

활성탄과 Membrane을 이용한 수처리효과에 관한 연구

김영진 · 김영규* · 정문호

서울대학교 보건대학원, *용인대학교 환경보건학과

A Study on The Effectiveness of Watertreatment Using Activated Carbons and Membranes

Young Jin Kim, Young Gyu Kim and Moon Ho Kim

School of public health, Seoul national university

*Department of environmental health, Yongin university

ABSTRACT

To evaluate the effectiveness of water treatment using nanofiltration, ultrafiltration, and microfiltration systems, tapwater contaminated by bacteria and nitrate nitrogen was filtered, and then the rates of removal for many kinds of contaminants were compared and investigated. The rates of turbidity removal by these systems are around 80% all of them. However, nanofiltration system is the most effective as hardness removal is 80%, suspended solids 90%, total residual chlorine 90% and nitrate nitrogen 69%. Among nanofiltration, ultrafiltration and microfiltration systems, nanofiltration system is the most stable in flow rate of permeate. Comparing hollow and spiral type of ultrafiltration, microfiltration each, spiral type is more stable than hollow type owing to rinsing effect of brine. The values of pH in ultrafiltration and microfiltration systems are between 7.0 and 7.5, and that of nanofiltration system is low to 6.2~7.0. The effectiveness of heterotrophic bacteria removal is the most excellent in the nanofiltration system.

Keywords: Watertreatment effectiveness, Carbon filter, Nanofiltration system, Ultrafiltration system, Microfiltration system

I. 서 론

지하수나 지표수의 관리소홀로 난분해성 유기화합물질의 증가와 더불어 일반세균 및 대장균 등의 미생물의 오염도 심각한 실정이다. 유기물이 다량 함유되었을 경우는 trihalomethanes[THMs] 등의 발암성 물질이나 기타 염소계 화합물 등이 생성됨으로써 또 다른 유해 요인이 되고 있다.^{1,2)} 우리나라에서도 하천이 산업폐수로 오염되고 염소 소독시 발생하는 발암성물질 등의 문제점 때문에 정수장에 활성탄을 이용한 고도정수처리 시스템을 도입하고 있으며 멤브레인을 이용한 고도정수처리 방법의 필요성이 대두되고 있다.^{3,4)}

막분리 공정은 처리를 위한 소요 부지 면적이 적어 대도시 등과 같이 지가가 높은 지역의 중·소규모 중수처리기술로서 적용 가능성이 매우 크다.^{5,6)} 정수처리에서 주로 이용되어온 막분리법은 역삼투방식

(Reverse Osmosis)과 한외여과방식(Ultra Filtration)이 있는데 중금속, 이온성물질과 미생물의 제거에는 역삼투방식이 효과적인 것으로 알려져 있다.^{8,9)} 그러나 역삼투막은 물 속의 미네랄을 대부분 제거하고 막오염으로 인한 투과유량의 감소가 문제점으로 지적되고 있다.¹⁰⁾ 그리고, 조 등¹¹⁾의 연구에 의하면 역삼투막 후단에 활성탄을 사용한 공정은 24시간 후의 처리수에서 활성탄에 잔류되어 있던 일반세균이 증식되어 검출되는 것으로 예측된다고 하였다. 또한 Jacangelo와 Adam 등의 연구에서는 한외여과막 사용시 대부분의 박테리아와 바이러스가 제거되는 것으로 보고되고 있으나, 오랜 시간 membrane을 가동할 때는 미생물이 검출되는 것으로 보고되고 있다.¹²⁾

본 연구에서는 멤브레인의 기공을 막을 우려가 있는 부유물질을 제거하기 위하여 침전필터와 카본필터를 사용하였으며 나노여과막, 한외여과막 및 정밀여과막과 조합한 시스템을 만들었다. 저수조에서 며칠

간 보관한 수도수를 시험수로 사용하여 각각의 시스템을 통과시키면서 각종 오염물질에 대한 제거효율과 유량변화를 비교분석하였다.

