멤브레인(Membrane Journal)
Vol.10, No.4, December, 2000, 213-219

조합형 분리막공정을 이용한 침출수 처리에 관한 연구

강 문 선 · 최 광 호 · 손 성 섭*

코오롱건설 기술연구소, 위덕대학교*

(2000년 11월 19일 접수, 2000년 12월 20일 채택)

A Study on the Treatment of Leachate Using Combined Membrane Process

Moon-Sun Kang, Kwang-Ho Choi, and Sung-Sup Son*

Kolon Eng. & Const. Co., Ltd., Uiduk University*

(Received November 19, 2000, Accepted December 20, 2000)

요 약 : 고령화매립지 침출수처리에서 발생되는 난분해성물질의 제거 및 탄소원부족에 의한 탈질의 제한문제를 해결하고자 분리막침지형생물반응기(SMBR)와 역삼투(R/O)공정의 조합공정을 침출수처리에 적용하였다. 먼저 용인시에서 SMBR Pilot테스트를 약 100일 간 수행하였으며 여기서 SMBR공정에 대한 신뢰성은 확인되었으나 (NH_3-N제거율 : 90%) 난분해성물질의 제거와 질산화의 한계는 있었다. 실플랜트규모에서는 조합공정(SMBR + R/O)의 성능을 관찰하였는데 방류수의 COD_{Cr}이 3 mg/L이하(98%), TN이 50 mg/L이하(94%)의 우수한 처리효율을 보였다.

Abstract : In order to resolve the problem of aged landfill leachate treatment, limitation in removal of non-biodegradable materials and denitrification caused by carbon source shortage, we applied combined process consisted of SMBR and RO to leachate treatment. We performed SMBR pilot plant tests on Yongin City for a period of about 100days, demonstrated the performance of the SMBR process (NH_3-N removal efficiency: 90%). But there was also limitation to removal of non-biodegradable materials and denitrification. In full-scale plant we observed the performance of combined process (SMBR + R/O) in order to confirm the expected treatment efficiencies. Their results were approximately 98%, 94% of treatment efficiency in case of COD_{Cr}(<3 mg/L) and TN(<50 mg/L) respectively and the results of treatment were stable.

1. 서 론

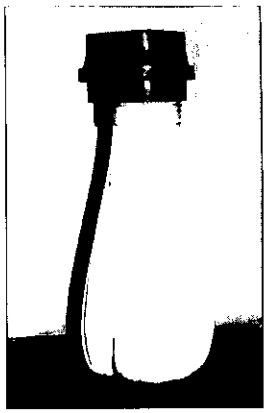
침출수라 함은 매립지로 침투한 우수가 불균질한 쓰레기층을 통과하면서 각종 오염물질을 용출시키고 매립지 내부의 쓰레기분해로 이 현상이 가속화되면서 발생되는 폐수로, 보통 강우량의 20~30%가 발생된다. 또한 침출수는 매립폐기물의 종류, 유기물의 함량, 폐기물층의 수분함량, 매립 후 경과년수 등의 인자들에 의해 다양한 성상을 나타낸다.

유기물 농도는 매립초기에 매우 높고 시간이 경과하면서 점차 낮아지나, 난분해성 유기물의 구성비는 오히려 증가하여[1] 생물학적 처리가 어려워지고 암모니아성질소 또한 점차 증가되어 매립종료 후에도 높게 유지된다[2]. 그러므로 매립초기에는 유기물의 제거가 주요 처리목적인 반면 매립후 기간이 경과되면서 질소제거 및 색도제거가 주 목적이 된다[3]. 하지만 이 외에도 계절별 침출수 발생량 및 수질의 변동이 매우 커서 처리가 까다로운 특성을 가지고 있다.

