

## 회전생물활성탄(RBAC) 공정을 이용한 질소·인의 동시 제거

남 범 식·이 영 호·†조 무 환  
영남대학교 공과대학 응용화학공학부  
(접수 : 1999. 9. 17., 게재승인 : 1999. 10. 21.)

### Simultaneous Removal of Nitrogen and Phosphorus by Rotating Biological Activated Carbon Process

Beom-Sik Nam, Young-Ho Lee, and Moo Hwan Cho†  
School of Chemical Engineering & Technology, Yeungnam University, Kyongsan 712-749, Korea  
(Received : 1999. 9. 17., Accepted : 1999. 10. 21.)

The purpose of this study was to develop and evaluate rotating biological activated carbon(RBAC) process for nitrogen and phosphorus removal with increasing loading rate. The removal efficiency of  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  was observed to be higher than 96.5% at all runs, and the relative stable levels of effluent  $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ,  $\text{NO}_2\text{-N}$  and  $\text{NO}_3\text{-N}$  could be maintained. The removal efficiency of T-N was observed to be higher than 90%, except RUN 1. The T-P removal efficiency was kept between 32.7% and 49.8%, and the amount of biomass was kept between 269 mg/g support and 473 mg/g support with varying loading rate.

**Key Words** : RBAC process, nitrogen, phosphorus, attached biomass

#### 서 론

지금까지 수중의 질소 전환 및 제거를 위하여 여러 가지 공법이 연구되어 왔다. 일반적인 질소 제거 공법은 암모니아 탈기(stripping)법, 이온 선택적 교환법, 파괴점 염소 주입법(break-point chlorination), 생물학적 질산화-탈질 공법 등이 있다. 생물학적 질산화-탈질 공법은 제거효율이 높을 뿐 아니라 공정의 안정성과 신뢰성이 크고 소요부지 면적이 적으며 비용이 적게 들어 많이 사용하고 있다. 이 방법에는 외부로부터 메탄올( $\text{CH}_3\text{OH}$ )과 같은 탄소원을 추가시켜 질소를 제거하는 방법이 있으나 유기 탄소원의 첨가로 인한 경비소요와 별도의 장치 및 공간이 필요하게 되므로 에너지 절약 차원에서 경제적인 방법은 아니다.

하·폐수 중의 인 제거공법으로는 화학적 방법과 생물학적 방법으로 대별되며 전자의 경우 응집침전법, 결정법, 생물·화학적 처리법 등이며, 후자의 경우 혐기-호기법, Phostrip법 등이 있고, 기타 흡착제를 사용하는 방법 등이 있다. 인은 화학적인 처리방법이 생물학적 처리방법보다 훨씬 높은 제거 효율을 기대할 수 있지만 슬러지 발생량이 많고, 물 속의 pH가 쉽게 낮아져서 알칼리도의 보충이 필요하게 되므로 생물학적 처리 방법에 비해

효과적이지 못하다.

생물학적 질소·인 제거공정은 초기 활성슬러지 공정에서 질소 또는 인을 추가적으로 제거하려는 시도로부터 변형되어 왔으며, 현재에는 질소와 인을 동시에 제거하려는 공정으로 적용되고 있다. 그 예로  $\text{A}^2\text{O}$  process, Bardenpho process, VIP process, UCT process, SBR(Sequence Batch Reactor), P/L process 등 다양한 공정이 하·폐수 중의 영양염류를 제거하기 위해 개발되었다(1-5). 이러한 공정들은 대부분 활성슬러지 공정에서의 공정배치 변경으로부터 파생하였기 때문에 부유성장 미생물을 주로 이용하고 있는데, 근래에는 생물막 공정의 장점으로 생물막 공정을 이용한 질소·인 처리공정에 관한 연구가 활발히 진행되고 있는 추세이다(6).

