

정밀여과(MF)막 미생물 제거율 모니터링을 위한 막 완전성시험

Direct and Indirect Membrane Integrity Tests for Monitoring Microbial Removal by Microfiltration

홍승관^{1,*} · Frank Miller² · James Taylor²

Seungkwan Hong^{1,*} · Frank Miller² · James Taylor²

1 고려대학교 공과대학 사회환경시스템공학과
2 Civil and Environmental Engineering, University of Central Florida, USA

(2004년 10월 15일 논문접수; 2004년 12월 6일 최종수정논문 채택)

Abstract

The pilot study was conducted to (i) investigate the ability of various membrane integrity monitoring methods to detect changes in membrane integrity during operation, and (ii) determine the impact of membrane damage on microbial removal by microfiltration. Two variations of air pressure hold tests were investigated for direct integrity monitoring: pressure decay (PD) and diffusive air flow (DAF) tests which are most commonly used integrity tests for microfiltration (MF) membranes. Both PD and DAF tests were sensitive enough to detect one damaged fiber out of 66,000 under field operating conditions. Indirect integrity monitoring such as turbidity and particle counting, however, responded poorly to defects in membrane systems. Microbial challenge study was performed using both new and deliberately damaged membranes, as well as varying the state of fouling of the membrane. This study demonstrated that MF membrane with nominal pore size $0.2\mu\text{m}$ was capable of removing various pathogens including coliform, spore, and *cryptosporidium*, at the level required by drinking water regulations, even when high operating pressures were applied. A sharp decrease in average log reduction value (LRV) was observed when one fiber was damaged, emphasizing the importance of membrane integrity in control of microbial contamination.

Key words: Microfiltration, Membrane Integrity Testing, Pathogen Removal

주제어: 정밀여과, 막 완전성 시험, 미생물 제거율

*Corresponding author Tel: +82-2-3290-332, FAX: +82-2-928-7656, E-mail: sknong21@korea.ac.kr (Hong, S.K.)

1. 서론

최근 먹는물 수질기준이 강화됨에 따라 고도처리 시설의 추가적 도입은 불가피 한데, 고도정수처리 기술 중 막여과 공정은 제거하고자 하는 대상물질을 완벽히 제거할 수 있다는 장점으로 인해 차세대 정수처리공정으로 주목을 받고 있다. 하지만, 막이 대상물질을 완벽히 제거하여 안전하게 원수가 처리되는 지 확인하기 위해서는 막의 완전성 시험(Membrane Integrity Test)이 수행되어야 한다. 막 완전성 시험을 통하여 막의 손상여부를 진단할 수 있으며, 손상 시에는 막을 수리하여 사용함으로써 수질 기준 내의 일정한 처리수를 생산할 수 있다. 미국의 경우 지표수 처리규정인 LT2ESWTR에서 막여과에 대한 인증 기준을 제시하였는데, ① 미생물 제거 시험(Microbial Challenge Test)을 통해 막여과 시스템의 미생물 제거능을 입증하여야 하며, ② 직접 완전성 시험을 수행하여 정기적으로 미생물 제거효율을 검증하여야 하고, ③ 간접 완전성 시험을 통해 각 막여과 시스템에 대한 연속 모니터링으로 막여과 시스템의 완전성을 확보하도록 하였다(USEPA, 2003). 그러나 우리나라의 경우 막여과 도입의 초기단계로 운영경험 부족 등 해외 기술력에 의존하고 있는 실정이다. 본 연구에서는 앞으로 막여과 기술이 우리나라의 수도문제 해결에 유용한 기술로 인정받기 위해서 반드시 필요한 막의 완전성 시험에 대한 연구로서 정밀여과(MF) 막에서의 미생물 제거율에 따른 막의 완전성을 확인하고자 한다.