II. 실험재료 및 방법

1. 실험재료 및 장치

본 실험에서는 건물내 저수조를 거쳐 실험실내로 유입된 수도수를 며칠간 보관하여 일반세균이 $10^2 \sim 10^3$ cfu/m로 오염된 물을 시험수로 사용하였으며, 시험수의 수질을 분석한 결과 Table 1, membrane의 사양은 Table 2와 같다.

침전필터는 20 μ m의 Polyethylene 재질로 수도관의 부식 등에 의해 발생한 녹찌꺼기를 제거하기 위해 S사의 depth filter를 침전필터로 사용하였다. 유입조는 100 l의 플라스틱 용기를 사용하였으며, 시험수의 고른 혼합을 위해 aerator를 설치하였다. 막 투과수와 폐수의 유량을 측정하기 위해 유량계를 사용하였으며, 투과압력은 막 module의 유입구에 압력계를 부착하여 조절하였다. 각 membrane 시스템의 운전조건은 Table 3과 같다.

본 실험의 시스템에서는 전처리 필터로 침전필터와 카본필터를 사용하였고, 전처리 필터와 각종 이

과막을 Fig. 1과 같이 설치한 후 시험수를 통과시켜 오염물질에 대한 수처리 효과를 측정하였다.

- 1) 침전필터 일반활성탄-정밀여과막(spiral, hollow)
- 2) 침전필터 일반활성탄-한외여과막(spiral, hollow)

Table 3. Operating conditions of membrane filtration systems

	Nano-filtration	Ultrafiltration		Microfiltration	
		Spiral Wound	Hollow Fiber	Spiral Wound	Hollow Fiber
Pressure (psi)	40	40		15	
Initial flux ($l/m^2 \cdot hr$)	25.2	63.6	183.6	63.6	120.0

Table 1. Quality of synthetic solution used for the experiment

Item	Unit	Value
pH		6.91~7.48
Hardness	mg/l	51~65
Turbidity	NTU	0.28~0.96
Suspended solids	mg/l	61~132
Total residual chlorine	mg/l	0.09~0.59
Total trihalomethanes	μ g/l	2.94~6.49
Heterotrophic bacteria	cfu/ml	$10^2 \sim 10^3$
Nitrate nitrogen	mg/l	29.4~40.2

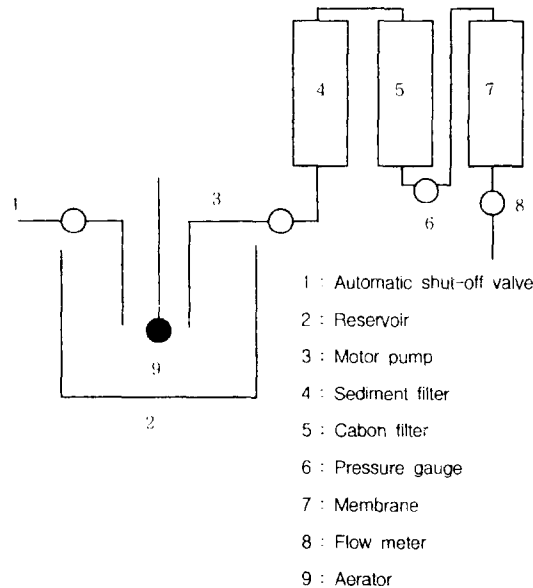


Fig. 1. Apparatus of membrane filtration system.

