



# 하폐수처리에서 질소 제거를 위한 미생물 전기화학 기술의 동향

## Trends of microbial electrochemical technologies for nitrogen removal in wastewater treatment

채형원<sup>1</sup>·최용훈<sup>2</sup>·김명운<sup>3</sup>·김영진<sup>4</sup>·정석희<sup>1,\*</sup>

Hyungwon Chai<sup>1</sup>·Yonghoon Choi<sup>2</sup>·Myeongwoon Kim<sup>3</sup>·Youngjin Kim<sup>4</sup>·Sokhee P. Jung<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>전남대학교 환경에너지공학과, <sup>2</sup>전남대학교 전기공학과, <sup>3</sup>대진대학교 에너지환경공학부,

<sup>4</sup>국립금오공과대학교 컨설팅 대학원

<sup>1</sup>Department of Environment and Energy Engineering, Chonnam National University,

<sup>2</sup>Department of Electrical Engineering, Chonnam National University,

<sup>3</sup>Department of Energy and Environmental Engineering, Daejin University,

<sup>4</sup>Graduate School of Consulting, Kumoh National Institute of Technology

pp. 311-321

pp. 323-334

pp. 335-344

pp. 345-356

pp. 357-371

pp. 373-383

### ABSTRACT

The removal of organic carbon and nutrients (i.e. N and P) from wastewater is essential for the protection of the water environment. Especially, nitrogen compounds cause eutrophication in the water environment, resulting in bad water quality. Conventional nitrogen removal systems require high aeration costs and additional organic carbon. Microbial electrochemical system (MES) is a sustainable environmental system that treats wastewater and produces energy or valuable chemicals by using microbial electrochemical reaction. Innovative and cost-effective nitrogen removal is feasible by using MESs and

Received 8 September 2020, revised 5 October 2020, accepted 8 October 2020.

\*Corresponding author: Sokhee P. Jung (E-mail: [sokheejung@gmail.com](mailto:sokheejung@gmail.com); [sokheejung@jnu.ac.kr](mailto:sokheejung@jnu.ac.kr))

• 채형원 (박사과정) / Hyungwon Chai (Ph.D. Student)

광주광역시 북구 용봉로 77, 61186

77 Yongbong-ro Buk-gu, Gwangju 61186, Republic of Korea

• 최용훈 (교수) / Yonghoon Choi (Professor)

광주광역시 북구 용봉로 77, 61186

77 Yongbong-ro Buk-gu, Gwangju 61186, Republic of Korea

• 김명운 (교수) / Myeongwoon Kim (Professor)

경기도 포천시 호국로 1007, 11159

1007 Hoguk-ro, Pocheon-si, Gyeonggi-do 11159, Republic of Korea

• 김영진 (교수) / Youngjin Kim (Professor)

경상북도 구미시 구미대로 350-27, 39253

350-27 Gumi-daero, Gumi-si, Gyeongsangbuk-do 39253, Republic of Korea

• 정석희 (교수) / Sokhee P. Jung (Professor)

광주광역시 북구 용봉로 77, 61186

77 Yongbong-ro Buk-gu, Gwangju 61186, Republic of Korea

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

increasing attention has been given to the MES development. In this review, recent trends of MESs for nitrogen removal and their mechanism were conclusively reviewed and future research outlooks were also introduced.

**Key words:** Electroactive bacteria, Electrostatic field, Microbial electrochemical technology, Nitrogen removal, Wastewater treatment

**주제어:** 전기 활성 박테리아, 정전기장, 미생물 전기화학 기술, 질소 제거, 하폐수처리

## 1. 서 론

하폐수처리는 에너지 요구량이 많은 공정이다. 하폐수의 주 오염물질인 유기물과 질소의 제거는 수 환경을 보호하는 데 필요하다 (Duce et al., 2008). 특히, 암모니아성 질소는 도시 폐수, 매립지 침출수 및 가축 폐기물과 같은 다양한 폐기물 및 폐수에서 가장 풍부한 무기 질소이다. 수 환경 내 암모니아성 질소의 오염은 부영양화를 일으키고, 수중 생물에게 독성을 줄 수 있어 심각한 환경문제가 되고 있다. 암모니아는 물리, 화학적 및 생물학적 방법으로 처리가 가능하며, 생물학적 처리는 비용 효율성 측면에서 주목을 받고 있다 (Yang et al., 2017). 전통적인 암모니아 처리 공정에서, 암모니아성 질소( $\text{NH}_4^+\text{-N}$ )는 질산화로부터 시작되는 2단계 공정을 통해 질산염으로 전환되는데, 이것은 호기성 산화이다 (Zhan et al., 2012). 이후, 질산염은 이중 탈질 반응을 통해 무산소 조건에서 탈질 반응이 수행된다. 현존하는 하폐수처리장의 질소 제거 공정은 질산화 박테리아를 위한 산소공급, 탈질 박테리아의 성장을 위한 추가적인 탄소원 공급이 필요하다. 따라서 기존의 하폐수 내 질소 제거 시스템은 부가적인 에너지 손실과 높은 C/N 비와 같은 한계를 직면하고 있다 (Zhan et al., 2012).

질소 제거를 위한 또 다른 접근법은 혐기성 조건에서 암모니아성 질소를 산화하는 아나모克斯(anammox) 박테리아의 사용이다 (Kartal et al., 2004). 이 박테리아는 전자수용체로서 아질산염을 이용하여 암모늄을 주로 질소 가스 및 질산염으로 산화시킬 수 있다. Anammox 공정은 기존 처리법보다 비용 효과적인 방법으로 암모니아성 질소를 제거할 수 있다 (Kuenen, 2008). 그러나 아나모克斯 공정의 운전은 온도와 pH에 매우 민감하며, 아질산염을 얻기 위한 호기성 아질산화 공정이 사전에 필요하다 (Jetten et al., 2009).

지금까지 확립된 공정 및 기술의 단점을 피하고자 미생물 전기화학 시스템(microbial electrochemical

system, MES)에서 실현되는 미생물 전기화학 기술이 질소를 제거하는 대체 기술로 제안되고 있다 (Schróder et al., 2015). 미생물 연료전지(microbial fuel cell, MFC)는 산화전극부의 미생물 촉매를 이용하여 유기물 및 질소를 제거하며 동시에 전기 에너지를 생산하는 에너지생산형 폐수처리 시스템이다 (Eaktasang et al., 2013; Haque et al., 2014; Jang et al., 2014; Kamel et al., 2019; Kim et al., 2008; Kim et al., 2017; Lee et al., 2018; Nam et al., 2010; Nam et al., 2013; Nam et al., 2018; Shin et al., 2017; Wang and Lim, 2020; Wang et al., 2016; Wu et al., 2019; Yoon et al., 2015). MFC의 산화 전극 및 환원 전극의 전기화학 특성 연구를 통해, 폐수 속 유기물 및 질소 제거 효율을 향상할 수 있다 (Jung et al., 2011; Jung and Regan, 2007; Jung et al., 2018; Kang et al., 2017; Koo et al., 2019; Nam et al., 2020; Nam et al., 2017; Tran et al., 2020). 특히, 박테리아가 환원 전극을 전자공여체로 직접 사용하면 탈질 반응을 위한 환원력을 제공하는데 필요한 전기 에너지를 크게 줄일 수 있다 (Virdis et al., 2010). 또한, 전기를 생산하는 박테리아로 알려진 *Geobacter* sp. 에 의해 질산염이 생물학적으로 아질산염으로 환원될 수 있다고 보고되었으며, 흑연 전극으로부터 전자를 받아 생물 전기화학적 탈질 처리의 가능성을 시사한다 (Gregory et al., 2004). 최근에는 질소 제거를 위한 외부 전압 및 정전기장을 적용하여 전기 활성 박테리아의 대사를 촉진 시키는 연구가 수행되고 있다 (Joicy et al., 2019; Song et al., 2019; Vilajeliu-Pons et al., 2018; Yin et al., 2016).

