한국생물공학회지 제6권 제2호
Korean J. Biotechnol. Bioeng.
Vol. 6. No. 2. 115-121(1991)

생물막 유동층 반응기에서 미생물 성상에 따른 속도론적 고찰

김 동 석 · 안 갑 환 · *이 민 규 · 송 승 구
부산대학교 공과대학 화학공학과
*제주대학교 공과대학 화학공학과

A Kinetic Study with Biomass Characteristics in Fluidized-Bed Biofilm Reactor.

Dong Seog Kim, Kab Hwan An, Min Gyu Lee*, Seung Koo Song
Dept. of Chemical Engineering, Pusan National University
**Dept. of Chemical Engineering, CheJu National University*

ABSTRACT

A number of experiments were conducted in order to investigate the COD removal rate according to the biofilm thickness in a Fluidized-Bed Biofilm Reactor(FBBR).

The following conditions were fixed during the experiments: superficial upflow velocity was 0.47cm / sec, operating temperature was 22±1℃ and pH was about 7±0.1. The synthetic wastewater based on glucose was used as a substrate.

The COD removal efficiencies were shown as 73% and 95%, respectively, when organic loading rate was increased from 10kgCOD / ㎥ · day to 80kgCOD / ㎥ · day.

Andrew's model of substrate removal rate which was commonly used in fixed-biofilm reactor was transformed and applied in this FBBR experiment to predict substrate removal rate and gave 85% agreement with the experimental values.

서 론

생물학적 폐수의 정화는 반응기에 존재하는 미생물에 의하므로, 미생물의 농도가 증가하게 되면 그 정화작용도 증가하게 된다.

생물막 공법으로 많이 이용되는 살수여상법은 반응기에 미생물이 부착하여 성장할 수 있도록 고정된 지지체를 설치하여 폐수를 처리하는 방법으로 이는 미생물이 부유하여 성장하는 활성슬러지법에 비해 미생물 농도를 높게 유지할 수 있고, 슬러지의 처분이 용이하다는 장점은 있으나, 지지체의 크기가 작아지면 폐수와 공기가 유통하는 공간이 폐쇄되기 쉽고, 지지체가 서로 밀착되어 있어 미생물막과 폐수가 접촉하는 면적이 적은 단점이 있어 활성슬러지법에 비해 그 처리기능이 낮다(1,2).

이러한 점을 보완하기 위하여 반응기에 비교적 크기가 작은 지지체를 넣고 유체의 흐름으로 지지체에 유동성을 주어 지지체와 지지체 사이의 공극 폐쇄현상을 배제하고 미생물막과 폐수와의 접촉 면적을 증가시키기 위한 방법이 생물학적 유동층 반응기이다(3, 4).

생물막 유동층 반응기를 이용한 폐수처리법에 적용할 수 있는 수학적인 해법은 아직 명확히 규명되어 있지 않지만, 완전혼합 활성슬러지법에 적용되는 수학적인 해법이 생물막 유동층 반응기를 이용한 폐수처리법에도 적용될 수 있다고 보고된 바 있다(5).

생물막 유동층 반응기는 1950년대 초에 미생물의 손실 없이 높은 효율로 효과적으로 폐수를 처리할 수 있는 방법으로 평가받은 바 있으나, 요구되는 산소의 공급을 충족시키기 어렵고, 반응기내에 부착된 미생물량을 유지 관리하기가 쉽지 않으며, 유동화 및 반송펌프에 의한 동력비가 과다하게 소요되는 어려움으로 개발에 제약을 가지고 있었다.

그러나 산업구조가 다변화되면서 독성물질을 포함한 고농도의 폐수가 대량으로 배출되므로 생물막 유동층 반응기를 이용한 고농도 폐수처리에 많은 관심과 연구가 이루어지고 있다.