Table 2. Specifications of membranes

	Nano membrane	UF* membrane		MF** membrane	
		Spiral Wound	Hollow Fiber	Spiral Wound	Hollow Fiber
Material	Polysulfone+Polyamide	Polysulfone	Polysulfone	Polysulfone	Polysulfone
Active surface area(m^2)	0.48	0.33	0.18	0.33	0.25
pore size (μ m)	0.001			0.04	0.01
MWCO	-	30,000	35,000		

*UF : Ultrafiltration, **MF : Microfiltration

3) 침전필터 - 일반활성탄 - 나노여과막

2. 측정방법

pH는 각 필터를 통과한 통과수를 25°C에서 pH meter(Corning340), 탁도는 DRT 100B(HF scientific, Inc.), 경도는 먹는물 관리법의 시험방법에 준하여 측정하였다. 총잔류염소는 DC 1100(LaMotte) 으로 분석하였다. 일반세균은 각 필터를 통과한 통과수를 멸균 시험관에 10 ml씩 받아 인산완충액에 희석하여 먹는물 관리법의 시험방법에 준하여 측정하였다. 총 트리할로메탄을 측정할 Gas Chromatography (CHROMPACK 9001)의 분석조건은 다음과 같다.

- Column : 25 mm × 0.32 mm × 1.2 μm
- Injector Temperature : 270°C
- Column Temperature : 40°C → 80°C, 2°C/min
- Detector Temperature : 250°C
- Detector : Electron Capture Detector(ECD)
- Purge & Trap Injector

III. 결과 및 고찰

막분리공정은 기존의 방법으로는 제거가 불가능한 저분자 오염물질 까지 제거된 양질의 처리수를 얻을 수 있으며 THMs과 같은 부산물의 생성이 없다는 장점이 있다.^{8,9)} 따라서, 본 실험에서는 침전필터, 활성탄필터 및 각 membrane을 결합한 수처리 시스템의 탁도, 경도, 증발잔류물, 총잔류염소, 총트리할로메탄 및 질산성 질소의 제거효율을 비교하였다.

1. 탁도, 경도 및 증발잔류물에 대한 제거효과

Fig. 2를 보면 탁도에 대한 제거율은 microfiltration시스템의 경우 초기에는 50% 정도로 낮았으나 통수량이 누적됨에 따라 nanofiltration 시스템, ultrafiltration 시스템과 microfiltration 시스템 모두 제거율이 80% 내외로 큰 차이가 없었다. 또한 ultrafiltration과 microfiltration 시스템의 module 종류에 따른 제거율의 차이는 없었다. 그러나, 경도나 증발잔류물의 경우 Fig. 3과 Fig. 4를 보면 nanofiltration 시스템은 90%의 제거율을 나타내고 있으나 ultrafiltration과 microfiltration 시스템의 경우 10% 이하의 낮은 제거율을 보이고 있어 이들 membrane에 의한 경도와 증발잔류물의 제거효과는 없는 것으로 나타나고 있다.

2. 총잔류염소와 총트리할로메탄에 대한 제거효과

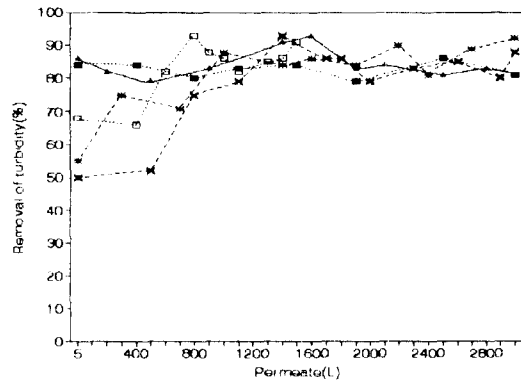


Fig. 2. Removal of turbidity by membrane filtration systems :
 (■) sediment filter+carbon filter+UF membrane(spiral)
 (□) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow)
 (▲) sediment filter+carbon filter+Nano membrane
 (*) sediment filter+carbon filter+MF membrane(spiral)
 (×) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow).

