

보 문

생물증강법을 이용한 오염해양준설토의 환경친화적 정화 및 재활용

김인수 · 하신영 · 고성철*

한국해양대학교 공과대학 환경공학과

Eco-friendly remediation and reuse for coastal dredged materials using a bioaugmentation technology

In-Soo Kim, Shin-Young Ha, and Sung-Cheol Koh*

Korea Maritime and Ocean University, Busan 49112, Republic of Korea

(Received December 7, 2015; Accepted December 21, 2015)

ABSTRACT: Occurrences of coastal dredged materials are ever increasing due to port construction, navigational course maintenance and dredging of polluted coastal sediments. Ocean dumping of the coastal dredged materials has become virtually prohibited as London Treaty will be enacted as of the year 2012. It will be necessary to treat and recycle the dredged materials that may carry organic pollutants and heavy metals in a reasonable and effective process: collection of the dredged materials, liquid and solid separation, and treatment of organic compounds and heavy metals. In this study we have developed a continuous bioreactor system that can treat a mixture of silt and particulate organic matter using a microbial consortium (BM-S-1). The steady-state operation conditions were: pH (7.4-7.5), temperature (16°C), DO (7.5-7.9), and salt concentration (3.4-3.7%). The treatment efficiencies of SCOD, T-N and T-P of the mixture were 95-96%, 92-99%, and 79-97%. The system was also effective in removal of heavy metals such as Zn, Ni, and Cr. Levels of MLSS during three months operation period were 11,000-19,000 mg/L. Interestingly, there was little sludge generated during this period of operation. The augmented microbial consortium seemed to be quite active in the removal of the organic component (30%) present in the dredged material in association with indigenous bacteria. The dominant phyla in the treatment processes were Proteobacteria and Bacteroidetes while dominant genii were *Marinobacterium*, *Flaviramulus*, *Formosa*, *Alteromonadaceae_uc*, *Flavobacteriaceae_uc*. These results will contribute to a development of a successful bioremediation technology for various coastal and river sediments with a high content of organic matter, inorganic nutrients and heavy metals, leading to a successful reuse of the polluted dredged sediments.

Key words: bioaugmentation, bioremediation, coastal dredged materials, reuse

급속한 도시화, 산업화 등의 영향으로 유기물, 지속성유기 오염물질(persistent organic pollutants: POPs), 및 중금속 등이 포함된 오염물질들은 강우, 대기, 하천 등 다양한 경로를 통하여 연안환경에 유입되고 있으며(Lee *et al.*, 2009), 유입된 오염 물질들은 해류에 의해 이동, 확산 되면서, 궁극적으로 해저면에 침강 및 침적되어 퇴적물을 오염시킨다(Stevenson, 2001; Lee *et al.*, 2004). 오염퇴적물로 인한 물질용출은 질소계 영양염은 육상오염부하량의 5-20%, 인산계 영양염은 50-100%로서 오염퇴적물은 건강한 연안환경관리에 상당한 악영향을 미치고 있다(Ministry of Land, Infrastructure and Transport, 2010a).

국내의 경우 항만과 연안해역 준설로 인하여 연간 4천 6백만톤 이상 준설토사가 발생하며 매년 증가하고 있으나, 이 중에 80%는 투기장에 장기간 방치되며, 10% 정도는 외해 투기로 처리하고 있다(Sekwang Interdisciplinary Engineering Consulting Inc., 2006b). 더구나 2012년부터 런던협약에 의해 해양투기가 금지되고 있어 환경친화적인 준설토처리 및 재활용기술개발이 시급하여 최근 해양오염퇴적물의 처리방안 및 기술개발이 진행되고 있다(Ministry of Land, Infrastructure and Transport, 2010). 최근 국내에서 대규모하천의 준설토 내의 중금속(Cd 및 Pb)을 birnessite 및 apatite 등의 광물질로 안정화한 시도가 있으나 여전히 25 μm 미만 오염퇴적물은 여전히 매립처분해야 하는 실정이다(Kim *et al.*, 2010).

*For correspondence. E-mail: skoh@kmou.ac.kr;
Tel.: +82-51-410-4418; Fax: +82-51-410-4415

일반적으로 재활용기술에서는 중간처리과정에서 골재를 분리하여 유효활용이 가능한데 이 경우 분리하고 남은 현탁수의 처리가 필요하므로 주로 화학적으로 응집·침전시켜 상등수를 처리 후 배출하고 있다. 이때 배출되는 현탁수는 고농도의 유기물과 중금속이 포함되어있는 10 µm 미만 미세오염퇴적물 입에도 불구하고 사후처리 없이 방류되어 주변해역의 탁도를 증가시키고 해수내 부영양화를 야기하는 등 2차 오염을 유발하는 오염물질이지만 현재 이를 효율적으로 처리하는 기술은 연구되어 있지 않다.

부산 공동어시장 소재 연안의 해양오염퇴적물 중 고액분리 이후 방류되는 10 µm 이하 입자를 분리하여 유기물 오염정도를 분석해본 결과 오염퇴적물 정화 처리수 방류수 수질목표인 화학적산소요구량(COD) 70 mg/L를 매우 초과하는 180-400 mg/L 범위의 농도로 나타났다(본 연구팀의 미발표 자료). 오염현탁수가 처리되지 않고 방류될 경우 방류해역에 2차 오염이 발생할 가능성이 높아 오염현탁수 처리의 필요성이 제기되었으며, 점차적으로 강화되는 해양환경규제에 대비하기 위해서는 환경친화적인 오염현탁수 처리방법을 개발할 필요가 있다. 본 연구에서는 현재 피혁폐수 등의 난분해성폐수의 환경친화적 및 효율적 처리에 사용되고 있는 복합유용미생물제제(BM-S-1)을 이용하여 염분농도가 높은 미세해양오염퇴적물(10 µm 이하 입자)내 오염되어 있는 유기물질, 영양염류 및 중금속을 정화하여 배출함으로써 오염퇴적물 정화처리수 방류수질 기준 ‘가’ 지역 유지목표인 COD 70 mg/L 이하를 달성하는 것을 목표로 하여 처리장치를 운전하였으며 운전중 각 반응기 내 미생물 군집을 파악하여 오염물질 제거기작을 파악하고자 하였다.