기존의 질소·인 처리공정은 각각의 장·단점도 있고 실제로 적용되고 있는 공정이기도 하지만, 처리 공정이 복잡하고 정교한 운전기술이 요구되기 때문에 적은 비용으로 효율이 높고, 유지 및 관리가 간편한 새로운 질소·인 제거 기술 개발이 요망되고 있다. 본 연구에서는 RBC(Rotating Biological Contactor) 공정을 개선한, 운전이 쉬운 RBAC(Rotating Biological Activated Carbon) 공정을 개발하여 합성폐수를 이용해 질소와 인의 동시 제거를 수행하였다.

† Corresponding Author : School of Chemical Engineering & Technology, Yeungnam University, Kyongsan, Kyongpook 712-749, Korea

Tel : 053-810-2517, Fax : 053-814-8790

E-mail : mwcho@ynucc.yeungnam.ac.kr

#### 재료 및 방법

##### 실험장치

본 실험에서 사용된 실험장치의 구조는 Figure 1과 같으며 공

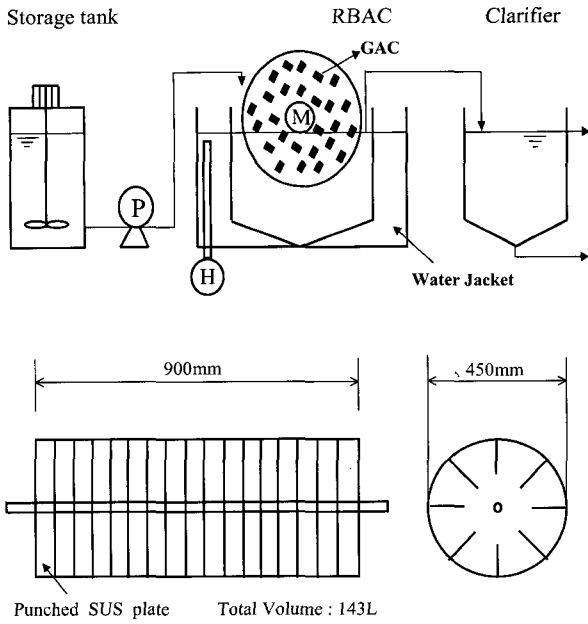


Figure 1. Schematic diagram of RBAC process.

Table 1. Properties of the granular activated carbon.

Properties	Specification	Units
Density	2.1	g/cm <sup>3</sup>
Apparent density	0.59	g/cm <sup>3</sup>
Packing density	0.49	g/cm <sup>3</sup>
Total pore volume	0.71	cm <sup>3</sup> /g
Specific surface area	1,100	m <sup>2</sup> /g
Mean pore radius	12.3	Å
Thermal conductivity	0.17	kcal/m.hr °C
Specific heat	0.244	cal/g. °C
Specific gravity	1.84	
Raw material	coconut	

정의 기본 개념은 입상활성탄을 충전한 원통형 RBC라 할 수 있다. 기존의 RBC는 미생물의 부착 면적이 다소 제한되어 있으나, 회전생물활성탄(RBAC) 공정은 입상활성탄을 충전해서 비표면적을 극대화시켰다. 입자의 표면에서는 호기성이나 입자의 내부는 혐기성이 될 수 있어 반응기 내의 혐기-호기 조건을 동시에 제공하여 유기물과 질소·인을 제거하는 공정이다.

반응기 용적은 180 L이며 유효용적은 150 L이고, drum 내부는 17칸으로 나누어져 있으며, 각 칸마다 8개의 baffle이 들어있다. 칸 구분은 입상활성탄의 좌우로의 유동을 최소화하기 위하여 설치하였다. 원통의 재질은 다공성 스테인레스판이며 두께는 2 mm, 용적은 143 L, 침적율은 약 45% 정도이다. 담체로 쓰인 입상 활성탄의 직경은 약 2 mm, 길이는 약 5 mm의 pellet type으로 수회 세척 후 건조하여 사용하였으며, 초기 투입된 활성탄의 양은 45 kg이다. 또한 활성탄은 drum 내부에 약 80% 충전하였으며, RBAC의 온도 조절은 water jacket, 온도감지센서, 온도 조절기를 설치해 반응기 내의 온도가 28°C가 유지되도록 하였고, drum의 회전속도는 0.5 rpm으로 운전하였다. 그리고 별도의 슬러지 반응은 실행하지 않았다. 실험에 사용된 입상 활성탄(JACABON-P205)의 성상은 Table 1과 같다.

