

## Biofilter를 이용한 축산·분뇨 중의 암모니아와 황화수소의 동시 제거

강영석\*, 황재웅\*\*, 장석진\*, 박성훈\*\*\*

부산대학교 화학공학과\*, 부산대학교 환경기술·산업개발연구센터\*\*

전화(051)510-3049, 팩스(051)512-8563

### Abstract

Lab-scale biofilter was studied for the simultaneous removal of ammonia and hydrogen sulfide in gas mixtures. Compost and polyurethane foam were used as packing materials (50 : 50) and activated sludge from a wastewater treatment plant was inoculated initially. When tested under varying inlet concentrations and empty bed residence time(EBRT), up to 80 ppmv of ammonia and 40 ppmv of hydrogen sulfide could be removed completely at an EBRT of 30 sec. The pH was found to be the key factor governing the biofilter performance.

### 서론

악취 및 폐가스는 우리들의 생활 주변에 산재되어 있는 각종 사업장에서 대부분 처리되지 않은 채 방출되고 있으며 오늘날 매우 심각한 환경문제가 되고 있다. 이중 암모니아와 황화수소는 정유, 제지, 쓰레기 매립장, 폐수처리장, 축산·분뇨 등에서 흔히 발생하는 대표적인 악취 가스이다. 최근 이러한 악취가스를 제거하기 위한 방법으로 생물학적 탈취방법인 biofilter에 대한 연구가 많이 이루어지고 있다. Biofilter는 유기물 담체에 고정된 미생물을 이용하여 오염물질을  $\text{CO}_2$ 와  $\text{H}_2\text{O}$ 로 무취화 시키는 환경 친화적인 방법이다. 뿐만 아니라 종전의 활성탄 흡착, 약액 세정법, 소각 등의 물리·화학적 방법에 비해 설치비 및 운전비가 저렴하고 저농도, 대풍량의 처리에 유리하다는 장점을 가지고 있다(1). 본 연구의 목적은 축산 분뇨 처리시 발생하는 암모니아와 황화수소를 동시에 제거하기 위한 biofilter를 개발하는 것이다. Chung(2) 등이 공塔속도 72초에서 황화수소 58 ppmv, 암모니아 164 ppmv를 95 % 이상의 제거율로 처리했다는 보고가 있다. 그러나 지금까지 황화수소와 암모니아를 동시 분해하는 biofilter에 관한 보고는 많지 않다. 본 연구에서는 먼저 공타속도, 암모니아의 유입농도 등을 변화시키면서 반응기의 제거율, 침출수 내의 질소 화합물 및 pH 변화 등을 조사하여 암모니아 단독 처리시 biofilter 효율을 조사하였다. 또한 운전 56일 이후부터 황화수소를 반응기에 유입함으로써 biofilter를 이용한 황화수소와 암모니아의 동시 제거 가능성과 동시에 제거시 biofilter 성능을 조사하였다.

### 재료 및 방법

Packing material로서 compost와 polyurethane foam을 50 : 50으로 사용하였고 반응기의 활성을 높이기 위해 폐수처리장의 질산조에서 얻은 슬러지를 함께 첨가하였다. Fig. 1은 실험실 규모에서 제작된 biofilter를 보여 주고 있다. 아크릴로 된 반응기는 높이 1.3 m, 내경 0.09 m, 총전총 높이 0.75 m로 제작하였다. 일정량의 수분 공급을 위해 반응기 상단 부분에

서 매일 100 ml의 물을 살수하였다. 암모니아와 황화수소의 농도를 측정하기 위해서 gas detector tube(Gastec Inc., Japan)를 사용하였고 반응기 침출수의 ammonium ion, nitrite 그리고 nitrate 분석은 Auto analyzer 3(Bran+luebbe Inc., Germany)를 사용하였다.

