

침지형 membrane을 이용한 생활오수처리

강광남* · 정순형** · 정우영*** · 윤용수
(주)진우 환경기술연구소* · 대구보건대학 환경관리과** ·
(주)S. O. L*** · 단국대학교 화학공학과

Municipal Wastewater Treatment by Submerged Membrane Process

Gwang-Nam Kang* · Soon-Hyung Chung** · Woo-young Jeong*** · Yong-Soo Yoon
*JinWoo env. R/D Ltd.**
*Dept. of Environmental Engineering Tae Gu Health College** · S.O.L Co.****
Dept. of Chem. Eng., Dankook University

Abstract

The removal characteristic of BOD, COD, T-N, and T-P was investigated in municipal wastewater treatment with anoxic and membrane submerged aerobic reactor.

It was found that BOD and COD removal rate were obtained 90% and 92%, respectively, for 90 days operation. BOD and COD loading rate did not affect to the removal efficiency because MLSS concentration in aerobic tank was highly maintained.

In the case of first reactor operated with anoxic and second reactor operated as aerobic, T-N, T-P removal rate were obtained 93% and 99%, respectively.

It was shown that removal efficiency could be maintained stable due to the complete removal of SS and sludge production decreased with increasing of sludge retention time.

I. 서 론

인구증가 및 국민생활수준의 향상과 더불어 오수 발생량도 매년 증가하여 1996년 말 현재 전국의 생활오수 발생량은 약 15,310천 m³/일에 이르고 있다. 이 중에서 69.9%인 10,708천톤이 하수처리구역 내에서 발생하고 있으나, 하수관거 정비 미흡, 하수종말처리시설의 시설용량 부족 등으로 인하여 실제 하수종말처리시설로 유입처리되는 생활오수량은 전체의 50%인 7,690천 톤이고, 전체 오수량

의 28%는 오수정화시설 또는 정화조 등의 개별처리시설에서 처리되고 있으며, 나머지 88%는 단독정화조를 거쳐 공공수역에 방류되고 있다. 따라서 수질오염의 저감을 위하여는 이러한 하수종말처리시설 또는 개별처리시설의 지속적인 확충이 필요한 실정이다.¹⁾

오수발생량은 상수급수량과 밀접한 관계가 있는데 일반가정, 숙박업소, 식품접객업소, 공중목욕탕, 공장의 수세식 화장실, 목욕탕, 세면장, 주방에서 주로 발생하고 있다. 주요 오염물질로는 유기물질,

부유물질 및 영양염류 등이 있으며, 오수의 수질상태는 생활수준과 밀접한 관계가 있다. 가동중인 하수처리장의 처리공법은 주로 활성슬러지법을 채택하고 있으며, 다음으로 장기폭기법 및 회전원판법 등이 이용되고 있다. 그러나 이 방법의 가장 큰 문제는 활성폭기조를 운영함에 전문가적 지식이 요구되며, 침전조에서 슬러지가 유출됨으로 인해 안정된 처리수질을 얻기 힘들다는 것이다.

분리막을 이용한 수처리기술은 해수의 담수화에 의해 시작되어 상용화되어 왔다.²⁾ 절대적으로 수자원이 부족한 중동지역이나 미국의 남부 지역에서 생활용수와 공업용수를 확보하기 위하여 해수담수화 시설이 건설되었다. 우리나라에서는 반도체의 초순수 제조분야에서 가장 먼저 분리막이 사용되었으며 서해안지역의 공업용수 확보를 위하여 수처리 시설이 건설되기도 하였다. 그 이후로 의료 및 제약업체에서 무균수의 제조에 응용되기 시작되면서 여러 분야에 적용되고 있다.

그 후, 폐수처리에 있어서 분리막의 적용은 BOD 제거를 위해 stavenger 등이 활성오니와 분리막을 결합한 실험을 함으로서 시작되었다.³⁾ 더 나아가 Suwa와 Chiemchaisri^{4),5)} 등은 질소와 BOD제거를 위해 분리막을 이용하기도 하였다.

