# 활성슬러지 수용액 내 침지식 중공사막의 역세척 및 사인파형 연속투과 운전방식에 따른 막간차압

정도인·정승희·이 솔·정건용<sup>†</sup>

서울과학기술대학교 화공생명공학과 (2015년 12월 9일 접수, 2015년 12월 19일 수정, 2015년 12월 22일 채택)

Transmembrane Pressures with Respect to Backwashing and Sinusoidal Flux Continuous Operation Modes for the Submerged Hollow Fiber Membrane in the Activated Sludge Solution

#### Doin Jeong, Seung Hee Jung, Sohl Lee, and Kun Yong Chung<sup>†</sup>

Department of Chemical and Biomolecular Engineering, Seoul National University of Science and Technology, Seoul 01811, Korea (Received December 9, 2015, Revised December 19, 2015, Accepted December 22, 2015)

요 약: 본 연구에서는 사인파형 투과유속 운전방식을 중공사형 분리막에 적용하여 운전시간에 따른 막간차압(TMP)을 측 정하였다. 유효 막면적이 100 cm<sup>2</sup>이고 공칭 세공크기가 0.45 μm인 중공사막 모듈을 MLSS 5,000 mg/L 활성슬러지 용액으로 투과 실험하였다. 연속적인 단계별 투과유속 변화법으로 임계 투과유속을 측정하였으며 그 값은 26.6 L/m<sup>2</sup> · hr이었다. 여과 운전/정지이완(FR), 정지이완시 역세척(FR/BW) 및 사인파형 투과유속 연속운전(SFCO) 방식에 따른 TMP를 측정하였다. 임 계 투과유속보다 낮은 15, 20 및 25 L/m<sup>2</sup> · hr에서는 SFCO 운전방식이 FR 및 FR/BW에 비하여 효과적이었다. 그러나 임계 투과유속 이상에서는 FR/BW 운전방식이 SFCO보다 효과적으로 막오염을 제어할 수 있음을 확인하였다.

Abstract: In this study transmembrane pressure (TMP) was measured with respect to operational time by applying the sinusoidal flux continuous operation (SFCO) for the hollow fiber membrane. The hollow fiber module which has 100 cm<sup>2</sup> of effective area and 0.45  $\mu$ m nominal pore size was submerged in the activated sludge solution of MLSS 5,000 mg/L. The critical permeate flux was measured as 26.6 L/m<sup>2</sup> · hr by the method of continuous flux step change. TMPs of the filtration/relaxation (FR), FR with backwashing (FR/BW) and SFCO modes were measured. The SFCO mode was more effective than FR and FR/BW modes below the critical permeate flux such as 15, 20 and 25 L/m<sup>2</sup> · hr. However, the FR/BW was confirmed as more effectively fouling controlled mode than SFCO mode above the critical permeate flux.

Keywords: MBR, TMP, hollow fiber membrane, critical flux, sinusoidal permeate flux, backwashing

분리막 생물반응기(membrane bioreactor, MBR)를 이 용한 하·폐수 처리공정은 기존의 활성슬러지 공법과 비교하여 매우 효율적이므로 전 세계적으로 활발히 확 대 응용되고 있다. 분리막 특성상 입자성 물질이나 박 테리아와 바이러스 등을 매우 효과적으로 분리할 수 있 으며 또한 활성슬러지 반응기 내에 MLSS 농도를 높게 유지할 수 있으므로 생물학적 측면에서도 매우 긍정적이 다. 하지만, 운전시간이 경과함에 따라서 불가피하게 발 생하는 분리막의 오염으로 인하여 처리수량이 감소하거 나 이를 극복하기 위하여 분리막간 차압(transmembrane pressure, TMP)을 증가시키는 공정상의 어려움이 있다. 따라서 MBR 공정의 경제성은 분리막 오염을 최소화시 킬 수 있는 시스템의 구성과 운전조건 최적화에 매우 크게 의존한다[1,2]. 이를 극복하기 위하여 물리적 또는

<sup>1.</sup> 서 론

<sup>&</sup>lt;sup>†</sup>Corresponding author(e-mail: kychung@seoultech.ac.kr, http://orcid.org/0000-0002-5182-0012)