기존의 미생물 전기화학시스템은 작은 외부 전압을 인가하여 다양한 공정의 폐수처리와 함께 유기물로부터 전류 생산뿐만 아니라 수소, 메탄 등의 신재생에너지 생산을 목적으로 한다. 그 중, 미생물 전기분해 셀(microbial electrolysis cell, MEC)은 산화 전극의 미생물 촉매에 의해 생산된 전자가 외부 회로를 통해 환원 전극으로 전달되어, 용액 내 수소를 환원시켜 수소



가스를 생산하는 친환경 시스템이다 (Chai et al., 2020; Pawar et al., 2020; Savla et al., 2020; Yu et al., 2019). 최근 연구에서는, 미생물 전기화학 시스템을 이용해 항생제 오염물질과 같은 새롭고 다양한 폐수 속 오염물질의 제거를 달성했다 (Hassan et al., 2020). 따라서 미생물 전기화학적 질소 제거를 위한 시스템 개발 및 메커니즘을 규명함으로써 하 폐수 내 질소 제거와 동시에 부가적인 에너지 손실을 줄일 수 있는 지속 가능한 프로세스를 구현할 수 있다.

## 2. 제거 원리

MES에서 질산화 및 탈질 반응 즉, 암모니아성 질소, 아질산염 및 질산염 제거에 사용되는 다양한 제거 메커니즘은 다음과 같다.

### 2.1 MES 내 산소공급을 통한 질소 제거

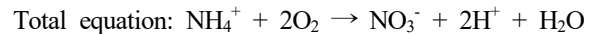
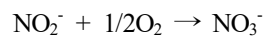
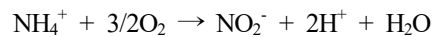
기존의 생물학적 질소 처리 공정 중 질산화 과정에는 산소를 공급해주는 단계인 폭기 공정이 필요하다. 이는 질산화 박테리아의 생리학적 특성에 비롯하여 암모늄( $\text{NH}_4^+$ )을 하이드록실아민( $\text{NH}_2\text{OH}$ )으로 산화시키는 초기 일산 소화 단계에 산소를 이용한다. 질산화 박테리아의 이화작용은 다른 종속 영양 생물이 영향을 받지 않는 낮은 산소농도에서도 둔화된다 (Rittman and McCarty, 2001). 따라서 전기화학적 질소 처리 시스템에서 암모늄의 산화를 위한 다양한 산소공급 방법에 대한 연구가 이루어지고 있다.

MFC는 환원 전극에서 질산염을 전자 수용체로써 사용하여 산화 전극에서 유기 탄소를, 그리고 환원 전극에서 질소를 제거할 수 있다. 환원 전극의 특정 부분에 폭기를 통하여 현장 질산화를 보완하였고, 하나의 하프 셀에서 질산화 및 탈질 반응을 동시에 달성하였다. 질산화 공정을 환원 전극에서 통합하면, 이전의 외부 질산화 단계로 운영되는 시스템에서 보고된 MFC 내 격막 사이의 확산으로 인한 암모늄 손실을 해결할 수 있다. 질산화 공정은 낮은 DO 농도에서도 가능하지만, 탈질 공정은 높은 DO 농도에서 제한되기 때문에, 용존 산소는 성공적인 동시 질산화 및 탈질 (simultaneous nitrification and denitrification, SND)에 중요한 인자로 인식되었다. 연구에서 사용된 MFC는 높은 DO 수준에서 성공적으로 작동했다.  $1.97 \pm 0.09 \sim$

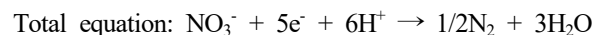
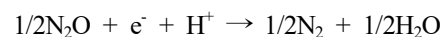
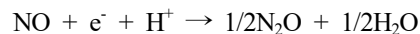
$4.35 \pm 0.08 \text{ mg/L}$  사이의 수준에서는 탈질 반응에 문제가 없었다. 따라서 DO 농도가  $4.35 \pm 0.08 \text{ mg/L}$ 로 조절된 MFC는 94%의 총질소 제거를 달성하였고, 질산염 농도는  $1.0 \pm 0.5 \text{ mg NO}_3^-/\text{N/L}$ 의 유출물을 생성했다 (Virdis et al., 2010).

이후 암모니아성 질소 제거를 위한 새로운 시스템이 개발되어 호기성 생물 반응기와 MFC가 통합되었다. 3챔버 반응기는 산화 전극부, 중간부, 환원 전극부로 나뉘어 구성되었으며, 각 구간은 음이온 교환막 (anion exchange membrane, AEM)과 양이온 교환 막 (cation exchange membrane, CEM)으로 분리되었다. MFC에 의해 생성된 전력으로 구동되어 중간부에서 암모늄이 CEM을 통해 환원 전극부로 이동할 수 있다. 이동된 암모늄은 환원 전극부에서 폭기를 통한 질산화 반응에 의해 질산염 및 아질산염으로 산화되었고, 이후 생물학적 탈질 소화를 통해 추가로 제거된다. 질산화 및 탈질 반응식은 다음과 같다.

#### Nitrification process



#### Denitrification process



초기 농도가 100 mg/L인 암모늄 이온이 98시간 동안 90.2%의 효율로 암모니아성 질소가 제거되었다 (Zhang et al., 2013). 위 연구들은 환원 전극부에 직접 폭기를 해줌으로써, 미생물 전기화학 시스템 내 질산화 반응을 유도하였다 (Fig. 1A).

폭기 비용을 줄이기 위해 개발된 MFC는 외부 환원 전극에서 질산화 반응을, 내부 환원 전극에서 탈질 반응을 달성하도록 설계된 이중 환원 전극 시스템을 제안했다. 외부 환원 전극은 대기 중의 산소를 내부 용액으로 확산시키는 외기 환원 전극 (air-cathode)을 사용함으로써 암모늄의 호기성 질산화 공정을 유도했다 (Fig. 1B). 하나의 산화 전극을 공유하는 2개의 환원

pp. 311-321

pp. 323-334

pp. 335-344

pp. 345-356

pp. 357-371

pp. 373-383

전극을 갖는 이 시스템은 내부 용액의 용존 산소 효과를 최소화 할 수 있다. 내부 환원 전극의 미생물 전기화학적 탈질은 질산염 제거에 중요한 역할을 하며, 탈질을 위한 추가적인 외부 탄소원의 첨가를 줄일 수 있다 (Zhang and He, 2012).

Yan et al. (2012)에서도 폭기를 위한 추가 에너지 투입 없이 질산화 및 탈질을 동시에 달성하기 위해 단일 챔버 MFC의 air-cathode는 질산화 미생물로 사전에 농축 및 우점종 시켰다. Air-cathode는 방수 카본 천(carbon cloth)으로, 카본 베이스 층과 4개의 PTFE층으로 구성된 공기 접촉 층, 용액에 접촉하는 Pt 촉매 층(0.5 mg-Pt/cm<sup>2</sup>)으로 구성되었다. MFC의 질산화 공정과 환원 전극의 산소 환원 반응에 필요한 산소는 air-cathode를 통한 공기 확산에 의존한다. 반송 용액이 충전되는 동안 시스템에 일부 용해된 산소를 가져올 수 있지만, 암모늄 제거는 외부 공기 확산에 의해 제거되는 양이 더욱 많았다 (Yan et al., 2012).