이러한 분리막을 이용한 폐수처리 중에서 폭기조 내에 분리막을 설치하는 침지형 막 분리법은 처리수질이 매우 양호하고 안정되어 고농도 운전이 가능하며 침전지, 슬러지 농축조가 필요 없기 때문에 설비면적이 작다는 등의 특징이 있다. 또한 운전방법이 매우 용이하기 때문에 실적이 많은 분뇨처리, 정화조 분야 이외에도 중수도 설비관련, 농업 집락배수 그리고 산업폐수 처리에서는 식품, 세정폐수처리 등의 분야에서도 폭넓게 시험, 검토가 이루어지기 시작했다.

본 연구에서는 실제 발생하는 아파트 단지내의 생활오수를 대상으로 하여 기존의 활성오니조에 평막을 침지시킨 침지형 막분리 공정을 도입하여 처리하였으며, 그 처리수를 비교, 분석하고 새로운 처리공정으로써의 실용화 가능성에 대하여 검토하고자 하였다.

Table 1. Compositions of domestic wastewater.

Compound	Range	Mean
pH	7.13~8.50	7.81
CODMn(mg/L)	63~114	88.5
BOD(mg/L)	88.9~195.2	142.1
T-N(mg/L)	36~66.7	51.4
T-P(mg/L)	3.2~6.5	4.9
SS	84~235	159.5

II. 실험재료 및 방법

1. 폐수의 성상

본 실험에 이용된 폐수는 I시의 1608세대 아파트의 생활오수로써 폐수의 성상은 Table 1.과 같다. 아파트에서 발생하는 폐수의 경우 생활오수와 분뇨폐수가 혼합되어 처리되는 공정으로써 단순폭기조를 걸쳐 인근의 하수종말처리장으로 유입되어지고 있다. 실험대상의 폐수는 생활오수와 분뇨폐수가 혼합되어 폭기조로 유입되기 전 공정에서 행해졌다.

약 90여 일의 운전기간 동안 공급된 원폐수의 BOD와 COD는 각각 88~195.2mg/L와 63~114 mg/L로서 비교적 일정하였으며, 또한 T-N과 T-P 및 SS는 각각 36~66.7mg/L와 3.2~6.5mg/L, 그리고 84~235mg/L였다. 이는 우리나라의 정형적인 생활오수의 성상과 비슷하다는 것을 유추할 수 있었다.

2. 실험장치

본 실험에서 사용된 반응조는 크게 제 1반응조와 제 2반응조로 이루어졌다. 즉, 원수의 유입과 호기상태와 무산소상태가 일정 시간간격으로 진행되는 제 1반응조와 호기성 반응과 침지형 membrane에 의하여 분리가 일어나는 제 2반응조로 구성하였다. 제 1반응조와 제 2반응조의 용적은 각각 10L로써 아크릴수지로 제작하였으며, 침지형 membrane은 제 2반응조에 설치하였다. 원수는 스크린을 통과시켜 SS를 제거하였으며, 원수공급은 LMI(USA)사의 정량펌프를 사용하였다. 폭기조의 Air는 blower를 통하여 공급하였으며 제 1반응조

