

침지형 MF 중공사막을 이용한 하수 2차 처리수의 재이용 연구

Treatment of Secondary Municipal Wastewater by Submerged Hollow Fiber MF Membranes for Water Reuse

현승훈¹ · 김응도¹ · 홍승관^{2,*} · 안원영³ · 임성균³ · 김건태³

Seunghoon Hyun¹ · Eung Do Kim¹ · Seungkwan Hong^{2,*} · Wonyoung Ahn³ ·
Seongkeun Yim³ · Geontae Kim³

¹ Civil and Environmental Engineering, University of Central Florida, USA

² 고려대학교 공과대학 사회환경시스템공학과

³ 코오롱 엔지니어링 기술연구소

(2004년 10월 21일 논문 접수; 2005년 2월 1일 최종 수정논문 채택)

Abstract

This study was conducted to evaluate the performance of submerged hollow fiber MF processes to treat secondary wastewater for water reuse. Specifically, membrane productivity and filtrate water quality were investigated under various operating conditions (i.e. flux, recovery, and backwash rate) at pilot-scale. Membrane fouling became more severe with increasing flux and recovery, suggesting that low flux operation (< 25 LMH) was desirable. At high flux operating (> 37.5 LMH), increasing backwash rate showed only limited success. The biofouling, quantified by PEPA and BFHPC, was also significant in wastewater reclamation, and biogrowth control by chlorine, were necessary to improve membrane productivity. Filtrate water qualities are in good compliance with water reuse regulations regardless of operating conditions (flux, recovery and backwash rate). Particle (e.g. turbidity) removal ranged from 89 to 98%, while only 11 to 21% of organics (e.g. NPDOC) were removed by MF membrane. Only small improvement in biostability (e.g. AOC) was achieved by MF system, and thus, without post disinfection, significant microorganisms might be present in the filtrate due to regrowth. Lastly, in order to further investigate pathogen removal, controlled microbial challenge tests were performed by monitoring *Giardia*, *Cryptosporidium*, bacteria and virus, and showed relatively good microbial removal.

Key words: Microfiltration, Water reuse, Submerged hollow fiber membrane, Biofouling, Pathogen removal

주제어: 정밀여과, 용수 재이용, 침지형 중공사막, 생물학적 막오염, 병원성 미생물제거

*Corresponding author Tel: +82-2-3290-3322, FAX: +82-2-928-7656, E-mail: skhong21@korea.ac.kr (Hong S.K.)

1. 서 론

물 공급에 비해 수요가 급속하게 증가됨에 따라 새로운 수자원 확보가 필요한 실정이다(Asano and Levin, 1996; Angelakis and Bontoux, 2001; Fox, 2001). 따라서, 물의 재이용을 위한 안정적이고 진보적인 용수처리 기술 개발이 대두되고 있으며, 최근 들어서는 하·폐수의 수처리 공정에 Microfiltration(MF) 또는 Ultrafiltration(UF) 등의 분리막 기술적용이 증가하고 있는 실정이다(Ghayeni et al., 1998; Tchobanoglous et al., 1998; Decarolis et al., 2001). 현재, 미국에는 분리막 기술을 이용한 약 3,800m³/d(1 million gallons per day(MGD)) 이상의 하수 재이용 시설이 28개 이상 가동 중이다(Freeman et al., 2002). 하지만, 수처리에 있어 성공적인 MF/UF 분리막 공정의 적용에는 멤브레인 특성, 원수 수질, 운전 조건 등의 인자에 크게 영향을 받는다. 본 연구의 목적은 하수 처리수 재이용 시설에 사용된 침지형 MF 중공사막 공정의 최적 운전인자를 결정하는 데 있다. 특히 생물학적 막오염(biofouling)을 포함한 막 생산성에 대한 연구와 다양한 운전 조건에서의 처리수 수질에 관한 연구를 수행하였다.

2. 실험 재료 및 방법

2.1. 원수

막분리 공정에 이용된 원수는 미국 플로리다주의 중부에 위치한 Eastern Water Reclamation Facility(EWRF)의 2차 처리수를 이용하였다. EWRF는 현재 약 72,200m³/d(19 MGD)의 처리용량을 보유하고 있다. 또한, 처리장은 Orange County 동부지역의 도시 하수를 차집하여 병행처리하고 있으며, 처리시설로는 전처리 시설, 생물학적 처리시설 중 하나인 5-stage Bardenpho™-Carrousel™, 2차 침전조, 여과조와 살균조로 구성되어 있다. 막분리 공정을 이용한 용수 재이용의 대상 원수인 EWRF(Orange County, Florida, USA) 2차 침전조의 처리수를 본 MF pilot 공정 내 유입수 탱크에 실시간 차집하여 수질분석을 수행하였다(Table 1).