재료 및 방법

시료의 채취 및 준비

실험에 사용된 부산남항의 해양오염퇴적물은 2011년 11월에 채취하였다. 채취한 해양오염퇴적물은 모래, 자갈을 선별한 후 현탁수를 10 µm 체로 걸러 10 µm 미만의 현탁수에 포함된 입자의 퇴적물을 정화실험에 사용하였다. 실험재료로 사용한 현탁수의 대표적 물리화학적 특성은 Table 1에 제시하였다. 유기물함량의 지표로 사용된 COD는 약 480 mg/L 정도이며, pH는 중성부근으로 나타났으며 총질소는 총인에 비해 다소 낮게 나타났다. 부산항의 유지준설토사의 경우 총질소는 22.6-24.6 mg/kg, 총인은 0.23-1.36 mg/kg로 나타났는데 (Yoon and Jeong, 2008), 이는 체로 걸러지지 않은 상태이기 때

Table 1. Major physicochemical parameters of the coastal dredged sediments sorted by a sieve (10 µm)

Parameter	Measured range
pH	6.0-8.0
Temperature (°C)	10.0-15.0
DO (mg/L)	6.0-8.0
Salinity (‰)	32.0-35.0
T-N (mg/L)	1.2-8.9
T-P (mg/L)	3.8-9.3
COD (mg/L)	478-483

문이다. 한편 염분은 32.0-35.0‰로서 해수에 비해서 상당히 높은 수준이었다.

반응조의 규모 및 운전조건

반응조장치는 약 50 L/일의 처리용량을 가지도록 Fig. 1과 같이 제작하였으며 유입수(I) 부분, 유량조정조(B), 포기조(A1, A2, A3, A4), 침전조(PS), 슬러지액화분해조(SD)로 구성되어 있다. 반응조에는 피혁폐수의 처리에 활용되고 있는 BM-S-1 복합미생물제제를 이전의 연구(Kim *et al.*, 2013, 2014) 방법을 약간 변화시켜 적용하여 운전하였다. 즉 초기 BM-S-1활성액을 유량조정조(B), 포기조(A1) 및 슬러지액화분해조(SD)에서의 유입량의 3%를 매일 주입하였으며 미생물이 적응기간(2-3주)을 거친 후 포기조의 평균 MLSS가 1,500 mg/L로 증가 및 유지되는 것을 확인한 후 지속적인 유입수를 첨가하여 반응조를 운영하였다. 이후 약 60일간 MLSS가 3,000 mg/L 이상 유지하는 조건에서 운전하였다. 또한 반응조 운영기간 동안 현미경 관찰과 MLSS 및 SV30 확인을 통하여 미생물 성장상태를 확인하였다. 그리고 수온에 의한 처리효율 저하를 배제하기 위해 수온은 20-25°C으로 유지하였고, 접종 미생물의 안정된 환경을 확인하기 위해 1회/일 pH, DO, ORP, 염분 등을 측정하였다.

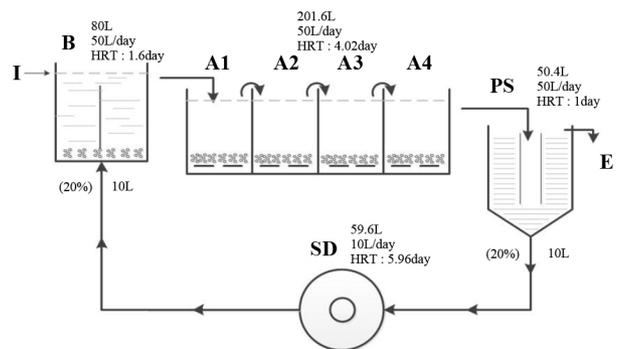


Fig. 1. Scheme of the pilot scale bioreactor used in this study.

해양오염퇴적물내 오염물질 거동 측정

해양오염퇴적물내 오염물질의 제거효율의 측정은 COD, T-N, NH_4^+ , NO_2^- , NO_3^- , T-P, PO_4^{3-} , 및 MLSS 대해서 Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater (APHA, 2005)에 제시된 방법을 따라서 수행하였으며, 중금속(Cr, Pb, Cu, Cd, Zn, Ni 및 As)은 시료를 기존의 방법(APHA, 2005)에 따라 전처리를 수행한 후 inductively coupled plasma - atomic emission spectrometer (ICP-AES; OPTIMA 2100DV; Perkin-Elmer Inc.)로 측정하였다. 기타 반응기의 현장측정항목과 사용기기는 pH (Thermo Orion 720, Thermo Fisher Scientific Inc.), DO (YSI Model 58), ORP (Thermo Orion 720, Thermo Fisher Scientific Inc.)이었다.

해양오염퇴적물 정화중 미생물군집변화 분석

BM-S-1 제제 접종 후 반응기내 미생물군집구조를 조사하기 위하여 반응기내 각단계(I, B, A1, A3, S 및 SD)의 슬러지를 채취하였으며 이들의 총 DNA 추출은 Mobio Power Soil DNA Isolation Kit (MOBIO Laboratories Inc.)를 이용하여 실시하였다. 이후 군집분석은 이전의 연구(Kim et al., 2014)의 방법에 준하여 16S rRNA gene-based pyrosequencing의 실시를 통해 이루어졌다. 우선 fusion primers를 이용하여 16S rRNA 유전자의 변이지역(V1-V3)이 증폭되었고(Hur et al., 2011) 이후 DNA 증폭조건, library 제조, 염기서열분석 등은 이전의 연구(Chun et al., 2010; Kim et al., 2012)에 사용된 454 GS FLX Junior Sequencing System (Roche)을 이용하여 실시하였다.

그리고 이후의 염기서열분석자료를 활용한 미생물군집 분석은 Chunlab., Inc.의 CLcommunity™ Software를 이용하여 실시하였다.