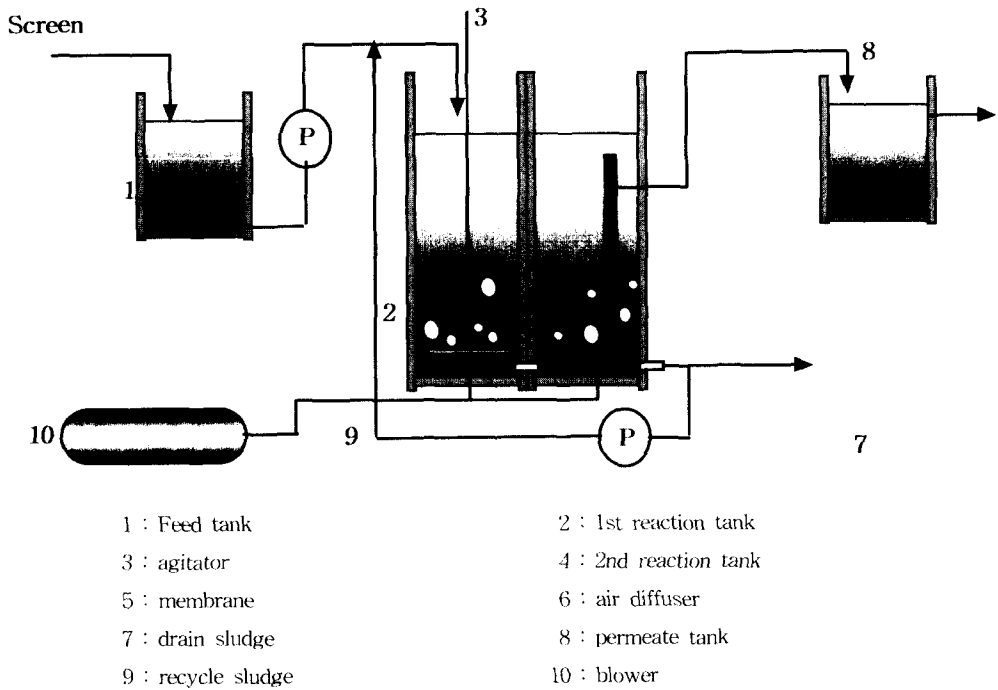


Fig. 1. Schematic diagram of the process.

Table 2. Specifications of the membrane.

Configuration	plate type
Effective membrane area	0.1 m ²
Outline dimensions	W240 × H490 × T7.5 mm
Water collecting hole	ID 4.5, OD 8
Nominal, pore size	0.25 μm
Standard filtration flow velocity	0.3~0.5 m/day
Material	Membrane : Synthetic resin Spacer : Polypropylene and polyethylene
Operation temperature range	2 ~ 38 °C
Operation pressure range	-4.9×10 ⁴ ~ 0 Pa
Applicable pH range	3 ~ 10

의 무산소상태시 완전 혼합을 위해 교반기를 설치하였다. 실험 장치의 개략도는 Fig. 1.과 같다.

본 실험에 분리막으로 사용된 침적형 membrane은 M사의 T형 element로써 막의 재질은 합성수지이며, 막과 막사이의 공간은 polypropylene 과 polyethylene으로 유지시켰다. 막면의 평균기공

크기는 0.25 μm이며 판형구조로 형성되었다. M사의 membrane 사양은 Table 2.와 같다.

3. 실험방법

유기물질과 질소화합물을 제거하기 위하여 사용된 제 1, 2반응조의 용량은 각각 10L 이었으며, I

Table 3. Operational conditions of submerged membrane activated sludge process.

Parameter	Condition
pH	7.0 ~ 8.0
Temperature	room temperature
Recycle rate	2Q
HRT	18 ~ 24 hr
SRT	40 ~ 50 day
MLSS	3,500 ~ 5,000 mg/L

나타내었다.

4. 분석방법

침지형 분리막을 통과한 처리수를 대상으로 측정하였다. BOD, COD 및 SS는 수질오염공정시험방법과 Standard Methods에 의해 분석하였으며, T-N과 T-P는 JASCO사의 UV-vis spectrophotometer를 이용한 흡광도법에 의해 분석하였다. 또한 pH는 유리전극의 HANNA사의 pH meter를 사용하여 측정하였다.

Table 4. BOD and COD concentrations for influent and effluent.

Period time (day)	BOD		COD	
	Influent(mg/L)	effluent(mg/L)	Influent(mg/L)	effluent(mg/L)
30	190	1.67	102	8.9
40	195.2	2.1	121	7.3
50	194	1.6	91.4	8.2
60	135	1.3	89	7.6
70	202	0.975	114	8
80	179	1.18	105.7	9

시의 하수종말처리장의 활성슬러지를 반응조에 채워 실험을 수행하였다. 생활오수를 1차 스크린에 통과하여 유량조정조로 유입시킨 후 정량펌프로 반응조에 공급하였고 반응조 내의 체류시간은 18~24시간 이었으며 폭기조내 Air 공급량은 4 mL/min을 유지하였다. 제 1반응조를 질산화를 위한 호기성 상태와 탈질을 위하여 교반기를 이용, 혼합하였으며 무산소 상태를 반복, 유지하였다. 제 2반응조는 유기물제거와 질산화를 유도하기 위해 폭기조로 운영하였으며 Air 공급은 침지형 분리막 아래에서 공급하므로 bubbling에 의한 분리막의 fouling을 방지하고자 하였다. 슬러지 반송비는 2Q로 유지하였으며, 모든 실험의 운전온도는 실내온도하에서 진행하였다. 제 2반응조는 일반 활성오니법과 동일하게 운영하였으며, MLSS 농도는 3,500~5,000mg/L로 유지하였다. 공정에 있어서 SRT는 40~50일로 자료조사에 근거하여 산출하였다.