이러한 침출수를 처리하기 위한 공정으로 국내에 설치된 대표적인 공정들은 4가지 정도로 요약될 수 있다[4]. 첫 번째로는 생물학적 처리 + 약품응집침전 + 활성탄 흡착법으로 구성된 공정으로 응집침전의 효과

Table 1. Characteristics of M/F Module

Type		Hollow fiber
Filtration method		Suction
Backwashing		Water
Pore Size		0.1 ㎛
Operating Condition	Suction pressure pH(Normal) pH(Cleaning)	< 0.5 kgf/㎠ 2~10 1~2
Module	Hollow fiber	I.D : 0.7 ㎜ O.D : 1.0 ㎜
	Area	5 ㎡
Material	Hollow fiber	Polysulfone



<분리막 모듈 외관>

에 한계가 있고 약품 및 활성탄 등의 소모량이 많아 유지관리비가 다량 소요되는 단점이 있으며 두 번째로는 약품응집침전 + 생물학적 처리 + 회전원판법 or 접촉산화법 + 활성탄 흡착법 + 소독으로 매립년수가 증가함에 따라 생물학적 처리효율의 저하로 전체 공정효율이 저하되는 단점이 있으며 세 번째로는 약품응집침전 + 생물7학적 처리 + Fenton산화법 + 활성탄 흡착법으로 이 공정의 경우에도 매립년수가 증가함에 따라 Fenton처리에의 의존성이 커지게 되어 이로 인한 운영비 상승과 함께 슬러지발생량 증가의 문제가 있다. 마지막 네 번째로는 약품응집침전 + 이송관로 + 하수종말처리장으로 이루어진 비교적 간단한 공정으로 상기의 세 공정들 모두 질소제거에 어려움이 있으며 안정적이 수질유지가 비교적 어렵고 운영비가 많이 소용되어 유지관리성 및 경제성을 고려하여 환경기초시설과 연계된 네 번째 공정으로 처리하는 소규모 처리장이 많다.

이와같이 침출수는 일반적인 폐수처리공정으로 처리하는데는 처리효율과 비용면에서 대단히 까다로운 처리대상이다. 이러한 침출수를 분리막으로 처리하고자 하는 연구는 1980년대 중반부터 본격적으로 실시되었으며, 최근 막재료의 급속한 발전으로 매우 적은 분자량을 갖는 물질과 50,000 mg/L의 TDS까지도 분리 가능하게 되었다. 그러나 분자량이 작은 산 생성단계를 지난 물질 즉, humic 또는 fulvic 등의 산과 페놀 등은 분리가 안되므로 생물학적처리의 후처리로 사용하는 것이 효과적이다[5,6].

따라서 본 연구에서는 최근 관심이 집중되고 있는 분리막 침지형 생물반응기공정(SMBR:Submerged Membrane Bioreactor)을 역삼투(R/O:Reverse Osmosis) 공정의 전처리로 이용하여 난분해성물질이 많이 함유된 고령화 매립지의 침출수 처리에 적용하였다.

2. 실험방법

실험은 크게 두 개로 나뉘어지는데 PILOT규모에서 분리막침지형생물반응기(SMBR)를 이용하여 R/O전처리로의 적합성을 시행한 후 조합공정(SMBR + R/O)을 침출수처리장에 적용하였다.

2.1. 실험장치

2.1.1. 분리막모듈

PILOT실험과 조합공정의 SMBR공정에서 사용된 분리막 모듈은 폴리설폰(Polysulfone) 재질의 중공사형태로 막면적은 모듈당 5 m^2이고 공칭공경 (Pore Size) 0.1 ㎛인 정밀여과막을 사용하였다. 조합공정에서 이용된 R/O막은 폴리아마이드(Polyamide)재질의 나권형 모듈로 Dia. 4"인 Filmtec社(미국)제품을 사용하였다.

2.1.2. PILOT장치

침지형 분리막공정의 R/O전처리로써의 타당성을 검토하기 위하여 Yongin시에 위치한 매립장침출수 처리장에 1~5톤/일 규모의 SMBR PILOT를 설치운영하였다.