결과 및 고찰

반응조에 의한 미세해양오염퇴적물의 고액분리

물리학적 방법으로 고액분리가 어려운 10 μm 이하의 미세 토양을 복합유용미생물제제 BM-S-1을 이용한 생물화학적 처리방법으로 고액분리한 결과 유입원수의 부유물질(SS)의 농도가 6,000 mg/L 이상인데 비해 처리방류수의 부유물질의 농도가 30 mg/L 이하로 오염퇴적물 정화처리수 방류수질 목표의 화학적산소요구량 70 mg/L 이하에 만족하는 것으로 나타났다.

미세해양오염퇴적물 내의 유기물, 질소 및 인의 처리

유기물 제거효율을 평가하기 위하여 반응조의 처리능력이 평형상태에 달한 시점(운전후 약 90일 경과)에서 용해성의 화학적 산소요구량인 SCOD (Soluble Chemical Oxygen Demand)를 측정하였으며, 기타 수질평가 중요한 항목인 질소성분(T-N, NH_4^+ , NO_2^- , NO_3^-) 및 인성분(T-P, PO_4^{3-})을 측정하여 각 항목의 처리효율을 분석하였다(Table 2). 운전 기간이 60일 경과된 시점 이후 유입수의 화학적 산소요구량은 564-592 mg/L, 유출수의 화학적 산소요구량은 18-41 mg/L로 제거효율이 95-99%를 나타내었다.

운전 기간 50일이 경과된 시점 이후부터 유입수의 총질소(T-N) 농도는 5.922-18.929 mg/L, 유출수의 총질소(T-N) 농도는 0.067-1.520 mg/L로 반응기에서의 총질소 제거효율은 92-99%로 나타났다. 운전 기간 100일이 경과된 시점의 경우 NH_4^+ 및 NO_3^- 의 제거효율도 각각 약 99, 91%의 수준을 보였다. 슬러지분해조(SD) 내의 총질소는 유입수의 14.2% 정도만 남아서 질산화, 탈질의 반응을 거쳐 제거되는 것으로 보인다. 반응기의 인 함유량을 측정된 결과 본 실험에 사용된 시료의 총인(T-P) 농도는 운전 초기부터 높은 제거효율을 보였다.

Table 2. Treatment of polluted marine sediment using pilot scale reactor system undergoing bioaugmentation with the microbial agent BM-S-1*

Parameter (mg/L)	I	B	A1	A2	A3	A4	S	E	SD	% Removal
MLSS	5,250	14,250	9,600	12,530	13,930	10,990	230	1,600	19,240	-
SCOD	380.0	592.0	666.0	604.0	648.0	776.0	17.2	15.0	907.0	96.1
T-N	18.922	5.678	2.193	1.999	1.850	2.078	1.642	1.518	2.692	92.0
NH_4^+	14.332	2.024	0.113	0.114	0.126	0.311	0.036	0.045	0.170	99.6
NO_2^-	1.484	0.545	0.216	0.163	0.143	0.170	0.130	0.130	0.218	91.3
NO_3^-	0.177	1.525	1.490	1.502	1.518	1.540	1.509	1.461	1.405	-
T-P	0.073	0.073	0.067	0.067	0.072	0.069	0.026	0.015	0.088	79.0
PO_4^{3-}	0.019	0.031	0.041	0.033	0.039	0.041	0.008	0.004	0.062	78.1

I, influent; B, buffering tank; A1, primary aeration; A2, secondary aeration; A3, tertiary aeration; A4, quaternary aeration; S, primary sedimentation; E, effluent; SD, sludge digestion; *Particle size of the sediment was less than 10 μm

총인(T-P)의 유입 농도는 8.25-10.95 mg/L, 유출수의 농도는 0.01-0.51 mg/L로 나타났다. 총인(T-P)의 제거효율은 운전 직후에도 93.9%로 다른 인자(parameter)에 비하여 높게 나타났으나 운전 기간 30일이 지난 시점부터는 97.4-99.8%로 평균 98.5%의 높은 제거효율을 보였다. 그러나 운전 100일 경과시는 유입수의 총인수준은 상당히 낮게 나타나서 처리효율이 79%로서 상대적으로 낮게 나타났다. 그리고 PO₄³⁻의 처리효율도 비슷한 수준(78%)으로 나타났다. 슬러지분해조(SD) 내의 총인은 유입수에 비해 20% 정도 증가하여 미생물의 biomass가 분해되면서 축적이 되고 있는 것으로 판단된다.

미세해양오염퇴적물 내의 주요중금속의 처리

운전 100일 경과시의 주요중금속 Cr, Cu, Zn 및 Ni의 처리효율은 각각 78.4, 62.8, 88.0 및 87.6%로 나타났다. 그러나 Pb 및 Cd의 처리효과는 나타나지 않았다(Table 3). As는 본 처리대상시료에서는 관찰되지 않았다. Cu, Pb 및 Zn 등은 슬러지분해조(SD) 내에 축적이 되었으나, Cr, Cd, 및 Ni 등은 축적이 되지 않는 경향을 보였다. 이는 현재의 반응조 조건에서 중금속이 축적제거에 있어서 차별성(세포 내 또는 표면 축적 등)이 있음을 의미한다.

