

Research Paper

A Study on the Improvement of Nitrogen & Phosphorus Removal of a Sequence Batch Reactor with Internal Circulation and Multi-Step Addition

Pul-Eip Lee¹ · Duckhui Lee² · Bum-Su Kim³ · Yuhoon Hwang² · Tae-Jin Lee^{2,†}

¹Department of Environmental Energy, Graduate School of Energy & Environment, Seoul National University of Science & Technology

²Department of Environmental Engineering, Seoul National University of Science & Technology

³HENTECH Co., Ltd.

(Received May 1, 2020; Revised May 16, 2020; Accepted May 21, 2020)

Objectives : The purpose of this study is to increase the denitrification and phosphorus removals by the oxygen control of the anaerobic or anoxic period using the circulation of the supernatants through the settled sludge and multi-step addition of raw wastewater during the operation of the internal circulation sequence batch reactor (IC-SBR).

Methods : The internal circulation pipe at the bottom of SBR is installed to circulate the supernatant into the settled sludge layer to create anoxic condition of non-aeration period instead of a stirrer in a SBR. And it is attempted to develop the SBR that properly uses the organic materials of the raw wastewater as a carbon source by the feeding the raw wastewater at a suitable time of the reaction period.

Results and Discussion : Dissolved oxygen (DO) concentration of the reactor decreases more rapidly with an internal circulation to which the uniform pressure division method is applied, increasing the efficiency of about 40%. As the multi-step addition of raw wastewater proceeds, the nitrogen concentration of effluent is lowered and the C/N (Carbon/Nitrogen) ratio is higher, the nitrogen removal rate is higher.

Conclusions : Circulating the supernatant to the bottom through settle sludge was effected to properly control the dissolved oxygen in the reaction tank, thereby improving the denitrification efficiency by about 68%. Even the higher the C/N ratio at the step addition can be expected the higher the nitrogen removal, it is noteworthy that the optimum feeding ratio of the multi-step addition may be different depending on the C/N ratio.

Key Words : *Internal Circulation, Multi-step Addition, Sequence Batch Reactor, Advanced Treatment*

† Corresponding author E-mail: leetj@seoultech.ac.kr Tel: 02-970-6614 Fax: 02-971-5776

연구논문

내부순환과 다단계유입을 통한 연속식회분반응기의 질소·인 처리 개선에 관한 연구

이필익¹ · 이덕희² · 김범수³ · 황유훈² · 이태진^{2,*}

¹서울과학기술대학교 에너지환경대학원 에너지환경공학과

²서울과학기술대학교 환경공학과

³에이치엔텍(주)

목적: 본 연구는 ICSBR을 운전함에 있어서 상등액을 침전된 슬러지층을 통과시키어 혐기 및 무산소조건의 산소 제어 기능을 향상시키고 원수를 다단계 유입함으로써 질소 및 인의 제거를 증대하고자 하였다.

방법: SBR 바닥에 설치된 내부순환관은 SBR에서 비포기 구간의 무산소 조건을 생성하기 위한 교반 대신에 상등액을 침전된 슬러지층으로 순환시켜 무산소 조건을 생성하도록 한다. 그리고 반응구간 동안 적절한 시간에 원수를 공급함으로써 원수의 유기 물질을 탄소원으로 적절하게 이용할 수 있는 개선된 SBR을 개발하고자 한다.

결과 및 토의: 등압분할법을 적용한 내부순환관으로 용존산소의 농도가 보다 빠르게 감소하여 약 40%의 효율이 증가함을 확인하였고 다단계 유입을 진행할수록 더 낮은 유출수의 질소농도를 구현할 수 있으며, 또한 단계유입에서 C/N비가 높을수록 질소 제거율이 높아지는 것을 확인하였다.

결론: 상등액이 침전된 슬러지층을 내부순환하는 방식으로 개선된 반응조 내 용존산소의 제어를 보다 적절히 수행하여 탈질효율의 개선효과는 약 68% 증가하였다. 단계별 유입에서는 C/N비가 높을수록 높은 질소 제거율을 기대할 수 있으나 적정 원수 유입 비율은 C/N비에 따라 다르게 나타날 수 있다는 것에 주목하여야 한다.

주제어: 내부순환, 다단계 유입, 연속식 회분반응기, 고도처리

1. 서론

일반적으로 하수처리시설은 유기물, 부유물질, 영양염류의 제거를 목적으로 하였으나, 제한된 수자원으로 인해 향후 하수처리는 상수원 보호뿐 아니라 하수처리수의 수자원화 개념까지 확장되고 있는 실정이다.¹⁻³⁾ 따라서 생활용수 수준의 초고도 하수처리는 상수원수 2급수에 해당하는 수질 확보 기술로 초고도 처리와 유해물질의 적절한 처리 및 관리가 필요하다.⁴⁻⁶⁾

하수 중 중금속이나 미량 유해물질의 처리에 대한 연구는 최근 시작하는 단계이며, 하수 중 미량유해물질의 종류도 다양하고, 유해한 수준으로 검출되는 경우가 아직은 미미하여 이에 대한 적극적 대처방안 마련은 현실적으로 어려운 실정이다. 그러나 유해성으로 보아 머지않은 장래에 미량 유해물질에 대한 효율적 처리방안을 마련해야하기 때문에 미량유해물질에 대한 분석 기준 및 처리방안에 대한 연구가 현재 진행되고 있다.^{7,8)} 이에 비하여 하수 중 질소나 인의 처리는

많은 연구가 진행되어 왔고 질소나 인이 환경에 미치는 악영향을 인지하고 있으므로 처리방법의 고도화를 이루기 위해 처리장치의 개선방안을 마련해 왔다. 이러한 처리 장치의 개선은 A₂O 계열의 공간분할 형식 고도처리 장치에 많은 부분 집중되었는데 이는 처리 용량이 큰 처리 공법의 대부분이 A₂O 계열의 활성슬러지 변법을 채택하고 있기 때문이다.⁹⁻¹²⁾ 따라서 비교적 작은 처리용량에 효율적으로 운영되는 시간분할 처리방법인 연속식 회분반응기의 고도화에도 집중할 필요가 있다.