2.2. Pilot 공정

본 공정은 2차 침전조의 처리수 차집관거에서 펌프를 이용하여 본 pilot 공정의 원수탱크에 연속적으로 주입하였으며, pilot 공정에 장착되어 있는 원수펌프를 이용하여 원수탱크에서 원수를 멤브레인 탱크로 공급하였으며, 유량조절은 유입밸브로 조절하였다. 침지형 MF 막을 이용하여 막외부에서 내부로 여과함으로써 농축수는 탱크내에 잔류하게 된다. 한편, 탱크 바닥에 산기관을 설치하여 탱크 전체 혼합을 시키고, 멤브레인 bundle 하부내에 산기관이 설치되어 역세척시 산기됨으로써 막오염을 저감시키기 위해 air blower를 사용하였다. 멤브레인 탱크의 농축수는 운전인자인 회수율에 따라 특정유량으로 waste 탱크로 배출하였다. Pilot 공정은 자동 운전방식으로 10분간 흡인한 뒤, 15초간 처리수를 이용하여 역세척하는 방식이다. 공정에 사용된 침지형 MF 막(Cleanfil®-S5, Kolon)은 총 막면적이 12m²이며, polysulfone 재질로 이루어져 있으며, 중공사 막의 외경과 내경은 각각 0.002과 0.0008m이며, 막공극은 0.1μm이다. 멤브레인조의 내부에 두 개의 MF 모듈이 병렬로 설치되어

Table 1. MF Pilot 공정 원수(EWRF의 2차 처리수) 수질 특성

Category	Parameter	Unit	Range
General	pH		7.3 ± 0.5
	Temp.	°C	22.0 ± 2.6
	TSS	mg/L	8.5 ± 1.8
	TDS	mg/L	348 ± 26.1
	Turbidity	NTU	2.93 ± 0.36
	Alkalinity	mg/L	178.4 ± 17.7
	Conductivity	μS/cm	603.9 ± 82.2
Inorganic	Ca ²⁺	mg/L	41.4 ± 1.5
	Mg ²⁺	mg/L	7.7 ± 0.3
	Na ⁺	mg/L	43.8 ± 2.5
	Cl ⁻	mg/L	67.2 ± 5.3
	Br ⁻	mg/L	0.11 ± 0.01
	SO ₄ ²⁻	mg/L	25.7 ± 2.7
	NO ₃ ⁻	mg/L	11.6 ± 7.4
Organic	NPDOC	mg/L	13.4 ± 1.8
	UV ₂₅₄	cm ⁻¹	0.288 ± 0.02
	Color	PCU	57.6 ± 4.0
	CBOD ₅	mg/L	3.2 ± 2.7
	Biological	HPC	10 ⁵ CFU/mL
TC		10 ⁵ MPN/100mL	5.626 ± 4.082
FC (<i>E. Coli</i>)		10 ⁴ MPN/100mL	1.092 ± 0.500

있으며, 공기와 처리수 밸브가 각 MF 모듈에 별도로 설치되어 있다.

2.3. 수질 분석

다양한 운전조건(투과유속, 회수율, 역세 유량 등)의 변화에 대해 본 연구에서는 일반적 수질 항목, 입자상 물질(탁도, Total Suspended Solid(TSS)), 유기물(UV₂₅₄, NPOC, BOD₅) 그리고 생물학적 인자들(heterotrophic plate count(HPC), Total Coliform/Fecal Coliform(TC/FC))로 구분하여 수질 평가를 수행하였다. 이에 따른 각 수질 항목의 분석 방법은 Standard Method(19th Ed., 1995)의 절차에 따라 수행하였다. 또한, 용수 재이용의 측면에서 처리수의 생물학적 안정성 평가를 위하여 음용수의 수질 평가 시 이용되는 AOC(Assimilable Organic Carbon)와 BDOC(Biodegradable Dissolved Organic Carbon) 분석을 수행하였다(Escobar et al., 2000). 미생물 제거 연구로는 *E. coli*, coliphages, *Cryptosporidium*, *Giardia* 등의 제거율을 평가하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

