

Biofilm으로 충전된 단일 Column을 이용한 폐수의 질산화/탈질산화 공정 연구

배 해 룡*

경주대학교 건설환경시스템공학부*

Nitrification/Denitrification of Wastewater in one Column containing Biofilm

Bae-Hae Ryong*

*School of construction & environment system engineering, Kyongju University**

Abstract

This study investigated possibility of the nitrification and denitrification in one counter-current column with the growth of biofilm attached to its media. This experiment was performed through use of the lab scale reactor composed of the column and settler. The column used was packed with the small size of plastic rings called PALL(1.5×1.5 cm) with a cylindrical shape. Synthetic wastewater was used in the experiment. The loading rates of carbon (C) and total nitrogen (TN) furnished to the reactor were 0.23 to 1.0 kg COD/m³.d and 0.023 to 1.0 kg N/m³.d, respectively. Major factors controlling the removal efficiencies of COD and TN were the different air flux and volumetric loading rates of COD and TN.

The experimental results obtained from this study demonstrated that the removal efficiencies of COD ranged from 90 to 95% and those of TN were from 80 to 83% under the N loading rate of 0.035 and 0.058 kg N/m³.d, respectively. The patterns of TN removed were distinctively different on the limit of 50cm of column in depth. This indicated that the nitrification and denitrification occurred near the surface zone of and inside the biofilm, respectively, upto the 50 cm of the column in depth.

key words : nitrification/denitrification, biofilm, counter-current column, COD, total nitrogen(TN).

I. 서 론

일반적으로 폐수처리장에서 미생물을 이용한 생활폐수의 처리는 크게 두 단계로 이루어진다. 전처리 공정인 첫 공정은 부유물질이나 oil 성분의 제거이며 주 처리 공정인 두 번째 공정은 폐수중 생

분해 가능한 유기물질을 미생물을 이용하여 처리한다.^{1,6)} 이때 폐수 중 질소성분의 일부가 제거되어 어지지만 대부분의 질소성분은 미 처리되어 방류되므로 생태계의 부영양화 현상이나 암모니아성 질소의 독성이 문제시되고 있다.²⁾ 정부에서는 하천이나 호소의 부영양화, 독성피해, 산소요구량 감소

Column의 높이 :	1.4 m	Column의 부피 :	40 L
Column의 직경 :	0.19 m	여재층의 높이 :	1.0 m
여재층의 공극율 :	85 %	침전조의 부피 :	15 L

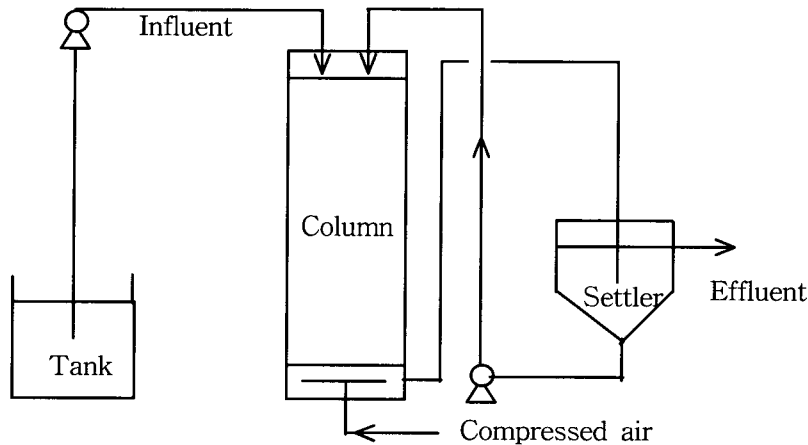


Fig. 1. Schematic diagram of experimental pilot.

등을 위해 특정지역내의 유기물 및 총질소와 총인 등에 대한 법적 규제농도를 각각 10, 20, 2mg/l로 강화할 예정이다.

현재 이들 질소성분의 제거를 위하여 여러 가지 공정이 개발되어 있으며 가장 널리 이용되고 있는 방법들 중의 하나가 변형된 활성 슬러지조에 의한 질산화/탈질산화 공정이다.⁶⁾ 또한 미생물이 입혀진 여재를 이용하는 공정개발이 활발히 이루어지고 있다. 이 공정의 대표적인 장점으로서는 고농도의 미생물층을 이용하므로써 반응조의 부피를 감소시킬 수 있다는 것과 탈질산화 공정시 오염물질의 주성분인 유기탄소를 미생물이 다량 제거한다는 것이다. 일반적으로 사용되고 있는 공정에서는 질산화/탈질산화 공정의 환경적 조건을 맞추기 위하여 두개 이상의 반응조를 이용하고 있다.^{2~5)}

본 연구에서는 미생물이 고정된 여재로 채워진 단일 column를 사용함으로써 전체 반응조의 총 부피를 감소시키고자 하였으며 이때 column내에 유입된 질소성분의 질산화/탈질산화 여부와 주어진 반응기에서 질소성분의 최대 제거량을 조사하여 본 공정의 사용가능성 여부를 제안하고자 하였다.