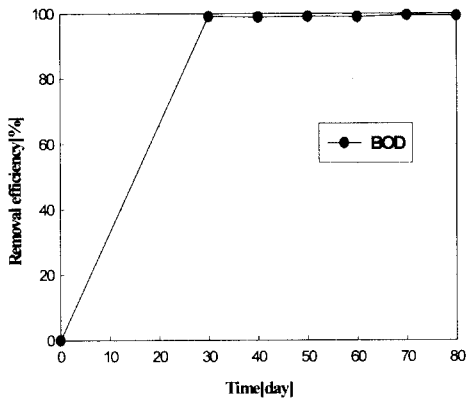
본 연속처리 실험에서의 실험조건은 Table 3.에

Ⅲ. 결과 및 고찰

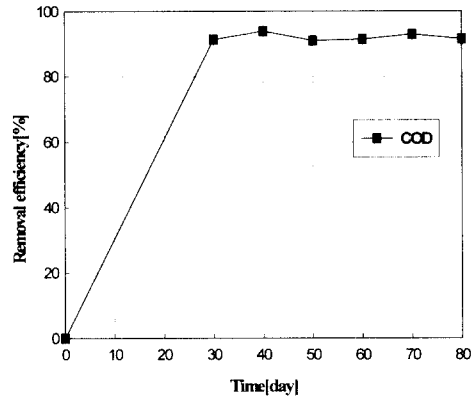
1. 유기물 제거

생물학적 활성오니법과 결합한 침지형 막분리공정의 실험은 약 90 여일 동안 수행하였다. 본 실험에 유입되는 폐수의 BOD와 COD 농도는 평균적으로 각각 142mg/L와 100mg/L로써 실험기간동안의 유입수와 유출수의 농도와 그 제거율을 Table 4.와 Fig. 2.에 나타내었다.

운전시작에서 30일까지는 활성슬러지 순용기간이었으며, 이후의 60여 일간의 분석결과, 본 공정의 BOD, COD 제거율이 각각 99%와 92%로써 매우 우수한 것으로 평가되었다. 잔여 COD 성분은 비교적 생물학적으로 분해 불가능한 유기물질과 그 대사물질로 추측되며, 이들은 막의 기공을 통하여 그대로 방출되는 성분으로 사료된다. 이로써 생



(a)



(b)

Fig. 2. Removal efficiency of BOD(a) and COD(b) in submerged membrane activated sludge process.

물학적으로 분해가 가능한 유기물질이 생활오수의 주된 오염원임을 확인 할 수 있었다. 이는 Yamamoto 등⁶⁾이 막분리 활성슬러지공법에 있어서 MLSS농도가 4,000~24,000mg/L 범위 내로 유지하여 좋은 유기물 제거효율을 얻었다고 한 보고와 일치하였다. 또한 김⁷⁾ 등은 침지형 세라믹막을 이용한 모의 실험에서 500~700mg/L의 COD를 8~13mg/L까지 처리된다고 보고하였다.

운전기간중 BOD부하량은 88.9mg/L에서 195.2mg/L까지 큰 차이가 있었으나 유기물 제거율에 있어서는 99%이상의 균일한 처리효율을 얻을 수 있었다. 이로써 제 1반응조와 제 2반응조 내의 MLSS를 일반 활성오니법보다 높게 유지함으로써 유입 유기물 부하량에 대한 충격부하를 최소화 할 수 있기 때문이며, 본 공정에 있어서는 유기물 부하량은 처리수 수질에 영향을 주는 인자가 되지 않음을 알 수 있었다.

Microfiltration을 이용한 막분리법은 활성슬러지 미생물과 처리수의 분리를 목적으로 하기 때문에 기본적으로 생물학적 처리로써 BOD와 질소(N)를 제거하기 위해서는 생물학적 처리의 운전조건이 확립되어야 막분리 활성슬러지법에 의한 처리가

가능하기 때문에 본 공정은 매우 효과적으로 운영되고 있다고 판단할 수 있다.

2. 질소 제거

본 공정에서의 질소제거는 제 2반응조를 호기성 상태의 반응기로 유지하여 질산화를 유도하고 질산화된 호기성 유출수가 호기 및 무산소로 반복 운영되는 제 1반응조로 반송되어 탈질을 유도하여 제거시킬 수 있도록 하였다.

