

삼상순환유동층 생물반응기에서 상체류량 및 물질전달

강태규 이찬기, 김현태, 최호석, 강 용, 김상돈*

충남대학교 화학공학과

*한국과학기술원 화학공학과

Gas Holdup and Mass Transfer in Three-Phase Circulating Fluidized-bed Bioreactors

Tae-Gyu Kang, Chan-Gi Lee, Hyun-Tae Kim, Ho-Suk Choi, Yong Kang, Sang-Done Kim*

Department of Chemical Engineering, Chungnam National University, 200

Gung-dong, Yusung-gu, Daejon 305-764, Korea

*Department of Chemical Engineering, KAIST, Daejon 305-701, Korea

1. 서론

유동층은 작은 유속의 운전조건에서도 기체-액체-고체 유동입자 간의 접촉효과가 좋을 뿐만 아니라 연속조작이 편리하여 생물반응기에 매우 유용하게 사용될 수 있다. 특히, 유동 매체를 이용한 유동층 생물막 반응기에서는 유동 생물막 고체입자의 밀도가 연속 액상보다 작거나 생물막을 형성한 고체 유동입자가 다공성인 경우가 대부분인데 이때에는 유동 매체입자의 종말속도가 매우 작기 때문에 생물반응기의 운전이 제한되어 왔다. 이와 같은 생물반응기에서는 기존의 삼상유동층보다 삼상순환유동층의 운전형태가 매우 효율적으로 연속 공정을 수행할 수 있어서 유동매체를 이용한 생물반응기 등에 효과적으로 응용 할 수 있다 하겠다. 삼상 순환유동층에 대한 연구는 유동층의 상승관(riser) 내부에서 수력학적 특성으로 연속액상의 혼합이나 상체류량등이 지금 연구되어지고 있으며, 열 전달 및 물질전달에 대한 연구도 제한적인 범위내에서 수행되고 있다. 삼상 순환유동층을 유동 생물막 고체입자를 사용하는 생물반응기로 사용하기 위해서는 유동입자 주위에 형성된 생물막에 존재하는 미생물의 성장에 적합한 산소농도가 유지되어야 하기 때문에 반응기내의 물질전달 현상은 생물반응기의 거동 및 전환율의 결정에 중요한 요소가 된다. 특히, 생물반응은 장시간에 걸쳐서 일어나므로 효과적인 생물반응기의 산소농도조절을 위해서는 생물반응기 내부에서의 물질전달 특성에 대한 정보는 필수적이라 할 수 있다. 뿐만 아니라, 생물막이 형성된 유동 매체입자의 보강, 생물반응이 진행된 후 활성이 떨어진 유동 매체입자의 재활성화나 교환등을 연속적으로 수행하기 위해서는 생물막이 형성된 유동 매체입자를 순환시키는 순환계의 적용이 필수적이라 할 수 있다. 그러나, 삼상 순환유동층 생물반응기에 대한 연구는 국내·외를 막론하고 현재 매우 미흡하며, 지금 시작 단계에 있는 실정이다.

따라서, 본 연구에서는 삼상 순환유동층 생물반응기에서 기체-액체 및 기체-액체-고체의 접촉과 흐름 현상에 의해 나타나는 반응기 내부에서의 물질전달 특성을 고찰하였다. 즉, 삼상 순환유동층 생물반응기에서 기체와 액체의 유속 그리고 유동 매체입자와 반응기 부피비 등이 반응기 내부에서 물질전달 계수에 미치는 영향을 규명하였다. 이와 같은 연구는 삼상 순환유동층 생물 반응기의 운전, 설계, 제어 등에 필수적인 공학적 자료를 제공할 수 있을 것으로 사료된다.

2. 실험

본 연구에서 사용한 실험장치는 Fig. 1.에서 보는 바와 같이 미생물의 막이 형성된 고체입자를 유동화하여 유출시키는 상승관과 유출된 액체와 고체 생물막 매체입자가 하강하는 하강관 그리고, 액체와 매체입자를 일정한 순환속도로 다시 상승관에 주입시키는 재