폭기 비용을 줄이기 위한 다른 방법으로는, 질소 제거 효율을 향상하기 위해 아질산염의 질산화 반응을 달성하는 아나모кс 공정과 공기 확산 멤브레인이 배치된 MES가 개발되었다. 반응기의 외부를 감싸는 공기 확산 멤브레인은 기체를 통과시킬 수 있는 실리콘 멤브레인을 사용하였다. 그 결과 환원 전극에서는 암모늄 산화 박테리아, 아나모кс 박테리아, 탈질 박테리아 및 전자방출균이 풍부하게 발견되었다 (Yang et al., 2017). 이처럼 질산화 공정의 산소공급을 위한 추가적인 에너지 수요를 줄이기 위해, 외부 산소를 내부 용액으로 확산시킬 수 있는 전극 및 멤브레인을 이용하여 질소 제거를 달성하는 다양한 연구들이 수행되고 있다.

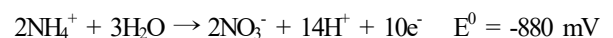
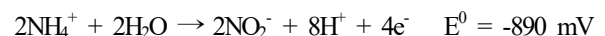
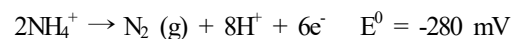
## 2.2 MES의 외부 전압 인가를 통한 질소 제거

위에서 언급했던 미생물 전기화학 시스템들은 호기성 조건에서 암모늄을 질산화시키는 방법을 사용하였다. 그러나 최근 연구들은 혐기성 및 무산소 조건 하에, 외부 전압을 인가해줌으로써 생물 전기화학적 질산화 및 탈질 반응을 달성하고 있다 (Fig 1C).

Kuntke et al. (2014)에서 사용된 MES는 두 개의 전극, 일반적으로 이온 교환 막에 의해 분리되는 산화 전극 및 환원 전극으로 구성된다. 산화 전극의 생물막은 촉매 역할을 수행하며, 유기물이 전자 및 이산화탄소, 양성자로 변화되도록 산화시킨다. 산화 전극에

서 전자 수용체가 없다면, 전자들은 박테리아에 의해 전극으로 운반되어 전기 회로를 통하여 환원 전극으로 이동하게 된다. 환원 전극에서는 환원 반응이 일어나며, MFC의 경우에는 산소가 물로 환원되고 수산화이온이 생성된다. 산화 전극에서 전기회로를 통한 전자의 이동으로 인하여 시스템의 전기 중립성을 유지하기 위해 이온 교환 막으로 이온 전송을 유도한다. 또한, 수산화 이온의 생성으로 환원 전극부의 pH가 상승하며, 암모늄 이온이 암모니아로 변환된다. 변환된 암모니아는 환원 전극부에서 스트리핑에 의해 회수될 수 있다. MEC의 경우, 환원 전극에서 물은 수소 가스와 수산화이온으로 환원 된다. MFC 대신 MEC를 암모니아 회수에 적용한다면, 뚜렷한 이점을 얻을 수 있다. MEC는 MFC 기반 암모늄 회수 개념에서 필요한 환원 전극의 산소 공급 필요성을 제거하고, 생성된 수소 가스는 전기보다 경제적 가치가 높다. 환원 전극에서 발생한 수소 가스는 환원 전극부 용액에서 암모니아를 제거하는 데 도움을 줄 수 있으며, 산화 전극부에서 암모늄을 제거하기 위한 추진력을 증가시킨다. 마지막으로 인가된 전압으로부터 더욱 높은 전류 밀도를 얻을 수 있으며, 이는 암모늄의 수송 및 제거율을 증가시킨다 (Kuntke et al., 2014).

암모니아성 질소 제거는 생물 전기화학 반응기에서 전도성 물질에 의해 향상되었다. 이것은 전기 활성 암모니아 산화 박테리아가 생물 전기화학 반응기에서 질소 제거에 중요한 역할을 한다는 것을 의미한다 (Choi et al., 2018). 생물 전기 화학 반응기에서의 혐기성 암모니아 산화 반쪽 반응은 다음 식에 따른다 (Snoeyink et al., 1980).



혐기성 암모니아 산화의 전위 값(vs SHE)은 음의 값을 가지며, 이것은 암모니아의 혐기성 산화가 열역학적으로 비자발적임을 나타낸다. 그러나, 미생물 전기화학 반응기에서 암모니아 산화의 전위는 외부 DC 전원을 사용하여 전극에 인가된 전압에 의해 양의 값으로 변경될 수 있다 (Choi et al., 2018). 이전의 연구에서 보고된 바와 같이 혐기성 암모니아 산화가 생물



전기화학 반응기에서 가능하다는 것을 나타낸다 (Zhan et al., 2014; Zhu et al., 2016).

시스템 내 암모늄, 질산염, 아질산염 농도와 온도 및 pH를 알면 다음 식에 의해 산화 및 환원 전극의 전위를 추정할 수 있다.

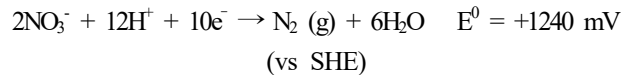
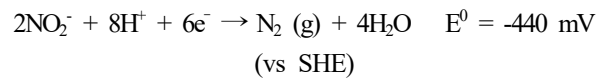
$$E^{o'} = E^0 - \frac{RT}{nF} \ln \frac{[Products]}{[Reactants]}$$

위 식에서  $E^{o'}$ 는 25°C, pH 7 에서의 이론적 전극 전위이며,  $E^0$ 는 표준 전위(vs SHE), R은 기체 상수, T는 절대 온도, n은 전자 수, F는 패러데이 상수이다. 따라서 각 반응에 따른 전위 값을 계산하여 셀 전압 및 전극 전위를 인가해 줌으로써 산화 환원 반응을 유도해 낼 수 있다.

MES에서 +600 mV(vs Ag/AgCl)로 분극된 산화 전극의 미생물 촉매를 이용하여 암모니아성 질소를 질소 가스로 환원시키는 연구가 수행되었다. 질소 가스는 산화 전극부에서 주 생성물이었으며, 산화 전극에서 전자수용체로서 암모니아성 질소의 산화 원인을 밝히기 위해 각각 다른 암모니아 농도에서 생성되는 전류를 측정하였다. 초기 암모니아성 질소 농도 범위인 140 mg/L에서 420 mg/L로 증가시킴으로써, 최대 전류 생산은 0.51 mA에서 1.35 mA로 증가했다. 그러나 암모니아가 유입되지 않았을 때의 전류는 매우 낮았다. 이러한 결과는 암모니아가 전기 생산을 위한 대체 전자공여체로 사용될 수 있음을 보여주며, 미생물 촉매를 이용한 산화 전극에서 암모니아 산화 공정의 질소 가스 생성을 보고하였다. 암모니아 산화를 위한 생물 막의 전기화학적 활성은 순환 전압 전류법(cyclic voltammetry, CV)을 통하여 조사되었다. 생물 막 산화 전극의 산화 피크는 암모니아성 질소 280 mg/L의 농도에서 +600 mV의 전위를 가졌으며, 비 생물 막 산화 전극의 산화 피크를 가지지 않았다. 또한, 생물 막 산화 전극의 산화 피크는 암모니아를 유입하지 않았을 때는 나타나지 않았다. 이는 산화 전극의 생물 막이 암모니아 산화에 우수한 전기 활성을 가짐을 나타냈다. CV test에서의 피크 전류는 암모니아성 질소 농도가 140 mg/L에서 420 mg/L로 증가했을 때, 2 mA에서 5.5 mA로 증가했다. 따라서 전류의 변화는 기질 농도가 미생물 대사에 명백한 영향을 미친다는 것을 입증하였다 (Zhan et al., 2014). 또한, 환원 전극에서 전자 수용체로 질산염과 아질산염을 사용함으로써 산화 전

극의 생물 막이 전자공여체로써 암모늄을 감소시키는 공정이 발표된 바 있다.