혼합미생물(BM-S-1) 접종 반응조 내의 미생물 종다양성 변화

미세해양오염퇴적물의 처리가 효율적으로 수행되고 있는 반응조 내의 미생물군집 내의 종풍부도 및 종다양도를 분석하였다. 분석은 16S rRNA gene-based pyrosequencing 기법을 이용하여 수행하였으며 그 결과를 Table 4에 제시하였다. 종풍부도를 나타내는 Chao1 추정값은 유입수, 침전조, 유량조정조의 순으로 높게 관찰되었다. 종다양도를 나타내는 Shannon index를 보면 유입수(I)가 가장 높은 8.03을 나타내었으며 이후 처리단계에서 감소하여 폭기조 첫 단계(A1)에 상대적으로 낮은 7.00을 나타내었으며 이후 침전단계(S)에서 유량조정조(B)의 경우와 유사한 7.45로 회복하는 경향을 보였다. 슬러지분해조(SD)에서는 가장 낮은 6.85로 나타났다. 이러한 종다양도의 변화는 각 처리단계에의 MLSS, SCOD 및 영양염류(N 및 P 등)의 농도와 복합적인 상관의 결과로 판단된다. 대체로 낮은 SCOD일수록 높은 Shannon index를 보이는 것이 관찰되었으므로 미세해양오염퇴적물 내의 높은 농도의 유기물이 미생물의 특정군집 우점화의 선택압력으로 작용하는 것으로 추정된다. 한편 시료분석의 대표성(coverage)과 샘플링의 깊이(sampling depth)를 각각 나타내는 Goods coverage와 rarefaction curve 분석의 결과도 적절한 수준으로 나타났다 (Table 4 and Fig. 2). 여기서 rarefaction curve의 경우 모든 시

Table 3. Treatment of the major heavy metals within the marine sediment (particle size less than 10 µm) using BM-S-1

Parameter	Cr	Pb	Cu	Cd	Zn	Ni	As
I_water (µg/L)**	111.6	5.3	52.2	4.5	296.2	92.8	ND
I_SS (µg/L)	75.4	110.0	472.7	1.4	773.1	39.5	ND
B_SS (µg/L)	73.3	114.5	390.0	2.0	870.0	31.6	ND
E_water (µg/L)**	24.1	5.6	19.4	5.5	35.6	11.5	ND
SD_SS (µg/L)	96.9	94.2	826.9	0.6	960.3	57.0	ND
% Removal	78.4	-	62.8	-	88.0	87.6	-

I, influent; B, buffering tank; E, effluent; SD, sludge digestion; SS, suspended solid; *Particle size of the sediment was less than 10 µm; ** Supernatant water of the marine sediment

Table 4. Summary of pyrosequencing microbial community analysis of MLSS samples from the pilot scale sediment treatment system. Diversity indices were obtained from the Mothur Program and based on normalized reads of each sample

Samples	Total reads	Analyzed reads	Normalized reads	Read length (bp)		Observed OTUs	Chao1 estimation	Shannon index	Goods coverage
				Mean length	Maximum length				
I	10704	8246	3844	476.9	588	5737	22231.0	8.03	0.58
B	6886	10200	3844	474.7	523	3555	13434.3	7.46	0.59
A1	3844	6430	3844	475.1	558	2098	7408.5	7.00	0.58
A3	5162	4836	3844	469.5	538	2705	9147.4	7.25	0.59
S	8713	3589	3844	476.8	537	4200	16507.8	7.45	0.62
SD	6739	6374	3844	472.9	569	2638	9270.1	6.85	0.71

I, influent; B, buffering tank; A1, primary aeration; A3, tertiary aeration; S, primary sedimentation; SD, sludge digestion

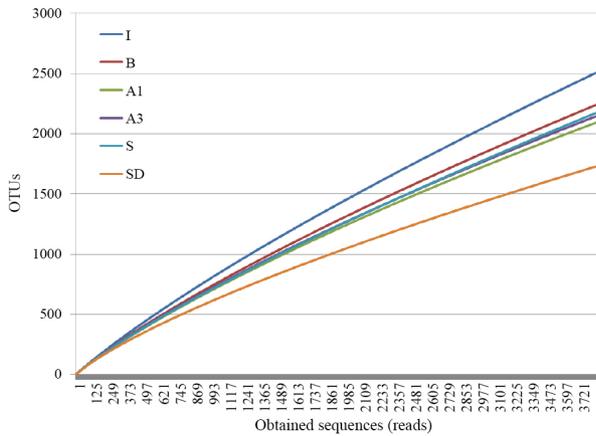


Fig. 2. Rarefaction curves of the six different samples from the pilot scale sediment treatment system. I, influent; B, buffering tank; A1, primary aeration; A3, tertiary aeration; S, primary sedimentation; SD, sludge digestion; sample size was normalized by random subtraction.

료에 대해서 각각 3844 reads를 분석한 결과 관찰된 잠재적 종으로 분류되는 operational taxonomic units (OTUs)의 수가 유입수, 유량조정조, 침전조, 폭기조(A3), 폭기조(A3) 및 슬러지 분해조의 순으로 높게 관찰되었다. 이는 종풍부도를 나타내는 Chao1 추정값과 어느 정도 비례하는 경향을 보였다.

혼합미생물(BM-S-1) 접종 반응조 내의 미생물 군집변화

반응조시스템의 유입수(I), 유량조정조(B), 폭기조(A1 및 A3), 침전조(S) 및 슬러지액화분해조(SD)를 대상으로 세균군집의 문(Phylum)의 분포 분석 결과를 Fig. 3에 나타내었다. Proteobacteria는 모든 처리단계 전반적으로 45.8-76.4%의 가장 높은 분포를 보였으며 특히 폭기조A3에서 가장 높은 밀도를 보였고 유입수에서 가장 낮게 나타나서 처리가 진행될수록 밀도가 증가하는 경향을 보였다. 여기서는 Gammaproteobacteria가 매우 우점하였다. 다음으로 Bacteroidetes가 19.4-38.7%의 분포를 보였으며 침전조(S)에서 가장 높은 밀도를 보여 대체로 처리가 진행될수록 밀도가 증가하는 경향을 보였다. 다음으로 우점한 문은 Firmicutes로서 유입수에서 약 11%의 분포를 보이거나 유량조정조에서 약 절반으로 급감하였고 그 이후의 단계에서는 미미한 분포를 보이고 있으므로 이는 상대적으로 열악한 물리적 환경조건(상대적으로 높은 DO 등)에 영향을 받은 것으로 판단되며 SCOD로 대변되는 유기물(탄소원)의 함량과는 특별한 상관이 없는 것으로 보인다. 그리고 BM-S-1에 함유된 유산균이 포함된 Firmicutes 문은 지속적 투입에도 불구하고 그리 높지 않은 0.6-4.8%의 분포를 보였다. 이는 이전의 연구결과와 유사한 경향을 보이고 있다(Kim et al., 2013, 2014). 한편 Lentisphaerae, Spirochaetes, Planctomycetes, WS3