순환부로 구성되어 있다. 상승관은 직경이 0.102m이고 높이가 1.0m인 아크릴 관을 사용하였다. 연속액상과 기체분산을 위한 분산관은 다공관 형태를 사용하였는데, 액상의 분산 주입을 위해 직경이 3.0×10^{-3} m의 구멍을 삼각피치로 분산관에 균일하게 배치하였다. 기체 분산상의 주입을 위해서는 연속상 분배기 중간에 직경 6.35×10^{-3} m의 관을 삽입하여 용접한 후 이 관에 직경 1.0×10^{-3} m의 오리피스를 만들어 분산 기체상과 연속 액상이 동일면에서 유동층 내에 주입되도록 하였다. 본 연구의 실험에 사용한 기체는 여과된 압축 공기를 사용하였고, 고체 생물막 입자로는 (주) 삼양사에서 제조된 직경이 4.0×10^{-4} m이고 밀도가 1130kg/m^3 인 음이온 고분자수지(DIAIONSA 20AP)를 사용하였는데 이의 물성을 Table 1에 나타내었다. 고체 담체 입자의 표면에는 미생물을 100시간 이상 충분히 접촉시켜 연속 액상에 포함된 암모니아 성분을 분해하는 반응이 진행되도록 하였다. 미생물은 대전광역시 원천동 폐수처리장에서 사용된 활성슬러지 중 반응슬러지를 공급받아 합성폐수를 사용하여 충분한 양으로 배양한 후 사용하였다. 본 실험에 사용한 연속 액상인 합성폐수의 조성은 Table 2에 나타내었다.

본 연구의 실험범위는 기체유속이 $0.5 \sim 5 \times 10^{-3}$ m/s이고 액체 유속이 0.01~0.03m/s였다. 상승관에서는 하부에서 순환되는 연속액상과 유동생물막 입자들이 분산관에서 유입되는 기체와 액체상과 같이 상승하면서 미생물 분해 반응이 진행되었으며, 상승관의 상부에서 기체는 외부로 유출되고 연속액상과 유동생물막 입자들은 하강관에 유출되도록 반응기를 설계하였다. 하강관의 하부에는 상승관에서 유출된 액상과 유동생물막 입자가 상승관에 다시 유입되도록 직경 5.08×10^{-2} m의 연결관이 상승관의 하부에 경사지게 설치되었다. 또한, 반응기 최상부에 스크린을 설치하여 유동생물막 입자가 반응기 외부로 유출되지 않도록 하였으며 내부에 순환되는 유체의 흐름과 중력에 의해 유동생물막 입자가 하강관을 통해 천천히 순환되었고, 연결관을 경사지게하여 유동매체의 순환이 잘 일어나도록 하였다.

반응기의 상승관에서 기체 체류량은 electrical resistivity probe를 이용하여 분산관으로부터 0.1, 0.3, 0.5, 0.7m의 높이에서 측방향 4지점에서 측정하였으며 또한, 측방향 높이에 따라 0.2m 간격으로 압력측정 탭을 설치하고 압력센서를 이용하여 각 위치에서 정압력강하를 측정하였다. 전기저항탐침에 의해 얻어진 자료로부터 측정지점에서의 국부 기체 체류량은 다음과 같은 식으로 구하였다.

$$(\epsilon_G)_i = \frac{\sum t_i}{T} \quad (1)$$

또한, 일정 실험 조건에서 기체의 평균체류량은 측방향 4지점에서 측정한 국부 기체 체류량의 평균값으로 결정하였으며, 액체와 고체 입자의 평균체류량은 실험적으로 측정한 기체의 체류량 값을 식 (2)와 (3)에 대입하여 구하였다.

$$\frac{\Delta P}{\Delta Z} = (\rho_G \epsilon_G + \rho_L \epsilon_L + \rho_S \epsilon_S)g \quad (2)$$

$$\epsilon_G + \epsilon_L + \epsilon_S = 1 \quad (3)$$

삼상 순환유동층 생물반응기 내부에서 물질전달계수를 결정하기 위해 0.2, 0.4, 0.6, 0.8m 높이에 따라 측방향 용존산소량을 DO meter로 측정하였고, 이를 측방향 분산모델에 적용하여 구하였다. 본 연구에서 적용한 분산 모델은 정상상태에서 용존산소의 물질수지로부터 얻을 수 있는 식 (4)와 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{1}{Pe^*} \frac{d^2 C}{dx^2} - \frac{dC}{dx} + St^*(C^* - C) = 0 \quad (4)$$

$$\text{at } x=0, C = C_0 + \frac{1}{Pe^*} \frac{dC}{dx} \quad x=0$$

$$\text{at } x=1, \frac{dC}{dx} \quad x=0 = 0$$

여기서, Pe 는 Peclet 수, St 는 Stanton 수를 나타내며 x 는 무차원 길이를, 그리고 C^* 는 용존산소의 평형농도를 나타낸다.