암모니아성 질소는 낮은 산화 상태에서 전자를 공급해 줄 수 있기 때문에, 낮은 인가전압(0.2-0.4 V)을 통해 연구가 진행되었다. 전기화학 테스트의 결과는, 암모늄 농도의 변화가 인가전압으로 0.2 V를 가해줄 때와 안 해준 때가 같지만 질산염과 아질산염의 농도 변화는 달랐다. 전압을 인가해주지 않았을 때는 질산염과 아질산염의 농도는 증가하는 반면, 전압을 인가해 주었을 때는 감소하는 것을 볼 수 있었다. 이 결과, 질산염과 아질산염은 외부 회로의 전자를 받아 전자 수용체로써 사용되었다는 사실을 확인할 수 있었다. 암모니아로부터 산화된 질산염 및 아질산염은 환원 전극에서 다음 식에 의해 질소 가스로 환원될 수 있다 (Snoeyink et al., 1980).



또한, 암모늄 농도가 증가할수록 전류 값이 증가했으며, 이는 탈질 반응을 위한 암모늄이 전자공여체로서 감소함을 의미한다. 탈질 반응과 직결된 암모니아성 질소의 제거 효율은 향상되었고, 이는 질산염과 아질산염의 축적으로 입증될 수 있었다 (Zhan et al., 2012).

위 연구들과 다른 방법으로, 생물 전기화학적 질소 제거 공정 중 암모늄 이온을 곧바로 일산화질소로 산화시키기 위한 Vilajeliu-Pons et al. (2018)의 연구는 암모늄을 완전 무산소조건하에 0.8 V의 외부 전압을 인가하는 공정을 적용하였으며, 리터 스케일 MES에서 산화 전극의 암모늄 제거율은  $35 \pm 10 \text{ g-N/m}^3\text{d}$ 와 같은 결과값을 얻었다. 전기화학적 무산소 암모늄 제거의 의존성과 전자 이동 전위의 메커니즘의 규명은 입증된 바가 없었다. 따라서 이 연구에서는 무산소 질산화 반응이 *Nitrosomonas*에 의해 주로 하이드록실아민을 기질로 사용하는 생물학적 과정임을 입증했다(산화 전극 전위,  $E_{ox} = +0.67 \pm 0.08 \text{ V, vs SHE}$ ). 추가로, 암모늄의 제거 농도와 전류 밀도의 상관관계는 비례 관계임을 확인할 수 있었다. 전자공여체인 암모늄 농도를 100 mg/L에서 0 mg/L까지 감소시켜 줌으로써 전

pp. 311-321

pp. 323-334

pp. 335-344

pp. 345-356

pp. 357-371

pp. 373-383

류 밀도가 감소함을 알 수 있었다. 질산화 반응을 억제하는 ATU를 첨가한 후 전류 밀도를 측정된 결과 낮은 암모늄 제거 효율에 의해 전류 생산 역시 낮은 값을 보였다. 위의 실험들은 전기화학적 활성이 명확히 무산소 암모늄 제거에 의존한다는 것을 확인했다. CV test 결과 암모늄을 첨가해주었을 때의 산화 피크는  $+0.73 \pm 0.06$  V (vs SHE)였으며, 환원 피크는  $+0.53 \pm 0.03$  V (vs SHE)로 측정되었다. 하이드록실아민을 기질로 첨가했을 때는 산화 피크가  $+0.67 \pm 0.08$  V(SHE), 환원 피크가  $+0.49 \pm 0.06$  V (vs SHE)로 측정이 되었다. 이 결과는 암모늄이 아닌 하이드록실아민이 전극에 부착된 미생물에 의해 수행된 전기화학적 산화의 주 기질이였다는 것을 제시한다 (Vilajeliu-Pons et al., 2018). MES의 생물 막 전극의 전기화학적 활성은 다양한 변수(산화 전극 전위 및 미생물 군집 구조)에 의해 입증되고 있으며, 미생물 촉매와 전극 사이의 메커니즘을 규명하는 것은 중요한 연구과제 중 하나이다.

### 2.3 독립영양생물을 이용한 MES의 질소 제거

기존의 탈질 공정에서는 탈질 박테리아가 메탄올 등의 유기물을 전자공여체로 사용함으로써 질산염을 환원시키는 반응을 달성할 수 있었다. 그러나 MES에서는 외부 유기물의 첨가 없이 산화 전극에서 폐수 내 유기물을 전자공여체로 하여, 전자가 외부 회로를 통해 환원 전극으로 이동하여 생물 막에 의해 탈질 반응을 유도하는 방법을 사용한다. 이는 앞서 언급한 바와 같이, MES는 통용되는 탈질 공정의 높은 C/N 비의 문제를 해결할 수 있는 가능성을 제공한다. Zhan et al. (2012)의 연구에서는 물의 전기분해를 통해 생성된 수소가스를 질산화 및 탈질 박테리아에 의해 사용되어짐으로서 질소 제거를 유도하는 방법을 사용하였다. 그러나 이는 1.8 V보다 높은 인가 전압을 필요로 했으며, 낮은 전력 소비를 위해 MEC에서의 수소 생산과 동시에 질소 제거를 도출하였다. 물 분해 과정 대신 아세테이트로부터의 수소생산관점으로 볼 때, 탈질 과정은 아세테이트 대신 암모니아성 질소로부터 양성자와 전자를 가져오므로써 달성된다 (Zhan et al., 2012).

Puig et al. (2012)는 MFC 내 생물 막 환원 전극에서 질산염의 제거를 조사했다 (Fig 1D). 이 연구는 MFC가 생물학적 전기 발생을 수행하는 동안, 폐수에서 질

소 가스로 환원하는 전자 수용체 박테리아를 입증했다 (Puig et al., 2012). 질산염의 환원은 독립 영양 탈질 공정에 의해 발생했으며, 미생물 군집 분석은 *Oligotropha carboxidovorans*의 존재를 확인했다. *Oligotropha carboxidovorans*는 일산화탄소, 이산화탄소 및 수소를 에너지원으로 사용할 수 있는 독립 영양 박테리아이다. *nosZ* 유전자에 대한 계통 서열의 유사성은 *Oligotropha carboxidovorans*가 MFC의 환원 전극에서 탈질 과정의 주요 원인일 가능성이 있음을 시사했다 (Puig et al., 2011).

### 2.4 MES 내 *Geobacter* sp.를 이용한 질산염 환원

앞서 제시된 연구들은 산화 전극에서 암모늄의 산화, 환원 전극에서 질산염 및 아질산염의 환원으로 각각의 질산화 및 탈질 반응을 유도했으나, MES 내 산화 전극에서 질산염의 환원 반응을 달성하는 새로운 방식의 연구가 진행되었다. 이 연구는 산화 전극의 대체 생물 대사로 질산염 환원에 중점을 두었다. 전자 방출 및 질산염 환원 박테리아(*Geobacter metallireducens*)를 이용하여 대체 대사를 조절하는 중요한 조건을 다양한 산화 전극 전위 및 생물 막 두께, 다양한 질산염 농도로 2챔버 반응기에서 정 전위적으로 제어된 MES에서 조사했다 (Fig 1E). 결과적으로, 모든 산화 전극 전위(-150 ~ +900 mV)에서 산화 전극의 생물 막이 질산염을 감소시킨다는 것을 보여주었다 (Kashima and Regan, 2015).

최근 연구에서는 질산염을 암모늄으로 환원시키는 종으로 *Geobacter metallireducens* 뿐만 아니라 *Geobacter lovleyi*의 효소 경로에 관한 연구가 수행되었다 (Campeciño et al., 2020). *Geobacter lovleyi*는 자연환경에서 질산염을 암모늄으로 환원시키는 촉매 역할을 수행하며, 탈질 반응을 수행하는 박테리아와 경쟁하고 토양의 영양소 손실을 최소화 한다 (Campeciño et al., 2020). 하지만, 현재까지 미생물 전기화학 시스템 전극 생물 막에서 *Geobacter lovleyi*의 질산염 환원에 대한 메커니즘 연구는 보고된 바 없다.