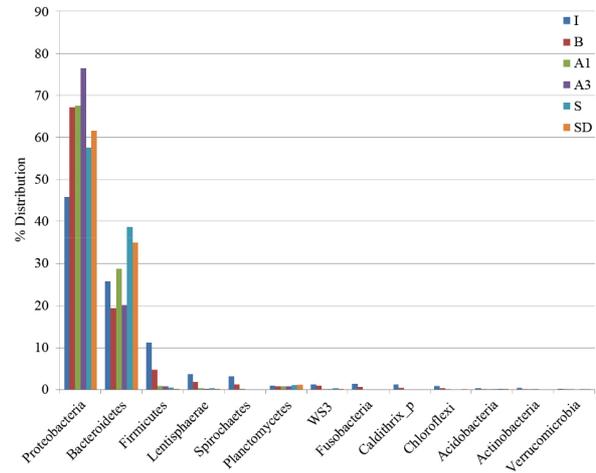


Fig. 3. Phylum level microbial community structures of different stages from the pilot scale sediment treatment system. I, influent; B, buffering tank; A1, primary aeration; A3, tertiary aeration; S, primary sedimentation; SD, sludge digestion.

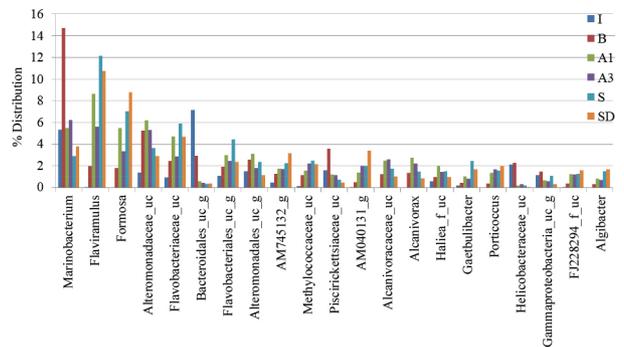


Fig. 4. Genus level microbial community structures of different stages from the pilot scale sediment treatment system. I, influent; B, buffering tank; A1, primary aeration; A3, tertiary aeration; S, primary sedimentation; SD, sludge digestion.

(후보군; candidate phylum), Fusobacteria 및 Caldithrix_p (임시로 명명된 문) 등의 문은 5% 이하의 분포로서 유입수에서 가장 높게 나타나 전반적으로 처리가 진행될수록 밀도가 감소하는 경향을 보여 유입수에 함유되어 있었던 토착미생물로서 새로운 반응조의 환경에 잘 적응을 못한 것으로 판단된다.

한편 반응조시스템의 유입수(I), 유량조정조(B), 폭기조(A1 및 A3), 침전조(S) 및 슬러지액화분해조(SD)를 대상으로 세균군집의 속(Genus)의 분포 분석 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 약 4% 이상의 출현빈도를 보인 속은 *Marinobacterium*, *Flaviramulus*, *Formosa*, *Alteromonadaceae_uc*, *Flavobacteriaceae_uc*, *Bacteroidales_uc_g* 및 *Flavobacteriales_uc_g*로 나타났으며, 이 중에서 *Marinobacterium*, *Flaviramulus*, *Formosa*, *Alteromonadaceae_uc*, *Flavobacteriaceae_uc*는 약 6% 이상의 출현빈도를 보여 최우점종으로 관찰이 되었다. 여기서

“uc”는 미분류(unclassified)를 의미하며 “_g”는 임시로 명명된(tentative) 분류군(phylogroup)으로서 속(genus)을 의미한다(Kim *et al.*, 2012). 상기의 속들은 Bacteroidales_uc_g를 제외하고는 전반적으로 처리단계가 진행될수록 그 출현빈도가 증가하는 경향을 보이고 있다. 특히 호기성의 *Marinobacterium* 속은 유량조정조에서 가장 높은 밀도수준(14.7%)을 보이고 있는데 이는 성장에 적합한 적절한 탄소원과 질소 및 인 등의 영양염류의 농도에 기인하는 것으로 보인다. 이는 폭기조에서 50% 이상의 총질소 감소가 일어나며 MLSS가 유입수에 비해 2.7배 증가한 것을 보아 알 수 있다(Table 2). *Marinobacterium* 속은 염수에서 유류(벤젠 및 방향족탄화수소 등)를 분해하거나(Li *et al.*, 2012; Rocchetii *et al.*, 2012; Strong *et al.*, 2013; Cui *et al.*, 2014), 유류로 오염된 mangrove 생태계에서 우점하는 것으로 나타났다(Dos Santos *et al.*, 2011). 본 연구에 사용된 미세해양오염퇴적물에는 부산남항에서 채취된 것이어서 계류선박으로부터 유출된 유류오염물질이 충분히 있을 것으로 판단된다. *Flaviramulus* 속은 유입수에서는 거의 출현하지 않았으나 이후의 처리단계에서 약 6-12%의 증가를 보이고 있다. 어류의 내장에서 분리된 *Flaviramulus ichthyenteri* Th78^T는 *Flavobacteriaceae* 과의 특이종으로 최근 quorum quenching (QQ)능이 있는 것으로 보고되고 있다(Zhang *et al.*, 2015). 또한 *Formosa* 속은 호기성, 내염성, 타가영양성, 그람 음성이며 활발운동성이 있으며 갈조류를 분해하는 것으로 보고되고 있다(Nedashkovskaya *et al.*, 2006). *Alteromonadaceae_uc*에 속하는 *Alteromonas atlantica* sp. nov. 및 *Alteromonas carraegenovora* sp. nov.는 한천을 분해하는 종으로 알려지고 있다(Masayo *et al.*, 1992). *Flavobacteriaceae_uc*는 4-6%의 출현빈도를 보이고 있는데 이는 많은 종류의 다당류, 단백질 및 기타 생물중합체를 분해하며, 해양환경에서 분해자로서의 역할에 대해서 관심이 집중되고 있다(Joostea and Hugob, 1999). 한편 Bacteroidales_uc_g는 유입수에서 7% 수준을 보이다가 침전조에서는 1% 이하의 수준을 보였다. Bacteroidales에 속하는 종들은 절대혐기성으로서 상대적으로 산소가 부족한 유입수에는 현저한 밀도를 보이나 산소가 풍부한 이후의 단계 유량조정조 및 폭기조에는 현저한 감소를 보인 것으로 판단된다. 또한 집중된 BM-S-1에 존재하는 유산균의 작용에도 기인하는 것으로 판단된다(Kim *et al.*, 2013, 2014). Bacteroidales 목에 속하는 대표적 속은 수질 및 육상환경에서 서식하며 건강한 사람과 동물의 구강 및 장에 흔히 존재하며 잘 알려진 절대혐기성으로 대표적 속으로는 *Bacteroides* 및 *Prevotella*이 있다(Dick *et al.*, 2005). 이 속들은 최근에 인간의 gut microbiome 연구의 주요한 주제 분류군으로 떠오르고 있다(Wu *et al.*, 2011).

