

낮은 C/N비 하수의 외부 탄소원 주입에 따른 생물학적 질소제거에서 미생물 군집 구조특성

윤 조 희

경남대학교 환경공학과

(2008년 7월 7일 접수, 2008년 8월 19일 채택)

The Characteristics of Microbial Population Community Structure by an Addition of External Carbon Source in BNR Process for Low C/N Ratio Sewage Treatment

Cho-Hee Yoon

Department of Environmental Engineering, Kyungnam University

ABSTRACT : This study investigated the characteristics of nitrogen removal and microbial community in a lab-scale A₂O activated sludge process filled with the fluidized media at an aerobic basin. The change of microbial community was monitored based on quinone profiles of activated sludge according to feeding sewage with/without external carbon source. Low C/N ratio(COD_{Cr}/T-N of 1.24) sewage was fed. The obtained results from this study were as follows; Ubiquinone(UQ) in the influent was in the descending order of UQ-8, UQ-10 and UQ-9. Menaquinone(MK) was simpler and much less than UQ. The ratio of UQ/MK was less than 0.41 and the dissimilarity was below 0.26. Without an external carbon source, MK-8 was the dominant species and there were 3 kinds of quinone species and low DQ and EQ values in an anaerobic basin. The ratio of UQ/MK increased to 2.3 in an anoxic basin. In an oxic basin, UQ-7 and UQ-8 were the dominant species. UQ-7 was dominating in suspended microorganisms, while UQ-8 was in attached microorganisms. With an external carbon source addition, MK-8 decreased but UQ-8 increased in an anaerobic basin. So did quinone species, DQ and EQ values. There was also a change in an anoxic basin with the improvement of denitrification. UQ-8 decreased instead, MK-7 and MK-8 increased. UQ/MK ratio decreased 2.3 to 1.4. It means that the dominant species change from *Pseudomonas sp.* to *Bacillus* and *Micrococcus species.* etc. In an oxic basin, UQ-8 replaced UQ-7 in suspended microorganisms and UQ-10 replaced UQ-8 in attached microbials. This seemed related with the growth of *Nitrosomonas* and *Nitrobactor species.*

Key Words : Low C/N Ratio Wastewater, A₂O Process, External Carbon Source, Microbial Community, Quinone

요약 : 본 연구는 호기조에 유동상 접촉여재를 충전한 실험실 규모의 A₂O 공법을 이용하여 낮은 C/N비(COD_{Cr}/T-N = 1.24) 하수 처리시에 외부 탄소원 주입량 여부에 따른 탈질 및 미생물 군집구조 변화특성을 검토하였다. 미생물 군집구조 특성 분석은 퀴논 분석을 이용하여 수행하였다. 실험으로부터 얻어진 결론은 다음과 같다. C/N비가 낮은 유입하수의 미생물 군집특성은 유티퀴논(UQ) 동족체 비율이 UQ-8 > UQ-10 > UQ-9 > 기타의 순으로 감소하고 메나퀴논(MK) 동족체는 UQ 동족체에 비해 존재비(f)가 적고 단순하였다. MK/UQ비는 0.41 이하, 비유사도(D)는 0.26 이하이었다. 외부탄소원 미주입 경우, 각 공정에서의 미생물 군집 특성은 혐기조에서는 퀴논종이 3종으로 MK-8이 우점이고 DQ와 EQ값이 작았다. 무산소조에서는 UQ/MK비가 2.3으로 호기성 미생물의 존재비가 높았다. 호기조에서는 부유성인 경우 우점퀴논이 UQ-7이며, 접촉여재 부착성인 경우 우점 퀴논이 UQ-8이었다. 외부탄소원을 주입한 경우, 미생물 군집 구조특성은 미주입시보다 혐기조에서 MK-8 비가 감소하고 UQ-8비, 퀴논종수, DQ값과 EQ값은 증가하였다. 외부탄소원 주입시 탈질향상은 주로 무산소조에서 일어났으며 UQ/MK비가 2.3에서 1.4으로 감소하였다. 이는 주로 UQ-8의 감소와 MK-7 및 MK-8의 증가에 의한 요인으로 미생물군집구조가 *Pseudomonas sp.*에서 *Bacillus* 및 *Micrococcus sp.* 같은 종의 구조로 변화함을 의미한다. 호기조에서 부유성인 경우 우점퀴논이 UQ-7에서 UQ-8으로, 부착성인 경우 UQ-8에서 UQ-10으로 변화했는데 이는 부유성에서 *Nitrosomonas*가 부착성에서 *Nitrobactor*의 존재비가 증가하였음을 의미한다.

주제어 : 낮은 C/N비 하수, A₂O공법, 외부탄소원, 미생물 군집, 퀴논

1. 서론

C/N비가 낮은 저농도 하수의 질소제거를 위하여 여러 생물학적 탈질공법들이 개발되어, 현재 사용되고 있는 탈질공법으로는 외부유기물 공급(전자공여체)에 의한 C/N비의 조절법이 가장 보편화되어 있으며,¹⁾ 최근에는 황을 이

용한 황 탈질 공법,²⁾ 전기분해의 수소공급을 통한 탈질법^{3,4)} 등도 있다. 그러나 후자의 경우는 pH 조절, 약품비 과다 등 해결해야 할 문제점들을 많이 내포하고 있어, 전자의 방법으로 순수한 약품^{5,6)}을 사용하는 것이 일반적이었으나 최근에는 음식물 쓰레기의 산 발효한 유기산⁷⁾과 슬러지 발효⁸⁾ 등을 통한 유기물 공급법 등도 제안되고 있다. 외부 탄소원을 주입시 안정적인 탈질을 얻기 위해서는 C/N 비 제어,⁹⁾ 산화환원전위(ORP)의 제어법¹⁰⁾ 등이 이용되고 있으나 아직도 정량화되어 있는 사례는 그다지 많지 않기 때