Table 2. Composition of synthetic wastewater.

Component	Concentration (mg/L)
Glucose	225
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	212
KCl	17.5
NH <sub>4</sub> Cl	59.4
CaCl <sub>2</sub>	17.5
NaCl	37.5
MgSO <sub>4</sub>	12.5
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	35.1

Table 3. Experimental conditions for synthetic wastewater treatment.

(Unit : mg/L)

Phase	Influent COD <sub>Cr</sub>	Influent COD <sub>Mn</sub>	Influent BOD <sub>5</sub>	Influent NH <sub>4</sub> -N	Influent PO <sub>4</sub> -P
Run 1	200	140	154	20	8
Run 2	400	280	308	40	16
Run 3	600	420	448	60	24
Run 4	1,000	700	748	100	40
Run 5	2,000	1,400	1,490	200	80
Run 6	4,000	2,800	2,980	400	160

실험재료

본 실험에 사용된 유입수는 우리나라 평균 하수처리장 유입수 농도를 기준으로 조제되었으며(7), 합성폐수의 조성은 Table 2에 나타나 있는 바와 같이 탄소 공급원으로는 glucose를 사용하였고, NH<sub>4</sub>Cl을 질소공급원으로, KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>를 인 공급원으로 사용하였으며, 반응기에서의 질산화 공정에 따른 pH저하를 방지하기 위하여 Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>를 첨가하였다. 유기물, 질소 및 인의 부하율 증가는 RUN 1을 기준으로 2배, 3배, 5배, 10배, 20배까지 증가시켜 가며 운전하였다. 각 운전 단계의 합성폐수의 초기 농도는 Table 2와 같으며, 운전 조건은 Table 3와 같다. 그리고 각 운전 단계별로 입상활성탄에 부착한 미생물의 양을 측정하였다. 온도는 28°C를 유지하였고, drum의 회전속도는 0.5 rpm, HRT (Hydraulic Retention Time)는 48 hr으로 운전하였다.

미생물의 식종은 본 연구실에서 순수분리한 암모니아 산화균주 *Nitrosomonas* KB1, 아질산 산화균주 *Nitrobacter* KB2, 탈질균주 *Pseudomonas* CW4 및 인 축적 균주 *Acinetobacter* CW3 배양액을 각각 2 L씩 투입하여 순용시킨 후 실험을 하였다(8,9).

분석방법

암모니아성 질소, 아질산성 질소, 질산성 질소 및 인의 분석은 시료를 채취하여 3000 rpm으로 5분간 원심분리 후 상등액만을 취하여 암모니아성 질소는 인도페놀법, 아질산성 질소는 디아조화법, 질산성 질소는 부르신법, 인의 분석은 아스코르빈산 환원법에 의해 UV-spectrophotometer(UV-160A, Shimadzu)를 사용하여 측정하였다. COD<sub>Cr</sub>의 측정에는 수질오염공정시험법에 준하여 실험하였고, BOD는 독일 WTW사의 OxiTop<sup>®</sup> IS 12 BOD 측정기로 측정하였다.

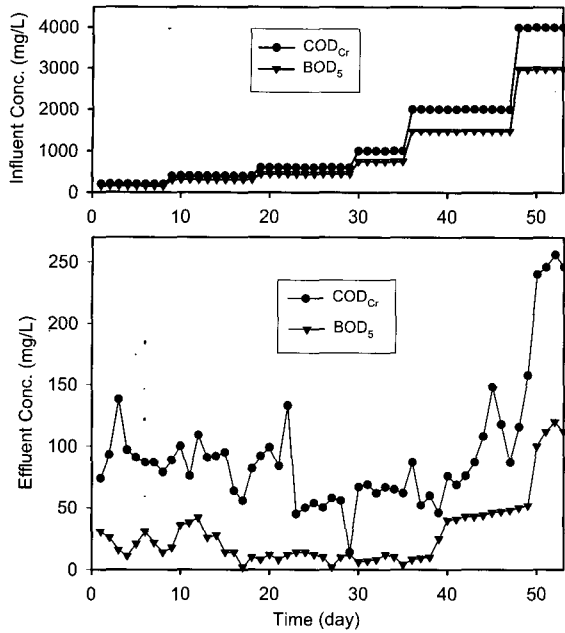


Figure 2. Variations of CODCr and BOD<sub>5</sub> concentrations.