2. 실험 재료 및 방법

2.1. MF Pilot Plant

본 연구에서는 USF Memcor(Model 3M10C, USF Memcor Research Pty, Ltd., South Windsor, NSW, Australia) 사의 MF pilot plant를 이용하여 수행하였다. 막 공극은 $0.2\mu\text{m}$ 이고, polypropylene으로 만들어진 22,000개의 fiber를 가진 3개의 모듈이다. 각 모듈은 15cm^2 의 유효면적을 가진다. Pilot 플랜트는 미 플로리다 Tampa Water Department(TWD)에 위치하며, 원수는 플로리다 서부 Hillsborough 강물을 사용하였다. 원수는 TOC가 평균 16.4mg/L 로 상당히 높은 반면, 탁도는 2.25NTU 로 낮은 편이었다. 일반적인 원수의 수질은 Table 1에 나타내었다.

2.2. 완전성 시험(Membrane Integrity Test)

완전성 진단 방법은 일반적으로 직접적, 간접적 방법으로 분류한다. 직접적 방법은 막 자체의 완전성을 평가하는 것이고, 간접적 방법은 막의 완전성을 탁도 등의 대체 인자를 사용하여 측정하는 방법이다. 여러 가지 완전성 시험의 장·단점에 대한 요약을 표 2에 정리하였다(Adham: 1995, Lozier: 1997). 본 연구에서는 직접 완전성 시험 방법 중의 압력손실시험(Pressure Decay Test; PDT)과 확산성 기류시험(Diffusive Air Flow Test: DAFT)을 수행함에 있어 손상되지 않은 fiber를 가진 막과 1개 또는 3개의 fiber를 손상시킨 막을 통해 미생물 제거율을 평가하여 막 자체의 완전성을 확인하였으며, 간접 완전성 시험으로 탁도와 입자수 모니터링을 통한 막의 완전성을 평

Table 1. 원수의 수질(미 플로리다 Tampa의 Hillsborough River)

측정 인자	단위	최대	최소	평균
색도	CPU	297	34	153
TOC	mg/L	27.5	4.0	16.4
입자수	#/ml > $2.0\mu\text{m}$	62,608	1,479	12,234
TSS	mg/L	18.0	1.6	5.3
Total coliform	CFU/100ml	12,000	<1	1,924
TDS	mg/L	270	63	169
총 경도	mg/L as CaCO_3	184	50	108
알칼리도	mg/L as CaCO_3	178	30	80

Table 2. 완전성 시험 방법의 장·단점

완전성 시험 방법	장 점	단 점
직접 완전성 시험 방법		
기포 시험 (Bubble Point Testing)	직접 완전성 측정으로 손상 fiber에 대한 정확한 진단이 가능	수동으로 작업하여야 하므로 큰 plant에서 인건비가 비쌘
공기-압력 시험 (Air-Pressure Testing) (PDT / DAFT)	막여과 시스템 내의 설치가 가능하여 완전성을 직접 측정하여 분석능이 높음	연속적 모니터링이 불가능
음파 시험 (Sonic Testing)	안정성을 직접 측정하여 빠르고 간편하게 사용할 수 있으며 문제 모듈에 대한 정확한 판단이 가능	연속적 모니터링이 불가능하며 경험이 필요하므로 인건비가 비쌘
간접 완전성 시험 방법		
탁도 모니터링 (Turbidity Monitoring)	광범위한 수처리 산업에 이용되며 비용이 적음	낮은 탁도에서의 입자변화를 예민하게 측정하지 못함
입자수 모니터링 (Particle Counting/ Monitoring)	연속적인 온라인 측정이 가능하며 크기 별로 측정이 가능하다.	비용이 비싸고 간접적 측정으로 대규모 시스템에 적용할 경우 많은 센서가 필요
회분식 입자수 (Batch particle counting)	사용이 쉽고, 비용이 낮으며 크기별로 측정이 가능	오프라인에서 간접적 측정
미생물 제거 시험 (Microbial Challenges)	관심대상 미생물의 정확한 제거율을 나타내며 분해능이 높음	비용이 비싸고, 간접적 측정이며, 오프라인 측정. 처리 시스템에 유기물을 첨가하여야 함
Microsphere 제거 시험 (Microsphere Challenges)	분해능이 높으며, 온라인 방법이 가능	간접적 측정이며, 처리 시스템에 microsphere를 첨가하여야 하며 비용이 비쌘

가하였다.

