의 $\text{NO}_x\text{-N}$ 의 농도와 alkalinity의 농도를 비교하였다. 그림에서와 같이 초기 높은 $\text{NO}_x\text{-N}$ 의 농도일 때는 alkalinity 농도가 증가와 감소를 반복하는 경향을 보였으나 SBR에서 질산화 효율이 낮아져 $\text{NO}_x\text{-N}$ 의 농도가 낮아진 후에는 alkalinity 농도는 증가하는 경향을 나타내었다. 따라서 모형 매립지 침출수에서 발생하는 alkalinity는 유기물의 혐기분해 및 황산염 환원 반응에 의한 영향보다는 SBR에서의 질산화와 모형 매립지에서의 탈질반응 영향이 보다 지배적인 것으로 판단된다.

3.3.3.2. $\text{NO}_x\text{-N}$ 와 황산염 농도의 변화 분석

모형 매립지에서 발생하는 침출수는 Fig. 8(b)와 같이 운전 40일 이후 평균 약 1,000 mg/L 이상의 비교적 높은 황산염 농도를 나타내었다. 염이온(Cl^-)은 운전 초기 상승하여 20일 이후 안정적으로 지속되는 반면 황산염은 40여일까지 크게 상승하였으며 이후 60여일까지 서서히 상승하였다. 이는 황산염이 매립지내의 확산에 의해 증가하는 것이 아님을 나타낸다. H_2S , S, $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ 등의 황화합물을 이용하는 독립영양탈질은 NO_3^- 를 소모하고 황산염을 생성한다. 1 mol의 NO_3^- 를 소모하고 생성되는 황산염의 양은 H_2S 가 0.844, S가 1.1이며 $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ 는 1.45 mol이다. 따라서 황을 이용한 독립영양탈질반응이 모형 매립지내에서 이루어질 경우 주입된 침출수의 황산염의 농도보다 생성되는 황산염의 농도가 높을 것을 예상할 수 있다. 초기 재순환된 침출수의 NO_3^- 의 농도가 높을 때 매립지에서 발생하는 황산염의 농도가 급격히 증가하는 것으로 보아 초기 탈질 반응은 황을 이용한 독립영양탈질이 종속영양탈질 보다 지배적이었던 것으로 판단된다. 그러나 운전 40여일 이후 NO_2^- 의 농도가 높아지자 황산염의 농도는 재순환된 농도보다 적어지는 것으로 나타났다. 이는 Fuurumai et al.²⁸⁾의 연구에서 발표된 바와 같이 NO_2^- 가 종속영양탈질 균에 의해 NO_3^- 보다 빠르게 탈질화 되기 때문인 것으로 판단된다. 그러므로 본 연구에서 운전시작 40여일 이후부터는 황을 이용한 독립영양탈질 반응보다 종속영양탈질이 지배적이었던 것으로 판단되며, 이는 문헌에서와 같이 NO_3^- 는 2,500 mg/L 이상의 고농도에서 황탈질이 저해되며, NO_2^- 는 30 mg/L 이상의 저농도에서 황탈질의 저해를 받는다는 연구결과와도 일치한다.²⁹⁾ 이러한 사실은 SCOD_C 의 감소와도 관련이 있으며, 40여일 이후 NO_2^- 의 농도가 높은 시기의 탈질은 황탈질이 아닌 유기물을 소비하는 종속