2.1.3. 조합공정

PILOT실험에서 얻은 설계 및 운전인자를 적용하여 Y군 매립장 침출수처리에 SMBR과 R/O로 이루어진 50톤/일 처리규모의 조합공정을 적용하였으며 간략한 공정구성은 다음과 같다

유입되는 침출수는 협잡물 제거를 위해 전처리로

Table 2. Specification of PILOT

Basin	
Anoxic basin	5 m^3
Aerobic basin	10 m^3
Membrane	
Material	Polysulfone
Type	Hollow fiber
Pore size	0.1 ㎛
Surface area	5 m^2
Operation conditions	
MLSS	4,000~9,000 mg/L
HRT	7~14 days
SRT	30~300 days

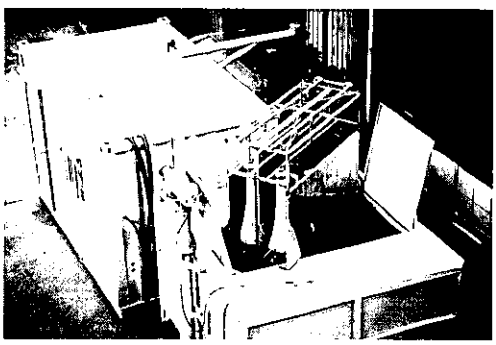


Fig. 1. Photograph of PILOT

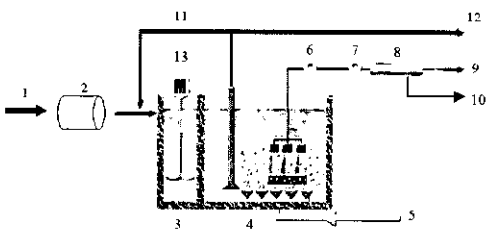


Fig. 2. Schematics of combined process
1. Leachate, 2. Screening
3. Anoxic basin, 4. Aerobic basin
5. Air, 6: Suction pump
7. H/P Pump, 8. R/O Block
9. Permeate, 10. Brine
11. Internal recycle, 12. Sludge wastage
13. Mixer

설치된 드럼스크린(0.3 mm)을 거친 후 무산소조로 유입되는데 여기서 유입폐수내 유기탄소를 이용하여 내부반송에 포함된 질산의 탈질이 이루어지며 폐수에 함유된 암모니아성 질소의 질산화는 포기조에서 일어난다. 포기조에서는 유기물의 산화, 암모니아성 질소의 질산화와 함께 일반적인 침전에 의한 고액분리가 아닌 조내에 설치된 중공사막에 의한 미생물과 생물학적 처리수의 고액분리가 이루어지며 중공사막을 투과한 여과수내의 잔존 유기물, 질소, 색도 등은 R/O 공정에서 최종적으로 제거된 후 처리수는 방류 또는 재활용, 농축수는 매립지로 재순환/살포하게 된다.

Fig 3. Photograph of yongin-gun leachate treatment facility
Left : SMBR Facility, Right : R/O Facility

조합공정의 경우는 실험목적이 아닌 실제 처리장에 설치된 경우로 특정실험을 위한 조건의 인위적인 변화는 없었으며 유입수 50 m^3/day를 처리하는 것을 목적으로 하여 SMBR의 경우 흡인압 -0.2 kg/㎠이하에서 플럭스를 10LMH정도 유지하였고 R/O의 경우 운전압력 30 kg/cm^2에서 회수율 75%(처리수 : 37.5 m^3/day, 농축수 12.5 m^3/day)로 운전하였다. 실험기간 중 SMBR의 경우 약품세정을 하지않았으며 R/O막의 세정은 시운전 초기 조작미숙으로 인한 급격한 압력상승으로 1회 시행하였고 그 후 2~3개월에 한번정도 정기적인 세정을 하였다.

2.2. 실험방법

PILOT실험은 경기도 Yongin시 침출수처리장의 유량조정조에서 수중펌프를 이용하여 공급된 원수를 협잡물 제거를 위하여 0.3 mm 간극의 드럼스크린을 거친 후 무산소조로 유입시키고 조내의 분리막을 투과한 처리수는 침출수처리장의 응집침전조로 반송하였다. 슬러지는 필요한 경우 폭기조에서 침출수처리장 농축조로 인발하였다.

조합공정실험은 충남 Yongin군 매립장 침출수처리에 적용하여 시운전 기간 중 SMBR공정의 R/O전처리성능과 전체공정의 유기물, 질소, 부유물질 등의 처리성능을 관찰하였다.