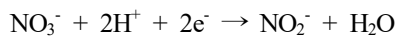
Gregory et al. (2004)의 연구는 전극이 미생물 호흡을 위한 전자공여체의 역할을 할 수 있는지 밝히기 위해, 흑연 전극에 일정 전위(potentiostat)로 전위(-500 mV)를 고정해 주고, 질산염을 전자수용체로 사용하여 침전물로부터 농축 배양을 하였다. 전자 및 질산염의 소비와 아질산염의 축적의 화학 양론은 질산염 환



**Table 1.** Nitrogen removal in microbial electrochemical systems

Reactor type	Mode (applied voltage)	Scale	Anode material	Cathode material	Power and current density	Nitrogen removal efficiency	Initial level	Reference
Dual Cathode MFC	Continuous	800 mL	carbon cloth = 200 cm <sup>2</sup>	carbon brush (20 cm × 5 cm), carbon cloth = 300 cm <sup>2</sup>	6.8 W/m <sup>3</sup>	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 96%	50 mg/L	(Zhang and He, 2012)
Single chamber MFC	batch	28 mL	(non-wet proof) carbon cloth	(wet proof-air cathode) carbon cloth + PTFE	945 mW/m <sup>2</sup>	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 97%	100 mg/L	(Yan et al., 2012)
Dual chamber MFC	batch	336 mL	granular graphite	granular graphite	0.58 mW/m <sup>3</sup>	(T-N) 94.1%	106.5 mg/L	(Virdis et al., 2010)
Dual chamber MFC	batch	40 mL	graphite felt (100 cm <sup>2</sup> × 3 mm)	platinum coated + titanium fine mesh	34.22 mW/m <sup>2</sup>	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 34.3%	26.16 mg/L	(Kuntke et al., 2014)
Dual chamber MFC	batch	3600 mL	graphite plate (55 cm <sup>2</sup> )	graphite plate (55 cm <sup>2</sup> )	173.1 mW/m <sup>2</sup>	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 97%	1402 mg/L	(Zhang et al., 2013)
Single chamber MEC	Continuous (0.4 V)	1402.5 mL	carbon felt (8 cm × 15 cm)	carbon felt (8 cm × 16 cm)	4.4 mA	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 92.6%	200 mg/L	(Zhan et al., 2012)
Dual chamber MEC	Continuous (0.8 V)	5000 mL	1mm thick titanium plates (33 cm × 150 cm)	1mm thick titanium plates (33 cm × 151 cm)	1.9 A/m <sup>2</sup>	(T-N) 31%	3400 mg/L	(Zamora et al., 2017)
Dual chamber MEC	batch (0.2 V)	1720 mL	graphite granules (d=2-6 mm)	graphite granules (d=2-7 mm) + graphite rod	110 mA	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 44.5%	44.5 mg/L	(Villano et al., 2013)
Assembly MEC	Continuous (0.2 V)	60000 mL	Graphite plate (5844 cm <sup>2</sup> , 3896 cm <sup>2</sup> )	stainless steel plate (5778 cm <sup>2</sup> , 3852 cm <sup>2</sup> )	95 μA/cm <sup>2</sup>	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 72%	70 mg/L	(Brown et al., 2014)
Dual chamber MEC	Continuous (0.8 V)	1490 mL	non-wet proofed carbon brush	wet-proofed carbon cloth (13.5 cm × 30 cm)	88.6 A/m <sup>3</sup>	(T-N) 94.8%	500 mg/L	(Yang et al., 2017)
Dual chamber MEC	batch (0.6 V)	130 mL	carbon felt (4 cm × 4 cm)	carbon felt(4 cm × 4 cm)	0.084 mA/cm <sup>2</sup>	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 47.7%	420 mg/L	(Zhan et al., 2014)
Dual chamber MEC	Continuous (0.8 V)	830 mL	granular graphite	granular graphite	4.02 μA/cm <sup>2</sup>	(NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N) 35 g/m <sup>3</sup> d	102.05 mg/L	(Vilajeliu-Pons et al., 2018)

원을 위한 유일한 전자공여체 역할을 하는 전극과 일치한다고 밝혔다. 전극에 부착된 질산염을 감소시키는 세포는, 16rRNA 유전자 서열의 분석을 통해 전극으로 전자를 공급하는 *Geobacter* sp.의 서열과 가장 밀접한 관계가 있는 미생물이 농축되었음을 보여주었다. 그 결과, 전류의 소비로 질산염이 아질산염으로 감소했으며, 전극이 혐기성 호흡을 위한 직접 전자공여체로 사용될 수 있음을 입증했다 (Gregory et al., 2004).



위 식과 같은 반응을 통해 전극을 전자공여체로 하여 질산염을 아질산염으로 감소시키고 있음을 보여주었다. 이 발견은 혐기성 퇴적물로부터 전기를 생산하고, 산화된 오염물의 생물학적 복원에 영향을 미친다.

## 2.5 MES에서 정전기장을 이용한 질소 제거 시스템

MFC와 MEC는 직접적인 전극 반응을 통해 유기물 및 질소와 같은 오염물질을 제거한다. 하지만, 최근 연구에서는 MES에서 간접적인 전극 반응인 정전기장 (electrostatic field)을 이용하여 미생물의 활성을 향상하는 시스템이 개발되고 있다 (Feng et al., 2020; Wang et al., 2017). Qiao et al. (2014)의 연구에서는 anammox 공정을 통한 질소 제거에 있어 정전기장의 영향을 알아보기 위해 시스템에 정전기장을 0, 1, 2, 4 V/cm 적용하였다. 2 V/cm의 정전기장에서 질소 제거율이 11.4 mg-TN/g-VSS/h로 가장 높았으며, 이는 대조군(0 V/cm) 보다 25.6% 향상된 제거율을 보였다. 2 V/cm의 정전기장 적용 시간은 60분 사이클보다 20분 사이클에서 anammox 바이오매스의 활성이 최대였다. 적용 시간이 60분으로 증가하면 총질소 제거율이 대조군