Sequence Batch Reactor (SBR) 공정은 폐수의 유입(fill), 반응(reaction), 침전(settle), 배출(draw), 휴지(idle)의 단위공정이 정해진 시간의 배열에 따라 연속적으로 일어나며 2차 침전지가 불필요하고, 사상균의 제어가 용이하며, 시공이 간편하여 하수의 안정적 관리 측면에서 매우 바람직한 공정으로 보여진다.¹³⁻¹⁵⁾ 이러한 장점으로 인해 국내 대규모 하수처리장을 제외한 마을하수도 규모(1,000 ton/day 이하)의 처리장에서는 SBR 공정의 적용이 선호되어 왔다. 그러나 단

위공정에서 알 수 있듯이 하수의 유입에 이은 포기 반응과 비포기 반응, 그리고 침전과 배출과정에서 고도화를 위한 공정의 개선이 필수적으로 요구되는 부분이 유입과정(전탈질)에서의 무산소 조건 조성 및 비포기반응(후탈질)에서 적절한 탄소원의 공급이 없다는 것이다. 이러한 단위공정으로 이루어진 SBR 공정이 대부분의 마을하수도 규모 처리장에서 채택되어 운영되고 있다는 것은 대형 하수처리시설이 아닌 소규모 처리시설의 질소나 인의 관리가 적절하게 관리되지 않을 수 있다는 추론이 가능하다.¹⁶⁻¹⁸⁾

본 실험에서는 기존의 SBR 공정을 개선하기 위해 내부순환(Internal Circulation)과 단계별 유입(Step Addition)이라는 과정을 기존의 단위공정에 적용하여 SBR의 질소 제거 기능을 극대화하고자 하였다. 내부순환은 원수의 유입단계와 비포기 반응단계동안 대기 중 산소의 전달을 최소화하고 고농도로 압밀된 슬러지층을 상등액이 통과함으로써 무산소 환경을 급격히 조성하여 원활한 탈질조건을 형성하고자 하였고 단계별 유입과정은 원수의 유입을 유입단계와 비포기 반응 단계에서 적절히 분할함으로써 탈질에 필요한 탄소원의 공급을 원수로 이용하여 필요한 시점에 적절히 공급하는 것이다.^{19,20)}

내부순환을 이용한 무산소 조건의 형성에 있어서 유입 단계와 비포기 반응 단계에서 교반 없이 상등액을 표면 하단부에서 흡입하여 침전 단계에서 침전된 압밀 슬러지층 하단으로 주입하므로 표면의 교란이 없어 대기 중 산소 투과율을 최소화할 수 있으며 혼합된 유입수와 상등액은 압밀 슬러지층을 통과하므로 고도로 농축된 슬러지층에서 산소 소모율을 높일 수 있는 장점이 있다.²¹⁾ 이 때 상등액이 슬러지층을 손가락흐름(finger flow) 형태가 아닌 전체적으로 균등하게 통과할 수 있도록 장치하는 것이 중요하며 상등액의 순환이 너무 빨라서 슬러지층이 부상되지 않도록 주의할 필요가 있다.²²⁻²⁵⁾ 질산이온의 탈질을 도모하는 단계별 유입에 있어서 한 주기 당 원수의 유입량을 유입단계와 비포기 반응 단계로 분할하여 유입하므로 유입단계에서의 주입량과 비포기 반응 단계에서 주입량의 비율을 최적화하는 것 또한 중요하다고 판단된다.

따라서 본 연구에서는 SBR 공정의 고도처리를 최적화하기 위해 SBR 반응기 내부의 상등액을 침전 압밀된 슬러지층을 균등 순환할 수 있는 내부순환관을 장치하고, 단계별 유입을 통해 유입수를 적정 배분하여 탈질효과를 개선하고자 하였다. 내부순환관은 등압분할법을 적용하여 상등액의 순환동안 상등액의 선속도를 균등하게 유지하였으며 단계별 유입동안 유입단계와 비포기 반응 단계에서 주입비율을 달리하여 최적 주입비율을 산정하고자 하였다. 개선된 SBR 장치에서 질소와 인의 처리효율을 검증하기 위해 기존의 SBR 공정에서 운영되는 단위공정의 처리결과와 비교 검토하였다.

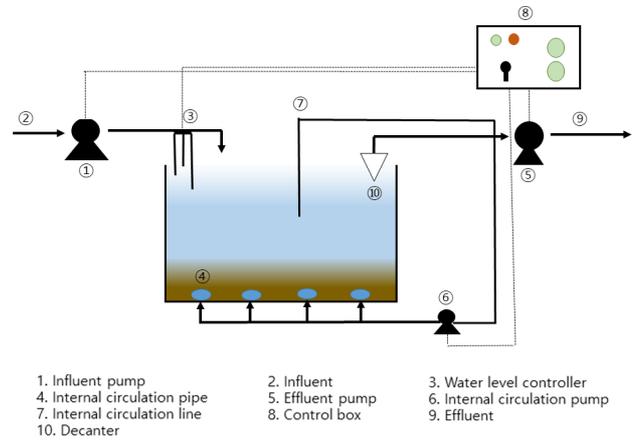


Fig. 1. Schematic diagram of the lab-scale modified SBR (ICSBR).

2. 재료 및 방법

2.1. 반응조 구성

본 연구에서는 하수의 원활한 질소 및 인의 처리를 위해 압밀침전된 슬러지를 이용하는 내부순환방법을 이용하고 탈질에 필요한 유기물 보충을 위한 원수의 단계유입을 통해 탈질의 효율을 보다 향상시키고자 하였으며, 그에 따라 일반 SBR 반응조와 달리 반응조 하단부에 내부순환관을 연결하여 상등액이 압밀침전된 슬러지를 통과할 수 있도록 하였으며 유입수는 상단으로 공급되는 형식으로 반응조를 구성하였다. Fig. 1은 실험에 사용된 Lab scale 반응조로 아크릴로 구성되었으며 가로 31 cm, 세로 33 cm, 높이 20 cm로 구성하였으며 약 20 L의 유효부피를 가지도록 설계하였다. 반응조 앞면 아래쪽에는 4개의 내부순환관을 장착하여 펌프를 통해 반응조 상등액이 내부순환되도록 하였으며, 시간의 진행에 따라 유입, 내부순환, 포기반응, 2차유입, 비포기 반응, 3차유입, 침전, 배출이 진행될 수 있도록 control box를 이용하여 제어하였다. 본 연구의 특성상 교반이 없이 슬러지를 하단부로 침전시켜 실험을 진행하기 때문에 배출단계에서 침전된 슬러지가 방해받지 않도록 부상된 디켄터에 의해 상등액이 유출되도록 구성하였으며, 상등액의 슬러지층 내부순환을 위한 상등액 유입관은 침전된 슬러지층 상단에 위치하도록 설계하였다. 내부순환관을 통해 슬러지층으로 유입되는 상등액이 균등한 압력을 가지지 않을 경우 압력의 균형이 깨져 압력 불균형을 이뤄 소위 finger flow현상이 발생하게 된다.²²⁾ 이러한 현상은 슬러지를 전체면적으로 사용할 수 없게 되어 미생물과 상등액의 접촉이 제한되어 처리효율을 떨어뜨리는 결과를 불러올 수 있으므로(슬러지층의 균등한 이용이 어려움) 등압분할법에²³⁾ 따라 유출구의 간격을 조절함으로써 동일한 압력으로 내부순환된 상등액이 압밀 슬러지층을 통과할 수 있도록 구성하였다. 내부순환관 유출구의 방향은 반응조 하단부를 향하도록 장치하여