화학적 세척이 용이하고 단위부피당 투과유속을 높일 수 있는 고집적 모듈이 개발되고 있으나 현재까지는 침 지식 형태의 평막과 중공사형 모듈이 대세를 이루고 있 다. MBR 공정에서는 분리막 오염을 저감시키는 방안 으로는 간헐적 흡입, 역세척[3], 간헐적 산기[4,5], 응집 제 주입[6-8] 등의 다양한 기술이 도입되고 있다[9]. 또 한 간헐적 흡입 또는 역세척의 조건이나 주기를 조절하 여 최적의 운전조건을 제시하거나 역세척수 사용에 따 른 투과수의 감소 등을 고려하여 효율적인 세척방법을 개발하고 있다[1]. 최근에는 생물학적인 접근방식으로 하·폐수 내에 미생물과 미생물이 통신하는 감각 현상 을 일으키는 quorum sensing 물질을 인위적으로 차단하 여 분리막 오염을 저감시키는 기술이 성공적으로 개발 되고 있다[10]. 이 밖에 침지형 평막 분리막의 투과성능 향상과 막오염 저하를 위하여 기존의 MBR 제어방식인 여과운전/정지이완(filtration/relaxation, FR)을 반복하는 방식에서 처리수를 연속적으로 생산할 수 있는 새로운 운전기법인 사인파형 투과유속 연속운전(sinusoidal flux continuous operation, SFCO)을 제안하고 이에 따른 분 리 투과특성이 보고된 바 있다[11,12].

본 연구에서는 실험적 규모의 MBR 시스템에서 FR 과 기존의 FR 방식에 역세척을 추가한 FR/BW 그리고 SFCO의 3가지 운전방식으로 침지식 정밀여과용 중공 사막으로 활성슬러지를 투과시키며 막 오염 특성을 비 교하였다. 각각의 운전방식에서 임계 투과유속 이하 또 는 이상의 투과유속에 따른 TMP를 측정하여 운전 범 위에 따른 투과 특성과 성능을 평가하고자 하였다.

# 2. 실험 장치 및 실험 방법

#### 2.1. 분리막 모듈

투과실험에 사용한 정밀여과용 중공사막은 폴리설폰 (polysulfone) 재질로 공칭 세공크기가 0.45 μm, 길이 400 mm, 외경 1.6 mm, 내경 0.9 mm의 4가닥으로 구 성되어 있으며 유효 막면적은 약 100 cm<sup>2</sup>이었다. 막 모 둘은 중공사막의 양끝을 접어 처리수가 모일 수 있도록 3/8 inch PVC 튜브 내에 에폭시 접착제로 밀봉하여 U 자 형태로 제작하였다.

## 2.2. 활성슬러지의 특성 및 수질 측정 방법

활성슬러지는 경기도 P 하수처리장의 반송 슬러지를 사용하였으며 실험에 적합하도록 별도의 생물 반응조

Variables	Concentrations		
COD <sub>tank</sub>	350~400 mg/L		
COD <sub>permeate</sub>	15~25 mg/L		
TOC <sub>tank</sub>	927.7 mg/L		
TOC <sub>permeate</sub>	3.2 mg/L		
DO	2~4 mg/L		
ORP	150~250 mV		
pH	7~8		
Temperature	$25 \pm 1^{\circ}C$		
MLSS	5,000 mg/L (± 5%)		