† Corresponding author

E-mail: chyoon@kyungnam.ac.kr

Tel: 055-249-2663

Fax: 055-249-2244

문에 처리의 안정성을 위해서는 처리공정 및 운전기법의 개발이 시급하다. 이러한 문제점을 해결 할 공법중의 하나로 고농도의 미생물을 유지하고 폐수와 미생물과의 접촉을 늘릴 수 있는 유동상 공법이나,¹¹⁾ 미생물상의 특성을 파악하여 탈질에 우수한 미생물군집이 우점이 될 수 있도록 환경조건을 조성하여 제공하여 주는 방법이 제시되고 있다.¹²⁾ 특히, 후자의 접근 방법은 최근 미생물 분류학과 분자생물학의 발전과 기술적인 진보, 기기분석 및 기기의 발전과 사용에 있어서의 편리성 등에 힘입어 분리 동정의 과정 없이도 환경에 있어서의 미생물의 동정, 군집 및 동태 파악이 가능하여 이러한 접근 방법이 가능하게 되었다. 기존의 평판회석 배양법 이외에 최근에는 지방산 분석에 기초한 해석,¹³⁾ 퀴논 분포(quinone profile)을 이용한 해석,^{14~16)} 그리고 핵산 탐침(probe)을 이용한 특정 미생물의 검색과 이들에 대한 동태해석¹⁷⁾ 등이 환경미생물학 및 환경공학에 도입이 활발하게 이루어지고 있다. 이중에 퀴논 분포를 이용한 해석기법은 미생물 동태, 군집의 해석 및 모니터링에도 용이하게 이용할 수가 있어 환경공학에 있어서 이들을 기초한 폐수 처리계의 운전조건 확립 및 문제해결에도 크게 기여하고, 미생물의 군집구조 변화특성과 오염물질의 분해과정을 미생물 구조, 분류학 측면에서 연구한다면 보다 구체적이고 과학적이며 효율적인 폐수처리 운전기법 기술로 적용 가능할 것이다. 이러한 면에서 본 연구에서는 낮은 C/N비 하수 유입시에 A₂O 공법의 탈질 특성을 파악하고 외부 탄소원의 주입량에 따른 각 반응단계별 질소 및 미생물 군집구조 특성 분석을 통하여 각 단위공정에서의 탈질과 미생물군집 구조 변화 특성과의 관계를 검토하였다.

2. 실험 및 분석 방법

2.1. 유입 하수성상

실험기간동안에 사용된 M하수종말처리장의 초침 월류수의 성상은 평균값으로 COD_{Cr} 49.1 mg/L, BOD₅ 17.0 mg/L, TN 39.6 mg/L, TP 2.6 mg/L, SS 25.0 m/L, 염분농도 2.0‰, 알카리도 150.9 mg/L, BOD₅/COD_{Cr} = 0.35, COD_{Cr}/TN = 1.24, BOD₅/TN = 0.43으로 생분해성 유기물이 질소성분에 비하여 극히 낮으며 염분농도가 높은 특징을 가진 하수이었으며, 또한 TN중에는 NO₂⁻-N, NO₃⁻-N이 각각 3.69, 6.20 mg/L로 NO_x⁻-N성분이 높아 상당부분이 질산화가 일어난 하수이었다.

2.2. 실험 장치 및 방법

Fig. 1은 실험장치의 개략도이다. 각 반응조의 유효용적은 혐기조 6.5 L, 무산소조 11.28 L, 호기조 12.72 L, 침전조가 15 L이다. 혐기조와 무산소조는 용액의 완전 혼합을 위하여 교반기를 설치하였고, 호기조는 폴리우레탄으로 된 스폰지형 육면체(길이 1~2 cm) 유동상 접촉여체를 충전하고 벌크액의 완전혼합과 필요한 공기를 공급할 수 있도록

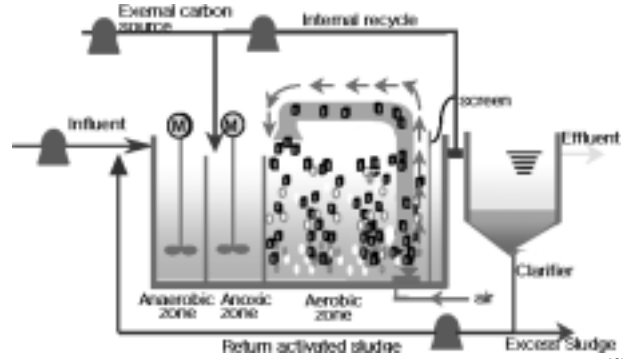


Fig. 1. A schematic diagram of the experimental apparatus.¹⁸⁾

특 하단에 산기장치를 설치하였다. 여재의 유출을 방지하기 위하여 호기조의 유출구에 스크린을 설치하였다. 원수 공급, 외부탄소원 공급, 폭기조에서 무산소조로 행하여지는 내부순환(Internal Recycle: IR)과 침전조에서 혐기조로 행해지는 슬러지 반송(Return Activated Sludge: RAS)을 위하여 정량펌프를 이용하였다. 원수 유입은 110 L/d, HRT는 6.55 hr(An/Ax/Ox = 1.39/2.43/2.73 hr), 내부순환비(Internal Recycle, IR)는 원수대비로 100%, 반송슬러지 순환율(Return Activated Sludge, RAS)은 50%, 호기조의 유동상 접촉여체 충전율은 부피비율로 15%로 하였다. 실험에서 온도, pH와 DO는 제어하지 않았으며 외부탄소원(메탄올) 공급여부에 따른 탈질 실험은 COD_{Cr}/NO₃⁻-N비를 0(이하 run#1)과 2.4(이하 run#1)가 되도록 메탄올을 무산소조의 입구에서 정량펌프로 유입하였다.

2.3. 분석항목 및 방법

시료채취는 유입수와 유출수, 각 반응조의 혼합액에서 2~3일 간격으로 취하였다. 분석항목은 COD_{Cr}, TIN, MLSS과 퀴논으로 퀴논을 제외한 항목은 미국표준시험법¹⁹⁾에 따라 분석하였으며, 퀴논분석은 활성슬러지로부터 추출한 퀴논추출액을 농축하여 HPLC를 이용하여 분석하였다.²⁰⁾ 시료는 분석시까지 냉장 보관하였다. 여기서, TIN는 $\sum(\text{NH}_4^+-\text{N} + \text{NO}_2^--\text{N} + \text{NO}_3^--\text{N})$ 으로 정의하였다.

