



음식물류폐기물과 축산분뇨 혼합폐수의 이상혐기소화에 따른 소화액의 위생성 연구

정두영, 정명희, 김영준[†]

가톨릭대학교 생명환경공학부 환경공학전공
(2009년 12월 3일 접수, 2009년 12월 28일 채택)

Two-Phase Anaerobic Digestion of Food and Livestock Wastewater and Hygienic Aspects of the Digested Water

Jeong, Doo-Young, Myung-Hee Chung, Young-Jun Kim[†]

School of Biotechnology and Environmental Engineering, The Catholic University, Bucheon, Korea

ABSTRACT

Temperature phase anaerobic co-digestion process was conducted with the one to one mixture of food wastewater with livestock wastewater, and the presence and the dynamics of various pathogenic microorganisms was analyzed. The mixture contained various enteric and pathogenic bacteria, such as *Escherichia coli*, *Enterobacteriaceae*, *Coliform* bacteria, *Staphylococcus aureus*, *Salmonella*, *Shigella*, *Listeria*, and Yeast. Anaerobic digestion has become stabilized around 21 days after the reaction started, showing about 80% to 90% of remarkable reduction rates of microorganisms until this period in acidogenic reactor (AR) and methanogenic reactor (MR), respectively. After stabilization, the average reduction rate of organic matter was recorded as around 60% in MR. Most microorganisms in the effluent were not detected at around the last period of the reaction, except *Listeria* and *S. aureus*, which showed the growth even at the last day of the reaction.

Keywords : Food Wastewater, Livestock Wastewater, TPAD, Pathogens, Hygiene

초 록

음식물류폐수와 축산분뇨를 1:1로 혼합한 폐수를 대상으로 고온/중온의 이상혐기소화공정을 실시하였고 혼합폐수내 병원성미생물의 존재 및 소화과정중 미생물상의 변화를 살펴보았다. 혼합원액내 미생물은 대장균, 분변성 장내세균, 대장균군 등의 장내세균총을 비롯하여 식중독을 일으키는 포도상구균과 살모넬라, 이

[†] Corresponding author : Yjunkim@catholic.ac.kr

질의 원인균인 쉬겔라, 유가공제품내 대표적 병원성세균인 리스테리아 및 효모 등이 검출되었다. 혐기소화의 안정화시기는 반응후 21일이 지나서부터 시작하였으며, 이 시기를 전후하여 산 발효조와 메탄발효조에서 각각 80% 및 90% 내외의 가파른 감소율을 보이며 대부분의 미생물이 감소되었다. 안정화이후 유기물의 평균분해율은 메탄발효조에서 60% 내외를 기록하였다. 메탄 발효조를 거친 소화액내 미생물개체수는 반응종료 시점에서 대부분 불검출 되었으나, 리스테리아와 포도상구균의 경우, 비교적 완만한 감소세를 보이며 반응최종일까지 검출이 되고 있음을 확인하였다.

핵심용어 : 음식물류폐수, 축산분뇨, 이상혐기소화, 병원균, 위생성

1. 서론

음식물류폐기물 및 축산분뇨 등의 유기성폐기물은 자원순환이 가능한 대표적인 물질임에도 불구하고 육상매립이 금지된 이후, 해양배출 등의 방법으로 해양에 무분별하게 투기되어 오면서 주요 해양오염물질로 인식되어 왔다¹⁾. 그러나, 국제적인 환경규제에 따라 2012년 이후 유기성폐기물에 대한 해상배출이 금지됨에 따라, 이에 대한 적절한 육상처리방법을 강구해야 하는 시급한 상황에 처해있는 실정이다. 한편, 지구온난화와 각종 지구환경재난은 지구촌에 거주하는 모든 인류의 삶에 커다란 위협으로 다가오고 있으며, 세계 각국은 이를 타개하기 위한 일환으로 화석연료에 의한 온실가스의 방출을 감축하는 방법을 강구하는 동시에 이를 대체할 녹색에너지의 개발에 박차를 가하고 있는 추세다. 유기성폐기물의 적정처리는 이러한 국제적 압력에 능동적으로 대처할 수 있을 뿐만 아니라 그 자체가 녹색에너지로서의 전환이 가능한 유용한 자원으로써 이에 대한 연구 개발이 매우 시급한 실정이라 할 것이다.