Table 1. Water Quality for the Activated Sludge Solution

를 설치하여 주기적으로 슬러지를 관리하였다. 활성슬 러지와 미생물 성장에 필요한 인공폐수를 주입하였으 며 미생물의 생장을 조절하기 위하여 종균제를 주입하 였다. 활성슬러지의 용존산소(Dissolved Oxygen; DO), pH, ORP (Oxidation Reduction Potentia), 온도, MLSS (Mixed Liquor Suspended Solid) 농도를 측정하였다. 화 학적 산소요구량(Chemical Oxygen Demand; COD)은 해 당 범위의 수질 분석키트(HS-COD-MR, HS-COD-LR)를 이용하여 150°C에서 2시간 동안 전 처리한 후 UV Spectrophotometer로 분석하였다. 고온산화방식 TOC (Total Organic Carbon) 측정기기(Vario TOC Select, Elementar사)를 이용하여 TOC를 측정하였다. TOC 측 정을 위한 전처리 과정으로 200 mL의 시료를 채취하여 초음파 파쇄기(JY92-IIN, Scientz사)로 파쇄한 후, 체로 여과시켜 200 µm보다 작은 입자를 함유하는 시료를 사 용하였다. 실험에 사용한 활성슬러지의 수질은 Table 1 에서와 같이 MLSS 5,000 mg/L로 유지하였다.

#### 2.3. 실험 장치

투과 실험에 사용한 실험장치의 개략적인 흐름도를 Fig. 1에 나타내었다. 20 L 크기의 생물 반응조(1) 내에 중공사형 분리막 모듈(2)을 침지시키고 교반기(3)를 사 용하여 활성슬러지 용액을 균일하게 하였으며 항온수 조(4)에서 가열된 물을 공급하여 반응조의 온도를 일정 하게 유지하였다. 중공사형 분리막 모듈을 활성슬러지 내에 수직 방향으로 안정하게 고정시키기 위하여 U자 형 하부에 세라믹 재질의 구를 매달아 운전하였다. 또 한 동일한 운전 조건하에서 F/R 및 SFCO 운전방식에 따른 투과특성을 측정하기 위하여 2개의 중공사형 모듈 을 침지시키고 배관 역시 독립적으로 설치하였다. 각각



(1) MBR Reactor(2) Hollow fiber Module (3) Magnetic Stirrer(4) Constant Temperature Circulator(5) Suction Pump(6) Pressure Gauge(7) Backwashing Pump(8) Distillated water(9) Computer

Fig. 1. Schematic flow diagram of the submerged hollow fiber membrane bioreactor system.



Fig. 2. Flux step control for SFCO and FR modes (a) permeation volume and (b) permeation flux with respect to time for 33  $L/m^2 \cdot hr$ .

의 분리막 모듈에 흡입펌프((5), Jeniewell JP-100)를 독 립적으로 연결하여 FR 및 SFCO 방식으로 투과액을 각 각 생산한 후 MLSS를 일정하게 유지하기 위하여 투과 액을 생물 반응조 내 반송하였다. 흡입압력 또는 막간 차압(TMP)은 압력계((6), Sensys PTDC-100 RCIA)로 각각 측정하였고 UTP 케이블로 연결된 컴퓨터(8)에 실 시간으로 저장되었다. 또한 FR 운전방식의 경우 역세 척이 가능하도록 추가적인 펌프(7)를 설치하였다.

## 2.4. 실험 방법

#### 2.4.1. 투과 실험

본 실험에서는 2개의 동일한 중공사형 모듈을 MLSS 5,000 mg/L인 활성슬러지 생물 반응조 내에 침지시키고 SFCO와 FR 또는 SFCO와 FR/BW 운전방식으로 동시 에 실험하여 투과시간에 따른 TMP를 비교하였다. 운전 주기는 12분이며 FR 운전방식의 경우 10분 여과 및 2분 휴지 상태로 운전하였다. SFCO 운전방식은 Labview 프 로그램을 이용해 1분 단위로 흡입펌프의 RPM을 변화

한 FR/BW의 운전은 10분간 여과 운전하고 펌프가 2분 간 정지할 때 흡입 펌프에서 관을 분리한 후 수동으로 역세척 펌프에 연결하여 10 mL/min 유량으로 1분 동안 역세척을 실시하였다. 역세척 용수로는 별도의 순수를 사용한 후 배출하였으며, 활성슬러지 생물 반응조의 화 학적 특성 변화를 고려하여 화학 약품 역세척은 실시하 지 않았다. 이상에서와 같이 매 12분 주기 후에 SFCO, FR 그리고 FR/BW 운전방식의 투과량이 동일하도록 SFCO 방식의 사인파형을 조절하였으며 투과유속을 15 에서 33 L/m<sup>2</sup>·hr까지 증가시키면서 투과액의 부피를 측정하였다. 투과시간에 따른 FR 및 SFCO 운전방식의 투과액은 Fig. 2(a)에 나타난 바와 같이 매 12분의 제3 주기까지 같아짐을 확인할 수 있었으며 운전시간에 따 른 투과유속은 Fig. 2(b)와 같이 매 1분 단위로 조절하 였다. 각각의 운전방식에 따른 TMP 비교를 위하여 먼 저 SFCO과 FR 운전방식으로 동시에 투과 실험을 수행 한 후 분리막을 세척하고 SFCO 및 FR/BW 운전방식으