3.1. 운전 인자에 따른 막 생산성

막오염은 특히 하수 처리수와 같이 수질이 좋지 않은 원수 처리시 막 생산성에 영향을 미치는 중요한 인자로 알려져 있다. 막오염을 줄이기 위해 다양한 운전조건(투과유속, 회수율, 역세 유량)에 따른 막 생산성을 평가하였다. 본 연구는 흡인유량, 회수율과

역세유량을 인자로 하여 공정 제조사인 Kolon eng.의 추천 범위를 기준으로 예비 실험을 수행하면서 결정된 운전인자에 관하여 약 3개월에 걸쳐 수행하였다. 한편, 막공정에 최소의 막오염과 적정 처리유량을 나타낼 수 있는 운전인자 즉, flux, 회수율과 역세 유량을 선정을 하고자 하며, 세 종류의 flux를 25.0, 37.5와 50LMH로, 회수율을 80, 90과 95%로, 역세 유량을 0.3, 0.45와 0.6m³/hr로 선정하여 연구를 수행하였다. Fig. 1은 투과유속(또는 처리 유량)에 따른 막 생산성 평가 결과를 운전 시간에 따른 흡인 압력으로 나타낸 결과로서, 투과유속이 증가함에 따라 흡인 압력이 상당히 증가하는 결과를 얻을 수 있었다. 25L/m²/hr(LMH)에서는 720시간 운전이 가능하여 상대적으로 낮은 막오염을 일으킨 반면, 37.5과 50 LMH의 경우는 65와 55시간으로써 25LMH 운전일에 비해 짧은 운전 가능일을 나타내었다. 또한, 흡인 압력 증가율은 25LMH일 경우가 0.056kPa/hr인 반면, 375와 50LMH인 경우는 각각 0.614와 0.722 kPa/hr로 나타나 높은 투과유속으로 운전함에 따라 막오염이 급격히 증가하여 막 생산성에 상당한 영향을 미치는 것으로 판단된다.

Fig. 2는 회수율에 따른 영향 평가를 위하여 투과유속과 역세 유량을 고정하고, 회수율만을 변수로 두어 운전하였다. 회수율의 정의는 유출유량/유입유량으로서, 회수율 변화에 따른 영향 연구는 flux 37.5 LMH와 역세 유량 0.45m³/hr에서 수행하였으며, 회수율을 변화시켜도 flux를 37.5LMH로 고정시킨 것은 정유량 방식으로서 유입유량을 조절하여 유지할 수 있다. 37.5LMH 투과유속과 0.45m³/hr 역세 유량에서

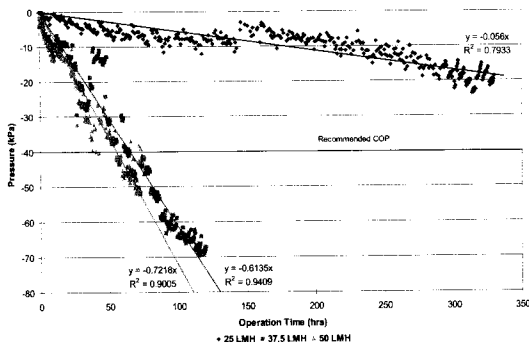


Fig. 1. 투과유속(처리 유량)에 따른 흡인 압력 vs. 운전 기간 (25-50 LMH). 운전 조건: 회수율 90%, 역세 유량 0.3m³/hr.

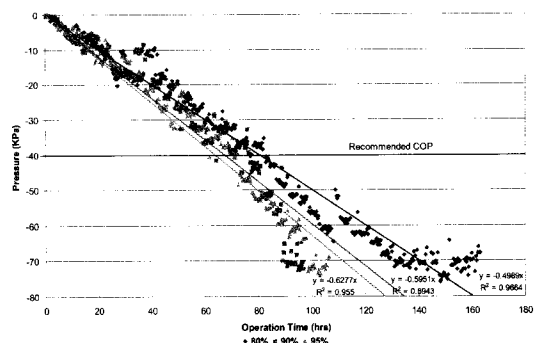


Fig. 2. 회수율에 따른 흡인 압력 vs. 운전 기간(80-95%). 운전 조건: 처리 유량 37.5LMH, 역세 유량 0.45m³/hr.