### 결과 및 고찰

#### 유기물의 제거

RUN 1을 기준으로 RUN 2~6의 유기물 부하를 2배, 3배, 5배, 10배, 20배까지 증가시키며 운전하였다. 먼저 COD<sub>Cr</sub>, BOD<sub>5</sub> 농도의 운전조건별 유출수의 농도를 살펴보면 Figure 2와 같다. 실험초기에는 RBAC 내에서의 미생물 증식이 적어 유기물이 적게 제거되었지만, RUN 2 이후부터는 미생물의 성장으로 처리수의 BOD<sub>5</sub>는 평균 15 mg/L를 유지하다가, 원수의 농도가 10배 이상으로 증가한 RUN 5에서는 유출수의 농도가 50 mg/L 이상으로 높아졌지만 BOD<sub>5</sub> 제거율은 96% 이상이었다.

COD<sub>Cr</sub> 부하에 따른 운전조건별 제거율은 Figure 3에 나타내었다. RUN 5에서 COD<sub>Cr</sub> 부하가 0.83 gCOD<sub>Cr</sub>/L.day 일 때 제거율은 95.7%로 가장 높았으며, RUN 5보다 부하율을 2배 증가시킨 RUN 6에서는 93.9%로 낮아짐을 알 수 있었다.

BOD 부하에 따른 운전조건별 제거율은 Figure 4에 나타내었다. BOD 부하가 0.31 gBOD<sub>5</sub>/L.day인 RUN 4에서 98.7%로 가장 높은 제거율을 나타내었으며 부하가 증가할수록 제거율이 떨어짐을 알 수 있었다.

BOD 부하를 0.06~1.24 gBOD<sub>5</sub>/L.day 범위에서 운전하였는데 일반 활성슬러지 공정의 폭기조 BOD 부하인 0.3~0.8 gBOD<sub>5</sub>/L.day와 비교할 때, 1.24 gBOD<sub>5</sub>/L.day의 고부하에서 96%의 높은 제거율을 나타낸 것은 RBAC 공정을 유기물 제거 공정으로 운전할 수 있다는 것을 보여준다고 할 수 있다. 또한 공기 공급을 위한 공기 공급장치, 반송을 위한 펌프 장치가 필요 없는 것이 장점이라 할 수 있다.

#### 질소의 제거

각 운전단계별로 유출수의 질소 농도를 Figure 5에 나타내었다. 유입 질소의 농도는 RUN 1, 2, 3, 4, 5, 6에 대하여 각각 20, 40, 60, 100, 200, 400 mgNH<sub>4</sub>-N/L였다.

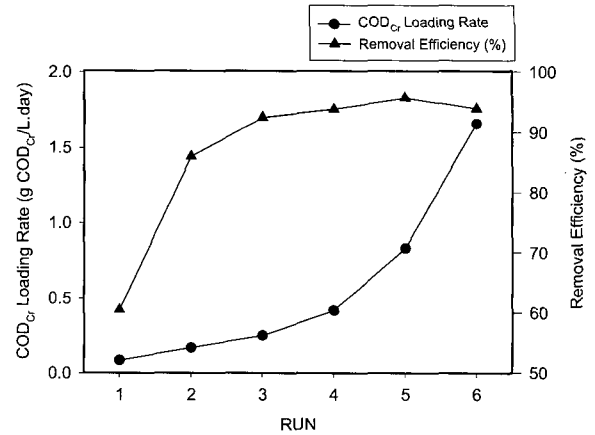


Figure 3. COD<sub>Cr</sub> loading rates and removal efficiencies.