시켜 12분 동안 연속적으로 투과유량을 조절하였다. 또



Fig. 3. Continuous flux step method for the activated sludge (a) transmembrane pressure and permeate flux, and (b) fouling rate divided by the flux versus the flux in order to determine the critical flux.



**Fig. 4.** Transmembrane pressures of the FR, FR/BW and SFCO operational modes for (a) 15  $L/m^2 \cdot hr$ , (b) 20  $L/m^2 \cdot hr$ , (c) 25  $L/m^2 \cdot hr$ , (d) 30  $L/m^2 \cdot hr$  and (e) 33  $L/m^2 \cdot hr$ .

로 동일 조건의 투과실험을 실시하였다. 분리막의 비가 역적 오염 및 파손을 막기 위해 TMP가 25 kPa에 도달 하면 운전을 중지하였으며 12분 주기로 최대 10회까지 반복하여 투과 실험을 실시하였다.

## 2.4.2. 임계 투과유속 실험

본 연구에서 사용한 중공사형 분리막의 임계 투과유 속(critical permeation flux)을 측정하기 위하여 활성슬러 지 저장조 내에 중공사형 분리막 모듈을 침지시키고 투 과유량을 10부터 40 L/m<sup>2</sup> · hr까지 15분 단위로 3 L/m<sup>2</sup> · hr씩 상승시키고 40 L/m<sup>2</sup> · hr 이후에는 10 L/m<sup>2</sup> · hr 까지 감소시키면서 연속적으로 TMP를 측정하였다[13].

#### 2.4.3. 분리막 세정

매 투과 실험을 마친 후에는 분리막 모듈을 배관에서 분리하여 순수에 침지시키고 흔들어서 분리막에 붙어 있는 슬러지 입자를 물리적으로 제거하였다. 그리고 순 수에 침지시켜 TMP를 확인하고 초기 순수에서 측정한

Flux $(L/m^2 \cdot hr)$	SFCO (kPa)	FR (kPa)	FR/BW (kPa)	$\frac{\left[\frac{FR - FR/BW}{FR}\right]}{(\%)}$	$ \left[ \frac{FR - SFCO}{FR} \right] $ (%)	$ \left[ \frac{FR/BW - SFCO}{FR/BW} \right] $ (%)
15	2.7	3.3	3.3	0	+18.0	+18.0
20	4.3	5.9	5.3	+10.0	+27.0	+18.9
25	9.6	10.2	7.5	+26.5	+5.9	-28.0
30	15.3	13.5	10.0	+25.9	-13.3	-53.0
35	24.0	17.3	13.3	+23.1	-38.7	-80.5

Table 2. Maximum TMP of the SFCO, FR and FR/BW Operational Modes at the 9<sup>th</sup> Operational Cycle

TMP와 ± 10% 범위를 벗어나면 5 wt% NaOCl 수용액 에 침지시켜 10분간 화학적으로 세정하였다.

## 3. 실험 결과 및 고찰

## 3.1. 임계 투과유속

투과유속을 10부터 40 L/m<sup>2</sup> · hr까지 증가시키면 Fig. 3(a)에서와 같이 TMP가 2.3으로부터 19.4 kPa까지 단 계적으로 상승함을 알 수 있었다. 계속해서 초기조건인 10 L/m<sup>2</sup> · hr까지 감소시키면 5.1 kPa까지 감소하였으 나 비가역적 막오염으로 인하여 초기 TMP보다는 2.8 kPa 높게 나타났다. 이상의 투과실험 자료를 이용하여 투과유속 J에 대하여 시간에 따른 TMP (Δp)의 미분형 태인 (1/J)(dΔp/dt)로 나타내면 Fig. 3(b)와 같으며 2개 의 회귀선이 교차하는 26.6 L/m<sup>2</sup> · hr를 임계 투과유속 으로 볼 수 있다.