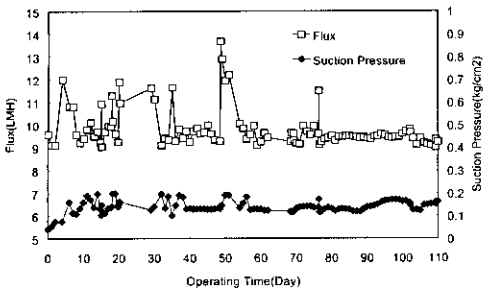


Fig. 4. The variation of flux and suction pressure

2.3. 분석방법

수질분석 항목은 BOD, COD_{Cr}, MLSS, SS, TN, NH_3-N, NO_3-N로 COD_{Cr}, TN, NH_3-N, NO_3-N의 분석은 Hach(미국)의 표준시약을 이용하여 분석하였으며 그 외의 항목은 수질오염공정시험법과 Standard Method에 준하여 분석하였다[7,8].

3. 결과 및 고찰

3.1. PILOT실험

3.1.1. 투과플럭스

실험실에서 실시한 기초실험에서 선정된 최적 플럭스인 10LMH를 유지하기 위해 흡입압 상승시 역세척을 실시하였다. PILOT 운전기간은 100일 정도였는데 초기운전기간에는 -0.1 kg_f/cm^2이하의 낮은 흡입압에서도 10 LMH이상의 플럭스를 나타내었으며 운전기간 동안 -0.2 kg_f/cm^2이하에서 10 LMH 유지가 가능하였다.

3.1.2. 온도의 영향

온도에 의한 유기물제거효율의 변화를 COD_{Cr}으로 관찰하였다. 전반적으로 7~30℃ 범위에서 온도변화에 큰 영향없이 80% 이상의 처리효율을 나타내었다. Fig. 5를 살펴보면 25℃ 부근에서 처리효율이 나빠지는 것으로 왜곡되어 해석될 수 있으나 이는 하절기 침출수처리장의 보수공사에 의한 원수유입 중단 및 원수유입농도의 급격한 하락으로 인한 원수대비 처리수 수질로 나타내어지는 유기물 제거율의 저하로 판단된다.

3.1.3. 유기물제거

유기물제거 성능은 COD_{Cr}을 이용하여 판단하였는데 유입수의 농도변화가 1,000~3,000 mg/L로 비교적 컸으나 평균처리효율은 80% 정도로 나타났다. 이는 침지형 분리막에 의하여 폭기조에서 MLSS를 4,000~9,000 mg/L로 고농도를 유지시킴으로써 부하변동에

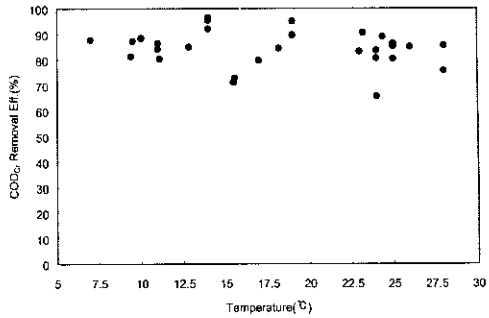


Fig. 5. Effect of the temperature on CODCr removal

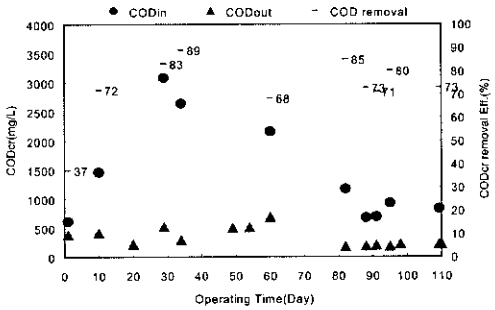


Fig. 6. Variation of CODcr treatibility

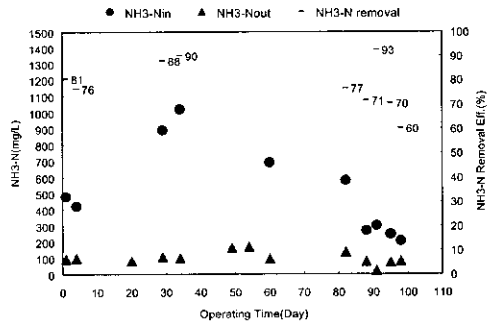


Fig. 7. Variation of NH_3-N treatibility

관계없이 비교적 안정적인 처리효율을 보인 것으로 판단된다. 그러나 BOD의 경우 평균유입농도가 400 mg/L이고 유출수는 5 mg/L이하로 98% 이상 제거가 가능하였던 것과 비교하면 난분해성물질의 제거에는 한계가 있었다.