pp. 311-321

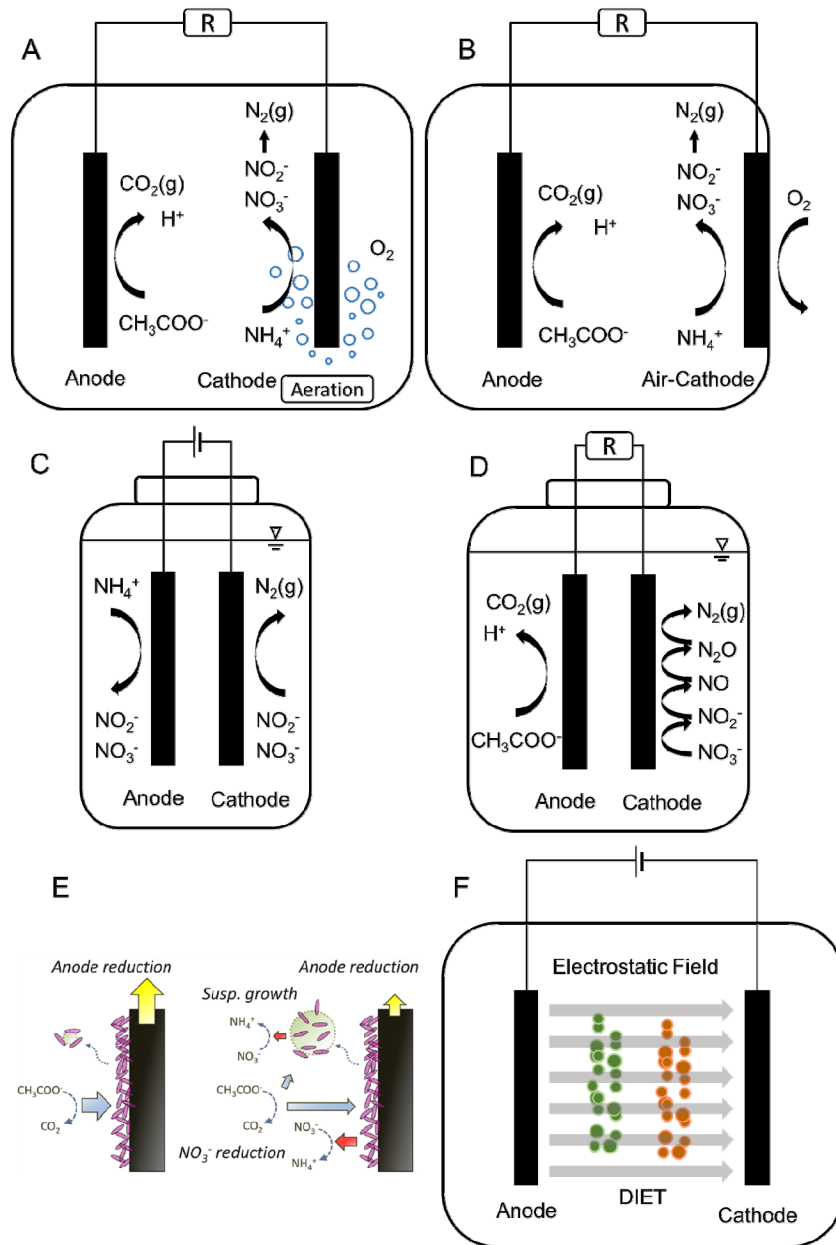
pp. 323-334

pp. 335-344

pp. 345-356

pp. 357-371

pp. 373-383



**Fig. 1.** (A) Schematic diagram of ammonium removal through direct aeration in MFC, (B) ammonium removal through indirect aeration on the air-cathode in MFC, (C) single-chamber MEC for nitrogen removal, (D) nitrogen removal in MFC using autotrophs, (E) nitrate reduction using *Geobacter* sp in MEC (Kashima and Regan, 2015), (F) nitrogen removal via an electrostatic field in MES.

실험보다 감소하여 anammox 바이오매스에 부정적인 영향을 미치는 것으로 보인다. 4 V/cm의 정전기장에서는 7.13 mg-TN/g-VSS/h로 대조군(0 V/cm)보다 21.2% 낮은 제거율을 보였다. 4 V/cm까지 정전기장을 높이면 anammox 바이오매스의 성장 속도를 늦추고, 전자 전달을 담당하는 heme c 함량이 감소하여 질소

제거 효율이 낮았다 (Qiao et al., 2014). 후속 연구에서는 실용화를 위한 정전기장의 적용 주기를 비교하는 실험이 진행되었다. 실험은 2 V/cm의 최적 정전기장에서 실험이 진행되었다. 하루 총 적용 시간(적용 시간-휴지기)은 3 h-3 h, 6 h-6 h 및 12 h-12 h로 수행되었으며, 전기장을 적용하지 않은 대조군보다 질소 제





거울이 각각 18.7%, 27.4% 및 8.5% 증가하였다. 6 h-6 h에서의 16S rRNA gene copy 수, heme c 함량 및 enzyme 활성 증가가 질소 제거율 향상의 주요 원인으로 입증되었다 (Yin et al., 2016).

Anammox 공정 외에 암모니아성 질소 제거를 위해 전자 수용체로 아질산염과 질산염을 사용한 미생물 전기화학적 암모늄 산화는 정전기장에 의해 수행될 수 있다. Bulk solution에 존재하는 암모늄 산화 전자 방출균(ammonium oxidizing exoelectrogens, AOE)과 탈질 전자 방출균(denitrifying electrotrophs, DNE)은 혐기성 조건에서 직접 종간 전자전달(direct interspecies electron transfer, DIET)을 통해 질소 제거를 수행한다 (Song et al., 2019). 정전기장은 혐기성 조건에서 전기 활성 중인 AOE와 DNE 사이의 DIET를 촉진함으로써 암모늄 산화 효율을 향상시킨다. 절연 물질로 코팅된 산화 전극과 환원 전극을 사용하여 bulk solution에 0.2 V/cm의 정전기장을 인가하였을 때, 전기 활성 미생물이 증가하였다 (Joicy et al., 2019). 따라서, 미생물 전기화학 시스템에서 적절한 세기의 정전기장 적용을 통해 DIET에 의한 질소 제거 효율을 향상시킬 수 있음을 입증했다 (Fig. 1F).

### 3. 향후 전망

미생물 전기화학 기술은 재생 에너지원 중 하나인 하폐수 내 유기 오염물질을 처리함과 동시에 에너지를 회수할 수 있는 혁신적인 기술이다. 미생물 전기화학 처리 및 자원화 프로세스의 개발을 통해 효율적인 질소 제거를 실현하는 것은 기존의 질소 처리 기술보다 비용 저감을 달성할 수 있다. 현존하는 질산화 공정의 직접적인 산소 공급을 위한 폭기 비용은 하폐수 처리 비용에서 큰 부분을 차지한다. MFC의 공기 중 산소를 확산하는 air cathode와 산소 투과 membrane을 통해 간접적인 산소 공급으로 질산화를 위한 폭기 비용을 절감할 수 있다. 이는 처리 수가 공기에 직접적으로 노출되지 않음으로 하폐수 처리의 난제 중 하나인 악취를 제거할 수 있는 핵심 기술이다. 하지만, 환원 전극의 내구성을 높이기 위한 충분한 촉매 기술 개발이 필요한 현실이다.

MEC에서 외부 인가전압을 통한 질소 제거 기술은 완벽한 혐기성 조건에서 암모늄을 전기화학적으로 산

화시키며, 추가적인 탄소원 없이 탈질을 달성한다. MEC의 산화 전극과 환원 전극 촉매의 전기 활성 미생물의 부착성, 생물 막 촉매의 활성, 전극 전자 전달 효율을 향상시킴으로써 질소 제거 효율을 증대할 수 있다. 그러나, 실용화 측면에서 하폐수의 다양한 오염 물질 및 부유물에 의한 전극 clogging 문제를 해결하기 위한 효과적인 전극 구조 개발이 필요하다.

하폐수처리장의 특성을 감안하여 MES 전극은 내구성이 높아야 하며, 비용 효율적이어야 한다. 정전기장을 적용한 MES의 전극은 직접적인 전극 계면의 반응이 아니므로 절연 물질인 epoxy resin 또는 다양한 유전체(dielectric polymer)로 코팅을 하여 사용된다. 이는 전극에 미생물이 부착하는 시스템이 아닌 bulk solution에 존재하는 전기 활성 미생물의 DIET 활성을 향상하여 높은 질소 제거 속도를 얻을 수 있다. 최근에는 정전기장에 노출된 bulk solution에 전도성 물질을 첨가하여 DIET를 더욱 활성화하는 cDIET (DIET via conductive materials) 경로가 추가로 발견되었다. 이처럼 MES 내 정전기장의 적용은 긴 수명과 높은 내구성을 갖는 전극을 사용함으로써 지속 가능한 질소 제거 시스템을 구현할 수 있으며, 전기 활성 미생물의 대사를 향상할 수 있는 다양한 연구가 지속적으로 수행될 필요가 있다.

### 사 사

본 연구는 미래창조과학부 한국연구재단 기초과학 연구 사업(NRF-2018R1D1A1B07050567), 광주녹색환경지원센터의 2017년도 연구 지원사업 (17-04-10-14-12), 광주녹색환경지원센터의 2019년 연구 지원 사업 (19-04-70-79-12)의 지원을 받아 수행되었습니다.