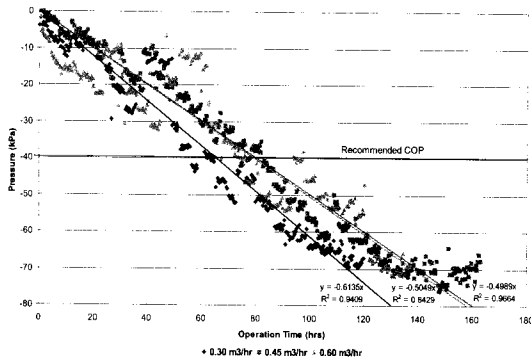


Fig. 3. 역세 유량에 따른 흡인 압력 vs. 운전 기간(0.3-0.6m³/hr). 운전 조건: 투과유속 37.5LMH, 회수율 90%.

회수율을 80, 90과 95%로 운전한 결과, 회수율이 감소할수록 분리막 오염을 저하시켜 흡입 압력 증가율이 다소 감소하는 결과를 얻을 수 있었다.

Fig. 3은 역세 주기를 줄여 10분 흡인 과정 후 15초 동안 역세를 실시하였으며, 역세 유량을 조절하여 역세에 따른 영향을 연구한 결과이다. 37.5LMH 투과유속과 90 % 회수율에서 역세 유량을 0.3, 0.45와 0.6 m³/hr 조건에서의 흡인 압력으로써, 역세 유량이 증가할수록 흡인 압력 증가율이 다소 감소하는 결과를 예상하였지만, 0.45m³/hr을 적용한 경우 0.6m³/hr의 흡인 압력 증가율과 거의 비슷한 결과를 나타냈다. 이는 높은 투과 유속으로 운전 시 단순히 역세 유량을 증가시켜 막오염을 줄이는 것은 한계가 있음을 의미한다.

3.2. 운전 인자에 따른 처리수의 수질 평가

처리수의 수질은 투과유속과 회수율의 변화에 영향을 받지 않는 전형적인 체거름 기작 멤브레인으로 운전 조건(처리 유량, 회수율, 역세 유량)에 관계없이 미국 등의 일반적인 물의 재이용 규제치에 적합한 수질을 나타내었다. 다양한 투과유속 과 회수율의 운전 조건에서도 처리수의 평균 TSS와 탁도는 각각 4mg/L와 1NTU 이하로서 89~98%의 입자 제거율을 보였다. 한편 MF 분리막의 유기물 제거율은 단지 11~21% 정도였으며, 처리수의 평균 CBOD₅는 약 2mg/L였다. Table 2에서 보듯이, AOC나 DOC 등의 생물학적 안정성은 MF 분리막 시스템에 의해 크게 향상되지 않았다.

Fig. 4는 원수와 처리수의 유기물 특성화한 결과를

Table 2. MF 시스템에 의한 AOC, DOC 평균 제거율

	AOC	DOC
Feed	277	8.24
Filtrate	251	7.61
% Rejection	9.4	7.6

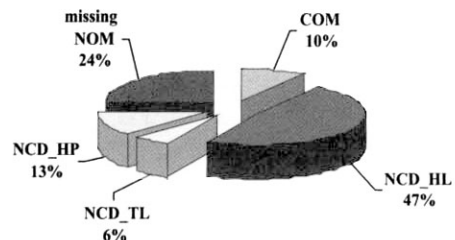
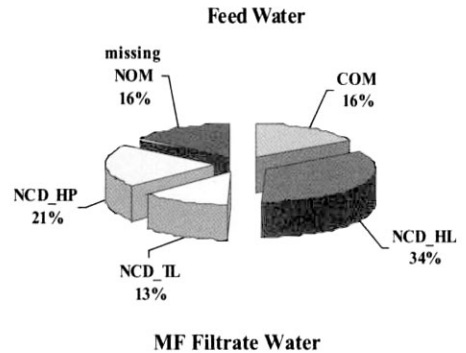
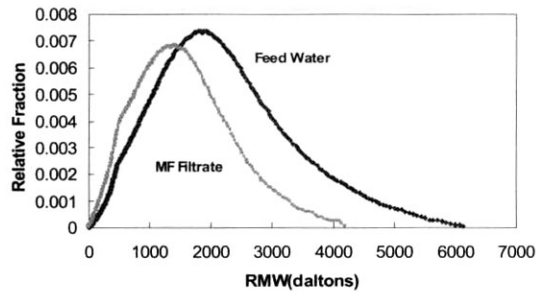


Fig. 4. 원수와 처리수에서 NOM의 크기 분포도와 특성(COM: Colloidal Organic Matter, NCD_HP: Non Colloidal_Hydrophobic, NCD_HL: Non Colloidal_Hydrophilic, NCD_TL: Non Colloidal_Transphilic).