3. 활성슬러지내 미생물 군집특성 해석^{14,21)}

미생물내에 존재하는 퀴논존재량 및 비율, 비유사도, 클러스터 분석, 다양성, 균등성 등의 해석을 통하여 미생물의 군집특성을 분석하였다.

3.1. 퀴논 존재비 계산

UQ 및 MK은 각각 분자흡광계수가 일정하여 피크면적비가 그대로 퀴논분자종의 존재비가 된다. UQ 및 MK의 존재비를 식 (1)과 (2)에 의해 미생물군의 퀴논분자종의 비율로 군집분포의 표시가 가능하다.

$$f_{kp} = \frac{A_{kp}/14.4}{\sum(A_{kp}/14.4) + \sum(A_{km}/17.4)} \quad (1)$$

$$f_{km} = \frac{A_{km}/17.4}{\sum(A_{kp}/14.4) + \sum(A_{km}/17.4)} \quad (2)$$

여기서, f 는 퀴논의 존재비(-)이고, A 는 피크면적(peak area), k_p 는 UQ 분자종 k , k_m 는 MK 분자종 k 이다. 분자흡광계수는 UQ의 경우 $14.4 \text{ mM}^{-1}\text{cm}^{-1}$ 이고, MK의 경우 $17.4 \text{ mM}^{-1}\text{cm}^{-1}$ 이다.

3.2. 비유사도(Dissimilarity, D)

존재비에 의한 해석은 활성슬러지내의 미생물군의 존재비를 표시할 수는 있다. 그러나 동태변화의 추적에서는 분류군 변화의 가시화만 가능할 뿐, 변화의 정도는 표시되지 않기 때문에 비유사도를 이용하여 두 개의 퀴논분포간에 있어서 비유사성을 수량 해석할 수 있고, 차이를 정량적으로 표현할 수 있다. 퀴논분포의 비유사도(D)는 식 (3)으로 정의한다.

$$D(i, j) = \frac{1}{2} \sum_{k=1}^n |f_{ki} - f_{kj}| \quad (3)$$

여기서, i 와 j 는 미생물군을 나타내며, f_{ki} 와 f_{kj} 는 각각 i 와 j 의 퀴논 분자종 k 의 존재비(-)를 나타낸다. 비유사도 값이 0인 경우 두 개의 퀴논분포가 같고, 반대로 1은 완전히 다르다는 것을 의미한다.

3.3. 클러스터(Cluster)분석

비유사도는 스칼라(scalar)량으로 내용에 대해서는 검토할 수 없기 때문에 클러스터 분석을 행함으로써 비유사성의 내용을 구분 할 수 있다. 클러스터 분석은 서로 다른 성질을 가진 사상(값)으로부터 유사한 것을 그룹화해 가는 방법으로 다른 성질의 사상(값)에 대해서 측정도가 가까운 사상(값)을 유사한 사상으로 그룹화하여 모든 사상에 대해서 그룹화 할 수 있다. 여기서 측정도는 각 사상과의 거리 수량화는 비유사도를 이용한다. 그룹 사이의 측정도는 비유사도를 이용한다. 이것은 각 클러스터 사이의 측정도로 대상사이의 평균값으로 구하며 다음 식 (4)과 같다.

$$D_{uv} = \frac{n_u D_{ut} + n_v D_{vt}}{n_u + n_v} \quad (4)$$

클러스터 u 와 v 를 이용하여 클러스터 w 를 만들 때, 클러스터 w 와의 임의의 클러스터 t 와의 측정도를 D_{wt} 로 한다. 클러스터 u 와 클러스터 v 에 대한 임의의 클러스터 t 의 측정도를 D_{ut} , D_{vt} 로 한다. n_u , n_v 는 각각의 클러스터에 포함된 대상의 수이다. 두 개의 퀴논분포가 같으면 비유사도가 0이고 완전히 다르다면 1이다.

3.4 다양성 지표(Diversity Index of the Respiratory Quinone, DQ)

퀴논분포의 지표는 우점퀴논 분자종과 그것의 존재비, 각 분자종의 분포 양상, UQ와 MK의 존재비 등이다. 미생물 다양성 지표는 우점퀴논 존재비와 분자종의 분포 양상에 기초한다. 퀴논분포를 지표로 한 미생물 혼합배양계의 다양성을 나타내는 지표를 다음과 같다.

$$DQ = \left(\sum_{k=1}^n \sqrt{f_k} \right)^2 \quad (5)$$

여기서, f_k 는 퀴논 분자종 k 의 존재비(-)이고, n 은 존재비가 0.001 이상의 퀴논 분자종의 수이다. $f_k < 1$ 임으로 $f_k^{1/2} < f_k$ 로 되고, 또한 f_k 가 작을수록 $f_k^{1/2} / f_k$ 값이 크다. 이 때문에 존재비가 작은 것일수록 보다 하나로 모일 수가 있다. 미생물 다양성 지표 값은 퀴논 분자종의 수가 많을수록 크게 되며, 전부의 분자종이 평등하게 존재할 때 분자종의 수와 동등하다.

3.5. 균등성 지표(Equitability of distribution of quinone species, EQ)

균등성지표(EQ)는 미생물 다양성 지표(DQ)를 분자종의 수로 나눈 것이다. 존재하는 미생물이 차지하고 있는 비율의 균등성을 나타낸다. 균등성 지표는 다음과 같이 정의한다.

$$EQ = \frac{DQ}{n} \quad (6)$$

여기서, n 는 퀴논종의 수이다. EQ가 감소할수록 존재하는 종분포의 균등성이 적다. 이는 어느 종(우점종)에 편중되어 있으며 1에 접근할수록 존재하는 분자종의 균등도가 높아 존재하는 미생물이 균등하게 분포하고 있음을 의미한다.