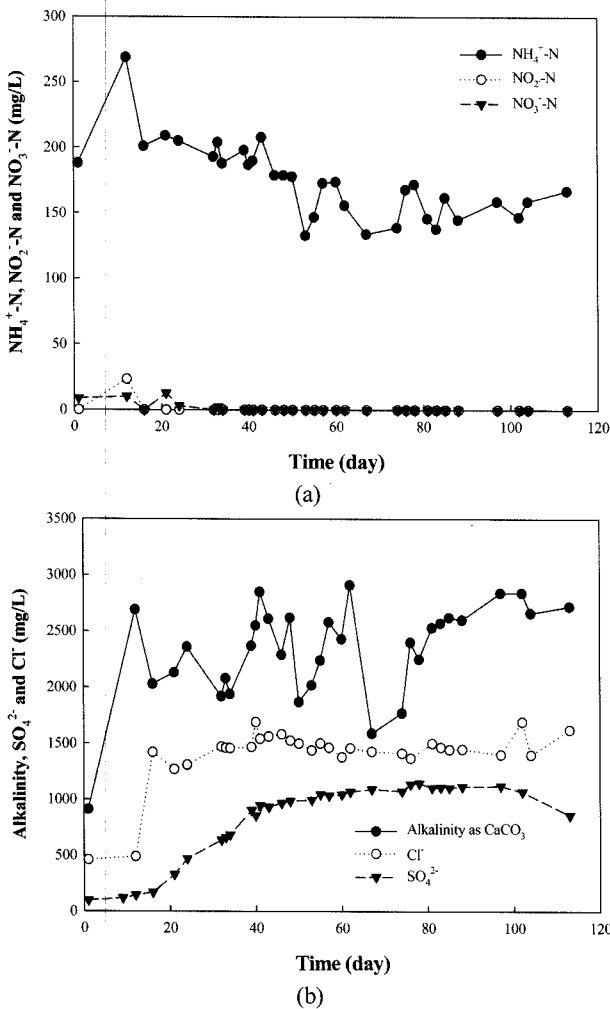


Fig. 7. Profiles of (a) nitrogenous species and (b) alkalinity, sulfate and chloride concentration in leachate.

영양균에 의한 탈질반응에 기인한 것으로 판단할 수 있다. 또한 재순환된 침출수의 NO_x-N의 농도가 낮아지며 재순환된 SO₄²⁻가 감소하는 것은 매립지내의 황산염환원 반응에 의해 황산염이 황화합물로 환원되기 때문인 것으로 판단된다. 이와 같이 황산염은 매립지내의 혐기분해 및 탈질과정에서 매우 중요한 영향 인자로 나타난다. 그러나 일반적으로 황산염이 매립지 침출수에 고농도로 존재하는 경우는 매립분해단계 초기, 또는 소각재와 같은 무기화합물의 용출능이 높은 폐기물이 매립된 경우이며, 고령의 매립지에서는 외부 첨가가 없을 경우 황산염이 고농도로 존재하는 것은 찾아보기 어렵다.

침출수 재순환을 통한 지중 탈질 공법에 있어서 침출수의 오염물질의 변환 특성으로 살펴본 결과, 침출수의 pH 및 유기물의 감소정도를 보았을 때 모형 매립지는 폐기물의 분해과정보다 탈질반응이 보다 지배적이었으며, 탈질 반응은 황을 이용한 독립영양탈질과 종속영양탈질이 모두 관찰되었고, 모형 매립지에서 발생한 침출수는 SBR을 통해 질산화 된 경우 최대 0.15 NO_x-N g/L · cycle을 모형 매립지 내에서 모두 제거할 수 있었다.

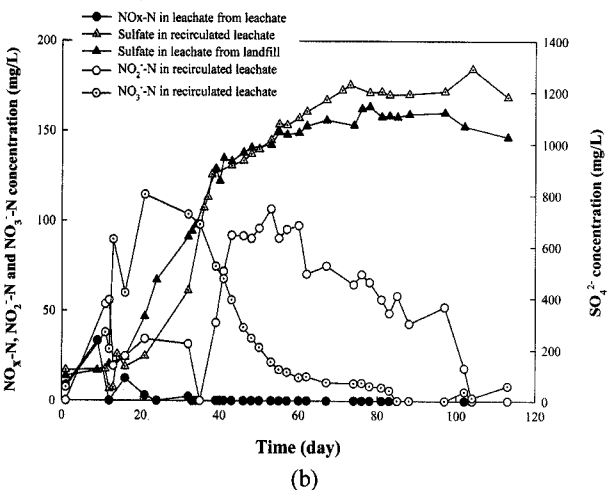
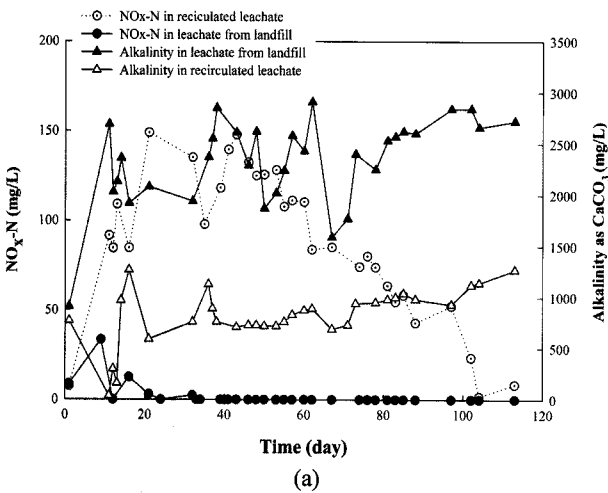


Fig. 8. Profiles of NO_x-N, (a) alkalinity and (b) sulfate concentration.