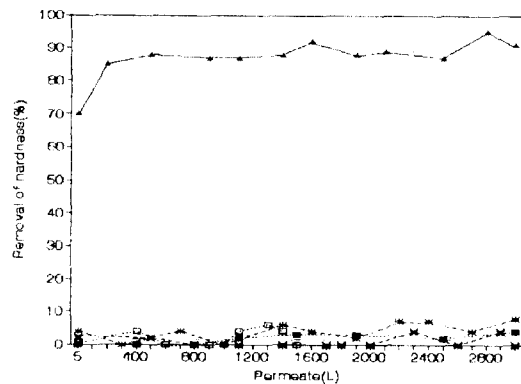


Fig. 3. Removal of hardness by membrane filtration systems :
 (■) sediment filter+carbon filter+UF membrane(spiral)
 (□) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow)
 (▲) sediment filter+carbon filter+Nano membrane
 (*) sediment filter+carbon filter+MF membrane(spiral)
 (×) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow).

Fig. 5에서 총잔류염소에 대한 제거효과는 nanofiltration 시스템이 다른 여과 시스템보다 높은 제거

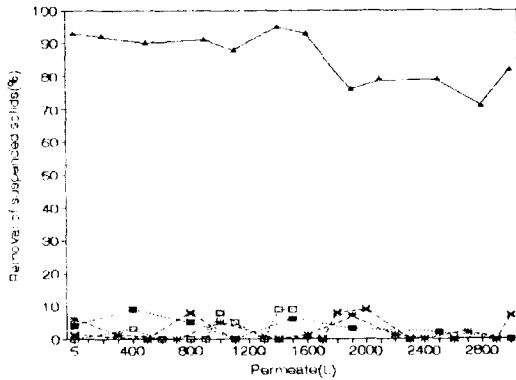


Fig. 4. Removal of suspended solids by membrane filtration systems :
 (■) sediment filter+carbon filter+UF membrane(spiral)
 (□) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow)
 (▲) sediment filter+carbon filter+Nano membrane
 (*) sediment filter+carbon filter+MF membrane(spiral)
 (×) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow).

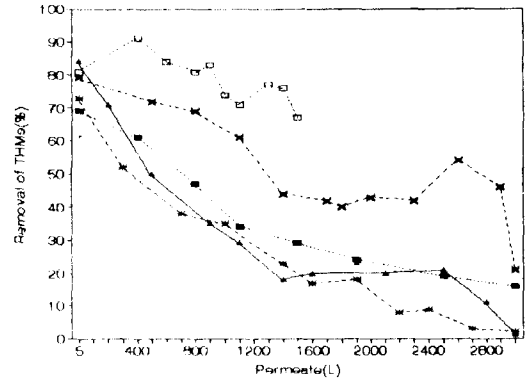


Fig. 6. Removal of total trihalomethanes by membrane filtration systems :
 (■) sediment filter+carbon filter+UF membrane(spiral)
 (□) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow)
 (▲) sediment filter+carbon filter+Nano membrane
 (*) sediment filter+carbon filter+MF membrane(spiral)
 (×) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow).

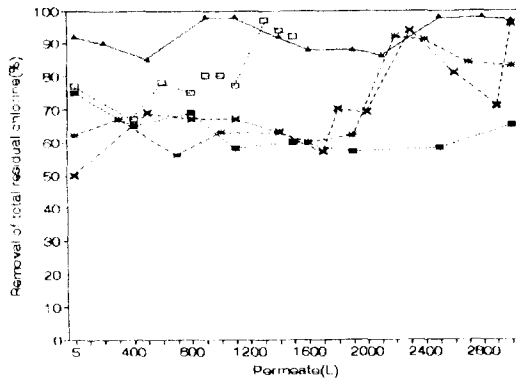


Fig. 5. Removal of total residual chlorine by membrane filtration systems
 (■) sediment filter+carbon filter+UF membrane(spiral)
 (□) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow)
 (▲) sediment filter+carbon filter+Nano membrane
 (*) sediment filter+carbon filter+MF membrane(spiral)
 (×) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow).