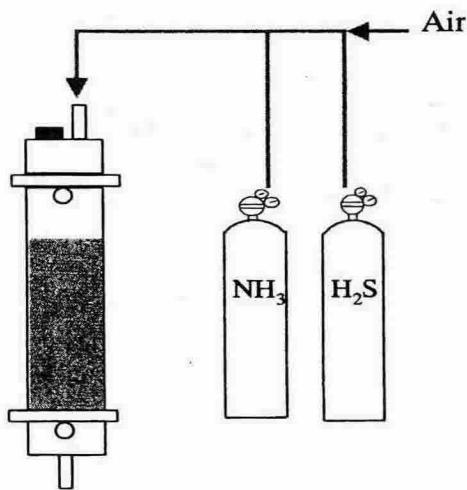


Fig. 1. Schematic diagram of biofilter

### 결과 및 고찰

Fig. 2 (a)는 82일 동안의 biofilter 운전 결과를 보여 주고 있다. 56일 까지는 암모니아를 단독으로 하여 처리하였고 56일 이후부터는 암모니아와 황화수소를 동시 처리하였다. 운전 초기 공탑속도를 60초로 유지하면서 암모니아 유입 농도를 40 ppmv, 80 ppmv(day 9), 그리고 120 ppmv(day 12)로 단계적으로 변화시켰다. 제거율은 최초 50 %에서 점차 상승하기 시작하여 3일 이내에 100 %까지 도달하였다. pH는 초기 8.0에서 점차 감소하여 7.0까지 변하였다. 한편 17일 이후부터는 공탑속도를 30초로 줄이고 암모니아 유입 농도를 80 ppmv로 하여 운전하였다. 이때 반응기의 제거율이 50 %까지 급격히 하락하였고 침출수 pH는 8.9까지 도달하였다(Fig. 2 (b)). 반응기 상단 부분에 인산염 완충액 (pH 6.0) 100 ml을 살수하여 pH를 7.0까지 낮추어 주자 다시 반응기의 제거율은 100 %가 되었다. 37일 이후 다시 공탑 속도를 15초로 줄이고 암모니아 유입 농도를 40 ppmv로 하여 운전하였다. 반응기 침출수의 pH는 더 이상 증가하지 않고 계속 7.0을 유지하였다. Fig. 2 (c)는 반응기 침출수 내의 질소화합물과 황화합물의 농도 변화를 보여 주고 있다. 운전 초기 ammonium ion이 점차 감소하면서 nitrate가 증가하고 있는 것을 볼 수 있다. 운전 17일부터 56일 까지 공탑속도와 유입암모니아 농도를 조절하여 암모니아의 loading rate를  $6 \text{ g-N/m}^3\text{hr}$ 로 계속 유지하였다. 침출수 내의 nitrate의 농도는 운전 25일 까지 계속 증가하다가 이후 1500 mg-N/l를 계속 유지하였다. 운전 56일부터는 암모니아와 황화수소의 동시 처리 결과를 보여주고 있다. 56일에서 65일까지 황화수소와 암모니아의 유입 농도를 각각 40 ppmv로 하여 운전하였다. 암모