4. 결론

매립지내 폐기물의 조기안정화를 위해 매립폐기물의 혐기적 분해를 증진시키는 침출수 재순환 공법과 생물학적 질소 제거 시 상대적으로 산소요구량과 탄소요구량의 절감이 가능한 단축질소제거공법을 병합한 조기안정화 기술을 pilot 규모 반응기를 통해 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1) 매립지내의 수로현상과 사구역으로 인한 짧은 체류시간을 증가시키기 위해 집수조의 수위를 침출수 배출관의 높이 이상으로 상승시켜 매립지 하부를 비포화 구역에서 포화구역으로 전환하였으며, 침출수 발생속도를 운전기간 전체 평균 5.67 L/hr로 늦추어 침출수 재순환을 통한 매립지내의 혐기반응의 촉진과 원활한 탈질반응을 유도할 수 있었다.

2) 침출수 재순환과 단축질소제거공정의 병합을 위해 SBR을 이용하여 비이온화 암모니아(FA)의 농도 조절과 낮은 용존산소, 그리고 SBR의 운전시간의 조절로 아질산 축적을 이루고자 하였다. 반응시간을 약 6시간으로 운전하였을 때 NO₂⁻-N/NO_x-N의 비는 약 0.78에 이르렀으며 온도저하로 질산화의 저해가 일어나기 전 평균 80% 이상의 질산화율로 운전되었을 때 NO₂⁻-N/NO_x-N의 비는 최대 0.86으로 효과적인 아질산 축적을 이룰 수 있었다.

3) 모형 매립지에서 발생한 침출수는 SBR을 통해 질산화된 경우 최대 0.15 NO_x-N g/L · cycle을 모형 매립지 내에서 모두 제거할 수 있었으며, 모형 매립지에서의 탈질은 황을 이용한 독립영양탈질과 종속영양탈질이 모두 관찰되었다.

5) 모형 매립지에서는 혐기분해와 함께 황산염환원반응이 일어나는 것으로 나타났다. 따라서 본 공법을 적용할 시, 침출수에 비교적 높은 농도의 황산염이 존재하여 COD/SO₄²⁻의 비가 낮은 경우는 황산염환원 및 황을 이용한 독립영양탈질 반응이 매우 중요한 반응기전이 되는 것으로 나타났다.

이와 같이 매립지내 폐기물의 조기안정화를 위해 매립폐기물의 혐기적 분해를 증진시키는 침출수 재순환 공법과 단축질소제거공법을 병합한 조기안정화 기술은 매립지의 조기안정화와 침출수의 질소제거에 효과적인 공법으로 사용할 수 있을 것이라 사료된다.

사 사

본 연구는 한강수계관리위원회의 지원으로 수행되었습.

참고문헌

1. 환경부, 환경백서2004, 환경부, 서울(2004).
2. Carter, J. L., Curran, G., and Schafer, P. E., "A new type of anaerobic design for energy recovery and treatment of leachate wastes," in proceedings of 39th Purdue Industrial Waste Conference, Purdue University, USA,