4. 결과 및 고찰

4.1. 외부탄소원 주입여부에 따른 처리 특성

운전조건별 유입수 및 유출수의 유기물(COD_{Cr}), 질소(TIN) 농도 및 처리효율을 Table 1에 나타내었다. 유기물과 질소의 제거효율이 외부탄소원을 주입하지 않은 경우(run#1) 각각 49.2%와 17.8%이고 외부탄소원을 주입한 경우(run#2)는 각각 28.9%와 82.9%을 나타내고 있다. 유기물의 처리효율이 외부탄소원을 주입하지 않은 경우가 주입한 경우보다 약 1.7배 높은 것은 실험당시 run#1(COD_{Cr}; 37.6 mg/L)의 경우가 run#2(COD_{Cr}; 24.2 mg/L)보다 유입수의 유기물 농도가 높았기 때문이며 유출수의 유기물 농도는 각각 19.1 mg/L과 17.2 mg/L으로 거의 일정하게 유지하여 유출되었다. Run#1에서는 유출수 평균 NH₄⁺-N의 농도는 2.6 mg/L로 안정적인 유출이 일어나지만 탄소원 부족으로 인한 탈질효율 저하로 유출수 NO_x-N농도가 24.3 mg/L로 높았다. TIN제거효율은 17.8% 정도로 유출수 TIN중 대부분이 NO₃-N

이었다. Run#2에서는 유출수 평균 NH₄⁺-N와 NO_x⁻-N농도는 각각 0.5 mg/L와 4.4 mg/L로 run#1에 비하여 낮았다. TIN의 제거효율은 run#1(17.8%)에 비해 run#2(82.9%)가 약 4.6배 높았다. 유출수 중에 잔존하는 TIN농도는 각각 26.9 mg/L과 4.8 mg/L으로 대부분이 NO_x⁻-N으로 4.4 mg/L이었다.

Table 2는 각 공정에 존재하는 미생물량을 나타낸 것이다. 표에서 나타낸 바와 같이 혐기조/호기조에서의 미생물량이 유사함에도 탈질효율이 차이가 있는 것은 탈질에 이용될 하수내의 유기물의 존재 유무와 함께 미생물 군집 구조특성에 따라서도 크게 영향을 미치는 것으로 판단된다. Run#1의 경우, 반응조에서의 평균 MLSS의 농도는 식종(MLSS 6,250 mg/L)직후 급격히 감소하여 약 1,900 mg/L 전후에서 안정적인 상태를 유지하였으며 질소처리효율을 높이기 위해 외부탄소원인 메탄올을 공급한 run#2의 경우, 1,860 mg/L 정도를 유지하여 유사하였으나, 호기조의 부착성 미생물은 각각 20.3 g과 55.8 g으로 2배 이상의 차이를 보였다. Run #1과 #2의 경우는 총 부유성 미생물량은 82 g 전후로 유사하나 부착성 미생물양에서는 2배 이상의 차이를 보이고 있어 외부 유기물 유입시에 미생물 증가는 호기조의 접촉여재에서 주로 일어나고 있음을 알 수 있었다.

4.2. 유입하수 미생물 군집 구조 특성

실험에 사용된 유입수(하수종말처리장의 초침일류수)에 대한 미생물 군집 특성을 조사하기 위하여 분석한 퀴논결과를 Table 3에 정리하였다. 주어진 값은 존재비로 나타낸 값이다. 퀴논분석결과, 우기시 채취한 하수를 제외하고는 UQ 동족체의 비율은 UQ-8 > UQ-1 > UQ-9 > 기타의 순으로 감소하였고 하수에서 MK 분포는 활성슬러지와 비교하여 아주 단순하며, 주로 MK-6가 우점종이었으며 우기시 유입

Table 1. Treatment performance of COD_{Cr} and nitrogen with/without external carbon addition

	items	influent [mg/L]	effluent [mg/L]	removal efficiency[%]
run#1	COD _{Cr}	28.1 ~ 52.0(37.6)	13.2 ~ 28.0(19.1)	49.1
	NH ₄ ⁺ -N	15.2 ~ 22.1(18.8)	1.0 ~ 6.3(2.6)	86.3
	NO _x ⁻ -N	4.1 ~ 29.8(13.8)	17.0 ~ 35.1(24.3)	-75.4
	TIN	23.0 ~ 40.9(32.7)	20.0 ~ 35.9(26.9)	17.8
run#2	COD _{Cr}	21.0 ~ 31.0(24.2)	15.0 ~ 22.0(17.2)	28.9
	NH ₄ ⁺ -N	15.4 ~ 21.4(18.9)	0.3 ~ 0.6(0.5)	97.6
	NO _x ⁻ -N	3.7 ~ 12.8(9.2)	3.0 ~ 6.15(4.4)	52.5
	TIN	19.1 ~ 31.8(28.0)	3.4 ~ 6.75(4.8)	82.9

Table 2. Variation of biomass amount in each basin(unit ; g)

	anaerobic	anoxic	oxic		total
			suspended	attached	
run#1	18.1	22.6	21.5	20.3	82.5
run#2	17.8	21.3	22.7	55.8	117.8

하수의 MK/UK비가 낮은 것은 우수가 많이 유입되어 하수의 농도가 많이 희석되었기 때문으로 사료되었다. 이러한 결과는 다른 연구자의 연구결과와 일치하였다.²¹⁾ MK-6은 주로 그람 양성(gram-positive) 박테리아의 일부 종뿐만 아니라, *Cytophaga-Flavobacterium*, *Planctomyces* 등의 미생물에서 우점 퀴논으로 존재하는 것으로 알려져 있다.^{17,23)} 실험 하수의 MK/UQ비가 0.30~0.43범위로 일반 하수의 0.60~1.00범위보다 낮은 것은 유기물성분이 낮고 질산화가 진행되었기 때문으로 판단된다. 하수에서 검출된 우점 UQ-8은 모든 *Proteobacteria*의 중에서 인지되는 UQ로, 이를 우점으로 하는 박테리아는 활성슬러지의 박테리아뿐만 아니라 하수의 박테리아에서도 중요한 부분을 구성하는 것으로 알려져 있다.²⁰⁾

Table 4는 하수의 비유사도(D)를 나타낸 것이다. 본 실험하수의 경우 비유사도가 0.260 이하로 기존에 알려진 일반하수의 비유사도값 0.184 이하²⁰⁾보다 높은데, 본 실험하수에 함유되어 있는 미생물종이 기존하수에 함유된 미생물종 보다 많음을 의미하는 것으로 이는 사용하수가 낮은 유기물 농도를 가지고 있기 때문으로 사료된다.