II. 재료 및 실험방법

1. 실험방법

Fig. 1은 본 실험에 사용된 장치의 주요 개략도이다. 이 장치는 단일 column과 침전조로 이루어져 있으며 이들의 외형은 다음과 같다.

처리물질과 슬러지의 재순환은 column의 윗부분으로 주입되었으며 압축공기의 주입은 column의 밑부분으로 이루어졌다. 그리고 처리물질과 재순환 슬러지의 균일한 주입을 위하여 column의 윗부분에 수층을 두었으며 주입되어진 공기량은 가스유량계로 조정되었다. Column 내부의 여재로는 실린더형 플라스틱 PALL rings (1.5×1.5cm)를 사용하였으며 여재층의 공극율은 85%였다. 한편 시료 채취를 위하여 column의 측면에 15 cm 간격으로 밸브를 설치하였다.

본 실험에 사용되어진 운전조건은 다음과 같다. 105 일간에 걸쳐 실행되어진 본 실험의 유입 유량은 6 l/h(처리물질:3 l/h와 슬러지 순환: 3 l/h)이었으며 이를 수리학적 부하량으로 계산하면 5.08 kg/m³·d 이었다.

처음 미생물의 접종은 프랑스 Nancy-Maxeville 폐수처리장 침전조의 재순환 과정에 있는 슬러지

(MLSS : 3.96g/l) 10L를 사용하였다. 미생물의 적응을 위하여 27일간은 탄소성분과 질소성분의 유입량을 0.23kgCOD/m³·d와 0.023kgN/m³·d로 고정하였으며 암모니아성 질소가 거의 제거(>97%)되었을 때 유입수의 농도를 0.35, 0.6, 0.77, 1 kgCOD/m³·d와 0.035, 0.058, 0.08, 0.1kgN/m³·d로 변화시켰다. 이 때 질산화 공정이 일어나지 않으면 탈질산화 공정이 무산되므로 유입공기의 양 또한 변화시켜 투입하였다.

2. 처리물질

처리 대상 폐수로는 희석된 Viandox에 염화 암모늄과 중화제로 NaOH를 첨가하여 만든 인공 폐수를 사용하였다. 사용된 Viandox의 주요 구성 성분은 단백질의 주성분인 아미노산과 포도당으로 이루어진 액체상태의 용액이다. Table 1은 COD 1000mg/l의 처리물질을 만들기 위한 화학적 구성비를 나타내고 있다.

Table 1. Composition of synthetic substrate.

Compound	Quantity
Viandox	65g
Saccharose	3.5g
NH ₄ Cl	2.8g
H ₃ PO ₄	0.65g
water	20L

3. 분석방법

Column의 측면에 설치된 밸브를 이용하여 채취된 다섯 시료와 침전조를 지나 배출되는 유출수는 먼저 O₂-Meter를 사용하여 용존산소를 측정 한 후 0.45μm membrane filter로 여과 시켜 미세입자를 제거시켰다. 여과된 시료를 이용하여 Standard Method에 의해 COD와 UV-spectrophotometer를 이용한 흡광도법에 의해 암모니아성 질소(Hach method), 질산성 질소(Hach method)와 T-N(Cuve test, LCK338)의 양을 분석하였다.

III. 실험결과

1. 용존산소 농도

Column 내부의 질산화 공정을 유도하기 위하여 용존산소의 농도가 4mg/l 이상에서 유입된 암모니아성 질소가 90%이상 질산성 질소로 전환되었으므로 주어진 유기물질의 부하량에 따라 공기 유입량을 0.2~1.1 l/min으로 조정하여 투입하였다.

Fig. 2는 유기물질의 양이 1.0kg COD/m³·d 일 때 공기유입량에 따른 column 내부의 용존산소량을 나타낸 것이다.

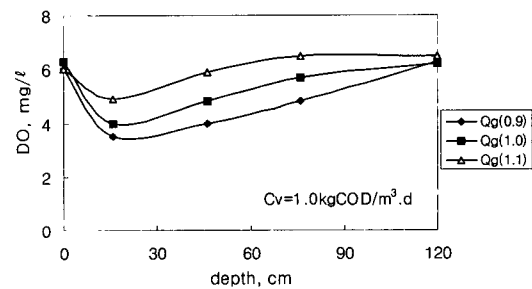


Fig. 2. Evolution of dissolved oxygen according to different air flux.