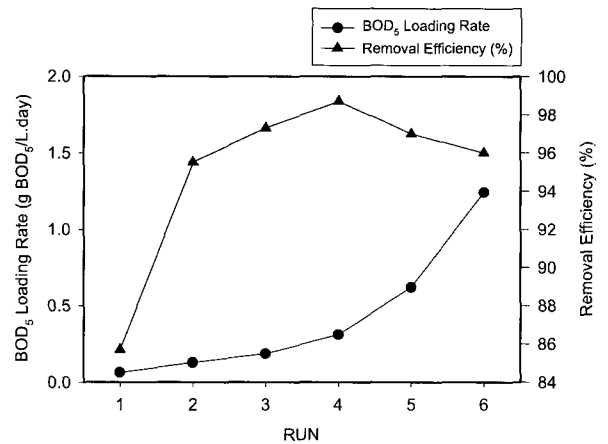


Figure 4. BOD<sub>5</sub> loading rates and removal efficiencies.

유출수의 암모니아성 질소의 거동을 살펴보면 RUN 1, 2, 3, 4의 경우에는 2 mg/L 이하였고, RUN 5의 경우에는 가장 높게 유출될 때에는 약 8 mg/L 정도를 나타내었다. RUN 6의 경우에도 유입수의 암모니아성 질소의 농도가 400 mgNH<sub>4</sub>-N/L의 고농도로 유입되었음에도 처리수의 암모니아성 질소의 농도가 약 2 mg/L 정도로 낮게 유지되었다.

아질산성 질소도 암모니아성 질소와 비슷한 경향을 나타내었으며, RUN 5에서 10 mg/L의 축적을 나타내기도 했으나 RUN 5를 제외하고는 아질산이 축적되는 현상은 나타나지 않았다. 아질산성 질소의 축적은 일반적으로 온도, pH, DO, BOD, SRT 등의 함수로서, 0.1 kgN/kgMLSS 이상, DO와 암모니아간의 비가 0.4 이하, BOD와 DO간의 비가 5 이상, SRT가 30일 이하인 경우에 발생한다고 보고되고 있다(10). 본 실험에서 DO는 항상 1 mg/L 이상이 유지되었고, 아질산성 질소의 축적이 큰 문제가 되지는 않았다.

질산화의 경우 별도의 산소 공급 없이도 충분히 질산화가 잘 일어났으며, BOD 부하가 1.24 gBOD<sub>5</sub>/L.day로 증가하여도 질산화 효율이 감소하지 않았는데, 이는 *Nitrosomonas*, *Nitrobacter*와 같은 질산화 균주가 높은 유기물 부하에서 heterotrophic bacteria와 경쟁할 수 있었다는 것을 보여준다.

질산성 질소의 경우 RUN 1의 초기부터 서서히 탈질이 일어나다가 RUN 2 후기에 완전히 탈질이 일어나는 것을 볼 수 있었으며, RUN 3 이후 운전단계에서도 간헐적으로 부하변동에 의

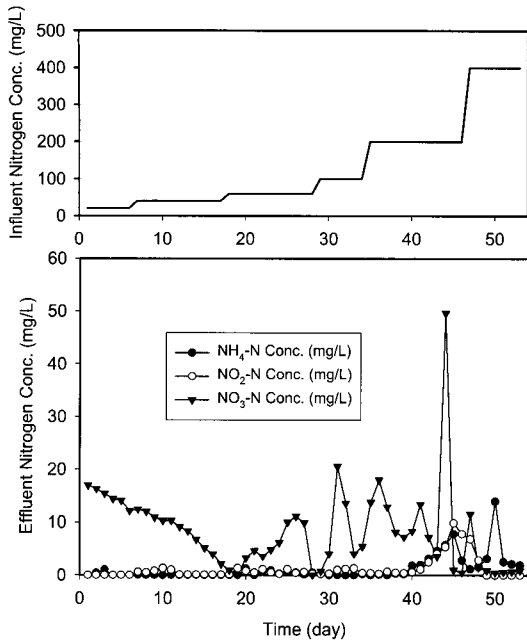


Figure 5. Variations of  $\text{NH}_4\text{-N}$ ,  $\text{NO}_2\text{-N}$  and  $\text{NO}_3\text{-N}$  concentrations.