국내에서도 생물막 유동층 반응기에 대한 많은 연구가 이루어 지고는 있으나, 주로 공장폐수의 처리효율에 관해서만 보고되었을뿐(6), 미생물막의 성상에 따른 속도론적 고찰에 대해서는 발표된 적이 거의 없었다. 본 연구에서는 생물막 유동층 반응기를 속도론적 관점에서 고찰하였으며, 고정 생물막 반응기에 사용되었던 속도론적 모델에서 미생물막을 작은 입자의 원형으로 변형하여 생물막 유동층 반응기에 적용시켜 보았다. 또한, 본 생물막 유동층 반응기는 순환비가 크므로 완전혼합이라고 가정을 하여, 동역학적 계수인 최대 수율 계수(Y), 반 포화속도계수(Ks), 최대 비성장속도(μm)를 구하였으며, 미생물막 두께에 따른 유기물 제거 속도의 변화를 관찰하여, 일정한 미생물막 두께이상의 미생물은 호기성 상태의 유기물 제거와는 다른 거동을 나타낼 것으로 사료되어 그 현상을 고찰하고자 하였다.

재료 및 방법

Bioparticle의 모양은 실제로는 균일한 구형이라기 보다는, 긴지름(ai)과 짧은 지름(bi)을 가진 달걀 모양의 타원형으로 된 것이 많으므로 volume-equivalent 구형으로 전환된 지름을 이용하여(7) 구형으로 간주한다.

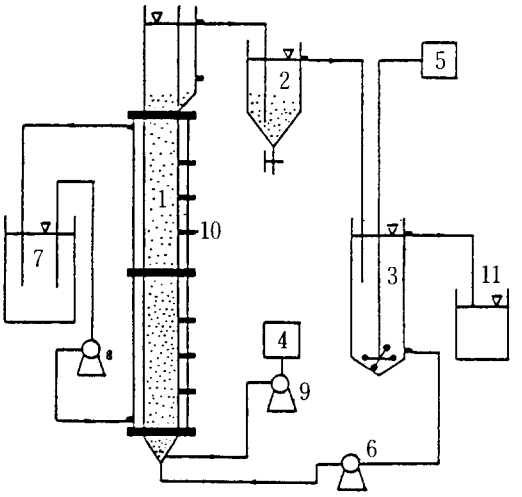
$$di = \sqrt[3]{ai \cdot bi^2} \quad (1)$$

또한, 평균 입자 크기는 volume surface mean 또는 Sauter mean을 사용하여 구하나, 본 실험에서는 Sauter mean을 이용하였으며, 평균 미생물막 두께(δ)를 다음과 같이 계산하였다.

$$\delta = \frac{dp - dm}{2} \quad (2)$$

본 실험에 사용된 장치는 Fig. 1과 같고 폐수는 Table 1과 같은 합성 폐수를 사용하였다. 반응기는 내경이 8.9cm, 높이가 190cm, 총 부피가 12L인 아크릴 원형관을 사용하였다. 반응기 측면에는 항온용으로 1cm 간격을 두고 같은 아크릴 재질로 jacket을 설치하여 반응기를 항온으로 유지시켰고, 유기물 농도와 미생물 농도를 측정하기 위해 약 40cm 간격으로 6개의 채취구를 설치하였다. 지지체는 직경이 Sauter mean diameter로 약 629μm인 동해안산 규사를 사용하였다.

유입 폐수는 정량펌프를 사용하여 반응기 하부에 설치



1. FBBR
2. sand trap
3. aeration tank
4. feed tank
5. aerator
6. recycle flow pump
7. water bath
8. jacket pump
9. feed pump
10. sampling port
11. effluent

Fig. 1. Schematic Diagram of Fluidized-Bed Biofilm Reactor.

Table 1. Composition of synthetic wastewater (COD_{cr}=2,500mg / l)

unit: g / l

Items	Values(g / l)
Nutrient broth	0.1
Na_2HPO_4	1
Glucose	4
KCl	0.14
Urea	1
$CaCl_2$	0.14
NaCl	0.3
$MgSo_4$	0.1

된 시료 유입구로 주입시켰다. 반응기 상부에 교반기를 설치하여 과도 성장한 bioparticle을 깨뜨려 지지체는 다시 반응기로 유입하고 슬러지는 반송시켰다. 또 반응기 밖으로 유출되는 지지체는 상부에 설치된 sand trap을 통하여 다시 반응기로 유입시켰다.

산소 공급 방식은 간접 폭기 방식으로 저장 탱크에서 산소를 순환수에 용존시켜 반응기로 공급하였다. 반응기 내 온도는 항온수조와 자동온도조절 장치를 사용하여 22±1℃로 유지하였다.