그림에서 보는 바와 같이 용존산소의 양은 column의 깊이와 유입되는 공기의 양에 따라 다르게 나타났다. Column 상단부의 경우 대기와 접촉하고 있어 대기중의 산소가 유입됨으로서 유입 공기의 양의 영향이 적게 나타났다. 또한 유기물질과 반송슬러지가 유입되는 column의 상단부에 미생물이 밀집해 있어 산소의 요구량 증가함에 따라 용존산소량이 감소하였다가 column 하단부로 내려갈수록 투입되는 공기의 양에 따라 용존 산소량이 증가함을 알 수 있다.

2. 공기량에 따른 COD 제거

전체 공정의 COD 제거효율은 유입수의 유기물질 농도와 주입공기량 변화에 따라 다르게 나타났다. Fig. 3은 유기물질의 부하율이 0.35kgCOD/m³·d과 0.6kgCOD/m³·d 일 때, 공기 주입량에 따른 column 내부의 COD 제거량을 나타낸 것으로 85

%이상의 제거효율을 나타내었다. 또한 주입되어진 대부분의 유기물질이 column의 상단부인 $0 < H < 46\text{cm}$ 에서 제거되었으며, 지나치게 높은 공기의 주입은 COD제거에 저해 요소를 작용함을 보여준다. 침전조를 그친 배출수의 COD 제거효율은 유기물질의 부하량이 $0.6\text{kgCOD}/\text{m}^3\cdot\text{d}$, 공기의 주입량이 $0.5\text{ l}/\text{min}$ 일 때 주입되어진 유기물질의 95%까지 제거되어졌다.

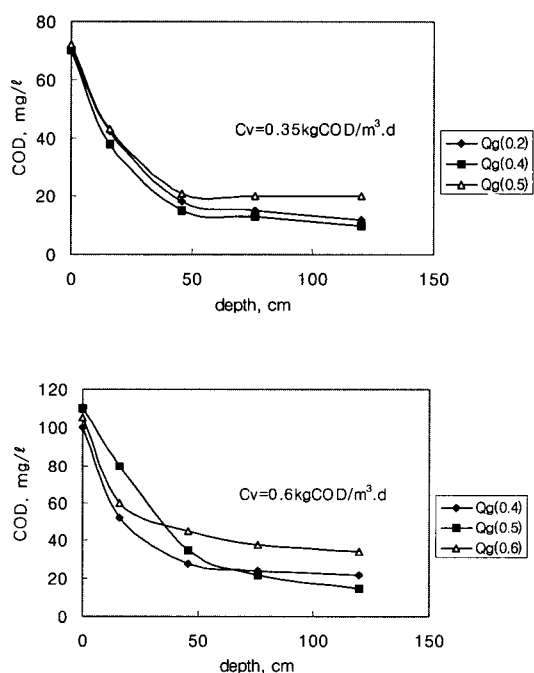


Fig. 3. Evolution of COD elimination according to different air flux.

3. NH_4^+ 와 NO_3^- 농도변화

일반적으로 column 내부에 유입된 질소성분의 농도 변화는 하부에서 공기가 유입됨으로써 용존 산소의 농도가 높은 하부에서는 질산화공정이 유리하게 일어나고 상부에서는 산소의 농도가 비교적 낮고 탄소원의 농도가 풍부하여 탈질산화 공정이 유리하게 진행될 것으로 예상되어진다. 이를 증명하기 위하여 column의 깊이에 따른 암모니아성 질소와 질산성 질소를 농도를 측정된 결과 Fig. 4과 5와 같다.

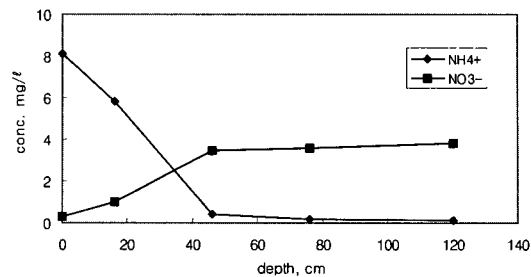


Fig. 4. Concentrations of ammonium ion and nitrate in column($0.5\text{ l}/\text{min}$, $0.035\text{kg N}/\text{m}^3\cdot\text{d}$)