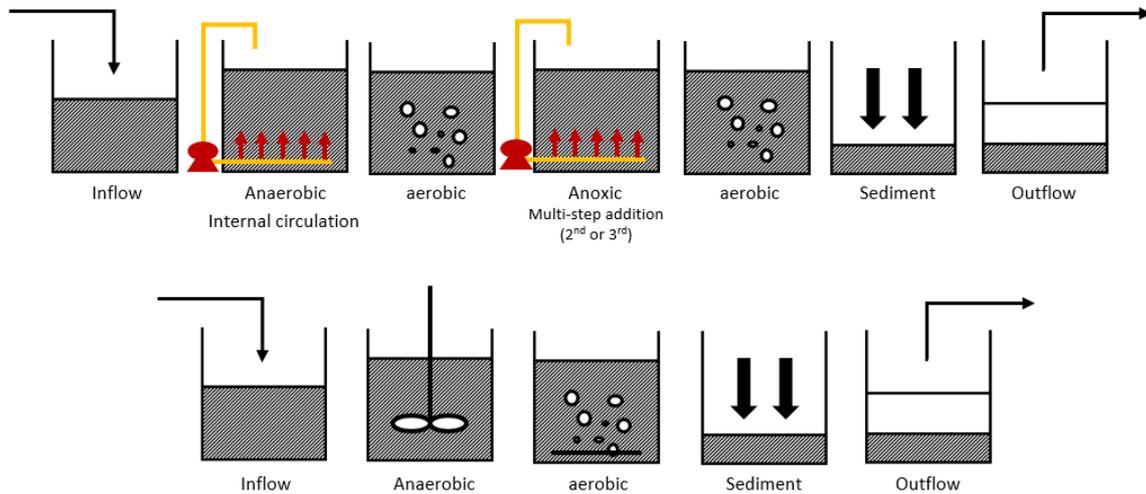


Fig. 2. Operation process of ICSBR (a) and the conventional SBR (b).

내부순환된 상등액이 균일하게 슬러지층을 통과할 수 있도록 하였다.

2.2. SBR 반응조의 운전방법

본 연구에서 사용된 하수슬러지는 U하수처리장 반송슬러지에서 채취하여 실험에 사용하였으며, 합성폐수는 일반적인 하수처리장의 원수를 기준으로 하여 실험을 진행하였으며, C/N비에 따른 제거기작을 확인하기 위해 유기물과 질소의 농도를 실험조건에 따라 변경하여 실험을 진행하였다. 유입 합성폐수(mg/L)는 2.5 KH_2PO_4 (as P), 2.5 K_2HPO_4 (as P), 366 KHCO_3 (as HCO_3), 90 $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 6 $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 1.5 $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 6.5 $\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, 1.7 $\text{ZnSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 0.1 $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 1.9 $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 6.5 $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 0.1 H_3BO_3 , 0.6 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, 1 g yeast extract로 조성되었으며 Glucose와 NH_4Cl 은 실험목적에 따라 농도를 조정하였다.

실험에 사용된 SBR은 내부순환을 하는 연속식 회분 반응기(ICSBR)로 기존 SBR의 “헤파” 과정을 위한 교반 공정 대신, 상등액을 압밀침전된 슬러지층의 하부로 내부순환시키도록 한 장치로 반응조에 유입수가 유입될 때부터 내부순환 펌프가 작동하여 압밀된 슬러지 하단부의 내부순환관으로 상등액이 유입되도록 하였다. 이때, 내부순환량은 기존의 연구에서 제시된 최적 순환량을 참고하여 운전하였으며²⁰⁾ 포기과정은 반응조 내에 산기석을 두어 충분한 포기가 이루어지도록 하였다. 이후 유입수의 C/N비에 따라 단계유입의 횟수와 비율을 산정하여 2차유입 또는 3차유입을 실시하여 실험을 진행하였으며, 모든 반응이 진행된 마지막 단계에 포기구간을 재구성하여 압밀된 슬러지에 트랩된 질소가스가 탈기되도록 진행하였다. ICSBR의 반응시간은 대부분 유입과 헤파공정 65분, 호기공정 120분, 2차유입과 무산소공정 40분, 호기 40분, 3차유입과 무산소공정 25분, 호기공정

20분, 침전공정 30분, 배출 20분으로 전체 1cycle에 6시간을 넘지 않도록 운전하였다. Mixed Liquor Suspended Solid (MLSS)는 3,500-4,500 mg/L 사이를 유지하였으며, 반응조는 실온에서($22 \pm 3^\circ\text{C}$) 운전되었다. ICSBR의 반응공정과 운영방법은 아래 Fig. 2(a)에 나타내었다. 비교실험을 위해 운영된 일반적인 SBR의 단위공정은 Fig. 2(b)에 나타내었다. 단위공정의 구성은 달리하였으나 전체 반응시간은 ICSBR과 동일하게 구성하였으며 MLSS 및 온도, 유입수의 농도 등도 동일하게 유지하였고 두 공정이 유입되는 원수는 반응기 유효부피의 40%를 유지하였다.

2.3. 분석방법

시료의 채취는 주기적으로 유입수와 유출수를 채수하여 실험조건에 따라 Chemical oxygen demand (COD)_{cr}, Total Nitrogen (T-N), Total Phosphorus (T-P), MLSS를 수질오염공정시험법²⁶⁾에 준하여 실험하였으며, $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_2^-\text{-N}$, $\text{NO}_3^-\text{-N}$, $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 의 경우 Ion Chromatography (Metrohm 761, Metrohm, Switzerland)를 이용하여 실험을 진행하였다. 또한 포기 및 비포기 구간에서의 용존산소의 거동을 확인하기 위해 Dissolved Oxygen (DO) meter (HANNA HI 98193, HANNA instruments, Italy)를 이용하여 용존산소를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 내부순환에 따른 질소제거율의 향상

질산이온의 탈질에 필요한 Oxidation Reduction Potential (ORP)은 일반적으로 -150 mV 정도에서 일어난다고 보고되고 있으며^{27,28)} SBR 공정에서 전탈질과 후탈질에서 ORP를 적절하게 유지하는 것이 탈질반응에 중요한 요소이다. 개선된 SBR 장치에서는 등압분할법에 의해 설계된 내부순환관을 이용하여 상등액을 침전된 슬러지층을 통과시켜 산소소