3.1.4. 질소제거

침출수의 질산화는 침출수의 암모니아성 질소의 농도가 높고 질산화미생물은 온도, 암모니아성 질소의 농도 등의 외부요인에 매우 민감하고 성장이 느려 매우 어려우며 특히 질산화를 개시하는 시점의 운전이

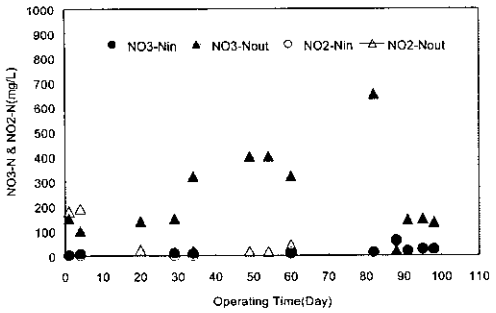


Fig. 8. Variation of NO_3-N concentration

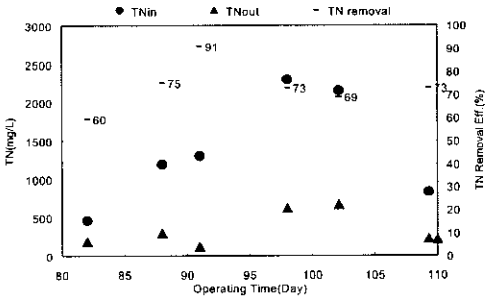


Fig. 9. Variation of TN treatibility

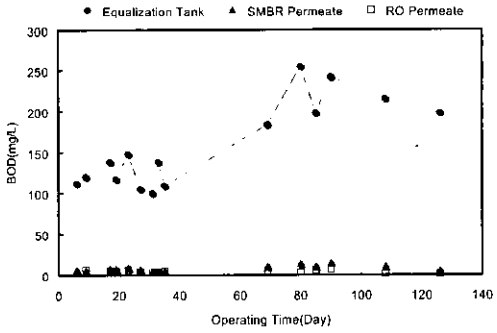


Fig. 10. Variation of BOD concentration

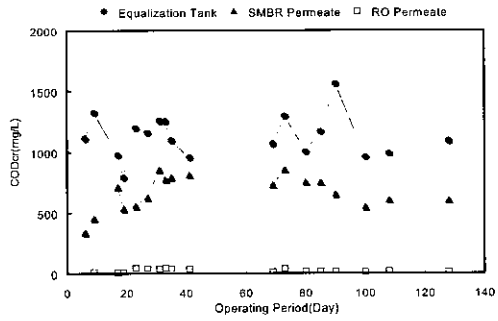


Fig. 11. Variation of CODCr concentration

매우 까다롭다. 본 연구에서는 암모니아성 질소의 기질저해(Substrate Inhibition)를 방지하기 위해 폭기조 내의 암모니아성질소 농도를 300 mg/L 이하로 낮춘 후 질소부하를 0.025 $kgNH_3$-N/kgMLSS · day로 조정하여 운전한 결과 90%에 가까운 질산화가 가능하였다. 운전중반기 이후 유입수의 질소농도가 급격하게 감소한 것은 매립지 침출수처리장의 보수공사로 인한 유입수의 간헐적인 공급중단 때문이었다.

Fig 8에서 알 수 있듯이 운전경과 20일이 경과된 시점부터 질산화가 활발해지면서 NO_3-N의 생성량이 증가되었다. 그러나 생물학적 탈질에는 한계가 있어 총질소제거율은 70% 근방으로 외부탄소원의 첨가나 후처리(R/O)공정이 필요하다고 판단되었다(Fig 9).

3.2. 조합공정 현장적용

상기 PILOT실험결과에 의하면 고령화 매립지 침출수의 난분해성물질 제거와 질소제거를 위해서는 후단에 R/O공정을 적용하는 것이 타당하다고 판단되어 조합공정(SMBR + R/O)을 침출수처리에 적용하였다.