음식물류폐기물과 축산분뇨와 같은 유기성폐기물은 혐기소화과정으로 알려진 일련의 미생물학적 분해과정을 거치며 일부가 메탄으로 전환되는데, 이는 곧 바로 다양한 에너지원으로 활용됨으로써 화석연료를 대체할 훌륭한 바이오에너지가 되고 있다²⁾. 혐기소화과정을 거친 유기물들은 최종적으로 고농도의 암모니아를 함유한 소화액으로 잔류하게 되며 본 소화액은 이후 적절한 방법을 통하여 반드시 처리해야 한다. 대부분의 연구에서는 발생

된 혐기소화액을 처리하는데 초점이 맞춰져 있으며, 기존의 생물학적 처리방법을 따를 경우, 외부 탄소원의 주입으로 인한 고가의 처리비용이 발생하게 되어 결국 현실성 없는 비경제적 대안이라 할 것이다.

유기성폐기물의 혐기소화후 발생된 소화액은 미생물의 발효작용에 의해 식물의 생장에 필수적인 각종 유기산을 함유하고 있음은 물론 악취유발물질인 저급지방산이 분해되어 양질의 비료로서 활용될 수 있는 유용한 산물이라 할 수 있다. 한편, 혐기소화액을 유용한 액비로 토양에 환원하기 전에 토양의 오염을 방지하기 위하여 소화액내 유해물질 및 병원성미생물의 존재여부를 가리기 위한 소화액의 안정성과 위생성을 조사할 필요성이 있다 하겠다.

소화슬러지의 안정성 및 위생성은 적용되는 혐기소화방법과 과정에 따라 큰 차이를 보이고 있는 것으로 나타나고 있다. 특히 소화슬러지의 위생성에 큰 영향을 미치는 요인으로는 온도와 pH를 들 수 있다. 소화과정의 적절한 온도와 pH, 시간 등은 최종 슬러지로부터 인간과 가축의 안전을 도모하며 주변환경의 오염을 차단시킬 수 있는 주요 요인이 되고 있으며, 이에 따라 온도 저항성이 강한 살모넬라나 포자를 형성하는 병원성세균을 포함하여 많은 종류의 장내세균들에 대한 치사온도의 범위가 결정되어 이에 따른 슬러지내 병원성세균 문제를 해결할 수 있는 효과적인 방안이 제시되고 있다^{3, 4)}. 최근의 혐기소화방법은 주로 50℃를 넘는 고온에서 운전되고 있으며, 이중 고온과 중온을 연계한 이상 혐기소화공정 (TPAD)이 소화슬러지의

안정화 및 위생성에 매우 효과적인 방법으로 잘 알려져 있다^{5, 6)}.

본 연구에서는 음식물류폐기물과 축산분뇨를 혼합한 혼합폐수를 대상으로 고온과 중온의 이상 혐기소화공정을 실시하였고, 공정과정에서 발생된 소화액에 대하여 병원성균의 동태를 살펴봄으로써 처리공정이 소화액에 미치는 환경보건학적 영향을 조사하였다.

2. 재료 및 방법

2.1 시료의 채취 및 보관

본 실험에 사용된 축산폐수는 P시의 개인양돈농장에서 채취하였고, 음식물폐수는 B시 종합폐기물처리장에서 이물질 선별과 혼합과정을 거친 탈리액을 사용하였다. 채취한 폐수는 각각 2mm sieve에 체거름 한 후, 실험 전까지 4℃ 냉장보관 하였으며, 실험직전 두 폐수를 혼합 교반하여 사용하였다.