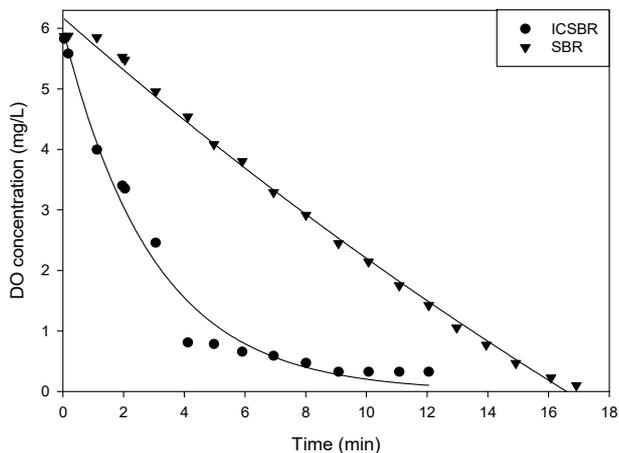


Fig. 3. Dissolved oxygen (DO) profiles in the conventional SBR and ICSBR: MLSS 3,500 mg/L. Regression was attempted by the exponential decay, single 2 parameter (Sigma Plot, USA).

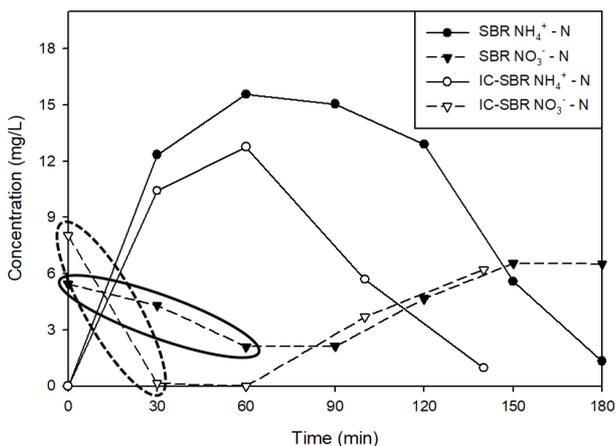


Fig. 4. Variations of ammonia and nitrate concentration of SBR and ICSBR. Circles in the graph represent denitrification of ICSBR (···) and conventional SBR (-).

모를 극대화하고, 반응조 표면의 교란을 낮추어 산소구배를 낮게 유지함으로써 대기 중 산소가 녹아들어오는 것을 최소화함으로써 탈질반응을 촉진할 수 있다고 판단하였다. 이를 확인하기 위해 교반을 통해 혐기성 또는 무산소 조건을 형성하는 기존의 SBR 장치와 등압분할법과 역회전 수류를 형성하는 내부순환관이 장착된 ICSBR 장치의 용존산소 변화 곡선을 비교하여 보았다.

Fig. 3은 SBR 및 ICSBR에서 시간에 따른 용존산소의 거동을 나타낸 그래프로 SBR의 경우 원수 유입 후 약 14분이 지나야 용존산소가 1 mg/L 이하로 소모되었으며 ICSBR의 경우 원수 유입 후 5분 이내에 용존산소가 1 mg/L 이하로 소모되었음을 확인하였다. 기존 SBR과 ICSBR 모두 Exponential Decay를 이용하여 회귀분석한 결과 R-sqr값은 0.99 이상으로 유의미한 결과를 나타냈다. 이는 압밀침전된 슬러지층을 상등액이 통과하면서 고농도 미생물에 의한 산소소모와 수

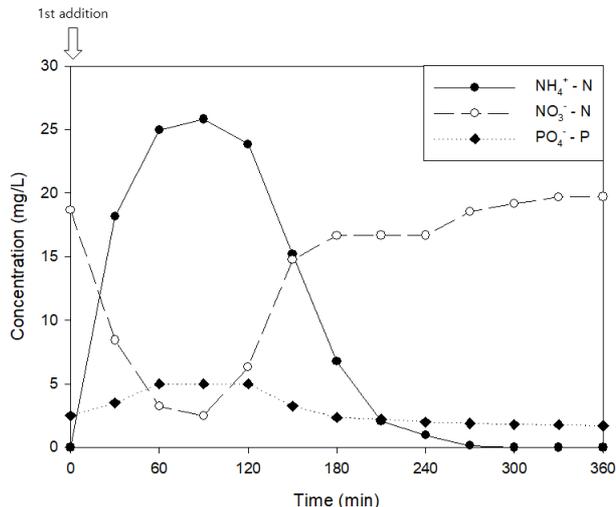


Fig. 5. Variations of nitrogen and phosphorus concentration of ICSBR. Feeding of raw wastewater was accomplished at the beginning with 40% of total effective volume. Initial nitrogen and phosphorus concentration was 50 mg/L and 5 mg/L respectively.

면의 교란 없이 내부순환함으로써 대기 중 산소의 재용해가 억제됨으로써 ICSBR 공정이 산소의 제어가 용이하다는 것을 알 수 있었다.^{20,21)}

Fig. 4는 일반적인 SBR 공정과 ICSBR 공정에서 암모니아와 질산성 질소의 거동을 나타낸 것으로 유입구간(혐기성 구간)에서 탈질의 양상을 살펴보면 기존 SBR의 보다 내부순환관이 개선된 ICSBR에서 보다 높은 탈질효율이 일어남을 확인하였다. 이는 개선된 내부순환관을 이용한 ICSBR이 용존산소 제어에 용이하기 때문에 용존산소의 제어를 통하여 무산소조건을 충분히 형성하면서 전탈질을 보다 촉진할 수 있음을 나타낸다.

3.2. 단계별 유입(Step Addition)에 따른 질소의 제거 양상

기존의 SBR단위공정과 같이 유입 원수를 유입/혐기 공정에서 반응기 유효부피의 40%를 유입하여 분할 유입을 하지 않는 경우 질소와 인의 거동을 관찰하여 보았다. **Fig. 5**에서 나타난 바와 같이 분할유입이 없는 경우 유입/혐기공정에서 암모니아의 농도가 급격히 증가하고 포기 반응공정에서 유입된 암모니아가 질산성질소로 산화됨을 볼 수 있었다. 무산소반응 공정에서 산화된 질산성질소의 탈질이 원만히 일어나지 않고 침전공정으로 넘어가게 되고 결국 유출수에 질산성질소가 포함된 상태로 배출되게 된다. 이는 무산소공정(후탈질)에서 필요한 탄소원이 공급되지 않아 유입된 질소가 산화된 상태로 배출되는 결과가 나타난 것으로 유입 원수의 질소의 농도가 50 mg/L이었을 때, 유출수 농도는 20 mg/L로 약 60%의 질소제거율을 가진다는 것을 확인할 수 있었다.