율을 보이고 있으나, 종트리할로메탄(THMs)의 제거 효과는 Fig. 6을 보면 hollow type의 ultrafiltration

이 가장 높은 제거율을 보이고 있다. microfiltration의 경우도 hollow type의 module이 spiral type에 비해 THMs의 제거율이 높게 나타나고 있으며, hollow type에서 제거율이 높은 것은 급격한 flux 감소로 THMs와 활성탄이 충분한 접촉을 하여 spiral type의 module보다 제거율이 높게 나타나고 있다. 이는 THMs 등의 VOC를 제거하는데 활성탄이 효과적이라는 것과 일치한다.” 특히 nanofiltration 시스템의 경우 THMs에 대한 제거율이 매우 낮으므로 이 물질의 제거에 효과가 있는 활성탄과의 조합을 통해 보다 높은 제거 효율을 얻을 수 있는 시스템에 대한 연구가 필요하다고 생각된다.

3. 유량 변화

막분리 기술을 이용한 시스템은 설비의 콤팩트성, 운전의 용이성 때문에 기존의 타 정수처리 공정에 비해 시설의 고정비를 상당부분 감소시킬 수 있으나 fouling에 의한 급격한 유량감소와 잦은 막교체 및 비용의 증가가 실용화에 가장 큰 저해요인으로 작용하고 있다.¹⁰⁾ 따라서, 본 실험에서는 nanofiltration, ultrafiltration 및 microfiltration 시스템 상호간의 flow rate 변화와 ultrafiltration과 microfiltration은 각각 hollow type과 spiral type간의 flow rate 변화

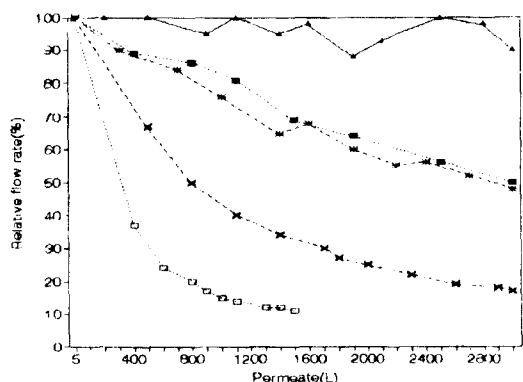


Fig. 7. Changes of flow rate in permeates by membrane filtration systems :

- (■) sediment filter+carbon filter+UF membrane(spiral)
- (□) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow)
- (▲) sediment filter+carbon filter+Nano membrane
- (*) sediment filter+carbon filter+MF membrane(spiral)
- (x) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow).

를 비교하였으며, 그 결과는 Fig. 7과 같다. 실험결과를 보면 nanofiltration 시스템이 다른 2가지 membrane 시스템보다 완만하게 flow rate 감소경향을 보이고 있으며 spiral type의 ultrafiltration과 microfiltration 시스템은 membrane의 pore size에 상관없이 비슷하게 직선적으로 감소하고 있다. spiral type이 hollow type보다 flow rate의 감소경향이 작은 것은 일정량의 폐수가 막표면에 부착하여 fouling을 일으키는 물질들을 세척하여 막의 수명을 상대적으로 연장시키고 있기 때문이다. 따라서, 처리하고자 하는 공정에 따라 spiral type에서 발생하는 폐수 비용과 hollow type의 막교체 비용에 대한 경제적인 비교가 반드시 있어야 한다고 본다.