2.2 환경요인 분석방법

BOD₅, COD_{cr}, SS, TN, PO₄-P, ammonia, C/N 비, pH 등을 측정하였다. BOD₅ 및 SS는 수질오염공정시험방법⁸⁾을 이용하였고, COD_{cr}, TN, PO₄-P, ammonia는 Spectrophotometer (HACH DR4000U)를 이용하여, HACH사에서 제조된 vials을 이용하였다. 제공된 vials 중 COD_{cr}은 Reactor digestion method(Closed Reflux, Titrimetric method), TN은 Persulfate digestion method, PO₄-P는 PhosVer3 method, ammonia는 Salicylate method에 준한다. DO는 YSI (Model-58)을 이용하여 격막전극법으로 분석하였다. TS와 TVS는 폐기물 공정시험방법에 준하여 분석하였다⁷⁾.

2.3 혐기소화액의 미생물 분석

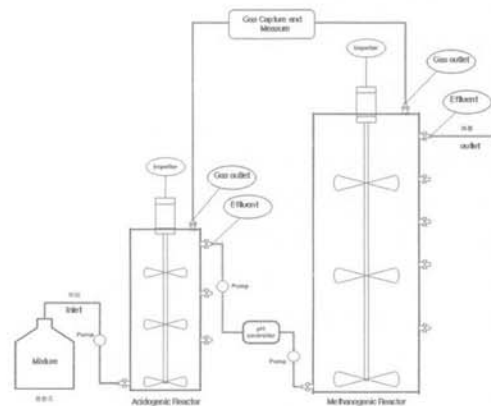
총 균수(Total Colony)는 종속영양 총세균수를 계수하였으며 각 시료를 적당량 희석한 다음, NA(Nutrient Agar)배지에 도말한 후 37℃에서 3일간 배양하여 형성된 집락을 계수하였다. 병원성균으로 식중독의 원인균인 황색포도상구균(*Staphylococcus aureus*)은 페트리펠름배지

유기물자원화, 제17권, 제4호, 2009

(Petrifilm, 3M Co., USA)를 이용하여 배양한 후 계수하였다. 대장균(*Escherichia coli*), 대장균군(Coliform), 장내세균(*Enterobacteriaceae*) 등의 분변오염 지표세균과 효모(Yeast) 등은 각 시료를 적당량 희석 후, 페트리펠름배지(Petrifilm, 3M Co., USA)에 1 mL을 접종하여 35℃에서 24시간 ~ 48시간 배양한 후, 제조사의 매뉴얼에 따라 계수하였다. 식중독의 원인균인 *Salmonella*와 세균성이질을 일으키는 *Shigella*는 Difco SS agar 배지를 사용하였으며, *Listeria*는 Difco PALCAM 배지를 이용하였다.

2.4 TPAD 이상혐기소화 반응

본 이상 혐기소화공정은 산 발효조(AR ; Acidogenic Reactor)와 메탄 발효조(MR ; Methanogenic Reactor)로 구성하였으며 산발효조는 3L 반응조에 working volume은 2L, HRT는 4 day로 운전하였고, 고온성 혐기소화를 위한 배양 온도는 55℃로 반응조에 맞게 제작된 waterbath를 이용하였다. 메탄발효조는 12L 반응조로 working volume은 6L로 하였고, 메탄생성균의 충분한 성장을 위하여 HRT는 12 day로 하였다. 운전온도는 반응조에 맞게 제작한 실리콘 튜브 열선을 반응조에 감싼 후 37±1℃에서 운전하였다 (Fig. 1). 시료의 주입은 냉장보관중인 혼합폐수 원액을 일일 500ml를 취하여 원액펌프를 이용하여 연속적으로 주입하였으며 매일 산 발효조



(Fig. 1) A diagram of TPAD process.