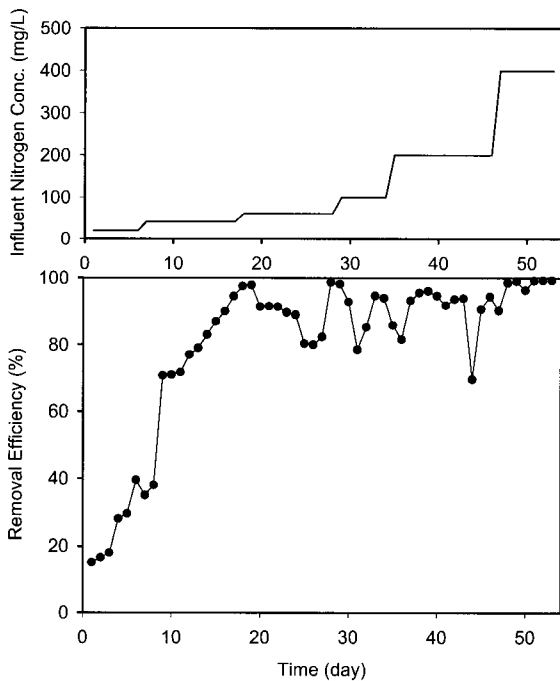


Figure 6. Variations of T-N removal efficiencies.

한 충격으로 높은 값을 나타내다가 완전히 탈질이 일어나는 것을 관찰할 수 있었다. Kenji Fujita(11) 등이 oxic reactor 안에 존재하는 pellet의 표면에 생물막이 두꺼워질 경우 무산소층이 형성되어 anoxic reactor 뿐만 아니라 oxic reactor에서도 탈질이 일어난다고 보고한 것과 같이 RBAC 공정에서도 양호한 탈질이 일어났다.

각 운전단계별로 총질소의 제거능을 Figure 6에 나타내었다. RUN 1, 2의 제거율이 낮은 것은 *Pseudomonas* CW4의 탈질속도가 느린 것에 기인한 것으로 사료되며, RUN 3 이후에는 *Pseudomonas* CW4가 RBAC process에 적응하여 약 90%의 안정

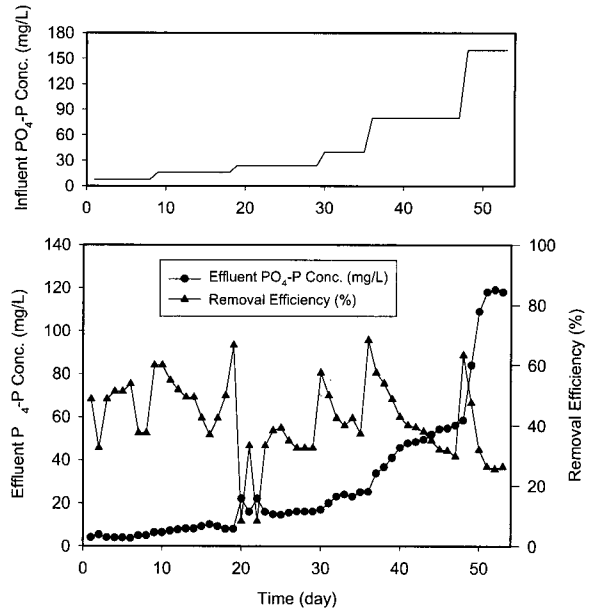


Figure 7. Variations of  $\text{PO}_4\text{-P}$  concentrations and removal efficiencies.

적인 제거율을 보이고 있다.