초기 미생물막을 형성할 시에는 반응기에 수도물을 채우고 상향유속이 1cm/sec가 되도록 순환시킨 후 지지체를 5L 정도 반응기에 유입시킨 다음, 합성 폐수를 1000ppm, 체류시간을 2일 정도로 하여 공급하고, 부산시 W식품(주) 폐수 처리장의 반송 슬러지(MLSS: 12,000mg/l)를 30mesh(Φ: 0.54mm) sieve에 여과시켜 반응기내에 주입시켰다.

미생물막이 단단하게 형성이 되어 정상상태에 도달한 후에는 상향 유속을 0.47cm/sec, 층 높이를 165cm로 고정한 상태에서 합성 폐수를 HRT 5시간에서 유기물 농도를 1500, 3000, 5000, 7000, 9000, 13000ppm으로 바꾸어 가면서 실험하였다. 유기물 부하에 따라 반응기 내 층높이가 165cm 이상 증가하는 bioparticle은 반응기 105cm의 채취구에서 시료를 채취하여 미생물 농도를 측정하고, 모래는 깨끗이 세척하여 105℃ 건조기에서 2시간 건조시킨 후 무게를 측정하고 다시 반응기에 유입시켰다. 시료를 채취하지 않는 동안에는 반응기 상부에 있는 교반기를 이용하여 bioparticle을 깨뜨려서 모래는 반응기로 떨어 뜨리고 슬러지는 반송시켰다.

본 실험에 사용된 시료 분석 방법은 Standard Method (8)를 기준으로 행하였다.

동력학적 계수 산출

미생물 증식은 일반적으로 Michaelis-Menten식과 Monod 식에 적용되므로, 단위 시간당 총 미생물증식율 $[(dX/dt)_g]$은 다음과 같으며,

$$\left[\frac{dX}{dt}\right]_g = \frac{\mu m \cdot X \cdot S}{K_s+S} \quad (3)$$

미생물은 증식과 동시에 내호흡을 하므로, 내호흡율을 미생물량에 비례한다고 고려한 순 미생물 증식량, $[(dX/dt)_{net}]$는 식(4)로 표현된다.

$$\left[\frac{dX}{dt}\right]_{net} = \frac{\mu_m \cdot X \cdot S}{K_s+S} - K_d \cdot X \quad (4)$$

유기물 제거율은 미생물 성장율과 관계가 있으므로,

$$\left[\frac{dS}{dt}\right]_{removal} = -\frac{\mu m}{Y}\frac{X \cdot S}{K_s+S} = -\frac{K \cdot X \cdot S}{K_s+S} \quad (5)$$

로 되며, 식(5)에서 보는 바와 같이 미생물 증식율과 유기물 제거율은 전 유기물 농도 범위에서 연속적이다.

반응기내 반송율이 약 230배 이상이므로 생물막 유동층 반응기를 완전 혼합 반응기라고 가정하고(9), 슬러지의 반송을 고려하지 않으면 아래와 같은 물질 수지식이 유도된다.

$$V \cdot \frac{dS}{dt} = Q \cdot S_o - Q \cdot S - \frac{k \cdot X \cdot S}{K_s+S} \cdot V \quad (6)$$

정상상태에서 선형방정식으로 변형하면 다음 식과 같이 표현되고,

$$\frac{X \cdot \theta}{S_o-S} = \frac{K_s}{k} \cdot \frac{1}{S} + \frac{1}{k} \quad (7)$$

위 식에서 1/S과 $[X \cdot \theta/(S_o-S)]$의 관계로 부터 동력학적 계수, k와 K_s를 구한다.