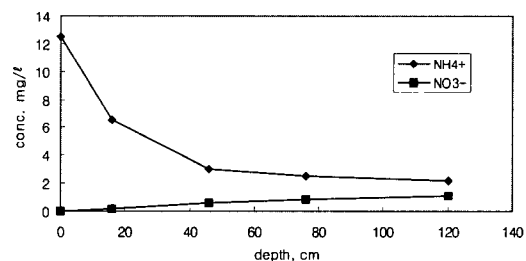


Fig. 5. Concentrations of ammonium ion and nitrate in column($0.5\text{ l}/\text{min}$, $0.058\text{kg N}/\text{m}^3\cdot\text{d}$)

Fig. 4는 질소성분의 부하량이 $0.035\text{kg N}/\text{m}^3\cdot\text{d}$ 이고 공기의 주입량이 $0.5\text{ l}/\text{min}$ 일 때 암모니아성 질소와 질산성 질소의 농도를 나타낸 것으로 암모니아성 질소는 질산화 공정에 거의 제거되어 짐을 알 수 있다. 하지만 column의 출구에서 높은 질산성 질소의 농도를 보임으로써 탈질산화 공정에 어려움이 있음을 나타내었다. 반면에 Fig. 5는 같은 공기의 주입량에 유기물질의 부하량을 올렸을 때의 결과로 column 출구에서 질산성 질소의 농도가 낮아 질산화와 탈질산화 공정이 순조롭게 일어남을 알 수 있다. 또한 질산화 공정과 탈질산화 공정은 column의 환경에 의해 일정부위에서 분리되어져 유리하게 나타나기보다는 column의 상부 50cm 이내에서 동시에 일어남을 보였다.

4. 총질소농도 변화

질소의 생물학적 제거에는 두 가지 경로가 있

다. 첫째는 미생물의 세포합성(C₅H₇O₂N)시 일정부분의 질소를 필요로 하게되어 제거되는 것으로 이 양은 극히 제한되어진다. 또 다른 경로는 미생물에 의해 암모니아성 질소가 산화되어져 아질산성 질소를 거쳐 질산성 질소로 되는 질산화 반응과 산화된 질소를 다시 질소가스로 환원시키는 탈질산화 반응을 연속적으로 일으켜 질소를 제거하는 것이다.

Fig. 6은 공기주입량 변화에 따른 column의 각 지점에서의 총질소의 농도를 측정된 값을 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이, 탄소성분의 부하량과 질소성분의 부하량이 각각 0.6kg/m³·d와 0.058kg/m³·d 인 조건에서 공기주입량 변화에 따른 총질소 제거량을 나타낸 것으로, 공기의 주입량이 0.5 l/min 일 때 가장 높은 제거효율을 보였다. 즉, 공기의 주입량이 0.4 l/min인 경우는 산소량 부족에 의한 암모늄 이온의 질산화가 불충분하게 진행되어졌으며, 공기의 주입량이 0.6 l/min의 경우는 column의 내부의 용존산소의 농도가 탈질산화 공정에 부적합하였기 때문으로 사료된다. 또한 질소 성분 제거율의 대부분이 column의 상부 50cm 이내에서 제거되어졌다. 이는 Kinner와 Roche¹⁰⁾의 biofilm 연구결과와 같이, 본 실험 조건에서 질산화-탈질산화 과정은 biofilm의 표면과 내부에서 동시에 일어나고 있음을 의미한다.

이상의 결과를 종합해 보면, 단일 column의 이용한 질소성분 제거에 있어 질산화-탈질산화는 column 내부의 동일 지역에서 동시에 일어났으며, 이때 공기 주입량은 질소성분 제거에 중요한 인자로 작용하였다.

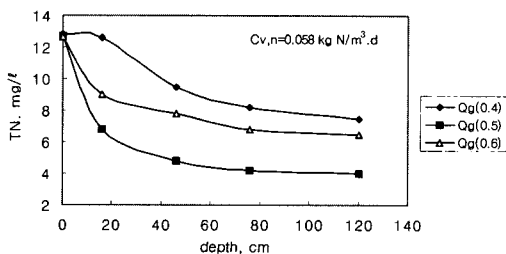


Fig. 6. Evolution of total nitrogen concentrations according to different air flux.

Table 2. Experimental results according to operating conditions.