- pp. 369~376(1984).
3. Ragle, N., Kissel, J., Ongerth, J.E., and DeWalle, F.B., "Composition and variability of leachate from recent and aged areas within a municipal landfill," *Water Environ. Res.*, **67**(2), 238~243(1995).
 4. Christensen, T. H. and Kjeldsen, P., *Basic Biochemical Processes in Landfills, Sanitary Landfilling: Process, Technology and Environmental Impact*, Academic press, pp. 29~49(1989).
 5. Dedhar, S. and Mavinic, D. S., "Ammonia removal from a landfill leachate by nitrification and denitrification," *Water Qual. Res. J. Can.*, **2**(3), 126~137(1986).
 6. Mostafa, W., "Bioreactor landfills: experimental and field results," *Waste Manage.*, **22**(1), 7~17(2002).
 7. Yuen, S. T. S., Styles, J. R., and McMahon, T. A., "An active landfill management by leachate recirculation: A review and an outline of a full-scale project," in *Proceedings of Sardinia 95, Fifth International Landfill Symposium, Italy*, pp. 403~418(1995).
 8. Pacey, J. P., Yazdani, R., Reinheart, D., Morck, R., and Augenstein, D., *The Bioreactor Landfill: An Innovation in Solid Waste Management*, SWANA, Silver Springs, Maryland, USA(1998).
 9. Pohland, F. G., "Leachate recycle as landfill management option," *J. Environ. Eng.*, **106**(6), 1057~1069(1980).
 10. Onay, T. T. and Pohland, F. G., "In-situ Nitrogen management in controlled bioreactor landfills," *Water Res.*, **32**(5), 1383~1392(1998).
 11. Pohland, F. G. and Harper, S. R., *Critical Review and Summary of Leachate and Gas Production from Landfills*, U.S.EPA/600/2-86/073, EPA, Washington D.C., USA (1985).
 12. Keenan, J. D., Steiner, R. L., and Fungaroli, A. A., "Landfill leachate treatment," *J. Water Pollut. Control Fed.*, **56**(1), 27~33(1984).
 13. Spengel, D. B. and Dzombak, D. A., "Treatment of landfill leachate with rotating biological contactors : bench-scale experiments," *J. Water Pollut. Control Fed.*, **63**(7), 971~980(1991).
 14. Robinson, H. D. and Grantham., G., "The treatment of landfill leachates in on-site aerated lagoon plants: experience in Britain and Ireland," *Water Res.*, **22**(6), 733~747(1988).
 15. Carley, B. N. and Mavinic D. S., "The effects of external carbon loading on nitrification and denitrification of a high ammonia landfill leachate," *Water Qual. Res. J. Can.*, **63**(1), 51~59(1991).
 16. Alleman, J. E. and Irvine, R. L., "Nitrification in the sequencing batch biological reactor," *J. Water Pollut. Control Fed.*, **52**(7), 2747~2754(1980).
 17. Abeling, U. and Seyfried, C. F., "Anaerobic-aerobic treatment of high strength ammonium wastewater nitrogen removal via nitrite," *Water Sci. Technol.*, **26**(5-6), 1007~1015(1992).
 18. Turk, O. and Mavinic, D.S. "Preliminary assessment of a shortcut in nitrogen removal from wastewater," *Can. J. Civ. Engrg.*, Ottawa, **13**(3), 600~605(1986).
 19. Turk, O. and Mavinic. D. S., "Selective inhibition: A novel concept for removing nitrogen from highly nitrogenous wastes," *Environ. Technol. Lett.*, **8**(3), 419~426(1987).
 20. Chung, J., Bae, W., Lee, Y. W., and Rittmann, B. E., "Shortcut biological nitrogen removal in hybrid biofilm/suspended growth reactors," *Process Biochemistry*, **42**(3), 320~328(2007).
 21. 강석태, 매립지 안정화에 대한 침출수 재순환율의 영향, 석사학위논문, KAIST(1996).
 22. San, I. and Onay, T. T., "Impact of various leachate recirculation regimes on municipal solid waste degradation," *J. Hazard. Mater.*, **87**(1-3), 259~271(2001).
 23. APHA, *Standard Methods for the Examination of Water and Waste Water*. 19th ed., American Public Health Association, USA(1995).
 24. Yuen, S. T. S., Wang, Q. J., Styles, J. R., and McMahon, T. A., "Water balance comparison between a dry and a wet landfill-a full scale experiment," *J. Hydrol.*, **251**(1-2), 29~48(2001).
 25. Zeiss, C. and Major, W., "Moisture flow through municipal solid waste: pattern and characteristics," *J. Environ. Syst.*, **22**(2), 211~231(1993).
 26. Metcalf and Eddy, Inc., *Wastewater Engineering - Treatment, Disposal*, McGraw-Hill, NY, USA(1991).
 27. Anthonisen, A. C., Loehr, R. C., Prakasam. T. B. S., and Srinath, E. G., "Inhibition of nitrification by ammonia and nitrous acid," *J. Water Pollut. Control Fed.*, **48**(5), 835~852(1976).
 28. Frumai, H., Tagui, H., and Fujita K., "Effects of pH and alkalinity on sulfur-denitrification in a biological granular filter," *Water Sci. Technol.*, **34**(1-2), 355~362 (1996).
 29. 김석구, 오염 건설부지의 환경친화적 복원기술 개발, 한국건설기술연구원(2000).