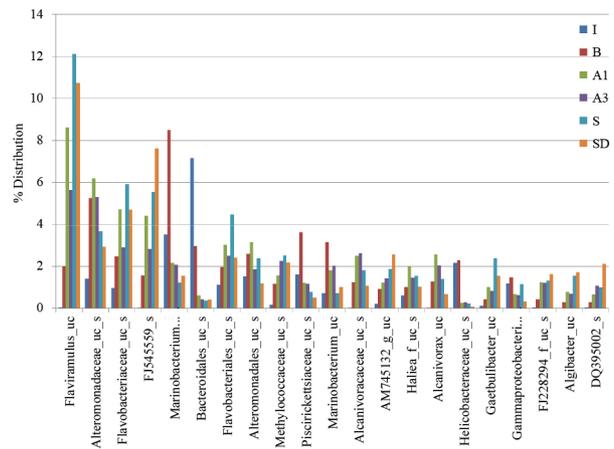


Fig. 5. Species level microbial community structures of different stages from the pilot scale sediment treatment system. I, influent; B, buffering tank; A1, primary aeration; A3, tertiary aeration; S, primary sedimentation; SD, sludge digestion.

종의 분포를 보면 *Flaviramulus_uc*, *Alteromonadaceae_uc_s*, *Flavobacteriaceae_uc_s*, *Formosa* sp. (FJ545559_s), *Marinobacterium maritimum*, Bacteroidales_uc_s 및 Flavobacteriales_uc_s의 순으로 높게(4-12%의 출현빈도) 나타났다(Fig. 5). 속의 경우와 유사하게 혐기성의 Bacteroidales_uc_s를 제외하고는 모두다 유입수 이후의 단계에서 현저한 출현의 증가가 나타났다. 여기서 “_s”는 임시로 명명된(tentative) 분류군(phylogroup)으로서 종(species)을 의미한다(Kim *et al.*, 2012). *Marinobacterium maritimum*는 그람 음성, 호기성의 해양성세균으로서 북극의 해양퇴적토에서 분리가 되었다(Kim *et al.*, 2009).

반응조 내의 미생물 군집구조에 기초한 처리단계의 집괴분석

혼합미생물(BM-S-1)이 집중된 반응조 내의 미생물 pyrosequencing 군집구조자료를 활용하고 Fast Uni Frac 및 Unweighted pair group method with arithmetic mean (UP-GMA) 분석기법을 활용하여 각처리 과정을 집괴(cluster) 분석하였다(Fig. 6). Fig. 6에서 보는 바와 같이 예상대로 유입수의 미생물군집은 나머지 모든 처리단계의 군집과는 현저한 차이를 보였다. 다음으로 차이를 보이는 단계는 B로서 폭기조(A1 및 A3)와 침전조(S) 및 슬러지소화조(SD)와는 다른 구조를 보였다. 또한 폭기조(A1 및 A3)와 침전조(S) 및 슬러지소화조(SD)와도 약간의 서로 다른 군집구조 패턴을 보이고 있다. 즉 이들 자료는 반응조가 평형상태에서 운전될 시 얻어진 것이므로 모든 미생물군집들이 상기에 언급한 출현빈도로 각 처리단계에 특이하게 존재하며 미세해양오염퇴적물을 효율적으로 처리하는 것으로 보인다.

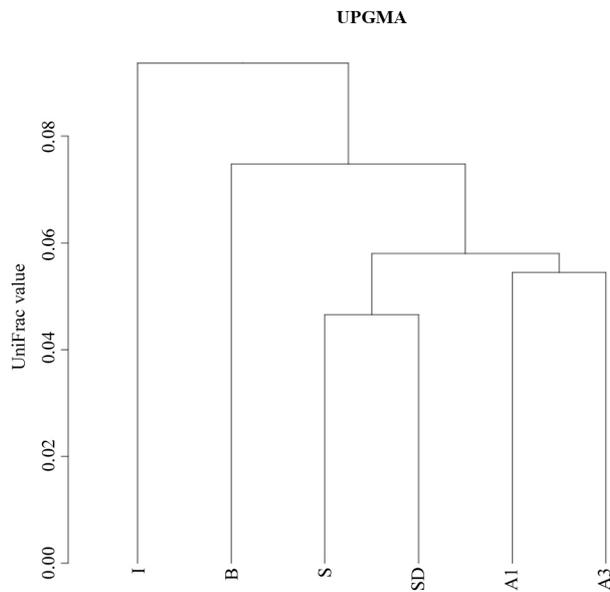


Fig. 6. Fast Uni Frac and unweighted pair group method with arithmetic mean (UP-GMA) cluster analysis for the pyrosequencing community data of the different stages of the sediment treatment system. I, influent; B, buffering tank; A1, primary aeration; A3, tertiary aeration; S, primary sedimentation; SD, sludge digestion.