3.2.1. 유기물 및 SS제거

Y군 매립장의 경우 낮은 유기물 농도에 비해 질소농도가 높은 전형적인 고령화 매립지로 유기물 제거에 있어 BOD는 분리막 침지형 생물반응기공정만으로도 99% 이상 제거되었으나 COD_{Cr}의 경우 분리막 침지형 생물반응기공정만으로는 50% 이하이고 후단공정인 R/O 처리 후 98%로 난분해성물질이 많이 함유되어 있음을 알 수 있었다.

동절기 기간동안 매립지내에 저류되어 있던 침출수가 유입되면서 초기에는 비교적 높은 1000 mg/L 근방의 높은 SS성분이 SMBR조로 유입되었으나 SMBR 공정을 거치면서 유입수의 성상에 관계없이 거의 모든 SS들이 제거되어 후단의 R/O 공정에 SS 부하를 줄일 수 있었고 R/O 처리수의 경우 SS가 99% 이상 제거되었다

3.2.2. 질소제거

질소제거의 경우 질산화균에 의한 암모니아성 질소의 질산화, 탈질균에 의한 질산성질소의 탈질을 거쳐 생물학적인 질소제거가 이루어진다. 질산화균의 경우 증식속도가 매우 느린 관계로 질산화균이 활성화되는데 필요한 초기안정화 기간이 일반적으로 2~3개월 정도 소요되며 질산화균에 의해 산화된 질산성 질소를 제거하기 위해서는 유기물(BOD)성분이 소요되는데 Y군의 경우 질소성분에 비해 유기물의 농도가 매

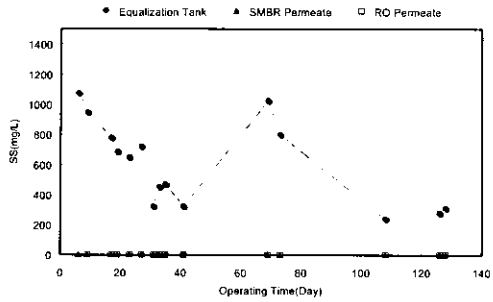


Fig. 12. Variation of SS concentration

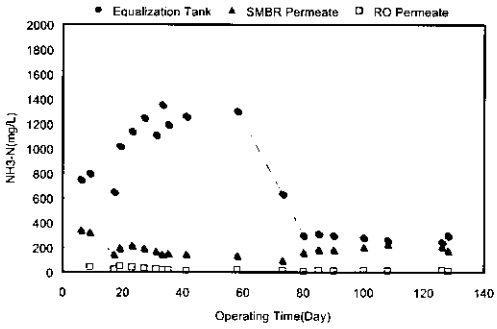


Fig. 13. Variation of NH_3-N concentration

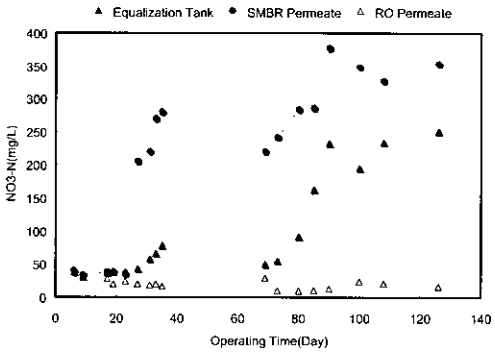


Fig. 14. Variation of NO3-N concentration

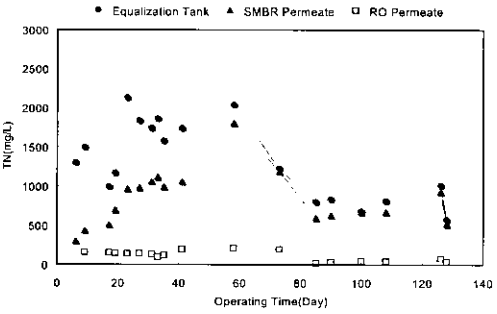


Fig. 15. Variation of TN concentration

우 낮은 전형적인 고령화 매립지침출수의 성상을 나타내므로 외부탄소원 첨가에 의한 생물학적 탈질보다는 질산화 효율을 높여 NH_3-N형태에서 NO_3-N로 R/O에서 배제가 용이한 형태로 변환시킨 후 후단의 R/O 공정에서 탈질하였다. Fig 13에서 NH_3-N농도는 800~1,200 mg/L 근방으로 초기 질산화균의 질산화를 저해할 수 있는 높은 농도로 유입되었다. 그런 이유로 고농도 질소에 의한 질산화 저해를 해소하기 위하여 유입부하를 낮게 유지하며 운전한 결과 운전 중반이후에는 20 mg/L 이하(96% 제거)로 처리할 수 있었다.