Fig. 2와 같은 생물막 유동층 반응기에서의 미생물 체류시간은 다음과 같이 표현된다.

$$\theta_c = \frac{V \cdot X}{Q_w \cdot X + Q \cdot X_e} \quad (8)$$

또한, 폭기조내의 미생물에 대하여 물질 수지식을 세우면 다음 식으로 나타낼 수 있다.

$$V \cdot \frac{dX}{dt} = Q_i \cdot X_o - [Q_w \cdot X + Q_e \cdot X_e] + \left[\frac{dX}{dt}\right]_{net} \cdot V \quad (9)$$

윗식에 식(4)를 대입하고, 식에서 유입수의 미생물 농도를 무시하고($X_o=0$) 반응기내에서 시간에 따른 미생물 농도 변화가 없는 정상상태($dx/dt=0$)라 가정하면, 아래 식으로 표현된다.

$$\frac{1}{\theta_c} = \frac{\left[\frac{\mu m \cdot X \cdot S}{K_s+S}\right]}{X} - K_d \quad (10)$$

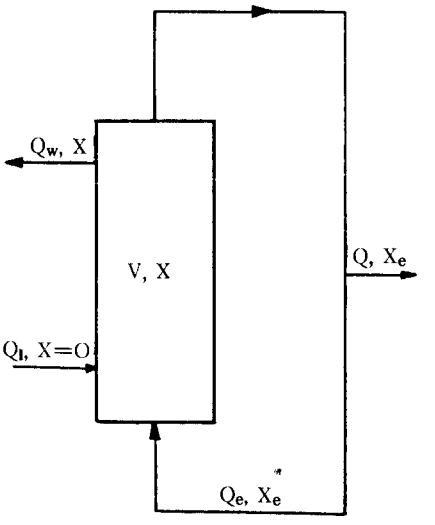


Fig. 2. Schematic diagram of FBBR system.

식(10)에 식(7)을 대입하여 선형 방정식 식(11)을 얻고,

$$\frac{1}{\theta c} = Y \cdot \frac{S_0 - S}{X \cdot \theta} - K_d \qquad (11)$$

$[(S_0-S)/X\cdot\theta]$와 $1/\theta c$의 관계로 부터 동력학적 계수 Y 및 K_d를 구한다.

모델에 의한 유기물 제거율의 예측

유기물 제거율에 대한 수학적 모델을 세우기 위해 Andrew(10)가 고정 생물막 반응기에서 사용한 가정을 이용하였다.

1) 반응기내 폐수는 완전 혼합된다.

2) 활성을 띤 미생물막 두께 내부의 미생물막은 유기물 제거율에 무관하다.

Fig. 3에서 전체 미생물막 중에 활성을 띤 미생물막 무게는

$$X_m = \frac{N \cdot \pi(dp^3 - dp^{*3})}{6} \cdot (X) \qquad (12)$$

로 나타낼 수 있고, 전체 반응이 완전 혼합상태에서 이루어진다면 아래와 같은 물질 수지식을 세울 수 있다.

$$\left[\frac{dS_m}{dt}\right]net = F \cdot S_0 - F \cdot S_1 - \left[\frac{dS_m}{dt}\right]utilization \qquad (13)$$

기질이용은 주로 미생물막내에서 이루어지므로 정상상태에서 아래 식으로 표현된다.

$$F \cdot S_0 - F \cdot S_1 = \frac{\mu}{Y} \cdot \frac{N \cdot \pi(dp^3 - dp^{*3})}{6} \cdot (X) \qquad (14)$$

여기에 Monod 식을 대입하여 다음 식을 구한다.

$$F(S_0 - S_1) = \frac{\mu_m}{Y} \cdot \frac{N \cdot \pi(dp^3 - dp^{*3})}{6} \left[\frac{S}{K_s + S}\right](X) \qquad (15)$$

본 실험에서는 고정 생물막에 사용되는 Andrew의 모델을 생물막 유동층 반응기에 변형하여 적용하고, 실제 유기물 제거율인 좌측 항과 예측된 유기물 제거율인 우측 항을 비교하여, 이 변형시킨 모델이 생물막 유동층 반응기에 적용 가능한가를 검토하였다.