와 메탄 발효조로부터 일정량의 유출수를 취하여 분석하였다.

각 반응조는 모두 원활한 혼합과 미생물생장의 촉진을 위하여 impeller를 설치하여 산발효조, 120rpm, 메탄발효조, 70rpm으로 설정하여 혼합하여 주었다. 메탄발효조의 pH를 중성으로 유지하기 위하여 산생성조와 메탄생성조 사이에 pH controller를 설치하였으며 1M KOH를 주입하여 pH를 pH7.5±2로 맞추어 준 후 메탄발효조에 공급하였다. 각 반응조의 운전조건은 (Table 1)과 같다.

3. 결과 및 고찰

3.1 이상 혐기소화조의 이화학적 성상변화

본 실험에서 사용된 원료는 음식물류폐수와 축산분뇨를 1:1의 비율로 혼합한 것으로 혼합원수의 이화학적 성상을 (Table 2)에 나타내었다. 혼합원수의 pH는 평균 pH 5.84를 나타내었으며, 산 발효조의 경우 평균 pH 5.65의 값으로 실험기간 내내 pH 5.5-6.0 범위로 유지되었고, 메탄 발효조는

평균 pH 7.52로 pH 7.5±2 범위를 유지하였다.

본 소화공정중 유기물 분해도를 측정하기 위하여 COD_{cr}, TS, TVS 등의 지표를 분석하였다. COD_{cr}의 경우, 유입초기에는 분해도에 변화가 없다가 반응후 9일을 경과하면서 감소율이 변화하기 시작했는데 산 발효조보다 메탄 발효조에서의 감소율이 매우 가파르게 상승하였으며 이 같은 상승세는 21일까지 유지되다가 이후 일정한 분해율을 보이면서 안정화시기로 접어드는 것을 관찰할 수 있었다 (Fig. 2). 안정화시기의 평균분해율(감소율)을 보면 산 발효조가 15%내외, 메탄발효조는 60%내외로 유지되었다. 산 발효조내의 부진한 감소율은 반응조의 짧은 HRT와 함께 유기물의 가수분해단계가 제한요인으로 작용한 것으로 추론된다. 총 고형물(TS)와 휘발성고형물(TVS)의 경우에도 COD_{cr}와 유사한 형태를 나타냈는데 TS의 경우, 양 발효조에서 반응 직후부터 꾸준한 감소율을 나타내다가 21일 이후에는 다소 안정적인 수치를 나타내었다 (date not shown).

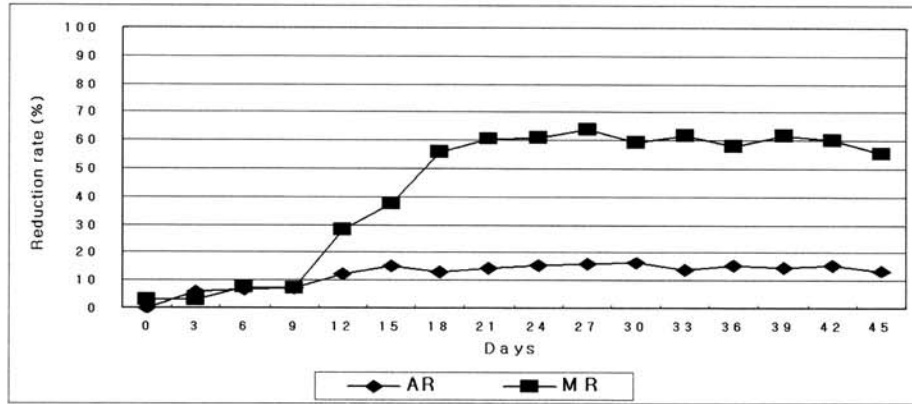
(Table 1) Performance Conditions of TPAD Process