Table 3. Quinone composition into influent sewage collected

	dry weather			wet weather	
Ubiquinone					
UQ-7	-	-	0.010	-	0.006
UQ-8	0.501	0.479	0.487	0.494	0.613
UQ-9	0.093	0.109	0.102	0.093	0.223
UQ-10	0.115	0.112	0.114	0.180	0.114
Menaquinone					
MK-6	0.076	0.160	0.160	0.122	0.019
MK-7	0.077	0.057	0.042	0.050	0.007
MK-8	0.063	0.053	0.036	0.013	0.008
MK-9	0.016	-	0.004	-	-
MK-8(H ₂)	-	0.022	0.032	0.023	0.005
MK-9(H ₂)	0.032	-	-	0.013	0.002
MK-8(H ₄)	-	0.009	0.014	0.009	-
MK-9(H ₄)	0.025	-	-	0.001	-
MK-10(H ₄)	-	-	-	-	-
etc.	-	-	-	-	-
MK/UQ	0.409	0.429	0.403	0.302	0.044

Table 4. Quinone dissimilarities(D(t₁,t₂) values) in sewage samples

Sample	d.w1	d.w2	d.w3	d.w4	w.w1
d.w 1		0.130	0.148	0.143	0.254
d.w 2			0.040	0.100	0.260
d.w 3				0.097	0.251
d.w 4					0.256
w.w 1					

4.3. 단위공정별 미생물 군집 구조 특성

4.3.1. 외부탄소원 미주입시

외부탄소원 미주입시 각 단위공정별 미생물 군집구조를 Table 5에, 퀴논분포를 해석하여 Table 6에 정리하였다. 각 공정별 퀴논분포에서 UQ의 경우, 혐기공정에서는 UQ-10만이 나타나고, 그 외 반응조에서는 다양한 UQ종이 나타났다. 호기공정의 부유성 미생물의 퀴논은 UQ-7이 우점퀴논으로 나타난 반면, 무산조와 호기조의 접촉여재, 유출수의 미생물은 하수나 일반 활성슬러지에서와 같이 UQ-8이 우점 UQ로 나타났다. MK의 경우, 혐기조에서는 2종의 MK가 나타났으나, 무산소조, 호기조, 호기조 접촉여재, 유출수의 미생물에서 퀴논 종은 각각 9종, 11종, 11종, 6종 등으로 혐기조에 비해 여러 종이 나타났다.

Table 6에서 DQ값은 혐기조에서 1.58를 제외하고 다른 반응조(무산조/호기조)에서 큰 값(8.23/7.82)을 나타내었는데 이것은 퀴논종(미생물종)이 다양하다는 의미이다. 각 공정에서 부유성인 경우 EQ값이 0.52~0.70의 범위이고, 호기조 접촉여재의 경우는 EQ가 0.38 값을 가지고 있어 부착성 미생물이 호기조의 부착성 미생물보다 미생물 종이 균등성이 높았으며 부착성 미생물에서 종의 편재현상이 가장 심하였다. UQ/MK의 비에서 1보다 작은 경우는 혐기성 미생물이 많이 존재하고 1보다 큰 경우는 호기성 미생물의 존재비가 많다는 것을 의미한다. 혐기조에서 UQ/MK비가

Table 5. Quinone composition of run#1 without external carbon addition

	anaerobic	anoxic	oxic	media	effluent
Ubiquinone					
UQ-7	-	-	0.587	-	-
UQ-8	-	0.473	0.162	0.639	0.473
UQ-9	-	0.090	0.021	0.023	0.110
UQ-10	0.038	0.135	0.042	0.217	0.248
Menaquinone					
MK-6	0.008	0.114	0.058	0.038	0.046
MK-7	-	0.034	0.023	0.020	0.030
MK-8	0.954	0.023	0.013	0.009	-
MK-9	-	-	-	-	-
MK-10	-	-	-	0.002	-
MK-11	-	0.006	0.001	-	-
MK-12	-	-	0.004	0.001	-
MK-7(H ₂)	-	0.032	-	0.003	-
MK-8(H ₂)	-	0.034	-	0.015	0.034
MK-9(H ₂)	-	0.035	0.032	0.011	0.018
MK-10(H ₂)	-	-	0.003	0.007	-
MK-11(H ₂)	-	-	0.002	-	-
MK-8(H ₄)	-	0.015	0.017	-	0.026
MK-9(H ₄)	-	0.008	0.019	0.009	0.016
MK-10(H ₄)	-	-	-	0.005	-
etc.	-	-	0.017	-	-

Table 6. Quinone profiles of process for run#1

	anaerobic	anoxic	oxic	media	effluent
UQ/MK	0.010	2.319	4.319	7.264	4.882
QC*[μmol/L]	6.10×10 ⁻³	3.94×10 ⁻²	1.26×10 ⁻¹	1.27×10 ⁻¹	1.40×10 ⁻³
DQ	1.590	8.229	7.822	5.641	6.307
EQ	0.530	0.686	0.522	0.376	0.701
n	3	12	15	15	9
fd	0.954	0.473	0.587	0.639	0.473
D**	MK-8	UQ-8	UQ-7	UQ-8	UQ-8

* Quinone Contents, ** Dominant quinone

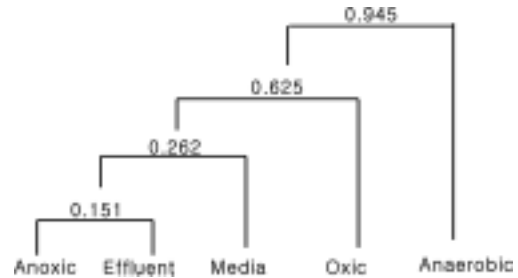


Fig. 2. Cluster analysis of quinone profiles based on the dissimilarity(run#1).

0.01로 혐기성 미생물이 많이 존재하였으며, 혐기조를 제외한 공정에서는 UQ/MK비가 2.3 이상으로 호기성 미생물이 혐기성 미생물보다 많이 존재하였고, 특히 호기조 접촉여재에서 UQ/MK값이 7.26로 호기성 미생물의 존재비가 가장 높았다.