생물막의 특성을 고려한 RBAC 공정은 생물막 내에 질산화균주 같은 호기성 bacteria와 탈질 균주 같은 bacteria가 공존할 수 있도록 설계되어, 질산화에 의해 생성된 질산성 질소가 생물막 내의 혐기성 bacteria에 의한 탈질 공정을 통해 질소 가스( $\text{N}_2$ )나 중간 생성물인  $\text{N}_2\text{O}$ 와  $\text{NO}$  등으로 전환되었다고 사료된다. 이러한 mechanism은 긴 HRT 조건에서 미생물의 활성이 양호하여 많은 미생물 세포 합성이 일어나고 이로 인해 두꺼워진 생물막의 내부에서 성장하는 혐기성 bacteria에 의해 생성된 질산성 질소가 생성과 동시에 탈질 공정으로 제거될 수 있기 때문인 것으로 사료된다.

이론적으로 1 g의  $\text{NO}_3^-$ -N이 탈질됨에 따라 2.47 g의 methanol (3.7 g의 COD)이 소요되고, 0.45 g의 세포가 합성되며 3.57 g의 alkalinity가 생성이 된다. 본 실험에서 C/N ratio는  $\text{COD}_G$  기준으로 모두 10으로 운전하였는데, 양호한 탈질능을 나타내었다.

### 인의 제거

각 운전단계별로 인의 농도를 Figure 7에 나타내었다. 유입 인의 농도는 RUN 1, 2, 3, 4, 5, 6에 대하여 각각 8, 16, 24, 40, 80, 160  $\text{mgPO}_4\text{-P/L}$ 였다. Figure 7에서와 같이 유출수의 인의 농도는 부하가 증가함에 따라 같이 올라가는 경향을 볼 수 있다. 유출수의 평균 농도를 제거율로 나타내면 RUN 1, 2, 3, 4, 5, 6에 대하여 각각 45.2, 49.8, 32.7, 45.0, 43.1, 36.8%를 나타내고 있다. 인의 제거율은 유기물의 제거율 및 질소의 제거율과 비교해 볼 때 상당히 낮은 제거율을 나타내고 있다.

인 축적균주는 호기조건에서 인을 폴리인산 형태로 균주 내부에 과량 축적하고 혐기조건하에서는 폴리인산 형태의 인을 다시 방출한다. 인을 효율적으로 제거하기 위해서는 다른 질소·인 동시제거 공정과 같이 혐기-호기 조건을 제공해 주어 다단계로 처리하는 것이 바람직하나, 경제적 요인과 운전의 용이성을 감안해 다단계처리가 아닌 일단계처리로 혐기-호기 조건을 동시에 제공해 주었으나, 다른 공정에 비해 제거율이 낮아 이에 대한 추

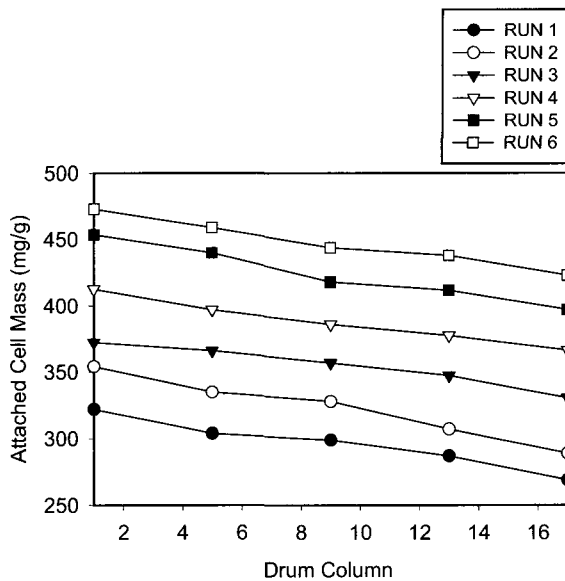


Figure 8. Variations of attached biomass.

가적인 연구의 필요성이 대두되었다.