결과 및 고찰

미생물막의 형성 및 성장

Fig. 4 a, b, c, d는 유기물 부하가 10–30 kgCOD/m^3·day일 때, 지지체에 부착된 미생물막의 형태로서, a는 초기 미생물이 부착되어 조금씩 미생물막을 형성해 가는 형태로서 아직 지지체는 명확히 관찰되고 미생물막 두께는 명확하지 않은 상태를 나타내고 있다. b는 완전히 bioparticle(지지체+biofilm)의 형태를 갖추고 있으며 지지체의 형태는 뚜렷이 나타나지 않고 윤곽만이 보이고 있다. c는 bioparticle이 한계 미생물막 형태보다 증가한 모양으로서 지지체는 완전히 보이지 않고, 안쪽에 보이는 시커먼 부분까지가 한계 미생물막 두께인 것으로

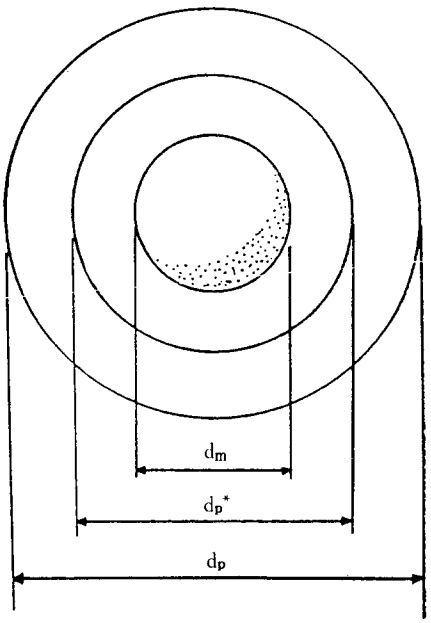


Fig. 3. Active biofilm thickness.

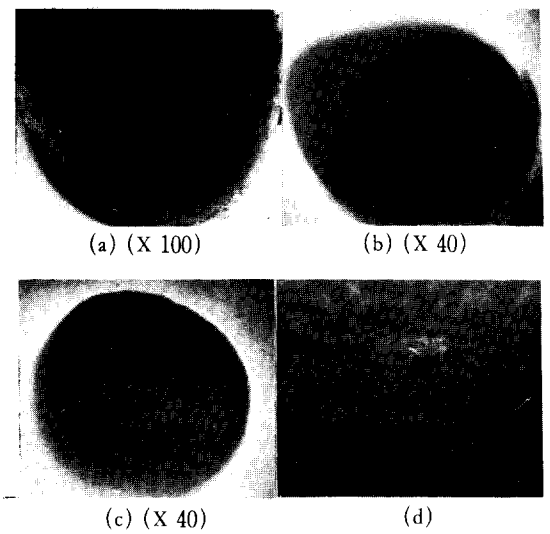


Fig. 4. The process of bioparticle development. organic loading rate(kgCOD/m^3·day) (a: 10 b: 20 c: 30 dl20)

사료된다. 또한 위의 bioparticle의 형태를 보면 모두 달걀형을 이루고 있는 것을 알 수 있다. d는 bioparticle을 외부에서 관찰한 사진이다.

미생물 농도의 변화는 시간에 따라 Fig. 5와 같이 나타났으며, 미생물막 두께의 성장도 Fig. 6에서 보는 바와 같이 Fig. 5와 유사하게 증가하였는데, 이는 각 일정한 유입 유기물 농도에서 유출 유기물 농도의 변화가 없을 때, 즉 정상상태에서 측정한 미생물 농도와 미생물막 두께를 나타내었다.

이러한 현상은 일정한 유기물 농도에서 미생물의 농도와 미생물막 두께는 밀접한 관계를 나타내고 있으며, 유기물 농도를 변화시킴에 따라 미생물 농도와 미생물막 두께를 변화시킬 수 있음을 알 수 있었다.

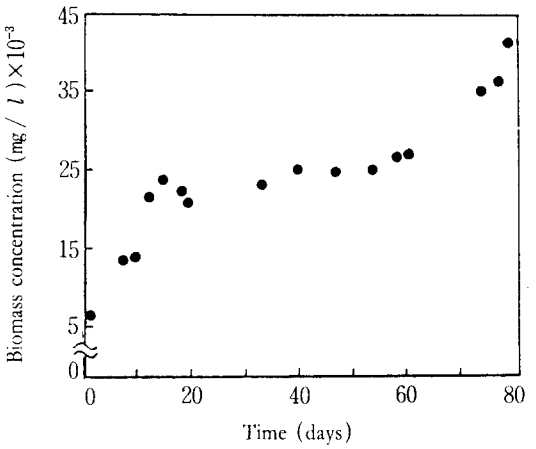


Fig. 5. Variation of biomass concentration with time.