이를 개선하기 위해 초기 유입/혐기 구간에 70%(반응조

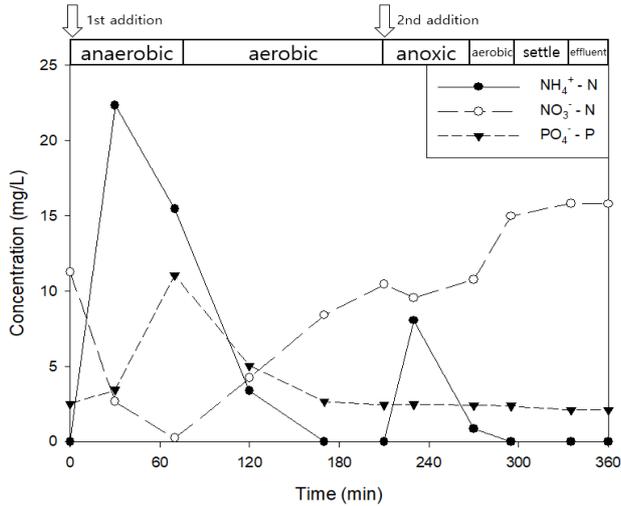


Fig. 6. Variations of nitrogen and phosphorus concentration of ICSBR with the second step addition. Arrows in the graph represent the feeding of raw wastewater. Initial nitrogen and phosphorus concentration was 50 mg/L and 5 mg/L respectively.

유효부피 대비 28%)의 유입수를 넣어주고 후반 무산소공정에서 나머지 30%(반응조 유효부피 대비 12%)의 원수를 공급하여 보았다. 1차유입/혐기구간에서 암모니아의 농도가 증가하고 호기반응 구간에서 질산성 질소로 변환되었다가 2차유입 구간에서 탈질반응이 나타나고 암모니아의 농도는 증가하는 양상을 나타내었다. 이 암모니아의 농도는 2차유입에서 원수에 포함된 암모니아가 유입된 것으로 판단할 수 있다. ICSBR의 경우 무산소 반응 구간 후단에 포기공정이 따라 오는데 이는 내부순환으로 인한 질소가스가 슬러지층에 포획됨으로써 침전구간에서 슬러지의 침전을 교란하거나 2차유입된 원수의 암모니아를 질산으로 산화하여 다음 사이클의 전탈질을 도모하는 효과를 기대할 수 있다.

Fig. 6의 2차유입이 있는 ICSBR에서 유출수의 질소는 질산성 질소의 형태를 띄며 2차유입으로 인한 탈질이 유도되어 유출수의 총질소의 농도는 15.79 mg/L였으며, 약 68.42%의 제거효율을 나타냈다. 따라서 분할 유입을 통하여 약 8%의 처리효율 개선 효과를 가질 수 있다.

1차유입(first step addition)과 2차유입(second step addition)에 이어 3차유입(third step addition)에서 질소의 거동을 살펴보기 위해 같은 조건에서 3차유입 후 질소의 농도를 측정하였다. 1차유입과 2차유입 그리고 3차유입은 각각 60%, 30%, 그리고 10%의 유입량으로 실시되었다. 1차유입 후, 잔류한 8 mg/L의 질산성질소는 완전히 탈질되었으며 암모니아의 농도는 약 13 mg/L까지 상승하였다. 이후 포기공정에서 질산성질소로 완전히 변환되었다가 2차유입으로 탈질과 암모니아의 유입으로 다시 암모니아의 농도가 상승하였다. 3차유입으로 탈질과 암모니아의 산화가 진행되어 최종 유출수의 농도는 7.27 mg/L로 85.46%의 제거효율을 나타냈다.

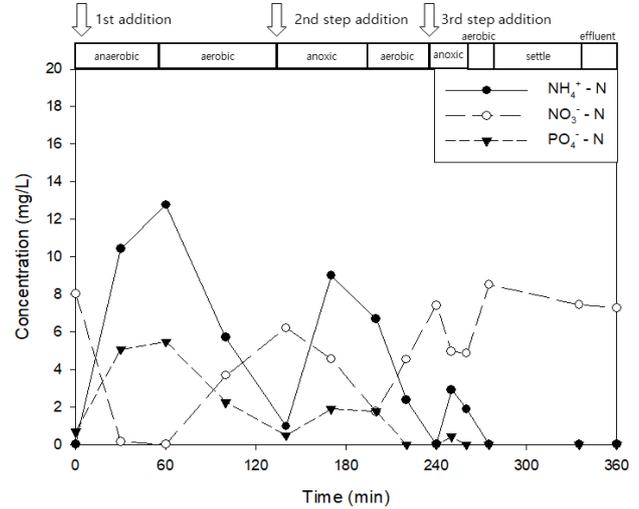


Fig. 7. Variations of nitrogen and phosphorus concentration of ICSBR with the third step addition. Initial nitrogen concentration was 50 mg/L and phosphorus concentration was 5 mg/L.

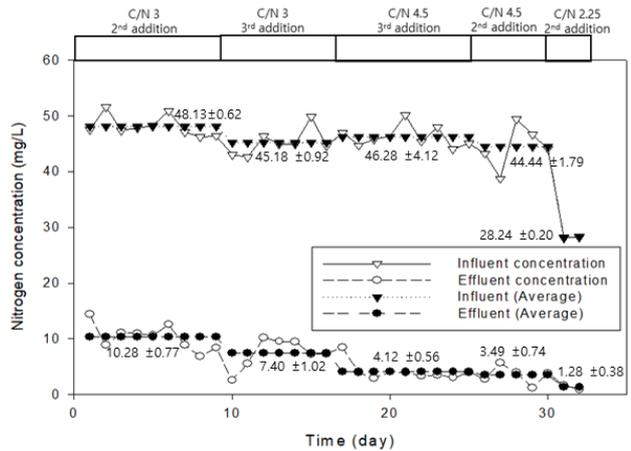


Fig. 8. T-N concentration profiles of ICSBR with different C/N ration and multi-step addition. Marks and numbers on the graph represent average influent and effluent concentration of T-N.