#### 3.2. SFCO, FR 및 FR/BW 투과유속

SFCO, FR 및 FR/BW의 운전방식으로 투과유속을 15, 20, 25, 30 및 33 L/m<sup>2</sup> · hr로 증가시키면서 각각의 TMP를 측정하여 Fig. 4에 나타내었다. 또한 제9주기인 투과시간 96 내지 108분에서 각각의 운전방식에 따른 TMP를 Table 2에 나타내었다. 낮은 투과유속인 15 L/m<sup>2</sup> · hr일 경우에는 Fig. 4(a)에서와 같이 약 120분 동 안의 투과 시간동안 TMP 변화가 거의 나타나지 않았 다. 제9주기에서 SFCO 운전의 최대 TMP는 2.7 kPa이 었고 FR 및 FR/BW의 최대 TMP는 3.3 kPa로 TMP의 절대값은 별 차이가 없지만 SFCO 운전이 FR 및 FR/BW 운전보다 TMP가 18.0% 낮았으나 역세척 효과 는 없는 것으로 나타났다. 투과유속 20 L/m<sup>2</sup> · hr에서는 SFCO, FR, FR/BW 운전방식 모두 TMP가 투과시간이 경과함에 따라서 서서히 증가함을 알 수 있었다(Fig. 4(b)). 제9주기에서 SFCO TMP는 4.3 kPa로서 FR에 비 해 27.0%, FR/BW TMP보다 18.9%가 낮았고 역세척을 실시한 FR/BW이 FR 방식보다 10.0% 낮은 TMP를 유 지하였다. 투과유속을 25 L/m<sup>2</sup>·hr로 증가시키면 Fig. 4(c)에서와 같이 운전 초기에는 SFCO TMP가 가장 낮게 유지되었지만 투과시간이 경과하면서 SFCO TMP가 FR TMP까지 근접함을 알 수 있었다. 제9주기에는 FR/BW TMP 7.5 kPa로 가장 낮았으며 SFCO TMP는 FR TMP 보다는 5.9% 낮았지만 FR/BW TMP보다는 28.0% 높게 나타났다. 투과유속을 30 L/m<sup>2</sup>·hr까지 더욱 증가시키 면 운전 초기에 가장 낮았던 SFCO TMP가 급격하게 증 가하여 제5 내지 6주기부터는 가장 높게 나타남을 알 수 있었다. 결국 제9주기에서 SFCO TMP는 FR TMP보 다도 13.3%, FR/BW TMP보다 53.0% 높게 나타남을 알 수 있었다. 또한 FR/BW TMP 역시 FR TMP보다 25.9% 낮았다. 마지막으로 투과유속을 33 L/m<sup>2</sup> · hr까지 증가시키면 30 L/m<sup>2</sup>·hr와 마찬가지로 SFCO TMP가 주기를 반복하면서 현저하게 증가함을 알 수 있었다 (Fig. 4(d)). 또한 FR 및 FR/BW TMP 역시 큰 차이가 남을 확인할 수 있었다. 요약적으로 임계 투과유속보다 낮은 15, 20 및 25 L/m<sup>2</sup>·hr 에서는 SFCO 운전방식이 FR 및 FR/BW에 비하여 효과적임을 확인할 수 있었다. 그러나 투과유속이 임계 투과유속 이상으로 증가하면 SFCO 운전 방식보다는 역세척이 적용된 FR/BW 운전 방식이 보다 효과적으로 막오염을 제어할 수 있음을 확 인하였다. 또한 Table 1에서와 같이 활성슬러지 원액 및 분리막 투과액 TOC는 각각 927.7 및 3.2 mg/L로 99% 이상의 TOC 제거율을 나타내었다.