Operating conditions				Eliminations, %		
COD kg/m ³ ·d	TN kg/m ³ ·d	liquid l/h	air l/min	N-NH ₄	COD	TN
0.23	0.023	6	0.2	>97	87	65
0.35	0.035	6	0.2	81	92	80
			0.4	92	92	65
			0.5	>97	86	51
0.6	0.058	6	0.4	70	88	65
			0.5	90	95	83
			0.6	94	90	70
0.77	0.08	6	0.5	<25	90	<45
			0.6	75	90	65
			0.7	94	92	70
			0.8	94	89	63
1	0.1	6	0.9	82	89	62
			1	90	92	70
			1.1	96	88	64

Table 2는 본 연구에서 수행되어진 여러 실험적인 조건에 따른 유출수의 암모늄이온, COD 그리고 총질소 제거효율을 나타내었다. 표에서와 같이, 0.77 kgCOD/m³·d와 0.08 kgTN/m³·d 인 조건에서 공기주입량이 0.5 l/min 일 때 COD 제거효율은 90%을 보였으나 투입된 암모늄이온의 질산화가 매우 낮아 전체 질소 제거율은 45%이하의 값을 보였다. 반면에, 0.35kgCOD/m³·d와 0.035kgTN/m³·d 인 조건에서 공기주입량이 0.5 l/min 인 경우는 과다한 공기주입으로 투입된 암모늄이온의 97%이상 질산화 되었으나 유출수내의 총질소 제거효율은 51%로 낮은 값을 보였다. 이로써 단일 column을 이용한 질산화/탈질산화 공정은 유기물질의 부하량에 따른 공기주입량이 매우 중요한 인자임을 알 수 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 바닥으로 공기를 불어넣고 상부로부터 폐수를 주입하는 반대방향의 흐름인 조건

에서 미생물을 이용한 단일 column를 운영하여 질산화/탈질산화 특성을 살펴본 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 유입수의 COD와 암모늄이온의 농도는 column의 상부에서부터 하부로 내려올수록 감소되는 값을 보였으며, 질산성 질소의 농도는 하부로 이동할수록 증가하였다. 이때 column내 용존산소의 농도는 질산화와 탈질산화 공정이 원활하게 이루어질 수 있는 조건을 결정짓는 주요인자로 작용하였으며, 각각의 부하량에 따라 용존산소의 농도가 최소 4mg/l 내외 값에서 탈질산화 공정과 함께 주입된 암모늄이온의 질산화가 90%이상 이루어졌다.
2. 본 공정의 COD제거 효율은 부하량에 따라 92~95%까지 처리가 가능하였으며, 총질소성분의 제거효율은 부하량에 따라 다르게 나타났다. 부하율이 0.058 kgTN/m³.d 이하에서는 80~83%까지 제거가 가능하였으며, 0.08 kg TN/m³.d 이상에서는 70%까지 제거되어져 비교적 높은 제거효율을 보였다.
3. 단일 column내에서 폐수의 질산화와 탈질화 공정은 공존이 가능하였으며, column내의 환경에 따라 각각 분리되어져 일어나는 것이 아니라 column의 상부 50cm 이내에서 biofilm의 표면과 내부에서 거의 일어나는 것으로 사료되어졌다.

참 고 문 헌

1. Bae, H.R : Etude de la nitrification-dénitrification en lit fixe noyé à contre-courant, DEA(ENGEES), p.58, 1994.
2. Wentzel, M.C. and Marais, R : Kinetic of nitrification, denitrification biologique excess phosphorus removal systems, wat. sci. tech., 23, 555-565, 1991.
3. Gujer, W. and Boller, M : Operating experience with plastic media tertiary trickling filters for nitrification, wat. sci. tech., 16, 201-211, 1984.
4. Drtil, M., Bodik, I. and Tolgyessy, J : Influence of combined suspended and fixed film biomass in anoxic reactor on nitrification-denitrification process, wat. sci. tech., 25, 403-408, 1992.
5. Hosomi, M., Matsushige, K. and Sudo, R : Denitrification of landfill leachate by the modified rotating biological contactor, wat. sci. tech., 23, 1447-1485, 1991.
6. Wartchow, D : Nitrification and denitrification in combined activated sludge systems, wat. sci. tech., 7/8, 199-206, 1990.
7. Naji, S : Etude d'un nouveau type de réacteur à biomasse immobilisée, THESE (université de METZ), 1985.
8. Hamai, L : Dénitrification dans lit bactérien à ruissellement, DEA(ENGEES), 1993.
9. Pacaud, B : Dénitrification aérobie du nitrate et du nitrite par une soude paracoccus dénitrificans cultivée en anaérobiose ou en aérobie et par des boues activées, THESE(INPL), 1983.
10. Roche, N : Misen place d'une méthode de dosage en continu de l'azote ammoniacal dans les eaux, DEA(université du Languedoc), 1986.