3.3. C/N비와 단계 유입에서 원수주입량에 따른 질소의 제거양상

위 단위공정에서 단계별 유입에 따른 유출수의 농도 변화는 단계유입을 늘릴수록 질소제거율이 개선되는 양상을 볼 수 있었다. 이와 더불어 탈질에 영향을 미칠 수 있는 C/N비와 단계유입비(1차유입과 2차유입 그리고 3차유입에서 원수의 주입율)에 따른 영향을 살펴보기 위해 C/N비와 단계유입비에 따른 유입/유출수의 COD 및 질소 농도 변화 양상을 살펴보았다. **Fig. 8**은 C/N비 및 단계별 유입에 따른 질소의 제거 양상을 나타낸 것으로 실험 기간 동안의 유입 또는 유출수의 농도와 각 구간의 유입 또는 유출수의 평균 농도를 표시하였다. **Fig. 8**에서와 같이 C/N비 2.25에서 2차유입비를 70 : 30으로 유지하였을 때 처리효율은 68.42%이

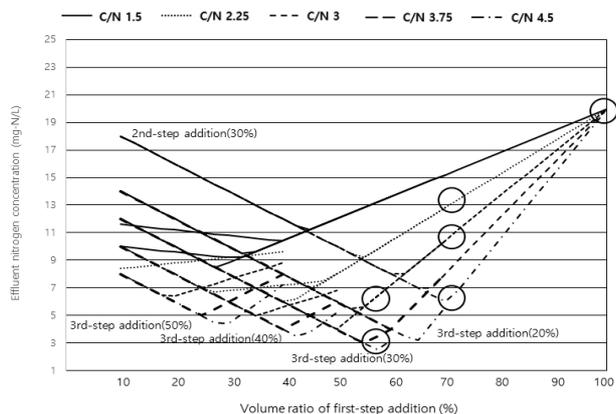


Fig. 9. Effluent concentration of nitrogen according to C/N ratio and step addition feeding ration. Initial nitrogen concentration was 50 mg/L.

였고, 같은 2차유입에서 C/N비가 높아짐에(C/N비 3) 처리 효율이 83.12%로 증가하는 것을 확인할 수 있었다. C/N비가 4.5의 경우 2차유입비 70 : 30으로 유지할 때 질소제거율은 96.26%로 나타났으며, 3차유입비를 60 : 30 : 10으로 하였을 때 97.2%의 질소 제거 효율을 보여주었다. 종합적으로 단계별 유입에서 C/N비와 단계별 유입비는 처리효율에 미치는 영향이 매우 크다는 것을 알 수 있었다. Fig. 8에서 한 주기(cycle)에서 보여지는 질소 대비 탄소원 요구량, 탈질속도, 질산화율은 각각 0.2 mg-N/mg-COD (N_{COD}), 14.1 mg-N/L·h (N_{red}), 그리고 9.5 mg-N/L·h (N_{oxi})로 나타났다.

최적의 C/N비와 단계별 유입 비율을 산정하기 위해 Fig. 9에 실험을 통해 얻어진 질산화를 및 탈질율을 이용하여 유출수의 질소농도를 Eq. (1)을 이용하여 계산하였다. 계산은 유입수의 C/N비를 1.5, 2.25, 3, 3.75, 4.5로 나누고, 단계별 유입 비율을 2차유입의 경우 1차유입을 10%에서 100%까지 구분하여 계산하였으며, 3차유입인 경우 1차유입 비율을 10%부터 70%까지로 가정하고, 2차유입은 20%에서 50%까지로 가정하였다. 따라서 전체 3차유입 중 마지막 유입은 10%부터 70%까지로 계산되었다. Fig. 9의 그래프 위에 표기된 원은 실제 Lab scale 실험에서 실시된 조건을 의미하며 이때 측정된 유입 유출수의 농도와 매우 근사하게 나타났다. 이는 Fig. 9를 도식하기 위해 이용된 계산과정이 유의하다는 것을 의미하며, 계산식에 의해 도출된 최적조건은 3차유입으로 비율은 60 : 30 : 10의 비율이었으며 90% 이상의 제거율을 가지기 위해서는 최소한 C/N비 3 이상으로 유지하는 것이 바람직하다는 결론을 내릴 수 있었다.

$$\begin{aligned}
 T-N(mg/L) &= [C_{Eff_{NO_3}} - N_{COD} \times COD_o \times F_1] \\
 &+ [((C_{Eff_{am}} + C_{am_0}) \times F_1 \times (N_{oxi}) - N_{COD} \times COD_o \times F_2) \\
 &+ C_{am_0} \times F_2 \times (N_{oxi})] - [N_{COD} \times COD_o \times F_3] \\
 &+ C_{am_0} \times F_3 \times (N_{oxi})
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

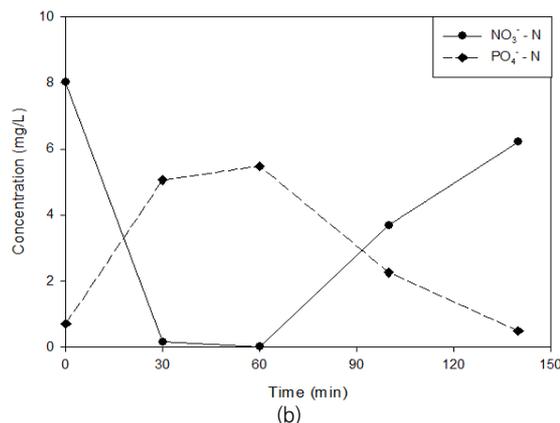
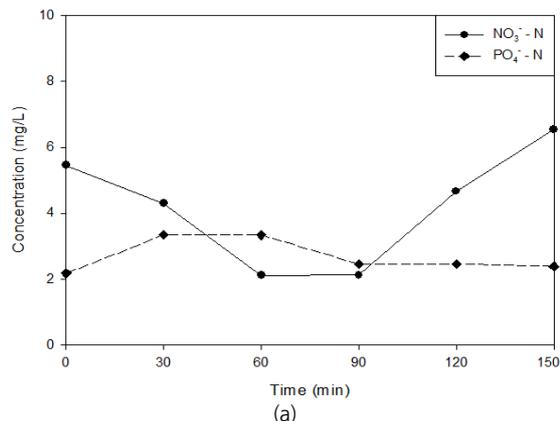


Fig. 10. Phosphorus release and uptake at SBR (a) and ICSBR (b) process. Presence of nitrate inhibits phosphorus release.

여기서 $C_{eff_NO_3}$ =이전 단계 유출수 NO_3^- 농도, C_{effam} =이전 단계 유출수 NH_4^+ 농도, N_{COD} =COD당 탈질물, COD_o =초기 COD, F_1 =1차유입 원수 비율, C_{am_0} =초기 암모니아의 농도, N_{oxi} =질산화율, F_2 =2차유입 원수 비율, F_3 =3차유입 원수 비율을 나타낸다.