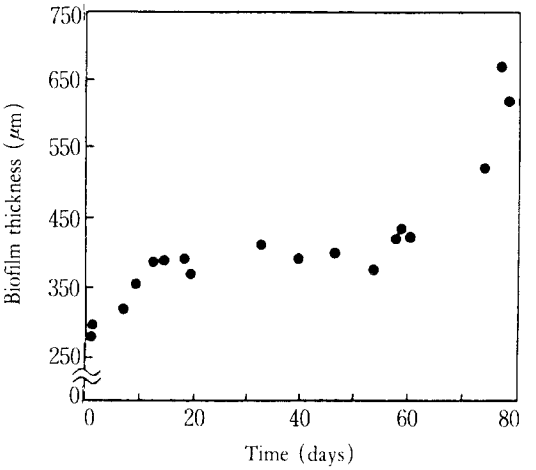


Fig. 6. Variation of biofilm thickness with time.

모델에 의한 유기물 제거율의 예측

Fig. 7은 미생물막의 두께 변화에 따른 유기물의 제거속도를 나타낸 그림으로써, 미생물막의 두께가 두꺼워짐에 따라 유기물의 제거율도 증가하는 경향을 나타내었으나, 미생물막 두께가 420μm 이상에서는 유기물 제거율의 변화가 거의 일정하였다. 그러므로 420μm까지를 활성을 띤 미생물막 두께라고 생각을 하고, 고정 생물막에 이용하는 Andrew의 유기물 제거율에 대한 모델식을 변형하여 생물막 유동층 반응기내의 bioparticle에 적용시

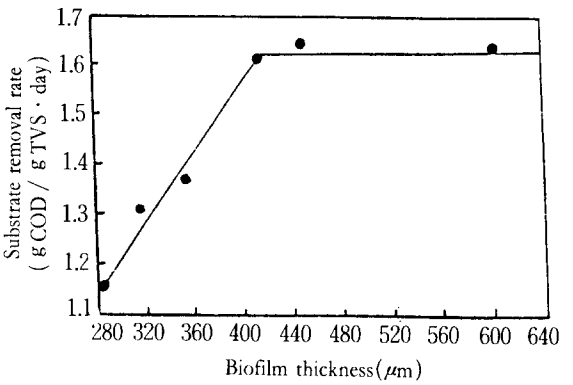


Fig. 7. The effect of biofilm thickness on substrate removal rate.

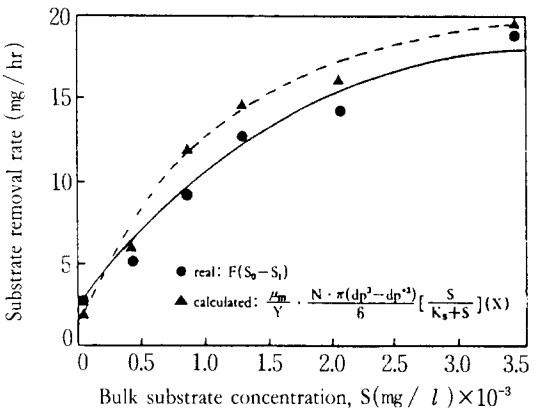


Fig. 8. Substrate removal rate versus bulk substrate concentration.

켰다. 유출 농도에 따른 실제 유기물 제거율과 모델에 적용시킨 유기물 제거율을 Fig. 8에서 비교하였다. 모델식에 적용한 유기물 제거율과 실제 유기물 제거율은 15% 범위에서 서로 부합함을 알 수 있었으므로, 모델식으로 생물막 유동층 반응기 내의 유기물 제거율을 유추할 수 있음을 알 수 있었다.

이러한 결과는 두 반응기 모두 미생물이 지지체에 부착된 상태로 기질을 처리하는 근본 원리가 같은 것에 기인하기 때문이라고 사료된다.

