

## 황을 이용한 강변여과수의 독립영양탈질

### Autotrophic Denitrification of Bank Filtrate Using Elemental Sulfur

문희선 · 남경필\* · 김재영

서울대학교 지구환경시스템공학부  
\* BK 21사회기반 및 건설기술 인력양성 사업단  
(E-mail : whitesun7@hotmail.com)

#### ABSTRACT

As a bench-scale study, transformation of nitrate to nitrogen gas under anoxic condition was determined by using autotrophic denitrifiers containing *Thiobacillus denitrificans* and elemental sulfur as an electron donor. The research objective is to measure the basic kinetic parameters of autotrophic denitrification reaction on the removal efficiency of nitrate. The results showed that nitrate was almost completely transformed to nitrite in the first 4 days of column operation. After 2 days of accumulation of nitrite, its concentration slowly decreased and the compound was detected less than 0.5 mg/L in 14 days. In the experiment, sulfate concentration in the effluent was the 70~90 mg-S/L and the pH was maintained around pH 7.5. When nitrate concentration of bank filtrate in the real field is considered, this sulfate concentration seems to be acceptable. At 17 cm from the bottom of the column, the effluent showed the highest nitrite concentration, and nitrate concentration decreased rapidly to the point of 33 cm from the bottom. The results suggest that an appropriate thickness of permeable reactive barriers is about 30 cm.

---

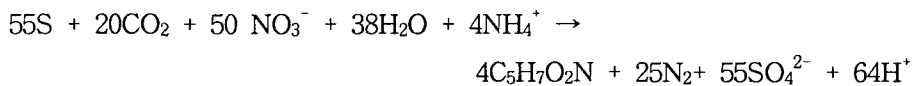
**Key words** : Nitrate, Autotrophic denitrification, Sulfur, Bank filtrate.

#### I. 서론

현재 우리나라는 하천이나 호소의 수질 악화 현상으로 수원의 관리를 통한 수질 개선 및 수원의 다양화와 취수 방법의 개선을 필요로 하고 있다. 취수 방법의 개선을 통해, 보다 나은 수질을 확보할 수 있는 대안 중의 하나가 강변여과 공법의 채택이다.

강변여과는 주로 유럽에서 수질이 양호하지 못한 지역을 중심에서 널리 사용되는 공법으로, 우리나라에서도 낙동강의 하류에서 이미 적용된 사례가 있으며, 영산강 등의 지역에서도 채택이 고려되고 있다<sup>1)2)</sup>.

강변여과수에 있어서 질산성 질소는 배후지역에서의 과도한 시비, 축산폐수의 유입 등에 기인하여 처리가 쉽지 않은 수질 항목 중의 하나이다. 질산성 질소의 우리나라의 음용수 수질기준은 허용치를 10 mg/L로 정하고 있다. 질산성 질소를 제거하기 위한 생물학적 탈질 공정인 heterotrophic denitrification은 영양요구성 탈질균을 이용하기 때문에 electron donor로 유기물이 충분히 공급되어야 한다. 이러한 electron donor로는 methanol, acetate donor와 같은 값비싼 유기물이 첨가되는데, 이로 인해 운전비용이 많이 드는 단점이 있다. 반면, autotrophic denitrification은 자가영양미생물에 의한 다음의 반응 메카니즘으로 탈질 과정이 일어난다<sup>3)</sup>.



이러한 특수한 탈질 반응을 일으키는 대표적인 자가영양 미생물 종류인 *Thiobacillus denitrificans*는 여러 가지 황화합물(S<sup>2-</sup>, S<sup>-</sup>, S, S<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>2-</sup>, S<sub>4</sub>O<sub>6</sub><sup>2-</sup>, SO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)을 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 산화시키면서 동시에 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>를 N<sub>2</sub>가스형태로 전환하여 질소를 제거한다.<sup>4)</sup> 이러한 autotrophic denitrification 공정은 질산성질소의 농도가 높은 강변여과수 처리에 적용할 수 있을 것이다. 따라서, 본 연구는 질산성 질소로 오염된 강변여과수의 현장처리 수단을 개발하기 위해 수행되었다.

본 연구의 목적은 황탈질 반응의 매개변수 및 안정성을 조사하고, 황탈질 반응의 강변여과수 처리에의 적용가능성을 실험을 통해 확인하는 것이다.

## II. 실험방법

본 연구에서 이용한 고정상 생물 반응조는 직경 7 cm, 높이 70 cm의 원통형의 Pyrex재질을 이용하였다. 미생물의 전자 공여체로 평균 직경 2mm의 황입자를 이용하였고, 알칼리도 공급을 위해 직경 2-5 mm인 석회석을 3:1비율로 골고루 혼합하여 반응조에 충전하였다. 충전 높이는 50 cm로 하였고, 반응조에는 황입자가 충전된 부분의 깊이에 따라 시료 채취구를 두었다. 반응조내의 황입자에 탈질 미생물인 *Thiobacillus denitrificans*를 충분히 부착하였고, 반응조는 20℃ 항온실에서 운전하였다. 유입수의 조성은 미생물생장을 고려하여 0.2g/L KNO<sub>3</sub>, 0.06g/L KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>, 0.05g/L NH<sub>4</sub>Cl로 이루어졌으며, 반응조의 체류시간은 12시간으로 운전하였고, 유량은 강변여과수 설계 유속을 모사하기 위해 peristaltic pump를 이용하여 1.0 mL/min로 상향류식으로 조절하였다. 일정한 시간 간격으로 시료를 채취하여 nitrate, nitrite, sulfate 농

도는 ion chromatography를 이용하여 분석하였고, 유출수의 pH를 모니터링하였다.