	Acidogenic Reactor (AR)	Methanogenic Reactor (MR)
Reactor volume (L)	3	12
Working volume (L)	2	6
Temperature (°C)	55	37±1
HRT (day)	4	12
pH	5.5 - 6.0	7.5±2
Mixing (rpm)	120	70

(Table 2) Physicochemical Characteristics of the Raw Material (One to One Mixture of Food Wastewater with Livestock Wastewater)*

	BOD ₅ (mg/L)	COD _{cr} (mg/L)	SS (mg/L)	MLSS (mg/L)	TN (mg/L)	PO ₄ -P (mg/L)	ammonia (mg/L)	COD/TN ratio	pH
1 to 1 mixture	53,720	126,760	52,775	19,100	5,363	2,330	1,715	23.6	5.7
Livestock Wastewater	33,675	78,100	50,833	21,300	7,083	2,983	3,430	11.0	7.1
Food Wastewater	73,450	164,400	54,750	17,200	3,480	1,760	498	47.2	4.0

* Data was quoted from Jeong et al.⁸⁾



[Fig.2] Reduction rate of CODcr on TPAD process.

3.2 이상혐기소화공정내 미생물학적 동태

3.2.1 혼합폐수내 미생물 분포

음식물류폐수 및 축산폐수를 1:1로 혼합한 혼합원액내 병원성 미생물의 존재여부 및 개체수를 조사하였다. 조사대상 균주는 대표적인 장내세균인 대장균 (*Escherichia coli*)을 비롯하여 분변성 장내세균 (*Enterobacteriaceae*), 대장균군 (*Coliform bacteria*), 식중독을 일으키는 포도상구균 (*Staphylococcus aureus*)과 살모넬라 (*Salmonella*), 이질의 원인균인 쉬겔라 (*Shigella*), 유가공제품내 대표적 병원성세균인 리스테리아 (*Listeria*), 그리고 효모 (Yeast) 등이다. 조사된 병원성미생물은 혼합폐수에서 모두 발견되었으며 가장 많이 존재하는 세균은 *S. aureus*로 산 발효조 투입직전 (Before AR) 1mL 당 9.10×10^5 cfu로 나타났고 가장 적은 세균은

*Listeria*로 1mL 당 5.85×10^3 cfu로 조사되었다 [Table 3]. 반응초기 산 발효조를 거치면서 메탄 발효조로 (After AR, Before MR) 유입되기전 모든 미생물의 개체수가 감소하고 있음을 알 수 있었다. 정 등에 의하면 대부분의 병원성미생물은 축산 폐수에서 발견되고 있는 것으로 조사되었으나 *S. aureus*의 경우엔 음식물류폐수에서 더 많은 개체수가 발견되고 있는 것으로 보고하고 있다⁸⁾. 이는 음식물류폐수 원액의 pH가 4.0 내외의 낮은 pH값을 나타내므로 산성에 강한 몇몇 미생물을 제외하고는 대부분의 병원성미생물이 산성에 매우 취약하다는 것을 보여주는 결과라 할 것이다.

3.2.2 반응시간별 미생물개체수의 변화
고온/중온 이상 혐기소화공정을 통한 병원성균의 성장 및 사멸특성을 살펴보기 위하여 반응초기부터 말기까지 3일 간격으로 산 발효조와 메탄 발효