Fig 14에 나타난 바와같이 운전개시 20일 경과시점에서부터 질산화가 활발하게 일어났으며 중반이후 유입질소농도가 낮아지면서 질산화는 더욱 활발하게 진행되어 방류수내 질소농도는 더욱 낮게 유지되어 50 mg/L 이하(94% 제거)로 처리가능 하였다(Fig 15).

4. 결 론

기존 생물학적 처리공정으로는 처리에 한계가 있는 침출수처리에 외부탄소원의 첨가없이유기물과 질소의 안정적인 처리방안으로 분리막침지형생물반응기와 역삼투공정을 적용한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) SMBR의 R/O 전처리공정으로서의 적합성 파악을 위해 경기도 용인시 생활쓰레기매립지 침출수처리장에 1~5톤/일 규모의 PILOT를 설치하여 처리효율과 분리막의 운전특성을 고찰한 결과 유기물의 제거는 BOD 제거율 95% 이상, COD_{Cr} 제거율 70~90%으로 안정적인 처리가 가능하였으나 난분해성물질의 제거에는 한계가 있었으며 질소제거에 있어서는 TN 제거 70%, NH3-N 제거 90%로 탈질을 위한 유기물의 첨가나 후단공정 추가시 질소의 고도처리가 가능할 것으로 예상되었다. 운전압력 0.1~0.2 kgf/cm2에서 9~10 LMH의 유량으로 운전이 가능하였다

2) 조합공정의 처리효율 파악을 위해 충남 Y군 생활쓰레기 매립장 침출수의 고도처리에 SMBR공정 + R/O 공정을 도입하여 운전한 결과 유기물 제거면에서는 방류수의 BOD가 5 mg/L 이하(99%), COD_{Cr}이 30 mg/L 이하(98%)로 우수하였고 외부탄소원 첨가에 의한 탈질이 아닌 생물학적 질산화 극대화로 질산성질소를 후단 R/O 공정에서 제거한 결과 중반이후 방류수의 TN은 50 mg/L(94%), NH3-N은 20 mg/L 이하(96%)였다.

3) 고령화매립지 침출수처리는 유기물내 난분해성 물질의 비율증가로 인한 처리효율의 저하와 유기물부

족(BOD/TN비 저하)으로 인한 탈질의 어려움이라는 문제를 가지고 있다. 이러한 문제를 해결하기 위한 약품투입량 증가와 외부탄소원의 첨가는 필연적인 운전비용의 상승을 가져온다. 그래서 본 연구에서는 외부탄소원의 추가와 약품투입량의 증가없이 상기의 문제의 해결을 위해 (SMBR + R/O)공정을 침출수처리에 적용하여 안정적인 처리효율을 얻을 수 있었다.

참 고 문 헌

1. Syed R. Qasim, Walter Chiang, "Sanitary Landfill Leachate", Technomic, Pennsylvania, USA (1994)
2. 황규대, 한국폐기물학회지, **10**(3), 443~462 (1993)
3. 환경관리연구소, 첨단환경기술, **11**, 5 (1999)
4. 환경부, 생활폐기물매립시설 침출수처리 개선대책, (1999)
5. Anagiotou, C., Papadopoulous, A., *J. Envir. Sci. Health*, **28**(1), 21~35 (1993)
6. Loizidou, M., Papadopoulous, A., and Kapetanious, E. G., *J. Envir. Sci. Health*, **28**(2), 385~394 (1993)
7. 환경부, 수질오염공정시험방법 (1999)
8. APHA, "Standard Methods for the examination of water and wastewater", American Public Health Association, **20**, Washington, D.C., USA (1998)