따라서 Eq. (1)을 통해 얻을 수 있는 결론은 첫째, C/N비가 높을수록 높은 질소제거율을 기대할 수 있고 둘째, 단계별 유입을 진행할수록 더 낮은 유출수의 질소 농도를 구현할 수 있으며 셋째, 단계별 유입에서 1차, 2차, 또는 3차유입의 원수 주입비율은 C/N비에 따라 다르게 나타날 수 있다는 것을 알 수 있었다.

3.4. 단계별 유입 시 인의 거동

생물학적 고도처리에서 질산성 질소가 있는 경우, 혐기과정에서 인의 방출이 원활하지 않아 뒤에 따라오는 호기 공정에서 인의 흡수가 낮게 되어 고액분리가 잘 진행됨에도 불구하고 유출수의 인의 농도가 높게 나타나는 현상이 빈번하다.^{29,30} Fig. 10(b)에서 ICSBR의 경우 초기 혐기공정에서 질산성 질소가 30분 이내에 완전히 질소가스로 전환되기 때문에 인의 방출이 수월하게 진행되는 것을 확인할 수 있었다. 이에 반해 Fig. 10(a)에 나타난 바와 같이 기존 SBR 공

정에서는 무산소 반응공정에서 탄소원의 공급이 충분하지 않아 질산성질소가 무산소 반응구간 후에도 반응기에 남아 있게 되어 인의 방출이 원활하지 않음을 관찰할 수 있었다. 인의 방출과 흡수가 수월하게 진행된 ICSBR의 경우 유출수의 인의농도의 변화가 Fig. 6에서 2차유입이 진행되었을 때 60%와 Fig. 7에서 3차유입이 진행되었을 때 99.5%의 제거율을 나타낸 바 있다. 따라서 단계별 유입에서 질소의 제거와 더불어 인의 제거도 더 효과적으로 진행된다는 것을 의미한다.

4. 결론

본 연구는 연속식 회분반응기 비포기 구간을 무산소 조건으로 조성하기 위해 교반기를 이용하는 대신 하단의 내부순환관을 설치하여 상등액을 슬러지층으로 유입 순환시키는 방법으로 개선하고, 원수를 반응 주기 동안 적정시점에 단계 유입함으로써 원수의 유기물을 적절하게 탄소원으로 이용하는 SBR을 개발함으로써 하수의 고도처리를 수행하고자 하였다. 다음은 실험을 통해 도출된 결과를 요약하였다.

- 1) 무산소구간의 조성을 위하여 교반장치를 설치하는 대신 등압분할법을 이용하여 내부순환관 유출구의 압력을 균등하게 유지하고, 유출구의 흐름방향을 하단에서 상단으로 흐르게 한 상태에서 반응조 상등액을 침전된 슬러지층으로 통과하여 순환하는 방식으로 개선된 방법으로 무산소구간을 조성한 결과 반응조 내 용존산소의 제어를 보다 효율적으로 조성할 수 있었으며, 이 때 탈질효율의 개선효과는 약 68% 증가함을 나타내었다.
- 2) 기존의 SBR 공정은 후탈질구간에 탄소원의 적절한 공급이 없는 것과 달리 후탈질과정에서 부족한 유기물을 보충하기 위한 수단으로 단계 유입을 실시한 결과 단계별 유입을 진행할수록 보다 낮은 유출수 농도를 가지는 것으로 보이(1차유입 60% → 2차유입 68% → 3차유입 85%) 단계별 유입을 진행할수록 더 낮은 유출수의 질소농도를 구현할 수 있으며, 단계유입에서 C/N비가 높을수록 높은 질소제거율을 기대할 수 있고, 단계별 유입에서 최적 1차 또는 2차 원수유입 비율은 C/N비에 따라 다르게 나타날 수 있다는 것을 확인할 수 있었다.
- 3) 반응조에 질산이온이 잔류하는 경우, 인의 방출과 흡수가 매우 완만하게 진행되는 것으로 나타나 기존의 연구결과와 유사한 양상을 보인다는 것을 확인하였으며, 질산이온의 탈질이 빠르게 진행되는 ICSBR의 3차 단계 유입의 경우 인의 방출과 흡수가 원활하게 진행되어 약 99% 이상의 제거율을 이룰 수 있었다.

종합적으로 보았을 때 본 실험을 통해 반응기 내부의 상등액을 압밀된 슬러지층으로 내부순환하여 질소나 인의 처

리를 유도하는 ICSBR은 혐기성 반응공정에서 용존산소의 농도를 빠르게 감소시켜 탈질효율을 높이는 것을 확인할 수 있었으며, 이때 원수의 단계적인 유입을 통해 유입수를 적정 배분하여 혐기 또는 무산소구간에 유기물을 공급함으로써 탈질 속도가 보다 빠르게 진행될 수 있음을 확인하였다. 따라서 다양한 원수의 특성을 가지는 하수처리장에서 본 공정의 운영방법을 적용한다면 최적의 질소나 인의처리효율을 가지는 연속식 회분반응조를 구현할 수 있을 것이라고 판단되었다.

Acknowledgement

본 연구는 서울과학기술대학교 학술연구비의 지원으로 수행되었습니다(과제번호: 2020-0370). 이에 감사드립니다.

References

1. Y. G. Kim, I. H. Cho, A study on the removal of nitrogen and phosphorus of municipal wastewater with biological coated media, *J. Environ. Health Sci.*, 32(1), 27-35(2006).
2. S. K. Lee, J. M. Park, S. H. Lee, J. O. Han, Advanced biological sewage treatment using the rotating type of synthetic waste polyethylene porous media, *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 23(5), 849-856(2001).
3. K. S. Hyun, J. W. Choi, Configuration condition and characteristics comparison of filter packed media in anaerobic and aerobic biofilm process on an advanced wastewater treatment, *Water and Waste Treat.*, 11(4), 61-63(2003).
4. Y. J. Jung, K. S. Min, J. K. Lee, K. H. Lim, Evaluation of sewage treatment with surface modified waste-tire media using batch activated sludge system, *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 25(6), 682-687(2003).
5. K. H. Park, Y. D. Kwon, A study on the characteristics of process for the sewage treatment in Korea, *J. Korean Soc. Environ. Anal.*, 15(1), 9-14(2012).
6. Y. H. Seon, A study on removal of organics, nitrogen and phosphorus of domestic wastewater in pilot-scale upflow packed bed column reactor, *KSBB. J.*, 22(4), 191-196(2007).
7. J. Y. Choi, H. D. Han, Y. K. Kim, J. H. Ahn, New permit system for management of industrial wastewater facilities, in *Proceedings of the 2011 Fall Joint Conference of KSWW&KSWE*, *J. Korean Soc. Water Wastewater*, Daejeon, pp. 169-170(2011).
8. D. H. Jung, S. Y. Ham, W. S. Lee, H. M. Chung, H. W. Kim, Study on occurrence and management of organic micropollutants in sewer systems, *J. Korean Soc. Water Wastewater*, 31(6), 551-566(2017).
9. P. Falas, A. Wick, S. Castronovo, J. Habermacher, T. A. Ternes, A. Joss, Tracing the limits of organic micropollutant removal in biological wastewater treatment, *Water Res.*, 95, 240-249(2016).