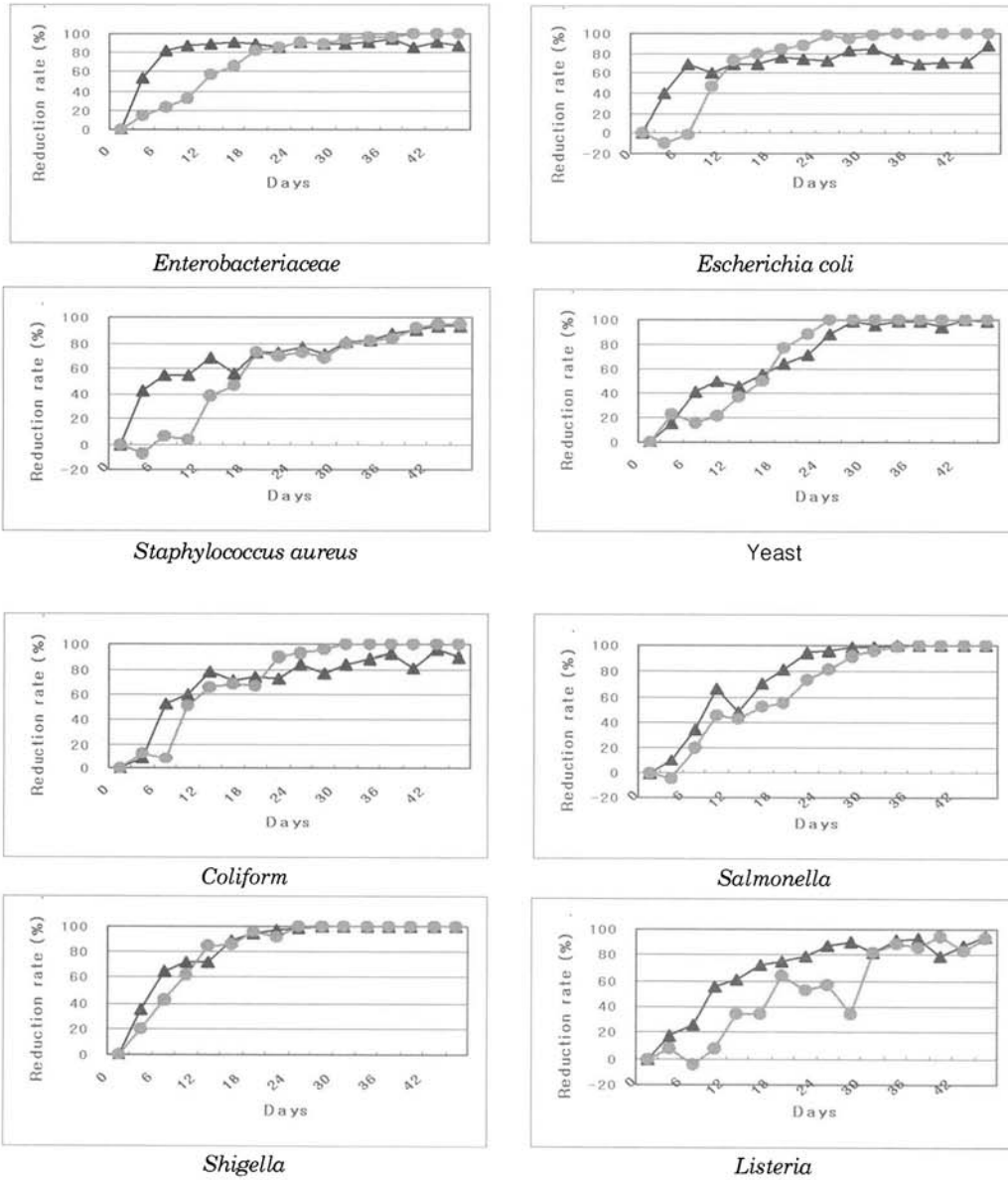
[Table 3] Number of Various Microorganisms in Mixed Wastewater (unit : CFU/mL)

	Total Colony	<i>Enterobact- eriacae</i>	<i>Escherichia coli</i>	<i>Coliform</i>	Yeast	<i>Staphylococ- cus aureus</i>	<i>Salmo- nella</i>	<i>Shigella</i>	<i>Listeria</i>
Before AR	1.60×10^7	5.61×10^4	2.23×10^4	3.18×10^4	1.78×10^4	9.10×10^5	6.15×10^4	3.40×10^4	5.85×10^3
After AR (Before MR)	1.36×10^7	4.07×10^4	1.80×10^4	2.36×10^4	1.36×10^4	4.44×10^4	5.45×10^4	3.30×10^4	4.36×10^3

조로부터 각각 샘플을 채취하여 생존실험을 실시하였다.