나타낸 것으로써, Natural Organic Matter(NOM)의 크기 분포도와 특성을 나타냈다. 본 막분리 공정을 통해 처리된 수질에서는 NOM Relative Molecular Weight (RMW)의 가장 평균(Mw)이 1,596 daltons인데 반하여, 원수에서는 2,254 daltons으로서 NOM의

Table 3. 회분식 실험의 미생물 제거율 비교

Analytes	Batch Study(Log10 Removal)
<i>Cryptosporidium</i>	>0.35
<i>Giardia</i>	>2.09
<i>E. coli</i> /Fecal coliforms	4.40
Total coliforms	3.61
Beads	5.74
Coliphage	3.02

크기에 따른 제거를 보였으며, 특히 콜로이드 NOM fraction이 감소하는 경향을 나타내었다.

분리막 공정의 미생물 제거율 연구는 Batch 실험으로 수행하였고, 여과공정 전 소독되지 않은 2차 침전지 처리를 원수로 사용하였다. 또한, 적절한 농도의 박테리아 및 원생동물이 원수내에 포함되어 있을 것으로 사료되어, 따로 박테리아 및 원생동물을 주입하지는 않았으며, *E. Coli*, coliphages는 분리막 공정에서 가능한 최대 제거율을 확인하기 위해 2차 침전지 처리수인 원수에 일정한 양의 농도로 주입하여 주었다. Polystyrene Fluorescent Latex Beads(beads) (Interfacial Dynamics, Portland, OR)는 cryptosporidium oocysts를 대신하여 일정량을 주입하였는데, beads(직경 3µm)는 oocysts(직경 4~6µm) 보다 약간 작고 음전하를 띠고 있어, cryptosporidium oocysts의 안정된 제거효율을 측정할 수 있었고, 실험 결과를 Table 3에 나타내었다. *Cryptosporidium*과 *Giardia*는 원수의 농도가 낮아 제거율 계산이 어려웠으나 원생동물과 크기가 비슷한 beads 제거율은 5.74log로 안정적인 원생동물의 제거가 가능한 것으로 사료된다.

3.3. 생물학적 막오염(Biofouling)

입자상 물질과 유기물에 의한 fouling 이외에 2차 처리수를 멤브레인으로 처리할 경우에도 미생물에 의한 biofouling이 중요한 의미를 지닌다. 따라서, biofouling에 대한 연구를 살균제(염소 등) 주입 여부

Table 4. 살균제 주입 여부에 따른 biofilm 특성 분석

Experiment	Day	BFHPC(cfu/VSS)	PEPA(cell/VSS)	Protein(µg/VSS)	Carbohydrate(µg/VSS)	EPS(Carbo./Protein)
W/O biocide	10	1.48E + 07	7.14E + 09	69.8	57.4	0.82
	21	2.94E + 07	1.23E + 10	129.6	61	0.47
W/ biocide	10	6.95E + 01	8.34E + 06	55.1	204.4	3.7
	21	1.47E + 01	0.00E + 00	14.1	103.5	7.3

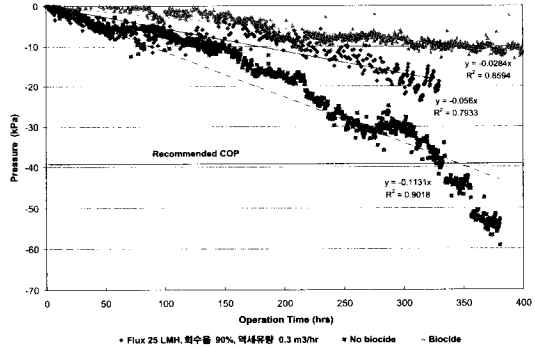


Fig. 5. 살균제 주입 여부에 따른 흡인 압력의 변화. 운전조건: Flux 25LMH, 회수율 90%, 역세유량 0.3m³/hr(W/O Biocide).