Fig. 2는 run#1의 미생물군의 비유사성을 수치적으로 해석하여 군집의 차이점을 분석한 클러스터 분석이다. 비유사도가 1에 가까우면 두 개의 퀴논종 분포가 완전히 다르다는 것을 의미한다. 무산소조, 유출수의 퀴논분포는 비유사도가 0.15로 퀴논분포가 가장 유사하였으며, 혐기조와 다른 반응조는 비유사도가 0.95로 퀴논종 분포가 가장 다르게 나타났다.

4.3.2. 외부탄소원 주입시

외부탄소원 주입시 각 반응조별 미생물 군집구조를 Table 7에 퀴논분포를 해석하여 정리한 것을 Table 8에 나타내었다.

무산소조에 외부탄소원인 메탄올을 주입(C/N = 2.4)하여 미생물 군집구조 변화를 분석한 결과이다. 혐기조, 무산소조, 호기조에서는 UQ-8, 접촉여재, 유출수에서는 UQ-10이 우점 미생물이었다. 혐기조, 무산소조, 호기조에서 DQ는 8.8로 퀴논종이 혐기조에서 미주입시보다 다양하나, 무산소, 호기조에서는 유사하며, EQ는 0.7 정도로 각 공정에서 퀴논종이 균일하고 우점종(UQ-8)이 차지하는 몰분율도 약 0.35로 유사하였다. 각 공정에서 나타난 퀴논(미생물) 종수는 UQ 4종, MK 8종으로 총 12종이 나타났다. 무산소조에서 UQ/MK비가 2.3(run#1)에서 1.4(run#2)로 낮아졌는데 이는 UQ-8은 줄고, MK-7과 MK-8이 증가한 결과로, 이

를 미생물 종의 변화로 보면 *Pseudomonas sp.*는 줄고 *Bacillus* 및 *Micrococcus sp.*가 증가한 현상으로 설명할 수 있다. 한편, 접촉여재와 유출수에서의 퀴논 종수는 총 9종으로 UQ 6종과 MK 3종이 존재하였으며 이때 우점 퀴논(UQ-10)의 몰분율은 약 0.4으로 같았다. UQ/MK비는 접촉여재에서는 8.9, 유출수에서는 4.7로 호기성 미생물이 증식하고 있었다. 접촉여재에서는 DQ 5.8, EQ 0.6으로 퀴논종의 다양성과 균일성이 낮았으며 유출수에서는 DQ가 6.4, EQ는 0.7로 퀴논종의 다양성은 다른 공정(혐기,무산소,호기)보다 낮았으나 균일성은 타 공정과 유사한 값을 가지고 있었다.

Fig. 3은 run#2의 미생물군의 비유사성을 수치적으로 해석하여 군집의 차이점을 분석한 클러스터 분석이다. Run#2

Table 7. Quinone composition of run#2 with external carbon addition

	anaerobic	anoxic	oxic	media	effluent
Ubiquinone					
UQ-7	0.004	0.004	0.010	-	-
UQ-8	0.368	0.330	0.376	0.304	0.283
UQ-9	0.150	0.158	0.175	0.178	0.136
UQ-10	0.104	0.092	0.116	0.418	0.406
Menaquinone					
MK-6	0.073	0.009	0.059	0.018	0.040
MK-7	0.076	0.099	0.060	0.021	0.048
MK-8	0.073	0.100	0.067	0.022	0.014
MK-9	-	-	-	-	-
MK-10	-	-	-	-	-
MK-11	-	-	-	-	-
MK-12	-	-	-	-	-
MK-7(H ₂)	-	-	-	-	-
MK-8(H ₂)	0.057	0.077	0.053	0.017	0.028
MK-9(H ₂)	0.049	0.066	0.043	0.019	0.027
MK-10(H ₂)	-	-	-	-	-
MK-11(H ₂)	-	-	-	-	-
MK-8(H ₄)	0.037	0.053	0.033	-	0.018
MK-9(H ₄)	0.008	0.011	0.007	0.003	-
MK-10(H ₄)	0.001	0.002	0.001	-	-
etc.	-	-	-	-	-

Table 8. Quinone profile analysis for run#2

	anaerobic	anoxic	oxic	media	effluent
UQ/MK	1.671	1.400	2.092	8.909	4.708
QC*[$\mu\text{mol/L}$]	7.63×10^{-2}	7.24×10^{-2}	4.32×10^{-2}	1.02×10^{-1}	1.97×10^{-3}
DQ	8.840	8.848	8.752	5.795	6.455
EQ	0.737	0.737	0.729	0.644	0.717
n	12	12	12	9	9
fd	0.368	0.330	0.376	0.418	0.406
D**	UQ-8	UQ-8	UQ-8	UQ-10	UQ-10

* Quinone Contents, ** Dominant quinone

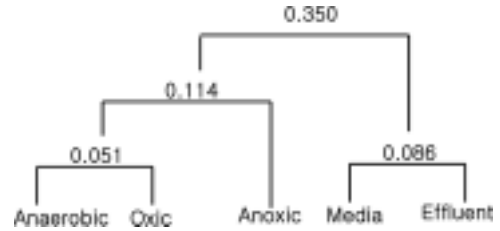


Fig. 3. Cluster analysis of quinone profiles based on the dissimilarity(run#2).

의 공정에서는 혐기조와 호기조의 비유사도가 0.05, 무산소조와의 비유사도는 0.11이었다. 접촉여재와 유출수의 비유사도는 0.09이며, 전체 공정의 비유사도는 0.35로 나타났다. 전체 공정의 비유사도가 외부 탄소원 미주입시 값 0.95보다 낮은 값을 가지고 있었다. 이는 퀴논(미생물) 종이 전 공정에서 run#1에 비하여 run#2가 유사한 특성을 가지고 있음을 의미한다.