10. J. Wang, K. M. Chon, X. H. Ren, Y. Y. Kou, K. J. Chae, Y. S. Piao, Effects of beneficial microorganisms on nutrient removal and excess sludge production in an anaerobic-anoxic/oxic (A₂O) process for municipal wastewater treatment, *Bioresour. Technol.*, 281, 90-98(2019).
11. C. Na, Y. Zhnag, X. Quan, S. Chen, W. Liu, Y. Zhang, Evaluation of the detoxification efficiencies of coking wastewater treated by combined anaerobic-anoxic-oxic (A₂O) and advanced oxidation process, *J. Hazard. Mater.*, 338, 186-193(2017).
12. G. Tang, X. Zheng, X. Li, T. Liu, Y. Wang, Y. Ma, Y. Ji, X. Qiu, Y. Wan, B. Pan, Variation of effluent organic matter (EfOM) during anaerobic/anoxic/oxic (A₂O) wastewater treatment processes, *Water Res.*, 178, 115830(2020).
13. G. Bortone, S. Gemelli, A. Rambaldi, A. Tilche, Nitrification, denitrification and biological phosphate removal in sequencing batch reactors treating piggery wastewater, *Water Sci. Technol.*, 26(5-6), 977-985(1992).
14. N. Barsan, I. Joita, M. Stanila, C. Radu, M. Dascalu, Modelling wastewater treatment process in a small plant using a sequencing batch reactor (SBR), *Environ. Eng. Manage. J.*, 13(7), 1561-1566(2014).
15. L. Fan, Y. Xie, Optimization control of SBR wastewater treatment process based on pattern recognition, *Procedia Environ. Sci.*, 10(A), 20-25(2011).
16. L. Luccarini, G. L. Bragadin, G. Colombini, M. Mancini, P. Mello, M. Montali, D. Sottara, Formal verification of wastewater treatment processes using events detected from continuous signals by means of artificial neural networks. case study: SBR plant, *Environ. Model. Softw.*, 25(5), 648-660(2010).
17. N. Mehrdadi, A. R. Mohammadi, A. Torabian, Reduction of excess sludge using different methods in SBR process for biological wastewater treatment (emphasizing on ultrasonic usage), *J. Environ. studies*, 38(61), 16-18(2012).
18. N. Barsan, V. Nedeff, A. Temea, E. Mosnegutu, A. D. Chitimus, C. Tomozei, A perspective for poor wastewater infrastructure regions: a small-scale sequencing batchreactor treatment system, *Chem. J. Mold.*, 12(1), 61-66(2017).
19. J. Chapter, M. Florentz, G. David, Oxidation-reduction potential (ORP) regulation: a way to optimize pollution removal and energy savings in the low load activated sludge process, *Water Sci. Technol.*, 19(3-4), 645-655(1987).
20. K. Y. Lee, C. S. Choi, J. M. Lee, T. J. Lee, Control of the aeration and non-aeration periods by the utilization of dissolved oxygen profile at a sequence batch reactor (SBR), *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 25(8), 1032-1037(2003).
21. K. Y. Lee, M. K. Park, T. J. Lee, Sequence batch reactor (SBR) operation using dissolved oxygen derivatives, *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, 26(6), 635-641(2004).
22. E. F. Barth, H. D. Stensel, International nutrient control technology for municipal effluents, *J. WPCF.*, 53(12), 1691-1701(1981).
23. K. S. Sung, *Environmental Mathematical Hydrology*, 1st ed., Donghwa technology, Seoul, Korea, pp. 42-47(1997).
24. E. C. Hoepker, E. D. Schroeder, The effect of loading rate on batch activated sludge effluent quality, *J. WPCF.*, 51(2), 264-273(1979).
25. J. Clifton, P. McDonald, A. Plater, F. Oldfield, An investigation into the efficiency of particle size separation using Stokes' law, *Earth Surf. Processes Landforms*, 24(8), 725-730(1999).
26. Korea Ministry of Environment Homepage, <http://www.me.go.kr>(2015).
27. M. Mauret, F. Ferrand, V. Boisdon, M. Sperandio, E. Paul, 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).
28. R. F. Yu, S. L. Liaw, C. N. Chang, H. J. Lu, W. Y. Cheng, Monitoring and control using on-line ORP on the continuous-flow activated sludge batch reactor system, *Water Sci. Technol.*, 35(1), 57-66(1997).
29. T. Kuba, G. Smolder, M. C. M. van Loosdrecht, J. J. Heijnen, Biological phosphorus removal from wastewater by anaerobic-anoxic sequencing batch reactor, *Water Sci. Technol.*, 27(5-6), 241-251(1993).
30. T. Kuba, A. Wachtmeister, M. C. M. van Loosdrecht, J. J. Heijnen, Effect of nitrate on phosphorus release in biological phosphorus removal systems, *Water Sci. Technol.*, 30(6), 263-269(1994).

Authors

Pul-Eip Lee

Department of Environmental Energy, Graduate School of Energy & Environment, Seoul National University of Science & Technology, Ph.D. Candidate, [ORCID[®] 0000-0003-1964-8854](https://orcid.org/0000-0003-1964-8854)

Duckhui Lee

Department of Environmental Engineering, Seoul National University of Science & Technology, Master Course Candidate, [ORCID[®] 0000-0002-2256-9880](https://orcid.org/0000-0002-2256-9880)

Bum-Su Kim

HENTECH Co., Ltd., Executive Director, [ORCID[®] 0000-0001-7119-5456](https://orcid.org/0000-0001-7119-5456)

Yuhoon Hwang

Department of Environmental Engineering, Seoul National University of Science & Technology, Professor, [ORCID[®] 0000-0002-4013-3989](https://orcid.org/0000-0002-4013-3989)

Tae-Jin Lee

Department of Environmental Engineering, Seoul National University of Science & Technology, Professor, [ORCID[®] 0000-0001-9532-5358](https://orcid.org/0000-0001-9532-5358)