에 따라 수행하였다. Biofouling 기작에 대한 기초적인 이해를 위하여 중공사막 표면의 biofilm을 수거하여 BFHPC(biofilm heterotrophic plate count), PEPA (potential exoproteolytic activity), EPS(extracellular polymer substance) 분석을 통하여 미생물에 의한 막오염을 평가하였다. 이 결과는 Fig. 5에 나타내었으며, biocide인 free chlorine을 전혀 주입하지 않은 경우와 하루에 두 번 chlorinated 역세한 일반적인 운전의 경우, 운전 초기에는 고형물에 의한 막오염이 우선되었으며, 운전 기간이 150시간이 지난 후에는 biocide가 없는 운전시 미생물의 막오염에 기인한 흡인압력이 갑자기 증가하는 결과를 얻었다. 살균제를 주입한 경우에는 막 생산성이 크게 향상되었으며, biofilm HPC와 PEPA 분석결과 원수에 염소를 주입함에 따라 막오염이 크게 저감된 것을 알 수 있다. 또한, 살균제를 주입함에 따라 biofilm EPS 내의 carbohydrate가 증가하였으며, protein은 감소하는 결과를 얻었다(Table 4).

4. 결 론

침지형 MF 중공사막을 이용한 하수 처리수의 재이용 연구를 다양한 운전 조건하에 체계적으로 수행하였다. 운전인자(투과유속, 회수율, 역세유량)에 따른 막 생산성에 대해 연구한 결과 투과유속과 회수율이 증가하면 막오염은 심하게 증대됨을 알 수 있었다. 따라서 낮은 처리유량(<25 LMH)에서 운전하는 것이 막오염 방지를 위해 유리할 것으로 판단된다. 한편, 높은 처리유량(>37.5 LMH)에서 운전 시 단순히 역세유량을 증가시켜 막 오염을 방지하는 것은 한계가 있음을 보여 주었다. 여과 수질은 운전조건 (투과유속, 회수율, 역세유량)에 관계없이 탁도 등 89~98%의 입자 제거율은 보여 주었으며, NPOC 등의 유기물질의 제거율은 11~21% 정도로 나타났다. 미생물 제거 연구에서는 상대적으로 높은 미생물 제거율을 보였으나, MF 시스템에 의한 생물학적 안정성 향상(e.g., AOC 제거)은 이루어 지지 않아 후소독 처리가 없으면 미생물의 재성장으로 인해 여과수에 미생물이 존재하게 될 가능성이 있다고 사료된다. 또한 살균제(염소 등)의 주입을 통해 막 생산성이 크게 향상되었는데 이는 물의 재이용 시에 biofouling을 제어하는 것이 매우 중요함을 보여 주었다.

사 사

본 연구는 21세기 프론티어연구개발사업인 수자원의 지속적 확보기술개발사업단의 지원(과제번호 4-

1-1)을 받는 광주과학기술원 물 재이용 기술센터 연구비에 의해 수행되었습니다.

참고문헌

- Angelakis, Bontoux (2001) "Wastewater reclamation and reuse in Eureau countries", *Water Policy*, **3**, pp. 47-59.
- Asano, Levin (1996) "Wastewater reclamation, recycling and reuse: past, present, and future", *Water Science Technology*, **33**(10-11), pp. 1-4.
- Escobar, S. Hong, A. Randall (2000) "Removal of Assimilable Organic Carbon (AOC) and Biodegradable Dissolved Organic Carbon (BDOC) by Reverse Osmosis and Nanofiltration Membranes", *Journal of Membrane Science*, **175**, pp. 1-17.
- Fox (2001) "Development of Water Resources Through Water Reuse: Challenges for The Future", *Editorial in Journal of Environmental Engineering*, pp. 865-866.
- Freeman (2002) "A Clear Advantage: Membrane filtration is gaining acceptance in the water quality field", *Article in Water Environment and Technology*, January 2002: pp. 16-21.
- Ghayeni (1998) "Water reclamation from municipal wastewater using combined microfiltration-reverse osmosis (ME-RO): Preliminary performance data and microbiological aspects of system operation", *Desalination*, **116**(1): pp. 65-80.
- J. Decarolis, S. Hong, J. Taylor (2001) "Fouling Behavior of a Pilot Scale Inside Out Hollow Fiber UF Membrane During Dead-end Filtration of Tertiary Wastewater", *Journal of Membrane Science*, **191**, pp. 165-178.
- Tchobanoglous (1998) "Ultrafiltration as an advanced tertiary treatment process for municipal wastewater", *Desalination*, **119**(1-3), pp. 315-321.