4.4. 호기공정의 부유성/부착성 미생물 군집 특성

4.4.1. 외부탄소원 미주입시

Fig. 4(a)는 run#1의 호기조에서 부유성과 부착성 미생물에서 퀴논분포 특성을 비교하여 나타낸 것이다. 부유성 미생물 UQ-7의 몰분율이 부착성 미생물보다 높고, 부착성 미생물 UQ-8, UQ-10의 몰분율이 부유성 미생물보다 높았다. Run#1의 경우, 호기공정에서 부유성과 부착성 미생물에서 모두 UQ를 가진 호기성 미생물이 우점을 차지하고 있었다. 특히 부유성에서 보다는 부착성 미생물내에 질산성 미생물인 *Nitrosomonas*(UQ-8)와 *Nitrobacter*(UQ-10)가 더 많이 존재하는 것으로 나타났다. 이는 낮은 유기물 유입으로 중속영양세균의 성장이 적기 때문으로 추정되었다.

4.4.2. 외부탄소원 주입시

Fig. 4(b)는 run#2의 호기조에서 부유성과 부착성 미생물에서 퀴논분포 특성을 비교하여 나타낸 것이다. 부유성 미생물중에서 UQ는 UQ-7은 줄고 UQ-8이 증가하였으며, MK는 MK-8, MK-6, MK-7의 순으로 몰분율이 부착성 미생물보다 높게 나타났다. 부착성 미생물중에서는 UQ-8은 거의 없어지고 UQ-10가 우점 퀴논으로 대부분을 차지하고 있었다. 이러한 퀴논 종의 분석 결과를 볼 때 외부 탄소원을 주입시에 부유성 미생물의 경우, 암모니아성 질소를 아질산성 질소로 변환시키는 *Nitrosomonas*가 우점 종이 되고, 부착성 미생물의 경우 우점 종이 UQ-8에서 UQ-10 종으로 전환되어 *Nitrosomonas*에서 아질산성 질소를 질산성 질소로 변환시키는 *Nitrobacter*의 종이 우점 종이 되었음을 의미한다. 부착성 미생물의 경우, UQ-10이외에는 다른 퀴논종이 차지하는 몰분율이 작아 미생물 종의 다양성이 적었으나, 부유성 미생물의 경우 많은 퀴논종이 분포하여 다양한 미생물 종이 많이 존재하였다.

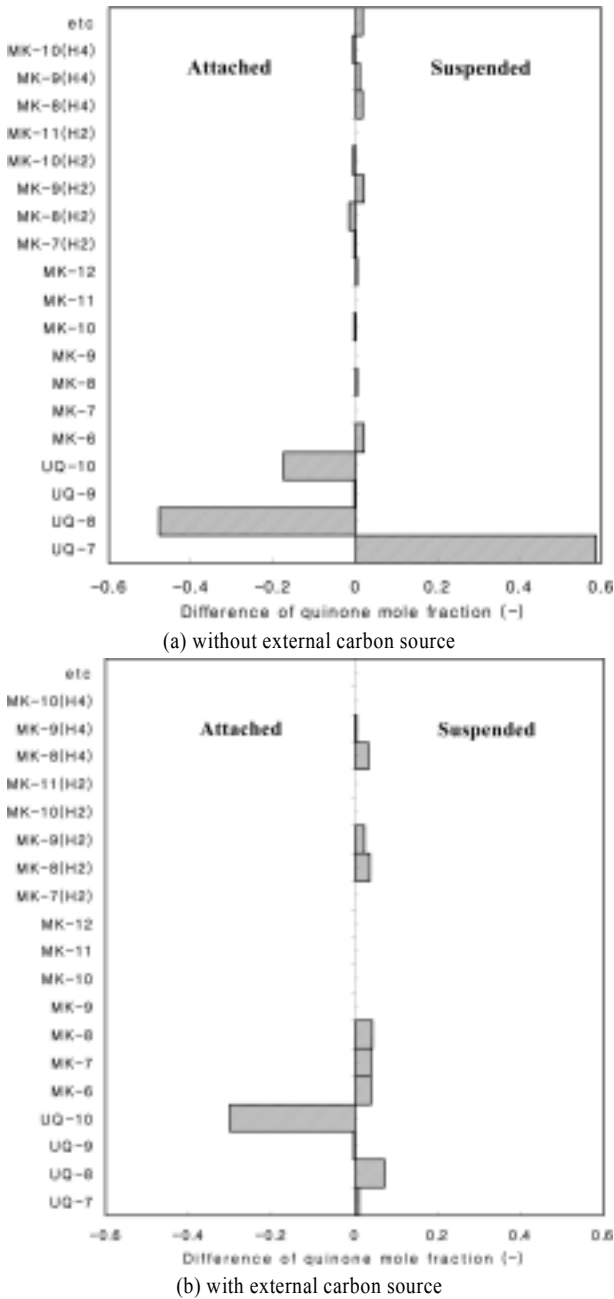


Fig. 4. The differences in quinone composition between suspended and attached microbials.

5. 결론

본 연구는 호기조에 유동상 접촉여재를 충전한 A₂O시스템을 이용하여 낮은 C/N비 하수를 대상으로 시스템의 질소제거 특성을 파악하고, 외부탄소원 주입에 따른 탈질 및 미생물군집 특성을 분석하여 얻어진 결론은 다음과 같다.

1) 유입하수에서 미생물 군집특성으로 UQ 동족체의 비율은 UQ-8 > UQ-10 > UQ-9 > 기타의 순으로 감소하고 MK 동족체는 UQ 동족체에 비해 존재비가 적고 간단하였다. MK/UQ비는 0.43 이하, 비유사도는 0.26 이하이었다.

2) 외부탄소원 미주입시 미생물 군집 특성은 혐기공정에서 3종류의 퀴논을 가지고 MK-8이 우점 퀴논이었으며 DQ와 EQ값이 작았다. 무산소공정에서 UQ/MK비가 2.3으로 호기성 미생물의 존재비가 높았다. 호기공정에서 부유성 미생물의 경우는 UQ-7이 우점퀴논으로 존재비가 0.59이었다. 호기공정 접촉여재의 부착성 미생물의 경우 UQ-8이 우점퀴논으로 DQ 값은 컸으나 EQ 값은 작았다.