대부분의 병원성균들이 각 발효조에서 유사한 사멸과정을 거치는 것으로 나타났다. 이들 균들은 반응초기에서 발효조의 안정화시기에 접어드는 기간

까지 가파른 감소율을 보이다가 이후, 완만한 감소세를 유지하는 것으로 나타났다 (Fig. 3). 발효조의 안정화시기는 유기물의 감소율이 일정하게 이루어지는 반응 후 21일을 전후한 시점으로 이 시기는 총균수의 감소율이 둔화되는 시기과도 일치



(Fig. 3) Reduction rates of various microorganisms in both acid and methane reactors during TPAD process.

▲ : Acidogenic reactor; ● : Methanogenic reactor

하며 대부분의 병원성균의 사멸율(감소율)이 산 및 메탄 발효조에서 각각 80% 및 90% 이상인 것으로 나타나고 있다. 그러나, 일부 병원성균의 경우 다른 병원성균들과 다소 다른 양상을 보이고 있는데, 포도상구균 (*S. aureus*)의 경우에는 이 시기에 70% 내외의 감소율을 나타내고 있으며, 리스테리아균은 산 발효조에서 50%정도, 메탄 발효조에서 80% 정도의 감소율을 보여주었다. 또한 이들은 반응이 종료된 시점에서도 다른 균들과 달리, 95%내외의 감소율을 보이며 계속해서 개체들이 검출되고 있음을 보여주었다. *Listeria*와 *S. aureus*는 비교적 온도와 산성에 내성을 지니고 있음을 보여주고 있다 하겠다. Pothankamury 등의 연구에서도 대장균에 비해 *S. aureus*균이 열에 대한 저항성이 더 높은 것으로 보고하고 있다⁹⁾. 다른 병원성균과 장내세균의 경우, 반응종료시기에 메탄 발효조를 거친 샘플에서 전혀 검출되지 않는 결과를 보이면서 최종적으로 100%의 감소율을 보이는 것으로 조사되었다. 한편, 초기 산 발효조에서의 감소율이 메탄 발효조에서보다 높은 수치를 기록했는데, 이는 고온의 산 발효조에서 온도에 민감한 장내세균 및 병원성세균의 특징을 반영한 결과라 할 것이다. Aitken 등도 고온 혐기소화가 대장균 등의 장내세균 감소에 매우 효과적인 방법임을 입증한 바 있다¹⁰⁾.

4. 결론

본 연구에서는 음식물류폐수와 가축분뇨를 1:1로 혼합한 폐수를 대상으로 고온의 산 발효와 중온의 메탄발효로 이상 혐기소화공정을 실시하였으며, 혼합폐수내 병원성미생물의 존재와 개체수를 파악하였고 공정과정에서 발생된 소화액내 각종 미생물의 동태를 파악하여 처리공정이 소화액에 미치는 환경보건학적 영향을 조사하였으며 다음과 같은 결론을 도출하였다.

1. 본 이상혐기소화공정에 의한 유기물 분해특성은 반응후 9일이 지나면서 현저한 감소율을 나타냈으며 21일 이후 일정한 분해율을 보이면서 공정의 안정화가 이루어지는 것을 관찰하였

다. 안정화이후 유기물의 평균분해율은 산 발효조가 15%내외, 메탄 발효조는 60%내외를 기록하였다.