한편, 미생물 제거 시험에서는 유입 농도를 각각의 병원성 미생물에 대해 다르게 하여 수행하였다. Coliform의 유입 농도는 $2.5 \times 10^5 \sim 9.2 \times 10^9$ Colony Forming Units(CFU)/100mL, spore의 농도는 $1.0 \times 10^6 \sim 3.1 \times 10^8$ CFU/100mL, *cryptosporidium* 농도는 $2.9 \times 10^6 \sim 1.1 \times 10^7$ oocysts/100L이다. 원수에는 병원성 미생물의 농도가 낮아 제거율을 평가하기 어려우므로 세 가지 미생물을 고농도로 주입하여 미생물 제거 시험을 하였으며, 미생물 제거율이 막의 손상정도에 따라 달라지는 것을 통해 막의 완전성을 평가하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

3.1. 직접 완전성 시험(Direct Integrity Test)

막 자체의 완전성을 확인하기 위해 압력손실시험(PDT)과 확산성 기류시험(DAFT)을 수행하였다. 이 시험방법으로 66,000여개의 fiber 중 1개가 파손되었을 경우의 미생물 제거율 변화를 알 수 있다. 압력 손실시험은 막모듈에 압력을 가했을 때, 막의 손상부분으로 공기가 흐르기 때문에 생기는 압력의 손실을 측정하는 방법으로 압력 손실률의 단위는 kPa/min이다. Fig. 1은 막간차압에 대한 압력 손실률을 측정한 것으로서, fiber의 손상정도가 증가함에 따라 압력 손실률이 증가함을 뚜렷이 알 수 있다. 손상이 없는

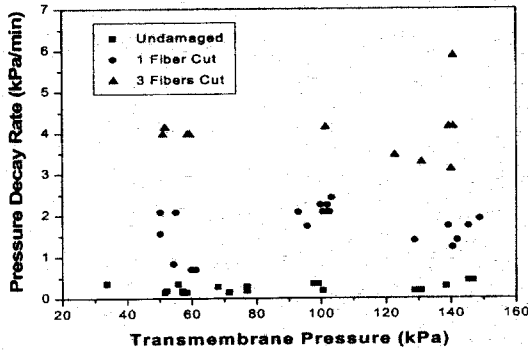


Fig. 1. 압력손실시험(Pressure Decay Test; PDT).

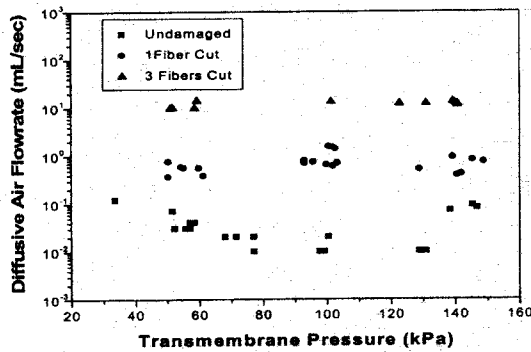


Fig. 2. 확산성 기류시험(Diffusive Air Flow Test; DAFT).

fiber는 압력 손실률이 0.5kPa/min 이하로 일정하게 측정된 반면, 1개의 fiber가 손상된 경우 손실률은 약 1~2kPa/min가 증가하였으며, 3개의 fiber가 손상된 경우에는 4kPa/min 이상 증가됨을 알 수 있다.

확산성 기류시험에서는 압력손실시험에서처럼 압력 손실률을 측정하는 대신에 시험 압력은 일정하게 유지하고, 막의 손상 부분을 통한 기체 유량을 측정한다. 이 확산성 기류는 막의 완전성을 나타내는 지표가 된다. 그림 2는 확산성 기류를 막간차압에 대한 결과값으로 나타내었으며, 횡축은 로그좌표이다. 그림 2에서도 압력손실시험과 유사하게 fiber의 손상된 수가 증가함에 따라 확산성 기류가 증가함을 보인다. 특히, 손상이 없는 막의 유속은 0.1~0.01 mL/sec로 측정된 반면, 1개의 fiber가 손상된 경우 유속은 1 mL/sec로 증가하였고, 3개의 fiber가 손상된 경우 10 mL/sec로 측정되었다. 압력손실시험에 비해 확산성 기류시험은 막 완전성의 작은 변화도 감지할 수 있는