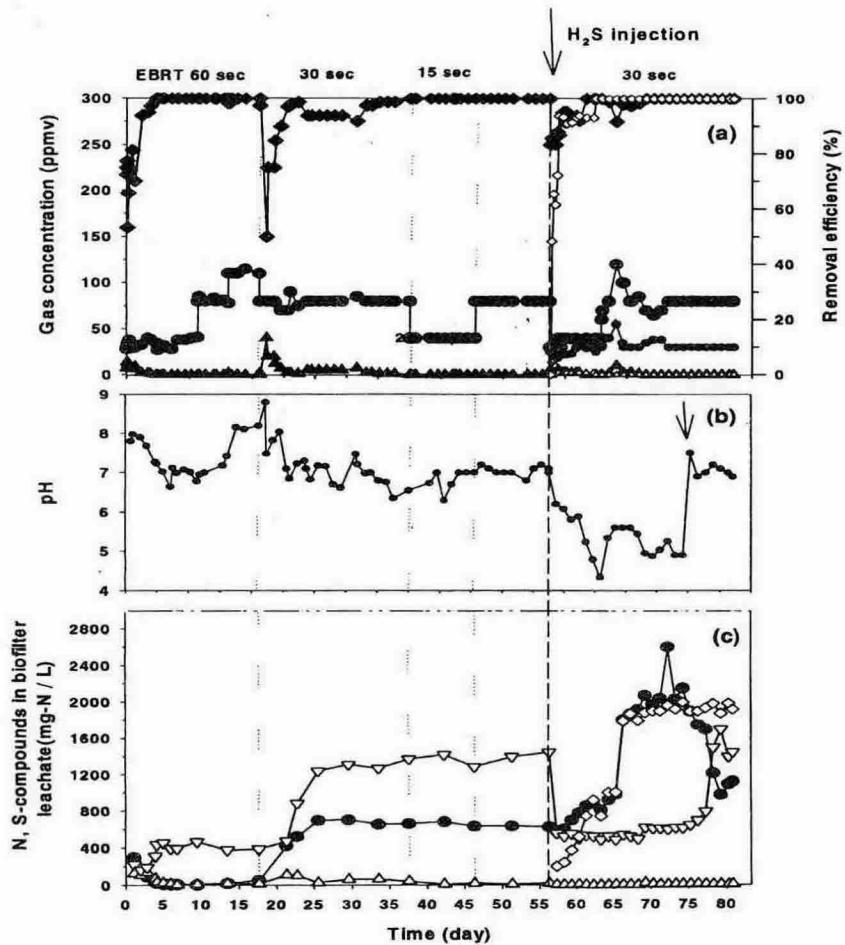


Fig. 2. Time course profile of biofilter operation. (a) Inlet and outlet gas concentration and removal efficiency: (●), inlet ammonia conc.; (▲), outlet ammonia conc.; (◆), ammonia removal efficiency; (○), inlet hydrogen sulfide conc.; (△), outlet hydrogen sulfide conc.; and, (◇), hydrogen sulfide removal efficiency. (b) Variation of pH, 100 ml of phosphate buffer(pH 8.0) was added on day 75 indicated by arrow. (c) Variation of N, S-compounds in the biofilter leachate: (●), ammonium ion; (△), nitrite; (▽), nitrate; and, (◇), sulfate.

니아와 황화수소의 제거율은 동시 주입후 3일 이내에 100 %에 이르렀다. 운전 65일 째에 황화수소의 유입 농도를 40 ppmv로 그대로 유지하면서 암모니아 유입 농도를 80 ppmv로 상승시켰다. 제거율은 암모니아와 황화수소 모두 100 %였다.

Table 1은 정상상태에서의 암모니아와 황화수소의 반응기내 전화율과 물질수지를 보여 주고 있다. 암모니아 단독 처리일 경우 질산화 박테리아에 의한 nitrate와 nitrite로의 전화율

은 48.5 % 였고 22.3 %는 ammonium ion으로 유출되었다. 나머지 29.2 %는 반응기내에 축적되거나 혹은 미생물에 의해 동화된 것으로 판단된다. 따라서 본 반응기는 공塔속도 30초에서 유입 암모니아 농도 80 ppmv까지를 100 %의 제거율로 처리할 수 있었으며 침출수에서 배출되는 ammonium ion 또한 별도의 수처리 장치 등을 설치함으로써 충분히 해결할 수 있을 것으로 생각된다. 암모니아와 황화수소의 동시 제거의 경우 반응기내 sulfate 농도의 증가에 의해 침출수의 pH가 점차 감소하였고 이때 침출수 내에서 ammonium ion의 형태로 나오는 비율이 62.3 %로 급격히 증가하였다. 그러나 반응기내에 인산염 완충액(pH 8.0) 100 ml을 매일 살수하여 반응기내의 pH를 7.0으로 조절하자 이 비율이 30.6 %로 하락하였다. 이것은 황화수소와 암모니아의 동시 제거에 있어 pH 변화가 암모니아의 산화에 매우 큰 영향을 미치고 있음을 말해 주는 것이다. 또한 황화수소의 산화에 의해 발생하는 sulfate는 pH의 변화에 관계없이 약 60 %를 계속 유지하였다.

Table 1. Mass blance of N, S-compounds in the biofilter

Mode*	Time (day)	NH <sub>3</sub> (%)			H <sub>2</sub> S(%)		pH
		Oxidative compounds of NH <sub>3</sub>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> in the leachate	Estimated assimilation	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> in the leachate		
NH <sub>3</sub>	42-56	48.5	22.3	29.2			7.0
	71-74	18.4	62.3	19.3	61.4		5.0
NH <sub>3</sub> + H <sub>2</sub> S	78-81	42.3	30.6	27.1	62.9		7.1

\* Inlet concentrations: 6 g-N/m<sup>3</sup> hr for NH<sub>3</sub>, and 5g-S/m<sup>3</sup> hr for H<sub>2</sub>S

## 요약

암모니아와 황화수소를 동시 제거하기 위한 biofilter가 연구되었다. 암모니아 제거의 경우 공塔속도 30초에서 유입 암모니아 농도 80 ppmv까지 100 %의 제거율을 달성하였다. 암모니아와 황화수소의 동시 제거의 경우 공塔속도 30초에서 유입 황화수소 농도 40 ppmv와 암모니아 농도 80 ppmv가 제거율 100 %로 처리되었고 이 경우 pH의 변화가 암모니아의 산화에 매우 큰 영향을 미침을 알 수 있었다.

## 참고문헌

1. Joseph, S. Devinny, Marc, A. Deshusses, and Todd S. Webster, 1999. Biofiltration For Air Pollution Control. Lewis Publishers.
2. Yieng-Chien Chung, Chihpin Huang, and Ching-Ping Tseng. 2000. Biotreatment of H<sub>2</sub>S-and NH<sub>3</sub>-containing waste gases by co-immobilized cells biofilter. *Chemosphere*. 41: 329-336.