### III. 연구결과 및 고찰

#### 3.1 시간에 따른 nitrate, nitrite, sulfate의 농도 변화

수리학적 체류시간이 12시간이고, 유입 nitrate의 농도가 30 mg-N/L일 때, 시간에 따른 반응조의 nitrate와 nitrite의 농도변화를 <Fig. 1>에 도시하였다. 황탈질 반응조로 유입된 nitrate는 운전초기 4일 동안 거의 완전히 제거되었으나, nitrite는 초기 2일 동안 반응조 내에 축적된 후, 서서히 감소하여 14일 경과 후에는 0.5 mg-N/L이하로 검출되었다. 반면, 칼럼 실험을 수행한 본 연구에서 초기에 나타난 nitrite의 축적은 반응이 정상상태에 도달하지 않았기 때문으로 사료되며, 운전 14일 후에는 정상상태에 도달하여 nitrite가 거의 검출되지 않음을 알 수 있었다.

한편, *Thiobacillus denitrificans*의 황산화 활성에 의해 생성된 유출수의 sulfate농도는 70-90 mg-S/L로 일정하게 유지되었고, sulfate의 음용수 기준이 200 mg/L이하인 것과 비교하여 다소 높은 농도인 것으로 알 수 있다. 그러나, 본 실험에서 적용한 nitrate농도가 30 mg-N/L인 것을 고려한다면, 실제 오염현장에서는 낮은 농도의 sulfate를 기대할 수 있을 것이다. 유출수의 pH는 7.5전후로 큰 변화는 없었다. 따라서, 최종적으로 음용수로 이용되어야하는 강변여과수의 탈질 후에도 pH변화가 거의 없음을 바람직한 현상이었다.

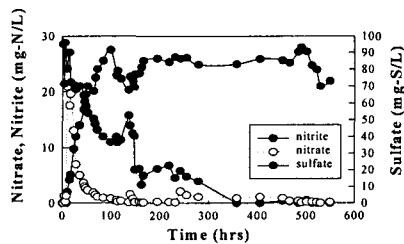


Fig.1. Time profile of nitrate, nitrite, sulfate and concentrations at 30 mg/L of influent nitrate concentration and 12hrs of hydraulic retention time

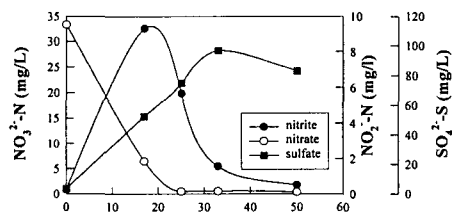


Fig.2. The distribution of nitrate, nitrite and sulfate concentrations at different column heights.

#### 3.2 칼럼 높이에 따른 nitrate, nitrite, sulfate의 농도 분포

<Fig. 2>는 칼럼의 바닥으로부터 17, 25, 33, 50 cm의 높이에서의 시료에 포함된 각 이온의 농도 분포를 나타내고 있다. 유입된 nitrate는 칼럼 높이 25 cm내에서 모두 제거된 것을 알 수 있었다. 한편, 바닥에서 17 cm 높이에서 가장 높은 9.5 mg-N/L의 nitrite농도가 검출되었고, 33 cm높이까지는 다시 급격하게 감소하는 결과로부터 17

cm에서 33 cm부분에서 nitrite의 환원이 일어나고 있음을 알 수 있다. 미생물의 탈질 반응으로부터 생성된 sulfate농도로부터 알 수 있는 황산화 활성은 칼럼 높이 33 cm 까지 지속적으로 증가하였고, 그 이후의 높이에서는 유지되거나 다소 감소하였다.

#### IV. 결론

본 연구에서는 강변여과수의 질산성 질소를 제거하기 위한 현장처리의 방법으로 황을 이용한 독립영양탈질공정이 제안되었다. 수리학적 체류시간이 12시간, 유입 nitrate의 농도가 30 mg-N/L 일 때, 충전높이 50 cm의 황탈질 반응조로 유입된 nitrate는 운전초기 4일 동안 거의 완전히 제거되었으며, 공정 시작 14일 경과 후에 반응은 정상상태에 도달하여 안정적으로 유지됨을 알 수 있었다.

유출수의 sulfate농도와 pH가 일정하게 유지되는 것으로부터 본 연구에서 첨가 된 황은 반응에 필요한 알칼리도를 충분히 공급하고 있음을 알 수 있었다.

유입된 nitrate는 칼럼 높이 25 cm내에서 모두 제거된 반면, nitrite는 17 cm 높이에서 가장 높은 9.5 mg-N/L 농도가 검출되었다가 33 cm높이까지는 다시 급격하게 감소하였다. 미생물의 탈질 반응으로부터 생성된 sulfate농도로부터 나타난 균주의 황산화 활성은 칼럼 높이 33 cm까지 지속적으로 증가하였고, 그 이후에는 감소, 또는 유지됨을 알 수 있었다.

#### 참 고 문 헌

1. 한국수자원공사, 강변여과 및 인공함양을 이용한 영산강 수원개발 기본 조사(1998).
2. 김재영, 오동익, 박동운 “강변 대수층 매질시료의 오염물질 지연능 평가”, 대한상하수도학회지, 13(4), pp.62-71(1999).
3. Batchelor, B., and Lawrence, A.W. “Autotrophic denitrification using elemental sulfur”, *Journal of Water Pollution Control Federation*, 50(8), pp.1986-2001 (1978).
4. Koenig, A., and Liu, L.H. “Autotrophic denitrification of land fill leachate using elemental sulfur”, *Water Science and Technology*, 34(5-6), pp.469-476(1996).