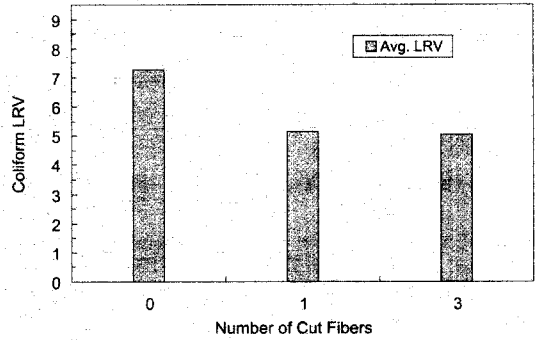


Fig. 3. Coliform 제거 시험

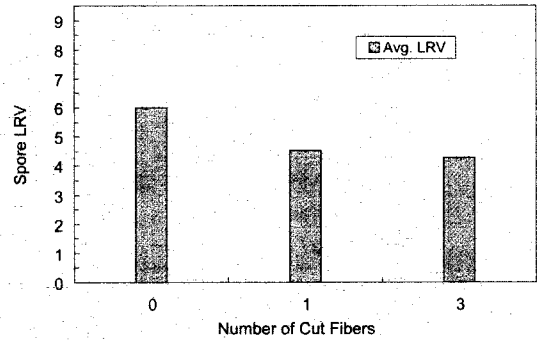


Fig. 4. Spore 제거 시험

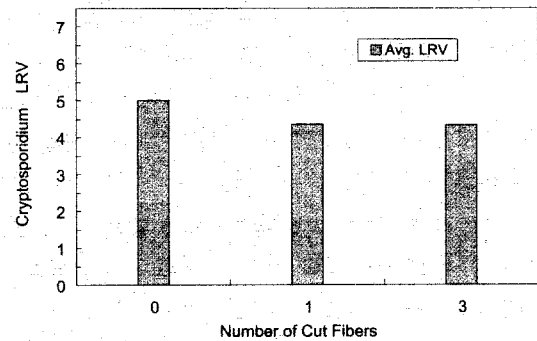


Fig. 5. *Cryptosporidium* 제거 시험

더 민감한 시험방법임을 알 수 있다.

한편, MF막 손상에 따른 병원성 미생물 제거율을 조사하기 위해 고농도의 coliform, spore, cryptosporidium을 주입하였다. 본 연구에서 MF 막의 제거효율은 식 1에 따라 계산하여 Log Reduction Value(LRV)로 나타내었다.

$$LRV = -\log_{10}(C_p / C_f) \quad \text{식 1}$$

Coliform, spore, *cryptosporidium* 제거 시험결과를 Fig. 3, 4, 5에 나타내었다. 병원성 미생물 제거에 관한 결과는 fiber 손상 수에 대해 나타내었으며, y축은 LRV로 표시하였다. 세 가지 미생물 모두 fiber가 1개 이상 손상되었을 경우에 LRV가 급격히 감소함을 보였으며, 이는 막 완전성의 중요성을 입증하는 것이다. 한편, fiber 1개가 손상된 경우와 3개가 손상된 경우의 차이는 크게 없었으나, 3개 손상된 경우의 LRV가 약간 더 낮음을 알 수 있었다. 미생물 제거 시험에서의 측정 LRV는 식 1에서처럼 유입농도에 따라 크게 다르기 때문이다.