동역학적 계수 산출

생물막 유동층 반응기에서의 동력학적 계수를 산출하기 위하여 식(5)의 $X \cdot \theta / (S_0 - S)$와 $1/S$을 유입수 및 유출수의 COD 농도, 체류시간, 반응기내 미생물 농도 등의 자료를 이용하여 Fig. 9에서 선형화 시키면 그 절편값이 $1/k$, 기울기가 K_S/k가 된다. 본 실험에서는 COD 기준으로 k=1.5/day, K_s=18mg/l로 산출되었다. 활성슬러지 공정에서 전형적인 하수의 계수 값은 k=2~10/day, K_s=25~100mg/l 정도의 범위이므로 본 실험 폐수는 이 범위 내에 있음을 알 수 있었다.

또한, 실험에 의한 자료를 식(12)의 $1/\theta$와 $(S_0-S)/X \cdot \theta$를 선형화 시켜 Fig. 10에 나타내고, 이 직선식에서 절편값은 k_d, 기울기는 Y가 된다. 본 실험에서는 COD 기준으로 k_d= 0.30/day, Y=0.45로 나타났으며 활성슬러지 공정에서의 일반적인 계수 값이 Y=0.25~0.4, k_d=0.04~0.075/day 정도의 범위이므로, 본 실험은 kd 값이 큰 값으로 나타났다. 이러한 현상은 유기물 농도의 증가에 따라 미생물막이 두꺼워져 기질이 일정한 두께 이상을 침투할수가 없으므로 내호흡에 의한 미생물 감소가 큼을 보여주고 있다.

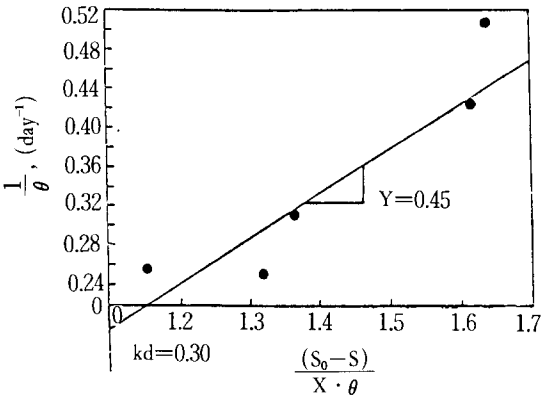


Fig. 10. Plot of experimental data to determine kinetic coefficients, Y and K_d.

유기물 부하율에 따른 COD 제거효율의 변화

체류시간을 5시간, 운전운도를 22±1℃를 유지하여, 유기물 농도를 증가시키면서 실험을 하여 미생물막이 완전히 정상 상태에 도달했을 때, 각 유기물 부하율에 따른 COD 제거효율을 Fig. 11에 나타내었는데 유기물 부하율이 10kgCOD/㎥·day에서 95% 이상의 제거효율을 보였고, 20-50kgCOD/㎥·day에서도 83% 이상의 제거 효율을 나타내었고, 유기물 부하율을 81kgCOD/㎥·day까지 증가시켰을 때에도 73%의 제거효율을 보였으므로, 일반적인 활성슬러지 공정의 유기물 부하율

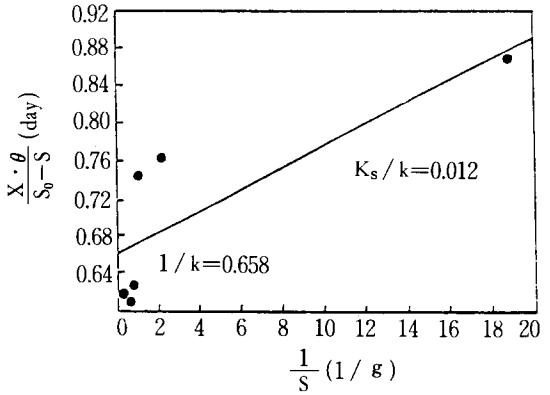


Fig. 9. Plot of experimental data to determine kinetic coefficients, K_s and k.

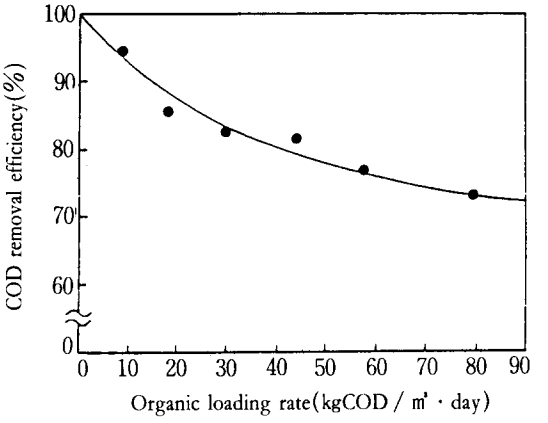


Fig. 11. Organic loading rate versus COD removal efficiency.