#### 활성탄 부착 미생물

각 운전 단계별로 RBAC의 1번, 5번, 9번, 13번, 17번 column의 활성탄을 채취하여 단위 질량당 부착한 미생물의 양을 측정하였다. 부하가 증가할수록 활성탄에 부착하는 미생물의 양은 증가하였으며, drum의 전단이 후단보다 높은 미생물 양을 나타내고 있었다. 각 운전단계별로 활성탄 단위질량당 부착 미생물의 양을 보면 Figure 8에서 보는 바와 같이 RUN 1, 2, 3, 4, 5, 6에 대하여 각각 269~322, 289~354, 330~372, 366~412, 397~453, 423~473 mg/g의 범위를 나타내고 있다. 이러한 결과는 김(12) 등이 보고한 유기물 부하속도에 따라 생물막 두께는 거의 선형적으로 증가한다고 보고한 것과 같은 경향을 나타내고 있다.

유기물 부하의 증가에 따라 부착 미생물 양이 선형적으로 증가한 것은 활성탄의 부착 성능이 좋을 뿐만 아니라 충격에 따른 탈리도 적고, 입자의 평균 크기와 macro pore의 표면적 외에 입자의 표면 형상이 미생물이 부착되기에 좋은 조건을 제공해 주었기 때문이라고 판단되었다.

#### 요 약

본 연구는 회전생물활성탄 공정을 이용하여 부하를 증가시키면서 질소, 인 제거율을 조사하여 이들의 동시제거 가능성을 검토하였다. 암모니아성 질소 제거효율은 96.5% 이상으로 나타났으며 유출수의 암모니아성 질소, 아질산성 질소, 질산성 질소의 농도는 비교적 안정적으로 유지되었다. 총질소 제거율은

RUN 1을 제외하고는 90% 이상을 유지하였다. 총인은 32.7~49.8%의 제거율을 나타내었고 부하의 증가에 따라 부착미생물의 양은 269~473 mg/g support의 범위를 나타내었다.

#### 감 사

본 연구는 1997년도 교육부 생물화학공학 학술연구 조성비에 의하여 수행된 연구의 일부이며, 이에 감사드립니다.

#### 참 고 문 헌

- Barnard, J. L. (1973), Biological denitrification, *J. WPCF.*, **72**, 705.
- Diagger, G. T., Waltrip, G. D., Romm, E. D. and Moraes, L. M. (1988), Enhanced secondary treatment incorporating biological nutrient removal, *J. WPCF.*, **60**(10), 1933-1942.
- Ekama, G. T., Morals, G. V. R. and Slebritz, I. P. (1984), Biological excess phosphorus removal ; in theory design and operation of nutrient removal activated sludge process, *Prepared for the Water Research Commission, Pretoria, South Africa.*
- Irvine, A. W. (1979), Sequencing batch biological reactors-An Overview, *J. WPCF.*, **51**, 235-243.
- 한국건설기술연구원 (1990), 생물학적 인, 질소 제거 프로세스 개발에 관한 연구.
- Sich, H. and Rijn, J. (1997), Scanning electron microscopy of biofilm formation in denitrifying, fluidized bed reactor, *Wat. Res.*, **31**(4), 733-742.
- Choi, E. S. (1996), Some suggestions for the advancement of water pollution control policy, *J. KSWQ.* **12**(4), 325..
- 남범식, 류원률, 이영호, 김정목, 조무환 (1999), 암모니아 및 아질산성 질소 산화균주의 분리 및 특성, *한국생물공학회지*, **14**(1), 76-81.
- 심성훈, 류원률, 이영호, 김정목, 조무환 (1999), 인 축적균 *Acinetobacter CW3*의 분리 및 특성, *한국생물공학회지*, **14**(1), 71-75.
- Cecen, F. and Gönenc, E. (1995), Criteria for nitrification and denitrification of high strength wastes in two upflow submerged filters, *Wat. Env. Res.*, **67**(2), 132-142.
- Vasanthadevi Aravinthan의 2인 (1996), Nitrogen removal from domestic wastewater using immobilized bacteria, *Water Quality International '96*, 367-374.
- 김동석, 안갑환, 이민규, 송승구 (1991), "생물막 유동층 반응기에서 미생물 성장에 관한 연구", *한국생물공학회지*, **6**(2), 115.