3) 외부탄소원 주입시 미생물 군집 특성은 미주입시보다 혐기공정에서 MK-8 비가 감소하였으며 UQ-8비, 퀴논종수, DQ값과 EQ값이 증가하였다. 무산소공정에서 외부탄소원 주입시(UQ/MK = 1.4) 미주입시(UQ/MK = 2.3)보다 UQ-8 비는 줄고 MK-7 및 MK-8 비가 늘었다. 이는 *Pseudomonas sp.*는 줄고 *Bacillus* 및 *Micrococcus sp.* 등의 종이 증가함을 의미한다.

4) 호기공정에서 부유성 미생물인 경우 외부탄소원 주입시 미주입시(UQ-7이 우점종)보다 UQ-8의 존재비가 높고 우점종이었다. 이는 질산화 미생물인 *Nitrosomonas*의 종이 성장했기 때문이다. 부착성 미생물인 경우 외부탄소원 미주입시에는 UQ-8이 우점종이었으나, 주입시에는 UQ-10이 우점 종으로 *Nitrobactor*가 우점종으로 존재하였다. UQ/MK 비는 외부탄소원 주입여부에 관계없이 7.0 이상으로 호기성 미생물의 존재비가 높았다.

사 사

본 연구는 2006학년도 경남대학교 학술진흥연구비에 의해 수행되었습니다. 그리고, 연구에 도움을 준 서울산업대학교 임병란 박사님과 국립환경과학원 김민수 선생님께 감사드립니다.

참고문헌

1. 이종현, 고은옥, 김미화, 박태주, "ICBR 공법을 이용한 고농도 폐수의 C/N비와 내부반송율이 질소제거에 미치는 영향," 대한환경공학회지, **21**(8), 1529~1536(1999).
2. Saburo Matsui, et. al., "A new method of sulphur denitrification for sewage treatment by a fluidized bed reactor," *Water Sci. Technol.*, **18**, 353~362(1986).
3. Kuroda, M., et. al., "Simultaneous oxidation and reduction treatments of polluted water by a bio-electro reactor," *Water Sci. Technol.*, **34**(9), 101~108(1996).
4. Kiss, I., et. al., "Hydrogen-dependent denitrification: preliminary assessment of two bio-electrochemical systems," *Water Sci. Technol.*, **42**(1-2), 373~379(2000).
5. Puznava, N., et. al., "Sample control strategies of methanol dosing for post-denitrification," *Water Sci. Technol.*, **38**(3), 291~297(1998).
6. Mohseni-Bandpi, A., et. al., "Denitrification of groundwater using acetic acid as a carbon source," *Water Sci. Technol.*, **40**(2) 53~59(1999).

7. 신항식, 채소룡, 남세용, 강석태, 백병천, “하수처리에서 음식물 산발효액이 영양염류 제거에 미치는 영향(I),” *대한환경공학회지*, **24**(6), 1023~1031(2002).
8. 민경석 등, “일차슬러지, 분뇨 및 축산폐수를 혼합한 산발효,” *대한토목공학회지*, **21**(1-B), 75~83(2001).
9. 윤주환 등, “2단 탈질여과공정에서 외부탄소원 주입율과 온도 영향,” *한국수질보전학회지*, **15**(1), 203~215(1999).
10. Mauret, M., et. al., “Process using DO and ORP signals for biological nitrification and denitrification : validation of a food-processing industry wastewater treatment plant on boosting with pure oxygen,” *Water Sci. Technol.*, **44**(2-3), 163~170(2001).
11. 박태진 등, “A₂O공정에서의 섬모상 담체 사용 유무에 따른 하수의 질소·인 제거에 관한 연구,” *한국환경보건의학회지*, **26**(3), 69~75(2000).
12. Tunlid, A. and White, D. C., “Biochemical analysis of biomass, community structure, nutritional status and metabolic activity of microbial communities in soil,” In *Soil Biochemistry*, 7, Marcel Dekker, New York, pp. 229~262(1992).
13. Madsen, E. L., “A critical analysis of methods for determining the composition and biogeochemical activities of soil microbial communities in situ,” In *Soil Biochemistry*, 9, Marcel Dekker, New York, pp. 287~370(1996).
14. Hu, H. Y., et al, “Quantitative analyses of the change in microbial diversity in a bioreactor for wastewater treatment based on respiratory quinone,” *Water Res.*, **33**(15), 3263~3270(1999).
15. Hu, H. Y. et. al, “Respiratory quinone profile as a tool for refractory chemical biodegradation study,” *Water Sci. Technol.*, **35**(8), 103~110(1997).
16. Hiraishi, A., “Respiratory quinone profile as tools for identifying different bacterial populations in activated sludge,” *J. Gen. Appl. Microbiol.*, **34**, 39~56(1988).
17. Nakagawa, Y., et. al., “Phylogenetic diversity of the genus Cytophaga revealed by 16rRNA sequencing and menaquinone analysis,” *J. Gen. Microbiol.*, **139**, 1155~1161(1993).
18. 윤조희, 김민수, 김승현, “유동여재 A₂O공정에서 외부탄소원을 이용한 낮은 C/N비 하수의 생물학적 질소제거 특성,” *대한환경공학회지*, **28**(6), 687~692(2006).
19. Standard Methods for the examination of water and wastewater. 20th edn, APHA, AWWA, WEF, Washington DC, USA(1998).
20. Hirashi, A., et. al, “Comparative lipoquinone analysis of influent sewage and activated sludge by high-performance liquid chromatography and photodiode array detection,” *J. Gen. Appl. Microbiol.*, **42**, 457~469(1996).
21. Hiraishi, A., “Isoprenoid quinone profiles for identifying and classifying microorganisms in the environment,” In *Recent Advances in Microbial Ecology*, ed. by Hattori, T., Ishida, Y., Maruyama, Y., Morita, R. Y., and Uchida, A., Japan Scientific Societies Press, Tokyo, pp. 663~668(2001).
22. Hu, H. Y., et al., “Studies of microbial accimilation to hard chemicals on the basis of respirometry quinone profiles and kinetic analyses,” *Water Sci. Technol.*, **34**(5/6), 249~256(1996).
23. Oyaizu, H., et al, “Chemotaxonomic and phenotypic characterization of the strain of species in the Flavobacterium-Cytophaga complex,” *J. Gen. Appl Microbiol.*, **27**, 57~107(1993).