최근 도시하수를 비롯한 폐수의 질소와 인을 제거하기 위하여 A²/O와 같은 혐기/준혐기/호기 복합공정이 많이 적용되고 있다. 그러나 이들의 단위 공정들은 각각 분리된 반응조를 이용함으로써 온도 및 탄소원 등의 많은 영향을 받게 된다. 특히 탈질화에 있어서 온도는 0~50℃의 광범위한 범위에서 가능하고, 최적 반응온도는 35~50℃의 범위로 알려져 있다.⁸⁾

일반적으로 탈질반응을 유도하고자하는 공정들은 대부분 메탄올과 아세트산 등의 외부탄소원을 이용하여 경제적 부담을 가중시키는 문제를 지니게 된다.⁹⁾ 탈질반응에 있어 유기탄소원의 소모량은 메탄올의 경우 질소에 대한 탄소의 비가 2.5~3.0

정도이며, 95% 이상의 탈질화를 위해서는 3.0을 추천하고 있다.¹⁰⁾ 따라서 본 실험에서는 고농도 무산소 반응조의 유출수를 내부탄소원으로 이용하여 탈질을 유도하였다.

Fig. 3은 운전시간에 따른 총 질소의 유입수와 유출수의 농도변화를 나타낸 것으로 총 질소제거율이 93%까지 나타나 본 실험공정이 질소제거에 있어 우수한 제거효율을 보임을 확인할 수 있었다. 생활오수 중에 존재하는 대부분의 질소 형태는 암모니아성 질소로서 제 1반응조의 호기성 상태와 제 2반응조에서 질산화를 유도하여 아질산성 질소와 질산성질소로 전환한 다음, 제 1반응조로 다시 반송하여 무산소조에서 완전 탈질화를 시킴으로 그 제거효율이 상승됨을 확인할 수 있었다. 또한 질소가 세포합성에 필수적인 요소이기 때문에 생물학적 처리과정의 세포합성에 따라 세포구성에 필요한 만큼 질소가 제거되며 F/M비의 변화에 따라 제거되는 BOD당 NH₃-N이 제거되는 비율은 다음과 같이 표현된다.

$$\frac{d(\text{NH}_3 - \text{N})}{d(\text{BOD})} = 0.125Y - \frac{0.125X_d K_b}{F/M}$$

여기서, Y : yield coefficient(g-VSS/g-BOD)

X_d : 분해가능한 MLVSS

K_b : Decay rate(g-VSS/g-VSS · day)

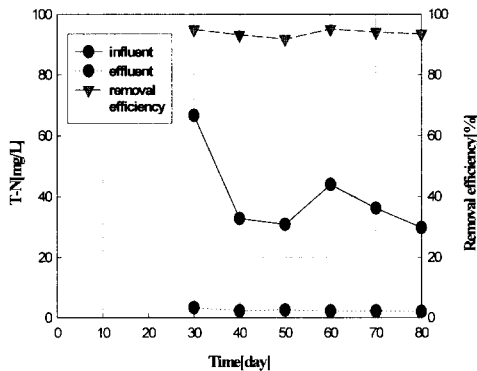


Fig. 3. Removal efficiencies of T-N during the experiments in submerged membrane activated sludge.

만약, F/M비가 0.1 day⁻¹로 운전될 경우 dNH₃-N/dBOD비는 0.018이 되어 유입수의 BOD가 120mg/L이고 유입수 질소농도가 30mg/L인 도시하수를 활성슬러지법으로 처리할 때 질소 제거 효율을 8~20% 정도가 된다. 그러나 일부 산업폐수 등 BOD가 높은 폐수를 처리할 경우는 단순히 세포합성에 의해 제거되는 질소의 양도 상당 하리라 사료된다. 본 공정으로 고농도 유기성 폐수의 경우 8,000~15,000mg/L의 MLSS가 가능하므로 질소제거율이 상승되리라 기대된다.

3. 인 제거

일반적으로 질소, 인 등과 같은 영양물질처리에 영향을 미치는 인자로는 유입수의 기질농도를 들 수 있으며, 특히 유기물질의 농도변화는 미생물종의 변화에 직접적인 영향을 미치므로 유기물질 섭취능력을 정확하게 예측하여야만 안전하게 생물학적 방법으로 인을 제거할 수 있을 것으로 사료된다. 본 실험에 있어서 유입수와 유출수의 총 인의 농도를 운전시간에 따라 나타내면 Fig. 4와 같다. 6.5mg/L의 유입수중 인의 농도가 0.2 mg/L의 농도로 처리됨으로서 매우 높은 제거효율을 얻을 수 있었다. 이러한 제거효율은 90여 일간의 운전기간 중에 비슷한 경향을 이루었다.