4. pH변화

역삼투막은 미네랄과 경도유발물질을 거의 다 제거하므로써 정수의 pH가 음용수 기준이하로 하락하는 문제점이 있다.¹³⁾ 따라서, 본 실험에서는 각 membrane 시스템을 통과한 통과수의 pH를 측정 비교하였으며, 그 결과는 Fig. 8에 나타나 있다. 실험결과는 ultrafiltration과 microfiltration 시스템의 경우 경도나 증발잔류물의 제거율이 낮아 통과수의

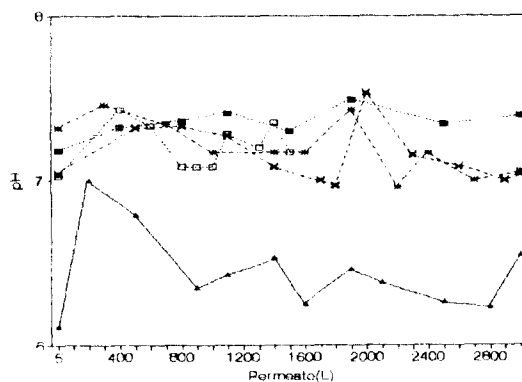


Fig. 8. Changes of pH in permeates of membrane filtration systems :

- (■) sediment filter+carbon filter+UF membrane(spiral)
- (□) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow)
- (▲) sediment filter+carbon filter+Nano membrane
- (*) sediment filter+carbon filter+MF membrane(spiral)
- (x) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow).

pH가 7.0~7.5 사이를 유지하고 있고 nano-filtration 시스템의 경우 pH 6.2~7.0 사이를 유지하고 있다. 이것은 nanofiltration 시스템의 경우 경도 및 증발잔류물의 제거효과가 높아 통과수의 pH가 하락하는 것으로 보인다.

5. 미생물 제거효과

인위적으로 일반세균을 $10^2 \sim 10^4$ cfu/ml로 오염시킨 수도수를 시험수로 사용하여 membrane 앞에 설치한 카본필터를 오염시켜 카본필터내에서 성장한 일반세균이 membrane 시스템을 통과하여 Fig. 9와 같은 결과를 얻었다. 실험결과를 보면 hollow type의 ultrafiltration에서 가장 먼저 일반세균이 발생하였으며 spiral type의 ultrafiltration과 두 종류의 microfiltration module은 약 1000 l의 통수량에서 일반세균이 검출되었으며 hollow type의 micro-filtration 시스템에서 일반세균의 발생이 350 cfu/ml로 가장 높게 나타났고, ultrafiltration 및 micro-filtration 시스템내에서는 hollow type이 spiral type보다 일반세균의 검출이 높게 나타났다. 이는 spiral type의 경우 폐수에 의한 세척효과가 있기 때문인 것으로 생각되며, 특히 hollow type의 ultrafiltration 시스템에서 가장 먼저 일반세균이 발생

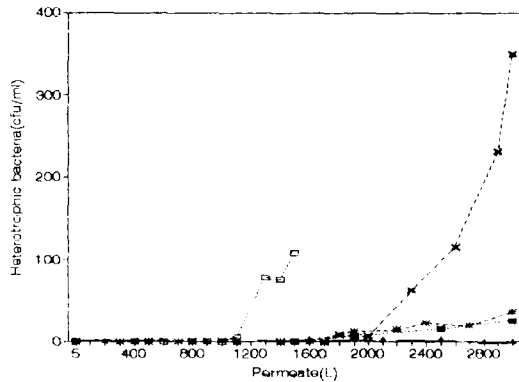


Fig. 9. Heterotrophic bacteria in permeates of membrane filtration systems :
 (■) sediment filter+carbon filter+UF membrane(spiral)
 (□) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow)
 (▲) sediment filter+carbon filter+Nano membrane
 (*) sediment filter+carbon filter+MF membrane(spiral)
 (×) sediment filter+carbon filter+UF membrane(hollow).

한 것은 membrane 제조공정의 기술수준과 관계가 있는 것으로 본다. 또한, nanofiltration 시스템의 경우는 통과수에서 일반세균이 검출되고 있지 않으므로 이 시스템에 의한 미생물의 제거에 대해서는 좀 더 연구가 필요할 것으로 생각된다.