결론

BM-S-1 복합미생물제제를 이용한 해양준설토의 친환경정화시스템으로서 일일 50 L 처리용량의 Lab scale 실험장치용 HRT 6.5일, BOD 용적부하 0.2-0.6 kg/m³·day의 조건으로 생물반응기를 100일 이상 운전하였다. SCOD, T-N 및 T-P의 제거효과는 각각 96.1%, 92.0% 및 79.0%로 나타나 오염미세퇴적토 내의 유기물의 처리효과가 매우 양호하였다. 또한 몇 가지의 중금속(Zn, Ni 및 Cr) 처리에도 효과적이었다. 아울러 물리적으로 분리하기 어려운 10 µm 이하의 미세토양의 고액분리가 가능함을 확인하였다. 미생물군집구조를 분석한 결과 Flavobacteria 및 Gammaproteobacteria 강이 매우 우점하였으며, 이들에 속한 미생물종들은 해양 내의 각종유기물(다당류, 단백질 및 기타 생물중합체)을 처리하는 것으로 알려졌다. 따라서 본 실험에서 사용된 BM-S-1 미생물제제와 처리시스템은 고농도의 염분이 함유되어있는 유기물 및 중금속 오염 해양퇴적물 정화에 효율적으로 적용가능한 것으로 판단되며, 정확, 분리된 미세해양퇴적물은 목적에 맞게 재사용 가능할 것으로 사료된다.

적요

국내의 경우 항만과 연안해역 준설로 인하여 연간 수 천만

톤 이상 준설토사가 발생하며 매년 증가하고 있으나, 대부분 투기장에 장기간 방치되며, 더구나 2012년부터 런던협약에 의해 해양투기가 금지되고 있어 환경친화적인 준설토처리 및 재활용기술개발이 시급하다. 준설토 재활용기술에서는 중간처리과정후 발생하는 현탁수(유기물과 중금속 함유 10 µm 미만 미세오염퇴적물 포함)의 처리가 필요한데 현재 이 기술은 연구되어 있지 않다. 본 연구에서는 복합유용미생물제제(BM-S-1)을 이용하여 미세해양오염퇴적물(10 µm 이하 입자)내 오염되어 있는 유기물질, 영양염류 및 중금속을 정화하여 배출함으로써 오염퇴적물 정화처리수 방류수질 기준을 충족하고자 하였다. BM-S-1 복합미생물제제를 이용한 해양준설토의 친환경정화시스템으로서 일일 50 L 처리용량의 Lab scale 실험장치를 HRT 6.5일, BOD 용적부하 0.2-0.6 kg/m³·day의 조건으로 생물반응기를 100일 이상 운전하였다. SCOD, T-N 및 T-P의 제거효과는 각각 96.1%, 92.0% 및 79.0%로 나타나 오염미세퇴적토 내의 유기물의 처리효과가 매우 양호하였다. 또한 몇 가지의 중금속(Zn, Ni 및 Cr) 처리에도 효과적이었다. 아울러 물리적으로 분리하기 어려운 10 µm 이하의 미세토양의 고액분리가 가능함을 확인하였다. 미생물군집구조를 분석한 결과 Flavobacteria 및 Gammaproteobacteria 강이 매우 우점하였으며, 이들에 속한 미생물종들은 해양 내의 각종유기물(다당류, 단백질 및 기타 생물중합체)을 처리하는 것으로 알려졌다. 따라서 본 실험에서 사용된 BM-S-1 미생물제제와 처리시스템은 고농도의 염분이 함유되어있는 유기물 및 중금속 오염 해양퇴적물 정화에 효율적으로 적용가능한 것으로 판단되며, 정확, 분리된 미세해양퇴적물은 목적에 맞게 재사용 가능할 것으로 사료된다.

감사의 말

미생물 군집 분석에 도움을 준 Dr. K. I. Ekpeghere께 감사드립니다.

References

- American Public Health Association (APHA).** 2005. American Water Works Association, Water Environment Federation. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 21st Ed.; Authors: Washington, DC, USA.
- Chun, J., Kim, K.Y., Lee, J.H., and Choi, Y.** 2010. The analysis of oral microbial communities of wild-type and toll-like receptor 2-deficient mice using a 454 GS FLX Titanium pyrosequencer.