### References

- Brown, R.K., Harnisch, F., Wirth, S., Wahlandt, H., Dockhorn, T., Dichtl, N. and Schroder, U. (2014). Evaluating the effects of scaling up on the performance of bioelectrochemical systems using a technical scale microbial electrolysis cell, *Bioresour. Technol.*, 163, 206-213.
- Campeciño, J., Lagishetty, S., Wawrzak, Z., Alfaro, V. S., Lehnert, N., Reguera, G., Hu, J. and Hegg, E.L. (2020).

pp. 311-321

pp. 323-334

pp. 335-344

pp. 345-356

pp. 357-371

pp. 373-383

- Cytochrome c nitrite reductase from the bacterium *Geobacter lovleyi* represents a new NrfA subclass, *J. Biol. Chem.*, jbc, RA120, 013981.
- Chai, H., Koo, B., Son, S. and Jung, S.P. (2020). Validity and Reproducibility of Various Linear Sweep Voltammetry Tests of Anode and Cathode Electrodes in Microbial Electrolysis Cells.
- Choi, T.S., Song, Y.C. and Joicy, A. (2018). Influence of conductive material on the bioelectrochemical removal of organic matter and nitrogen from low strength wastewater, *Bioresour. Technol.*, 259, 407-413.
- Duce, R.A., LaRoche, J., Altieri, K., Arrigo, K.R., Baker, A.R., Capone, D., Cornell, S., Dentener, F., Galloway, J. and Ganeshram, R.S. (2008). Impacts of atmospheric anthropogenic nitrogen on the open ocean, *science*, 320(5878), 893-897.
- Eaktasang, N., Kang, C.S., Ryu, S.J., Suma, Y. and Kim, H.S. (2013). Enhanced current production by electroactive biofilm of sulfate-reducing bacteria in the microbial fuel cell, *Environ. Eng. Res.*, 18(4), 277-281.
- Feng, Q., Song, Y. C., Li, J., Wang, Z. and Wu, Q. (2020). Influence of electrostatic field and conductive material on the direct interspecies electron transfer for methane production, *Environ. Res.*, 109867.
- Gregory, K.B., Bond, D.R. and Lovley, D.R. (2004). Graphite electrodes as electron donors for anaerobic respiration, *Environ. Microbiol.*, 6(6), 596-604.
- Haque, N., Cho, D. and Kwon, S. (2014). Performances of metallic (sole, composite) and non-metallic anodes to harness power in sediment microbial fuel cells, *Environ. Eng. Res.*, 19(4), 363-367.
- Hassan, M., Zhu, G., LU, Y.Z., AL-Falahi, A.H., LU, Y., Huang, S. and Wan, Z. (2020). Removal of antibiotics from wastewater and its problematic effects on microbial communities by bioelectrochemical Technology: Current knowledge and future perspectives, *Environ. Eng. Res.*, 26(1), 190405.
- Jang, J.K., Kim, K.M., Byun, S., Ryou, Y.S., Chang, I.S., Kang, Y. K. and Kim, Y.H. (2014). Current generation from microbial fuel cell using stainless steel wire as anode electrode, *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 36(11), 753-757.
- Jetten, M.S., Niftrik, L.V., Strous, M., Kartal, B., Keltjens, J.T. and Op den Camp, H. J. (2009). Biochemistry and molecular biology of anammox bacteria, *Crit. Rev. Biochem. Mol. Biol.*, 44(2-3), 65-84.
- Joicy, A., Song, Y.C., Yu, H. and Chae, K.J. (2019). Nitrite and nitrate as electron acceptors for bioelectrochemical ammonium oxidation under electrostatic field, *J. Environ. Manag.*, 250, 109517.
- Jung, S., Mench, M.M. and Regan, J.M. (2011). Impedance characteristics and polarization behavior of a microbial fuel cell in response to short-term changes in medium pH, *Environ. Sci. Technol.*, 45(20), 9069-9074.
- Jung, S. and Regan, J.M. (2007). Comparison of anode bacterial communities and performance in microbial fuel cells with different electron donors, *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, 77(2), 393-402.
- Jung, S.P., Kim, E. and Koo, B. (2018). Effects of wire-type and mesh-type anode current collectors on performance and electrochemistry of microbial fuel cells, *Chemosphere*, 209, 542-550.
- Kamel, M.S., Abd-Alla, M.H., Abdul-Raouf, U.M., Kamel, M.S., Abd-Alla, M. H. and Abdul-Raouf, U.M. (2019). Characterization of anodic biofilm bacterial communities and performance evaluation of a mediator-free microbial fuel cell, *Environ. Eng. Res.*, 25(6), 862-870.
- Kang, H., Jeong, J., Gupta, P. L. and Jung, S.P. (2017). Effects of brush-anode configurations on performance and electrochemistry of microbial fuel cells, *Int. J. Hydrog. Energy*, 42(45), 27693-27700.
- Kartal, B., Van Niftrik, L., Sliemers, O., Schmid, M.C., Schmidt, I., Van De Pas-Schoonen, K., Cirpus, I., Van der Star, W., Van Loosdrecht, M. and Abma, W. (2004). Application, eco-physiology and biodiversity of anaerobic ammonium-oxidizing bacteria, *Rev. Environ. Sci. Biotechnol.*, 3(3), 255-264.
- Kashima, H. and Regan, J.M. (2015). Facultative nitrate reduction by electrode-respiring *Geobacter metallireducens* biofilms as a competitive reaction to electrode reduction in a bioelectrochemical system, *Environ. Sci. Technol.*, 49(5), 3195-3202.
- Kim, I.S., Chae, K.J., Choi, M.J. and Verstraete, W. (2008). Microbial fuel cells: recent advances, bacterial communities and application beyond electricity generation, *Environ. Eng. Res.*, 13(2), 51-65.
- Kim, T., Kang, S., Chang, I.S., Kim, H.W., Sung, J.H., Paek, Y., Kim, Y.H. and Jang, J.K. (2017). Prevention of power overshoot and reduction of cathodic overpotential by increasing cathode flow rate in microbial fuel cells used stainless steel scrubber electrode, *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 39(10), 591-598.
- Koo, B., Lee, S.M., Oh, S.E., Kim, E.J., Hwang, Y., Seo, D., Kim, J.Y., Kahng, Y.H., Lee, Y.W. and Chung, S.Y. (2019). Addition of reduced graphene oxide to an activated-carbon