IV. 결 론

본 연구에서는 전처리 필터로 쓰이는 침전필터와 카본필터를 나노여과막, 한외여과막 및 정밀여과막과 조합한 시스템을 만들었으며 수도수에 일반세균과 질산성 질소로 오염시킨 시험수를 조제하여 시스템을 통과시키면서 각종 오염물질에 대한 제거효율을 비교분석하였다.

1. 탁도 제거율은 nanofiltration, ultrafiltration 및 microfiltration 시스템에 의한 3가지 시스템 모두 80% 내외로 차이가 없었다.

2. 경도, 증발잔류물 및 총잔류염소의 제거율은 3가지 시스템 중 nanofiltration 시스템이 가장 우수하였으며 제거율은 각각 경도 80%, 증발잔류물 90% 및 총잔류염소 90% 이었다.

3. flow rate 변화는 nanofiltration, ultrafiltration 및 microfiltration 시스템중 nanofiltration 시스템이

가장 안정적이었다.

4. ultrafiltration과 microfiltration 시스템 각각의 hollow type과 spiral type을 비교해 볼때 폐수의 세척효과로 인해 spiral type이 보다 안정적이었다.

5. ultrafiltration 및 microfiltration 시스템 통과수의 pH는 7.0~7.5이나 nanofiltration 시스템 통과수의 pH는 6.2~7.0으로 낮았다.

참고문헌

- 1) 권승표: 먹는물과 건강, 한국막학회 산학협동심포지움, 5-26, 1996.
- 2) 조영하: 수질오염과 물의 올바른 이용, 물과 인간생활에 관한 제 11차, 1-11, 1995.
- 3) 노수홍: 분리막을 이용한 난분해성 특정산업폐수 처리기술개발, 환경부, 1995.
- 4) 안규홍: 중공사막을 사용하는 수처리방법 및 장치, 환경보전, 23-27, 1995.
- 5) 김정학: MF/UF 막을 이용한 음용수 처리현황 및 전망, 한국막학회 산학협동심포지움, 94-104, 1996.
- 6) 김권일: R/O 막을 이용한 먹는물 처리, 한국막학회 산학협동심포지움, 105-120, 1996.
- 7) 안규홍, 권지향: 막분리를 이용한 중수도 기술, 11(6), 32-37, 1993.
- 8) Adham, S. S., V. L. Snoeyink, M. M. Clark and J. L. Bersillon: Predicting and verifying organics removal by PAC in an ultrafiltration treatment, J. AWWA, 83(12), 81-91, 1991.
- 9) Carter, M. C., W. J. Weber Jr. and K. P. Olmstead: Effects of Background Dissolved Organic Matter on TCE Adsorption by GAC, J. AWWA., 81-91, 1992.
- 10) Gupta, G. S., G. Prasad, K. K. Panday and V. N. Singh: Removal of Chrome Dye Aqueous Solution by Fly Ash, Water, Air and Soil Pollution, 37, 13-24, 1988.
- 11) 정문호: 역삼투막을 통과한 지리수의 수질 특성에 따른 특정 질화의 발생 유무에 관한 연구, 1-20, 1996.
- 12) 조대식: 정수처리공정의 변화에 따른 잔류염소와 일반세균의 제거에 관한 연구, 서울대학교 보건대학원 논문, 1997.
- 13) Talor, J. S., A. Mulford, S. J. Duranceau and W. M. Barrent: Cost and performance of a membrane pilot plant, J. AWWA, 81(11), 52-60, 1989.
- 14) Jacangelo, K. G., J. M. Lainem, K. E. Carans, E. W. Cumings, E. and J. Malleval: Low-Pressure membrane filtration for removing giardia and microbial indications, J. AWWA, 83(9), 97-106, 1991.
- 15) 안규홍, 송성근, 박준홍, 권지향, 김형수: 분말활성탄 첨가가 한외 여과막 투과성능에 미치는 영향, J. KSWQ, 129-134, 1995.