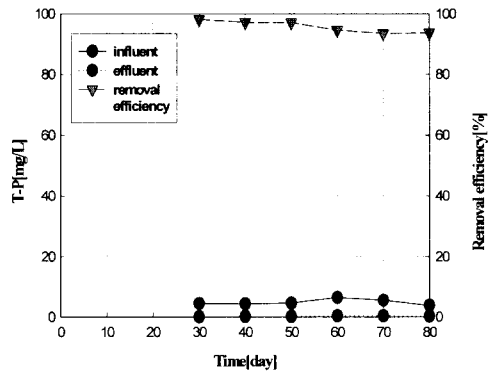


Fig. 4. Removal efficiencies of T-P during the experiments in submerged membrane activated sludge.

생물학적 인 제거의 기본원리는 혐기성 상태에서 균체 중의 유기물 저장과 동시에 인의 방출이 시작되고 호기성 상태에서 균체 증식과 폴리인산을 축적하면서 일부의 인이 제거된다. 즉, 인의 제거에 관련된 균체들이 호기성 상태에서 다중 인산염의 형태로 인을 과잉 섭취하여 저장하며, 혐기성 상태에서 단순한 호소기질을 제거할 수 있는 능력을 가지고 세포 안에 저장생성물로 동화되어 인을 방출하게 된다. 즉, 혐기성 상태에서 임의성 미생물들에 의해 유기성 저장과 동시에 휘발성 지방산들이 생성됨으로 pH 저하가 일어나게 된다.¹¹⁾ 본 실험에서는 이러한 현상을 확인하기 위하여 제 1, 2반응조의 시료에 대해 pH를 측정하였다. 측정결과를 Table 5에 나타내었으며, 제 1반응조의 pH는 7.04~7.71 범위였으며, 제 2반응조는 7.24~7.78로 제 1반응조에 비해 0.07~0.2 정도 저하되는 것으로 분석되었다.

이는 혐기성 조건하에서 산생성으로 인한 결과로 판단되나 명확한 원인을 제시하기 위해서는 이에 대한 자세한 연구가 필요할 것으로 판단된다.

4. SS제거

막에 의한 활성슬러지의 고액분리라는 기능에서 생각한다면 활성슬러지는 세균군, 원생동물, 젤라틴 상태의 유기물에서 비롯된 무생물의 세 가지 성분으로 구성되어 플러클을 형성하고 이 플러클에 원생동물과 혼탁질의 일부가 부착 또는 흡착되어 형성되어진다. 여기서 세균류가 0.2~1 μ m, 원생동물이 적어도 30 μ m 이상이 되며 형성된 플러클은 수십 μ m 이상이 된다. 따라서 활성슬러지의 고액분리에 사용되는 분리막으로는 정밀여과(microfiltration)로 충분하다고 할 수 있겠다.¹²⁾

기존의 처리공정에서는 응집, 침전, 모래 여과들의 공정이 필요하였다. 그러나 침지형 막분리를 사용함으로써 완전 고액분리가 가능하였으며 거의 100%에 가까운 제거효율을 얻을 수 있었다. 운전 기간 중의 SS의 유입수와 유출수의 농도변화를 Fig. 5에 나타내었다.

SS가 침지형 막에 의해 완전히 제거됨으로써 처리수질이 슬러지의 침강성에 좌우되는 기존의 활성슬러지의 문제점을 해결할 수 있음이 확인되

Table 5. Variations of pH of 1st and 2nd reaction tank.

Period time (day)	pH	
	1st reaction tank	2nd reaction tank
30	7.25	7.36
40	7.04	7.24
50	7.32	7.52
60	7.21	7.28
70	7.5	7.68
80	7.71	7.78

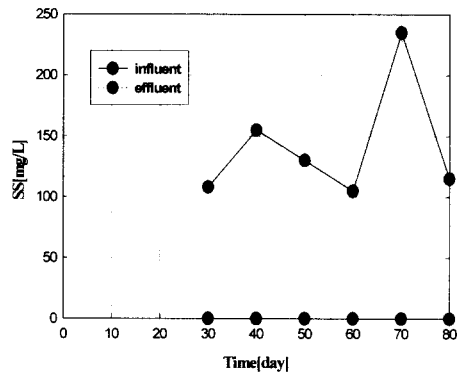


Fig. 5. Removal efficiencies of SS during the experiments in submerged membrane activated sludge.