- cathode increases electrical power generation of a microbial fuel cell by enhancing cathodic performance, *Electrochim. Acta*, 297, 613-622.
- Kuenen, J.G. (2008). Anammox bacteria: from discovery to application, *Nat. Rev. Microbiol.*, 6(4), 320.
- Kuntke, P., Sleutels, T.H.J.A., Saakes, M. and Buisman, C.J.N. (2014). Hydrogen production and ammonium recovery from urine by a microbial electrolysis cell, *Int. J. Hydrogen Energy*, 39(10), 4771-4778.
- Lee, K.Y., Choi, I.K., Lim, K.H., Lee, K.Y., Choi, I.K. and Lim, K.H. (2018). Nitrogen removal and electrochemical characteristics depending on separators of two-chamber microbial fuel cells, *Environ. Eng. Res.*, 24(3), 443-448.
- Nam, J.Y., Kim, H.W., Lim, K.H. and Shin, H.S. (2010). Electricity generation from MFCs using differently grown anode-attached bacteria, *Environ. Eng. Res.*, 15(2), 71-78.
- Nam, J.Y., Moon, C., Jeong, E., Lee, W.T., Shin, H.S., Kim, H.W., Nam, J.Y., Moon, C., Jeong, E. and Lee, W.T. (2013). Optimal metal dose of alternative cathode catalyst considering organic substances in single chamber microbial fuel cells, *Environ. Eng. Res.*, 18(3), 145-150.
- Nam, T., Kang, H., Pandit, S., Kim, S.H., Yoon, S., Bae, S. and Jung, S.P. (2020). Effects of vertical and horizontal configurations of different numbers of brush anodes on performance and electrochemistry of microbial fuel cells, *J. Clean. Prod.*, 124125.
- Nam, T., Son, S., Kim, E., Tran, H.V.H., Koo, B., Chai, H., Kim, J., Pandit, S., Gurung, A. and Oh, S.E. (2018). Improved structures of stainless steel current collector increase power generation of microbial fuel cells by decreasing cathodic charge transfer impedance, *Environ. Eng. Res.*, 23(4), 383-389.
- Nam, T., Son, S., Koo, B., Tran, H.V.H., Kim, J.R., Choi, Y. and Jung, S.P. (2017). Comparative evaluation of performance and electrochemistry of microbial fuel cells with different anode structures and materials, *Int. J. Hydrog. Energy*, 42(45), 27677-27684.
- Pawar, A.A., Karthic, A., Pandit, S. and Jung, S.P. (2020). Electromethanogenesis using microbial electrolysis cells: Materials.
- Puig, S., Coma, M., Desloover, J., Boon, N., Colprim, J. and Balaguer, M.D. (2012). Autotrophic denitrification in microbial fuel cells treating low ionic strength waters, *Environ. Sci. Technol.*, 46(4), 2309-2315.
- Puig, S., Serra, M., Vilar-Sanz, A., Cabré, M., Bañeras, L., Colprim, J. and Balaguer, M.D. (2011). Autotrophic nitrite removal in the cathode of microbial fuel cells, *Bioresour. Technol.*, 102(6), 4462-4467.
- Qiao, S., Yin, X., Zhou, J. and Furukawa, K. (2014). Inhibition and recovery of continuous electric field application on the activity of anammox biomass, *Biodegradation*, 25(4), 505-513.
- Rittman and McCarty. (2001). *E dan McCarty. 2001. Environmental Biotechnology: Principle and Applications*. In: McGraw Hill International Ed., New York.
- Savla, N., Pandit, S., Khanna, N., Mathuriya, A.S. and Jung, S.P. (2020). Microbially powered electrochemical systems coupled with membrane-based technology for sustainable desalination and efficient wastewater treatment, *Environ. Eng. Res.*, 42(7), 360-380.
- Schröder, U., Harnisch, F. and Angenent, L.T. (2015). Microbial electrochemistry and technology: terminology and classification, *Energy Environ. Sci.*, 8(2), 513-519.
- Shin, W., Park, J., Lee, B., Kim, Y. and Jun, H. (2017). Evaluation of biogas production rate by using various electrodes materials in a combined anaerobic digester and microbial electrochemical technology (MET), *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 39(2), 82-88.
- Snoeyink, V.L., Jenkins, D. and Jenkins, D. (1980). *Water chemistry*. Wiley New York, 91.
- Song, Y.C., Joicy, A. and Jang, S.H. (2019). Direct interspecies electron transfer in bulk solution significantly contributes to bioelectrochemical nitrogen removal, *Int. J. Hydrog. Energy*, 44(4), 2180-2190.
- Tran, H.V., Kim, E., Koo, B., Sung, S. and Jung, S.P. (2020). Anode maturation time for attaining a mature anode biofilm and stable cell performance in a single chamber microbial fuel cell with a brush anode, Preprint.
- Vilajeliu-Pons, A., Koch, C., Balaguer, M. D., Colprim, J., Harnisch, F. and Puig, S. (2018). Microbial electricity driven anoxic ammonium removal, *Water Res.*, 130, 168-175.
- Villano, M., Scardala, S., Aulenta, F. and Majone, M. (2013). Carbon and nitrogen removal and enhanced methane production in a microbial electrolysis cell, *Bioresour. Technol.*, 130, 366-371.
- Viridis, B., Rabaey, K., Rozendal, R.A., Yuan, Z. and Keller, J. (2010). Simultaneous nitrification, denitrification and carbon removal in microbial fuel cells, *Water Res.*, 44(9), 2970-2980.
- Wang, D., Han, H., Han, Y., Li, K. and Zhu, H. (2017). Enhanced treatment of Fischer-Tropsch (FT) wastewater using the up-flow anaerobic sludge blanket coupled with bioelectrochemical system: effect of electric field,

pp. 311-321

pp. 323-334

pp. 335-344

pp. 345-356

pp. 357-371

pp. 373-383

- Bioresour. Technol., 232, 18-26.
- Wang, Z. and Lim, B. (2020). Electric power generation from sediment microbial fuel cells with graphite rod array anode, *Environ. Eng. Res.*, 25(2), 238-242.
- Wang, Z.J., Lim, B.S., Wang, Z.J. and Lim, B.S. (2016). Electric power generation from treatment of food waste leachate using microbial fuel cell, *Environ. Eng. Res.*, 22(2), 157-161.
- Wu, Y.C., Wu, H.J., Fu, H.Y., Dai, Z. and Wang, Z.J. (2019). Burial depth of anode affected the bacterial community structure of sediment microbial fuel cells, *Environ. Eng. Res.*, 25(6), 870-876.
- Yan, H., Saito, T. and Regan, J.M. (2012). Nitrogen removal in a single-chamber microbial fuel cell with nitrifying biofilm enriched at the air cathode, *Water Res.*, 46(7), 2215-2224.
- Yang, Y., Li, X., Yang, X. and He, Z. (2017). Enhanced nitrogen removal by membrane-aerated nitrification-anammox in a bioelectrochemical system, *Bioresour. Technol.*, 238, 22-29.
- Yin, X., Qiao, S. and Zhou, J. (2016). Effects of cycle duration of an external electrostatic field on anammox biomass activity, *Sci. Rep.*, 6, 19568.
- Yoon, H.S., Song, Y.C. and Choi, T.S. (2015). Improvement of anodic performance by using CTP binder containing nickel, *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 37(9), 499-504.
- Yu, Q., Xiong, W., Huang, D., Luo, C., Yang, Q., Guo, T., Wei, Q., Yu, Q., Xiong, W. and Huang, D. (2019). Cathodic reduction characteristics of 2-chloro-4-nitrophenol in microbial electrolysis cell, *Environ. Eng. Res.*, 25(6), 854-861.
- Zamora, P., Georgieva, T., Ter Heijne, A., Sleutels, T.H.J.A., Jeremiasse, A.W., Saakes, M., Buisman, C.J. N. and Kuntke, P. (2017). Ammonia recovery from urine in a scaled-up Microbial Electrolysis Cell, *J. Power Sources*, 356, 491-499.
- Zhan, G., Zhang, L., Li, D., Su, W., Tao, Y. and Qian, J. (2012). Autotrophic nitrogen removal from ammonium at low applied voltage in a single-compartment microbial electrolysis cell, *Bioresour. Technol.*, 116, 271-277.
- Zhan, G., Zhang, L., Tao, Y., Wang, Y., Zhu, X. and Li, D. (2014). Anodic ammonia oxidation to nitrogen gas catalyzed by mixed biofilms in bioelectrochemical systems, *Electrochim. Acta*, 135, 345-350.
- Zhang, F. and He, Z. (2012). Integrated organic and nitrogen removal with electricity generation in a tubular dual-cathode microbial fuel cell, *Process Biochem.*, 47(12), 2146-2151.
- Zhang, X., Zhu, F., Chen, L., Zhao, Q. and Tao, G. (2013). Removal of ammonia nitrogen from wastewater using an aerobic cathode microbial fuel cell, *Bioresour. Technol.*, 146, 161-168.
- Zhu, T., Zhang, Y., Bu, G., Quan, X. and Liu, Y. (2016). Producing nitrite from anodic ammonia oxidation to accelerate anammox in a bioelectrochemical system with a given anode potential, *Chem. Eng. J.*, 291, 184-191.