3. 결과 및 고찰

삼상 순환유동층 생물반응기의 상승관에서 기체유속의 변화에 따른 기체 체류량의 변화를 Fig. 2에 나타내었다. Fig. 2에서 볼 수 있듯이 기체유속이 증가함에 따라 모든 액체유속에서 기체 체류량은 거의 선형적으로 증가하는 것을 볼 수 있다. 또한, Fig. 3에서 볼 수 있듯이 액체유속의 증가에 따라 기체 체류량은 약간 감소하는 현상을 나타내고 있다. Fig. 4에서는 유동 매체입자와 반응기내의 부피비의 증가에 따른 기체 체류량의 변화를 나타내었다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 유동 매체입자와 반응기내의 부피비의 증가에 따라 기체 체류량은 약간 감소하는 경향을 볼 수 있다. 반응기내에 유동 매체입자의 양이 증가하여 유동 매체입자의 체류량이 증가하게 되면서 기체 체류량이 감소하게 되지만 그 감소량이 극히 작은 것은 유동 매체입자가 반응기 내에 고루 분포하게 되고 기포가 상승할 때 방해효과를 발생시켜 기포의 상승속도가 감소하기 때문으로 해석할 수 있다.

삼상 순환유동층 생물반응기에서 축방향 높이에 따른 용존산소의 농도 분포의 예를 Fig. 5에 나타내었다. 상승관에서 용존산소 농도의 축방향 분포는 높이가 증가됨에 따라 단조 증가하는 경향을 나타냄을 알 수 있으며, 따라서, 축방향 분산 모델을 적용하여 기체-액체 물질전달 계수를 구하였다. Fig. 6에서는 기체유속이 증가함에 따라 기체-액체 물질전달계수를 나타내었다. Fig. 6에서 보는 바와 같이 기체유속이 증가함에 따라 모든 운전조건에서 물질전달계수가 증가함을 볼 수 있다. 액체유속에 따른 물질전달계수의 변화를 Fig. 7에 나타내었다. 액체 유속의 증가에 따라 기체-액체 물질전달 계수는 거의 변화가 없음을 알 수 있었다.

담체의 부피와 상승관의 부피비에 따른 물질전달계수의 변화를 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8에서 보는 것과 같이 담체의 부피와 상승관의 부피비가 증가함에 따라 물질전달계수는 증가함을 알 수 있다.

4. 참고문헌

1. Cho, Y.J., Nam, S.H., Kim, S.J., Kang, Y. and Kim, S.D., *Chem. Eng. Sci.*, **56**, 1275(2001a).
2. Cho, Y.J., Song, P.S., Kim, S.H., Kang, Y. and Kim, S.D., *J. Chem. Eng. Japan*, **34**, 254-261(2001b).
3. De Bruijn, T.J.W., Chase, J.D. and Dawson, W.H., *Can. J. Chem. Eng.*, **66**, 330(1988).
4. Kang, Y., Fan, L.T., Min, B.T. and Kim, S.D., *Biotechnol. Bioeng.*, **37**, 580(1991).
5. Kang, Y., Woo, K.J., Ko, M.H., Cho, Y.J. and Kim, S.D., *Korean J. Chem. Eng.*, **16**, 784(1999).
6. Kim, S.D. and Kang, Y., *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 3639(1997).
7. Kim, S.H., Cho, Y.J., Song, P.S., Kang, Y. and Kim, S.D., *Hwakak Konghak*, **37**, 961(1999).
8. Liang, W., Wu, Q., Yu, Z., Jin, Y. and Wang, Z., *Can. J. Chem. Eng.*, **73**, 656 (1995).
9. Nam, S.H., Cho, Y.J., Kang, Y. and Kim, S.D., *Hwakak Konghak*, **38**, 895(2000).
10. Yang, W., Wang, J., Zhou, L., and Jin, Y., *Chem. Eng. Sci.*, **54**, 5523(1999).

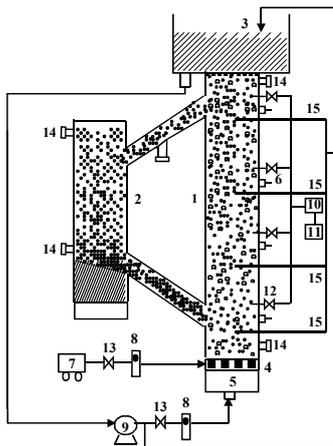


Fig. 1. Schematic diagram of three-phase circulating fluidized-bed bioreactors:

- | | | |
|--------------------|--------------------|-----------------------|
| 1. Riser | 8. Flowmeter | 15. Resistivity probe |
| 2. Down comer | 9. Pump | 16. Amplifier |
| 3. Weir | 10. pH meter | 17. Low-pass filter |
| 4. Distributor | 11. DO meter | 18. A/D converter |
| 5. Calming section | 12. Sampling valve | 19. Computer |
| 6. Pressure tap | 13. Control valve | |
| 7. Compressor | 14. Port | |

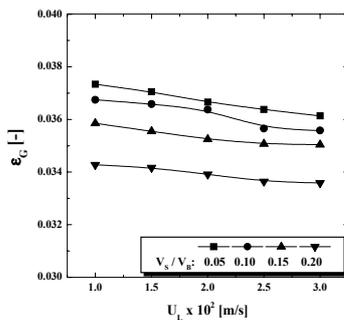


Fig. 3. Effects of liquid velocity on the gas holdup in three-phase circulating fluidized bed bioreactors ($U_G=0.003$ m/s).