었다. 또한 반응조 내에 슬러지 체류시간을 극대화하는 것이 가능하므로 잉여슬러지 발생량을 최소화 할 수 있었다. Uehara Masaru 등¹²⁾은 폭기조의 MLSS가 5,000~6,000mg/L인 바이오 연구실 세정수 처리에서 슬러지를 뽑아내지 않으며 거의 유지관리도 하지 않고도 3년간 연속운전하였다고 보고하기도 했다.

또한 폭기조 내에 분리막을 설치함으로써 기존의 침전조 등의 부대시설이 불필요하게 됨으로써 처리시설 면적을 최소화 할 수 있는 장점이 있으며, 실제 폭기조의 용량을 기존의 1/3으로 축소가 가능하리라 사료된다.

IV. 결 론

본 연구는 microfiltration 막의 일종인 평막을 사용하여 침지형 막분리 활성슬러지공법을 통하여 실제 생활오수를 대상으로 실험한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 90여 일간의 실험공정 동안의 유기물 제거효율은 BOD와 COD의 분석결과 각각 99%와 92%의 높은 제거율을 얻을 수 있었으며 고농도의 MLSS의 유지로 인해 유기물부하에 관계없이 동일한 효율을 기대할 수 있었다.
2. 제 1반응조와 제 2반응조의 무산소 상태와 폭기조의 적절한 운전으로 T-N은 93%, T-P는 99%의 제거효율을 얻을 수 있었다.
3. 완벽한 SS의 제거로 인해 처리수질의 안정화를 얻을 수 있었으며 슬러지 체류시간을 늘리므로 슬러지 저감효과를 기대할 수 있었다.

본 연구는 기존의 막분리 기술을 통해 유기물 제거 뿐만 아니라 질소·인 등의 고도처리를 위한 기초연구로 시작되었다. 향후에 막 오염인자, 투과속도 등에 대한 계속되는 연구 진행이 요구된다.

참 고 문 헌

1. 환경부 : 환경백서, 1997.
2. S. Loeb, S. Sourirajan : Sea water demineralization by means of an osmotic membrane, *Advan., Chem. Ser.*, 38, 117, 1963.
3. Stavenger P. L. : Putting semipermeable membrane to work, *Chem. Eng. Progr.* 67, 30-36, 1971.
4. Suwa Y., Yamaguchi T., Urushigawa Y. and Hirai M. : Simultaneous organic carbon removal-nitrification by an activated sludge process with cross-flow filtration, *J. Ferment. Bioeng.*, 67, 119-125, 1989.
5. Chiemchaisri C., Wong Y. K., Urase T. and Yamamoto K. : Organic stabilization and nitrogen removal in a membrane separation bioreactor for domestic wastewater treatment, *Filtration & separation*, 247-252, 1993.
6. Yamamoto Y., Dol H., Okumura S., Matsuda T., and Narukaml Y. : Removal of nitrogen and phosphorous of domestic wastewater by ceramic membrane filter submerged reactor, *Proc. Jpn. Soc. Water Environ.*, 408-409, 1993.
7. S. J. Kim. etc : Wastewater treatment using submerged membrane activated sludge process, *Environmental industry*, 38-44, 1998.
8. EPA : Manual Nitrogen Control, EPA/625/R-93/010, 1993.
9. Werner, M. and Kayser, R. : Denitrification with Biogas as external carbon source, *Wat. Sci. Tech.*, 23, Kyoto, 701-708, 1991.
10. Barnes, D. : Biological control of nitrogen in wastewater treatment, F. N. Son Ltd. 1983.
11. Richard I. S. : Principles and practice of phosphorus and nitrogen removal from municipal wastewater. The Soap and Detergent Association, NewYork, 123-139, 1989.
12. Yamamoto K., Hiasa M., Mahmood T, and Natsuo T. : Direct solid-liquid separation using hollow fiber membrane in an activated sludge aeration tank, *Wat. Sci. Tech.* 21, 43-54, 1989.