2. 혼합원액내 미생물은 대장균(*Escherichia coli*), 분변성 장내세균(*Enterobacteriaceae*), 대장균군(*Coliform bacteria*) 등의 장내세균총을 비롯하여 식중독을 일으키는 포도상구균(*Staphylococcus aureus*)과 살모넬라(*Salmonella*), 이질의 원인균인 쉬겔라(*Shigella*), 유가공제품내 대표적 병원성세균인 리스테리아(*Listeria*), 효모(*Yeast*) 등이 검출되었으며 최대개체수는 *S. aureus*로 1mL 당 9.10×10^5 cfu로, 최저개체수는 *Listeria*로 1mL 당 5.85×10^3 cfu로 조사되었다.
3. 소화기간에 따른 미생물상의 변화를 살펴보면 반응초기에서 안정화시기에 접어드는 21일을 전후하여 산 발효조와 메탄발효조에서 각각 80% 및 90% 내외의 가파른 감소율을 보이며 대부분의 미생물이 감소되는 것을 관찰하였다. 메탄 발효조를 거친 소화액내 미생물개체수는 반응이 종료되는 시점에서 대부분 검출되지 않았으나, *Listeria*와 *S. aureus*의 경우에는 비교적 완만한 감소세를 보이며 반응최종일까지 검출이 되고 있음을 확인하였다.
4. 본 고온/중온성 이상혐기소화공정은 대장균을 비롯한 장내세균의 제어뿐 아니라, 병원성미생물의 제어에도 큰 효과가 있는 것으로 조사되었다. 다만, *Listeria*와 *S. aureus*에서처럼 온도와 산도에 저항력이 있는 일부 병원성세균의 경우, 보다 적절한 제어수단으로 소화액에 대한 안정성을 확보하여 재활용도를 제고할 필요성이 있는 것으로 사료된다.

사사

본 연구는 2009년도 가톨릭대학교 교비연구비의 지원으로 이루어진 것으로 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. 해양경찰청, "05년 폐기물 해양투기 현황 및 06년 폐기물 해양투기 억제대책" www.kcg.go.kr, (2005).
2. Tafdrup S., "Viable energy production and waste recycling from anaerobic digestion of manure and other biomass materials", *Biomass and Bioenergy*, 9(5), pp. 303~314 (1995).
3. Lee, K.M., C.A. Brunner, J.B Farrell, A.E Eralp, "Destruction of enteric bacteria and viruses during Two-Phase digestion", *J. WPCF*, 61, pp. 1421~1429 (1989).
4. Han, Y. and Dague, R, "Laboratory studies on the Temperature-Phased anaerobic digestion of mixtures of primary and waste activated sludge.", 69th Annual Conference of the Water Environment Federation, Dallas, Texas, (1996).
5. Burtscher, C., P.A. Fall, O. Christ, P.A Wilderer, S. Wuertz, "Detection and survival of pathogens during two-stage thermophilic/mesophilic anaerobic treatment of suspended organic waste.", *Wat.Sci.Tech.*, 38(12), pp. 123~126 (1998).
6. Huyard, A., B Ferran, J.M Audic, "The two phase anaerobic digestion process: sludge stabilization and pathogens reduction", *Water Science and Technology*, 42(9), pp. 41~47 (2000).
7. 환경부, "폐기물공정시험방법" (2004)
8. 정두영, 정명희, 김영준, "음식물류폐수와 축산분뇨의 혼합소화에서 적정혼합비 및 소화슬러지의 위생성 연구" 17(2), pp. 93~100. (2009).
9. Pothankamury, U.R., A. Monsalve-Gonzalez, Gustavo V. Barbosa-Canovas Barry G. Swanson, "Inactivation of Escherichia coli and Staphylococcus aureus in model foods by pulsed electric field technology", *Food Research International*, 28(2) pp. 167~171 (1995).
10. Aitken, M.D., Mark D. Sobsey, Nicole A. Van Abel, Kimberly E. Blauth, David R. Singleton, Phillip L. Crunk, Cora Nichols, Glenn W. Walters, Maria Schneider, "Inactivation of Escherichia coli 0157:H7 during thermophilic anaerobic digestion of manure from dairy cattle", *Water research* 41, pp. 1659~1666 (2007).