1.5kgCOD / ㎥·day와 비교해 보면 생물막 유동층 반응기가 고농도의 유기성 폐수를 처리하는데 우수할 뿐만 아니라 유기물 부하율의 변화에도 안정함을 알 수 있었다.

요 약

본 연구의 목적은 생물막 유동층 반응기내에서 높은 유기물 부하를 처리하는데 있어 지지체에 부착된 미생물의 특성과 유기물의 처리효율을 조사하는데 있다.

실험은 글루코오즈를 주 기질로 한 합성폐수를 이용하여, 상향유속은 0.47cm / sec, 체류시간을 5시간, 운전 온도는 22±1℃, pH는 7±0.1로 일정하게 하고 유기물 부하를 10kgCOD / ㎥ · day에서 80kgCOD / ㎥ · day로 증가시켰을 때, 각각 95%, 73%의 높은 COD 처리효율을 얻었다.

고정 생물막 반응기에 사용된 Andrew의 유기물 제거율 모델을 본 생물막 유동층 반응기에 적용시켜본 결과, 실제 유기물 제거율과 예측한 유기물 제거율은 85% 정도로 일치하였다.

Nomenclature

COD	chemical oxygen demand	(ML^{-3})
dm	support diameter	(L)
dp	bioparticle diameter	(L)
dp*	inactive bioparticle diameter	(L)
F	feed rate	(L^3/T)
HRT	hydraulic retention time	(T)
k	maximum specific substrate utilization rate	(T^{-1})
K_d	endogenous respiration coefficient	(T^{-1})
K_s	half saturation velocity coefficient	(ML^{-3})
MLSS	mixed liquor suspended solids	(ML^{-3})
MLVSS	mixed liquor volitile suspended solids	(ML^{-3})
N	total number of bioparticle per unit volume	—
Q	flow rate	(L^3T^{-1})
Q_w	waste sludge rate	(L^3T^{-1})
r_p	bioparticle radius	(L)
r_p^*	inactive bioparticle radius	(L)
S_o	influent substrate concentration	(ML^{-3})
S	effluent substrate concentration	(ML^{-3})
S_m	substrate weight in total reactor	(M)
SRT	solid retention time	(T)
V	reactor volume	(L^3)
X	biomass concentration	(ML^{-3})
X_e	effluent biomass concentration	(ML^{-3})
X_m	biomass weight in total reactor	(M)
X_w	waste sludge concentration	(ML^{-3})
Y	maximum yield coefficient	(M / M)
δ	biofilm thickness	(L)
δ^*	active biofilm thickness	(L)
μ	specific growth rate	(T^{-1})
μm	maximum specific growth rate	(T^{-1})
θc	solid retention time	(T)

참 고 문 헌

1. J. R. Harrison, J. C. Daigger (1984) JWPCF, 58, 1073.
2. K. H. Song, J. C. Yong(1980) JWPCF, 58, 115.
3. C. Stathis (1980) *ASCE.*, 106, 227.
4. J. S. Jeris, R. W. Owen(1980) *J. Water Roll. Control Fed.*, 49, 816.
5. E. J. La Motta (1976) *Envi. Sci. E. Tec.*, 10, 765.
6. 정우철, 김환기, 이복렬(1985) 한국화학공학회지, 23(6), 369.
7. J. E. Bailey, D. F. Ollis(1977) Biochemical Engineering Fundamentals, McGraw-Hill., New York.
8. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, (1985) APHA, AWWA, WPCF, 16th Edition.
9. O. Levenspiel (1962) Chemical Reaction Engineering, John Willey and Sons. Inc.
10. B. H. Kornegay, John F. Andrews(1967) 22nd Annual Purdue Industrial Waste Conference, Purdue University, Lafayette, Indiana, 460.

(Received; April 9, 1991, Accepted; May 27, 1991)