- BMC Microbiol.* **10**, 101.
- Cui, Z., Xu, G., Gao, W., Li, Q., Yang, B., Yang, G., and Zheng, L.** 2014. Isolation and characterization of *Cycloclasticus* strains from Yellow Sea sediments and biodegradation of pyrene and fluoranthene by their syntrophic association with *Marinobacter* strains. *Int. Biodet. Biodegrad.* **91**, 45–51.
- Dick, L.K., Bernhard, A.E., Brodeur, T.J., Santo Domingo, J.W., Simpson, J.M., Walters, S.P., and Field, K.G.** 2005. Host distributions of uncultivated fecal *Bacteroidales* bacteria reveal genetic markers for fecal source identification. *Appl. Environ. Microbiol.* **71**, 3184–3191.
- Dos Santos, H.F., Cury, J.C., do Carmo, F.L., dos Santos, A.L., Tiedje, J., van Elsas, L.J., Rosado, A.S., and Peixoto, R.S.** 2011. Mangrove bacterial diversity and the impact of oil contamination revealed by pyrosequencing: bacterial proxies for oil pollution. *PLoS One* **6**, e16943.
- Hur, M., Kim, Y., Song, H.R., Kim, J.M., Choi, Y.I., and Yi, H.** 2011. Effect of genetically modified poplars on soil microbial communities during the phytoremediation of waste mine tailings. *Appl. Environ. Microbiol.* **77**, 7611–7619.
- Joostea, P.J. and Hugob, C.J.** 1999. The taxonomy, ecology and cultivation of bacterial genera belonging to the family *Flavobacteriaceae*. *Int. J. Food Microbiol.* **53**, 81–94.
- Kim, O.S., Cho, Y.J., Lee, K., Yoon, S.H., Kim, M., Na, H., Park, S.C., Jeon, Y.S., Lee, J.H., Yi, H., et al.** 2012. Introducing EzTaxon-e: a prokaryotic 16S rRNA gene sequence database with phylotypes that represent uncultured species. *Int. J. Syst. Evol. Microbiol.* **62**, 716–721.
- Kim, I.S., Ekpeghere, K., Ha, S.Y., Kim, S.H., Kim, B.S., Song, B., Chun, J., Chang, J.S., Kim, H.G., and Koh, S.C.** 2013. An eco-friendly treatment of tannery wastewater using bioaugmentation with a novel microbial consortium. *J. Environ. Sci. Health A Tox. Hazard Subst. Environ. Eng.* **48**, 1732–1739.
- Kim, I.S., Ekpeghere, K.I., Ha, S.Y., Kim, B.S., Song, B., Chun, J., Kim, J.T., Kim, H.G., and Koh, S.C.** 2014. Full-scale biological treatment of tannery wastewater using the novel microbial consortium BM-S-1. *J. Environ. Sci. Health A Tox. Hazard Subst. Environ. Eng.* **49**, 355–364.
- Kim, B.S., Kim, J.N., Yoon, S.H., Chun, J., and Cerniglia, C.E.** 2012. Impact of enrofloxacin on the human intestinal microbiota revealed by comparative molecular analysis. *Anaerobe* **18**, 310–320.
- Kim, Y.J., Nam, K.P., Lee, S.B., Kim, B.K., Kwon, Y.H., and Hwang, I.S.** 2010. A tiered approach of washing and stabilization to decontaminate and recycle dredged river sediment. *J. Soil Groundwater Environ.* **15**, 47–54.
- Kim, S.J., Park, S.J., Yoon, D.N., Park, B.J., Choi, B.R., Lee, D.H., Roh, Y., and Rhee, S.K.** 2009. *Marinobacterium maritimum* sp. nov., a marine bacterium isolated from Arctic sediment. *Int. J. Syst. Evol. Microbiol.* **59**, 3030–3034.
- Lee, M.K., Bae, W.K., Um, I.K., and Jung, H.S.** 2004. Characteristics of heavy metal distribution in sediments of Youngil Bay, Korea. *J. Kor. Soc. Environ. Eng.* **26**, 543–551.
- Lee, J.K., Kim, S.K., Song, J.H., and Lee, T.Y.** 2009. Evaluation of organic sediments qualities for the urban streams in the Busan city. *J. Kor. Soc. Environ. Eng.* **31**, 975–982.
- Li, H., Zhang, Q., Wang, X.L., Ma, X.Y., Lin, K.F., Liu, Y.D., Gu, J.D., Lu, S.G., Shi, L., Lu, Q., et al.** 2012. Biodegradation of benzene homologues in contaminated sediment of the East China Sea. *Bioresour. Technol.* **124**, 129–136.
- Masayo, A.M., Masaru, M., Yosuke, K., and Kazuhide, Y.** 1992. *Alteromonas atlantica* sp. nov. and *Alteromonas carrageenovora* sp. nov. bacteria that decompose algal polysaccharides. *Int. J. Syst. Evol. Microbiol.* **42**, 621–627.
- Ministry of Land, Infrastructure and Transport.** 2010a. Manual of Advancing Ministry of Land, Infrastructure and Transport. 2010. Manual of Advancing Remediation and Restoration Projects for Polluted Coastal Sediments.
- Ministry of Land, Infrastructure and Transport.** 2010b. Report on Treatment Alternatives and Technology for Polluted Coastal Sediments [III].
- Nedashkovskaya, O.I., Kim, S.B., Vancanneyt, M., Snauwaert, C., Lysenko, A.M., Rohde, M., Frolova, G.M., Zhukova, N.V., Mikhailov, V.V., Bae, K.S., et al.** 2006. *Formosa agariphila* sp. nov., a budding bacterium of the family Flavobacteriaceae isolated from marine environments, and emended description of the genus *Formosa*. *Int. J. Syst. Evol. Microbiol.* **56**, 161–167.
- Rocchetti, L., Beolchini, F., Hallberg, K.B., Johnson, D.B., and Dell'Anno, A.** 2012. Effects of prokaryotic diversity changes on hydrocarbon degradation rates and metal partitioning during bioremediation of contaminated anoxic marine sediments. *Marine Poll. Bull.* **64**, 1688–1698.
- Sekwang Interdisciplinary Engineering Consulting Inc.** 2006. Preliminary Investigative Risk Assessment of Dredged Materials, Workshops for Management, Dredged Materials Treatment and Reuse.
- Stevenson, A.G.** 2001. Metal concentrations in marine sediments around scotland: a baseline for environmental studies. *Marine Environ. North East Atlantic Margin* **21**, 8–10.
- Strong, L.C., Gould, T., Kasinkas, L., Sadowsky, M.J., Aksan, A., and Wackett, L.P.** 2013. Biodegradation in waters from hydraulic fracturing: chemistry, microbiology, and engineering. *J. Environ. Eng.* **10**, 1061.
- Wu, G.D., Chen, J., Hoffmann, C., Bittinger, K., Chen, Y.Y., Keilbaugh, S.A., Bewtra, M., Knights, D., Walters, W.A., Knight, R., et al.** 2011. Linking long-term dietary patterns with gut microbial enterotypes. *Science* **334**, 105–108.
- Yoon, G. and Jeong, W.** 2008. Assessment of contamination of harbor dredged materials for beneficial use. *J. Korean Geo-Environ. Society* **24**, 15–25.
- Zhang, Y.H., Liu, J.W., Tang, K.H., Yu, M., Coenye, T., and Zhang, W.H.** 2015. Genome analysis of *Flaviramulus ichthyenteri* Th78^T in the family *Flavobacteriaceae*: insights into its quorum quenching property and potential roles in fish intestine. *BMC Genomics* **16**, 38.