## 4. 결 론

연속적으로 투과운전이 가능한 SFCO 운전방식을 중 공사형 MBR 모듈에 적용하였으며 FR 및 역세척을 실 시하는 FR/BW 운전방식에 따른 투과성능을 비교하였다. 또한 투과유속에 따른 분리성능을 분석하기 위하여 임계 투과유속을 측정하였으며 MLSS 5,000 mg/L이고 폭기가 없는 활성슬러지 용액의 경우 26.6 L/m<sup>2</sup>·hr로 확인 되었다. 임계 투과유속보다 낮은 운전 영역에서는 SFCO 운전방식이 FR 및 FR/BW에 비하여 효과적이었으나 임계 투과유속 이상에서는 역세척이 적용된 FR/BW 운전방식이 보다 효과적으로 막오염을 제어할 수 있음을 확인하였다.

# 감 사

본 연구는 환경부 "글로벌탑 환경기술개발사업"으로 지원받은 과제임(과제번호 : E614-00112-0402-1).

# Reference

- T. Zsirai, P. Buzatu, P. Aerts, and S. Judd, "Efficacy of relaxation, backflushing, chemical cleaning and clogging removal for an immersed hollow fiber membrane bioreactor", *Water Research*, 46, 4499 (2012).
- J. Wu, P. Le-Clech, R. M. Stuetz, A. G. Fane, and V. Chen, "Effects of relaxation and backwashing conditions on fouling in membrane bioreactor", *J. Membr. Sci.*, **324**, 26 (2008).
- J. Y. Park and J. H. Hwang, "Hybrid water treatment of photocatalyst coated polypropylene beads and ceramic membranes: effect of membrane and water back-flushing period", *Membr. J.*, 23, 211 (2013).
- F. Wicaksana, A. G. Fane, and V. Chen, "Fibre movement induced by bubbling using submerged hollow fibre membranes", *J. Membr. Sci.*, 271, 186 (2006).
- 5. Y. K. Choi, O. S. Kwon, H. S. Park, and S. H. Noh, "Mechanism of gel layer removal for inter-

mittent aeration in the MBR Process", *Membr. J.*, **16**, 188 (2006).

- K. G. Song, Y. Kim, and K. H. Ahn, "Effect of coagulant addition on membrane fouling and nutrient removal in a submerged membrane bioreactor", *Desalination*, 221, 467 (2008).
- K. Y. Kim, J. H. Kim, Y. H. Kim, and H. S. Kim, "The effect of coagulant on filtration performance in submerged MBR system", *Membr. J.*, 16, 182 (2006).
- K. Y. Chung, D. C. Kim, and I. H. Won, "Transmembrane pressure of the sinusoidal flux continuous operation mode for the submerged flat-sheet membrane bioreactor in coagulant dosage", *Membr. J.*, 25, 7 (2015).
- J. W. Kim and S. H. Noh, "Study of two-shaft rotary disc UF module for the separation of oil emulsion", *Membr. J.*, 6, 220 (1996).
- K. M. Yeon, W. S. Cheong, H. S. Oh, W. N. Lee, B. K. Hwang, C. H. Lee, H. Beyenal, and Z. Lewandowski, "Quorum sensing: a new biofouling control paradigm in a membrane bioreactor for advanced wastewater treatment", *Environ. Sci. Technol.*, 43, 380 (2009).
- I. H. Won, H. W. Lee, H. J. Gwak, and K. Y. Chung, "Transmembrane pressure of flat-sheet membrane in emulsion type cutting oil solution for symmetric/asymmetric sinusoidal flux continuous operation mode", *Membr. J.*, 25, 320 (2015).
- I. H. Won and K. Y. Chung, "Characteristics of the sinusoidal flux continuous mode for the submerged flat-sheet membrane module in cutting oil solution", *Korean Chem. Eng. Res.*, 53, 646 (2015).
- P. L. Clech, B. Jefferson, I. S. Chang, and S. J. Judd, "Critical flux determination by the flux-step method in a submerged membrane bioreactor", *J. Membr. Sci.*, 271, 81 (2003).