3.2. 간접 완전성 시험(Indirect Integrity Test)

간접 완전성 시험으로는 탁도와 입자수 모니터링을 수행하였다. Fig. 6은 탁도 모니터링의 결과로서 유입, 유출 탁도를 나타내며, y축을 로그값으로 표현한 것이다. 유입, 유출 탁도는 막 손상정도에 따라 다르게 되어 막 완전성을 간접적으로 측정하는 지표가 된다. Fig. 6에서는 fiber가 손상되었을 때에도 여과 탁도에는 변화가 없음을 보인다. 입자수 모니터링도 탁도 모니터링과 비슷한 결과를 보여주었다. 손상된 fiber의 수가 증가하여도 유출 농도의 변화는 크게 변

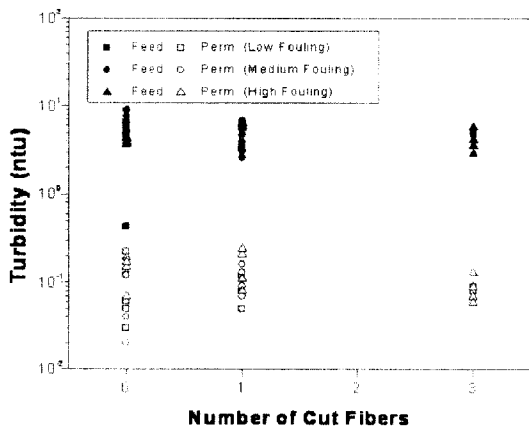


Fig. 6. 간접 막 완전성 시험(탁도 모니터링) Fouling 정도는 막간차압(TMP) 증가정도로 나타냄: low-50kPa, medium-100 kPa, high-150kPa)

화하지 않았다.

4. 결 론

이 연구에서 얻어진 결과를 요약하면 다음과 같다.

- 정밀여과(MF) 막은 높은 투과유량, 막간차압과 같은 운전 조건에서도 법규가 요구하는 수준보다 높은 *cryptosporidium* 등의 미생물 제거 능력을 보인다.

- 압력손실시험(PDT)과 확산성 기류시험(DAFT)은 현장에서 막 완전성 모니터링을 하기 위해 필요한 간단하면서도 신뢰성 있는 시험 방법이다.

- 탁도와 입자수 모니터링은 막 완전성의 변화를 정확하게 감지 할 수 없다. 이와 같은 간접 완전성 시험방법은 막이 손상되었을 때 이를 간과할 위험이 크다.

- 탁도와 입자수 모니터링보다는 압력손실시험과 확산성 기류시험이 MF 막의 실제 미생물 제거 효율에 있어 더 밀접한 관계를 나타낸다. 그러나 통계학적으로 신뢰성 있는 결과를 얻기 위해 더 많은 자료 수집과 미생물 분석 방법의 개발이 필요하다.

감사의 글

본 연구에서 미생물 분석을 도와주신 University of South Florida의 Joan Rose 박사와 Charles Gibbson에 감사드립니다.

참고 문헌

Adham, S.S., Jacangelo, J.G., Laine, J.M., (1995). Assessing Integrity. *J. AWWA*, **86**(3) pp. 62-75.

Adham, S.S., Jacangelo, J.G., Laine, J.-M.,(1996). Mechanism of *Cryptosporidium*, *Giardia*, and MS2 Virus Removal by MF and UF. *J. AWWA*, **87**(9) pp. 107-121.

Jacangelo, J.G., et al., (1991). Low-Pressure Membrane Filtration for Removing *Giardia* and Microbial Indicators. *J. AWWA*, **83**(9) pp. 97-103.

Lozier, J.C., Jones, G., Bellamy, W., (1997). Integrated Membrane Treatment in Alaska. *J. AWWA*, **89**(10) pp. 50-64.

McGahey, C., Olivieri, V.P., (1993). Mechanisms of Viral Capture by Microfiltration. *Water Science Technology*, **27**:3-4 pp. 307-310.

- S. Hong, F. Miller, J. Taylor, (2001). "Assessing Pathogen Removal Efficiency of Microfiltration by Monitoring Membrane Integrity", *Water Science and Technology: Water Supply*, 1(4) pp. 43-48.
- USEPA (2003). *Membrane Filtration Guidance Manual*, pp.4.1-4.3.
- Yoo, R.S., Brown, D.R., Pardini, R.J., Bentson G.D., (1995). Microfiltration: A Case Study. *J. AWWA*, 87(3) pp. 38-49.