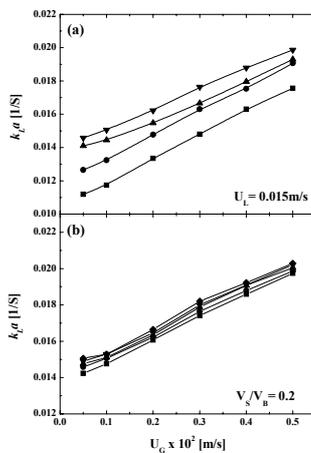


Fig. 6. Effects of gas velocity on the $k_L a$ in three-phase circulating fluidized bed bioreactors.

- | | | | | | |
|-------------------|------|-------|------|-------|------|
| (a) V_S/V_B [-] | 0.05 | 0.1 | 0.15 | 0.2 | |
| (b) U_L [m/s] | 0.01 | 0.015 | 0.02 | 0.025 | 0.03 |

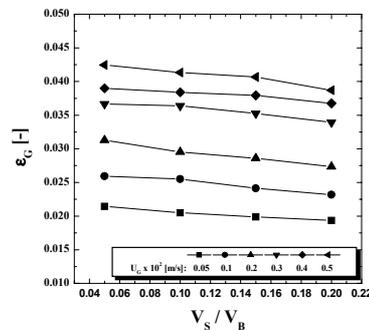


Fig. 4. Effects of V_S/V_B on the gas holdup in three-phase circulating fluidized bed bioreactors ($U_L=0.02$ m/s).

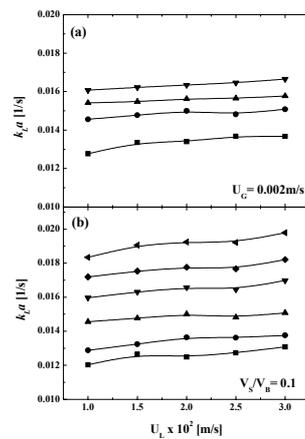


Fig. 7. Effects of liquid velocity on the $k_L a$ in three-phase circulating fluidized bed bioreactors.

- | | | | | | | |
|------------------------|------|-----|------|-----|-----|-----|
| (a) V_S/V_B [-] | 0.05 | 0.1 | 0.15 | 0.2 | | |
| (b) U_L x 10^2 [m/s] | 0.05 | 0.1 | 0.2 | 0.3 | 0.4 | 0.5 |

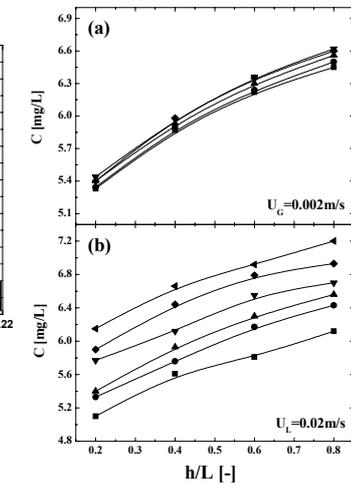


Fig. 5. Dissolved concentration profile in the axial direction of a column ($V_S/V_B=0.1$).

- | | | | | | | |
|------------------------|------|-------|------|-------|------|-----|
| (a) U_L [m/s] | 0.01 | 0.015 | 0.02 | 0.025 | 0.03 | |
| (b) U_G x 10^2 [m/s] | 0.05 | 0.1 | 0.2 | 0.3 | 0.4 | 0.5 |

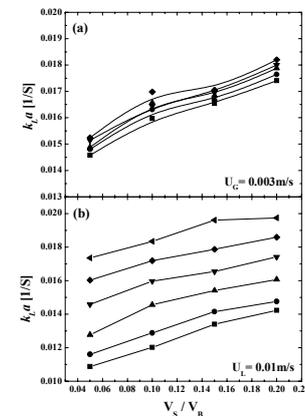


Fig. 8. Effects of V_S/V_B on the $k_L a$ in three-phase circulating fluidized bed bioreactors.

- | | | | | | | |
|------------------------|------|-----|-----|-----|-----|-----|
| (a) U_L x 10^2 [m/s] | 1 | 1.5 | 2 | 2.5 | 3 | |
| (b) U_G x 10^2 [m/s] | 0.05 | 0.1 | 0.2 | 0.3 | 0.4 | 0.5 |