

論 文

막면 세균 증식에 의한 막오염에 관한연구

Effect of Membrane Fouling due to Micro-organism Growth on the Membrane Surface

김형수

Hyung Soo Kim

Abstract

High quality drinking water can be produced by membrane separation process. A major problem in the current system is a membrane fouling control. In order to investigate membrane fouling due to *E.coli* removal, lab scale experiment using MF and UF and semi pilot plant experiment using UV radiation or not was performed. As a result, the possibility of membrane fouling control by repression of micro-organism on the membrane surface was clearly verified. But it was not clearly verified in this experiment the combined effect with other factors such as Turbidity, organic and inorganic matters

1. 서 론

그동안 분리막을 수처리에 적용하고자 하는 노력은 수없이 시도되어 왔고, 그 중에서도 정수 처리에의 적용은 시스템이나 유지관리의 용이성, 안정성 등의 장점 때문에 계속 시도되고 있고, 현재 막분리 기술을 이용한 정수 처리 기술이 응집·침전 + 모래여과의 기존 공정을 단일공정으로 대체하기 위한 대안으로 주목받고 있는 것도 사실이다.

막분리 기술을 정수 처리에 적용하기 위해서는 무엇보다도 최적의 분리막 선정과 운전 조건이 필요함은 사실이다. 그러나 최적의 분리막 선정과 운전 조건을 확립하기 위해서는 막

의 폐색에 대한 고찰이 이루어지지 않으면 안 된다.

그러나 수체의 현탁 물질, 용존 유기물, 미생물 등과 같은 각종 물질에 의한 막의 폐색은 단정적으로 말하기 어렵고 아직도 확실히 해결되었다고는 말할 수 없다. 그러므로 막의 폐색은 막분리 기술의 실용화에 커다란 장애 요인이 되고 있다. 특히 정수 처리는 주로 대용량을 대상으로 하고 있기 때문에 실제 정수장에서 막분리 기술을 적용할 경우 이러한 막의 폐색은 분리막의 수명을 단축시키게 되고 비용을 증가시키는 결과를 초래하게 된다.

따라서 막분리 기술은 막의 오염을 어느 정도 까지 기술적으로 제어할 수 있는가에 의해 그 적용 가능성이 제한 받고 있다고 해도 과언이 아니다. 그러나 운전중에 막이 오염되어 가는 과정은 매우 복잡하고, 그 원인 물질도 다

* 성균관대학교 토목환경공학과 조교수

양하다고 할 수 있다. 지금까지 많은 연구자들이 막의 오염에 대해 성과를 발표하고 있고, 막의 오염을 제어할 수 있는 방법이나 운전 조건을 제시하고 있다.

지금까지 알려진 막의 오염의 형태는 cake 층, gel 층 및 막 내부 오염 등으로 크게 구분되어 있고, 그 원인 물질은 입자성 물질, 유기물, 이온성 물질 등 다양하게 밝혀져 왔다. 그러나 막면에서의 cake 층과 gel 층은 확연히 구별되지도 않고, 어떤 경우는 cake 층의 오염을 유발하는지 또는 gel 층의 오염을 유발하는지 명확히 구별하기 힘든 경우도 있다. 하지만 어떤 특수한 방법으로 운전하는 경우에 막의 오염을 상당 부분 제어할 수 있고, 따라서 막의 수명을 연장시키는 결과를 나타내는 경우가 있다.

막면에서 일차적인 오염을 일으키는 원인이 막면에서 증식하는 균류에 의한 것이라면 원수를 살균하여 막에 공급하여 막면에서 증식할 균류를 원천적으로 제어한다면, 균류 증식에 의한 막의 오염을 상당히 제어할 수 있을 뿐만 아니라, 균류증식으로 인해 2차적으로 발생할 수도 있는 막오염을 제어할 수 있으리라 사료된다.

따라서 본 연구에서는 막면에서 증식하는 균류를 제어하는 경우에 대하여 여러 종류의 막에서의 여과저항을 투과플럭스의 변화로 알아 보았다.

2. 실험재료 및 방법

정수 처리에 적용하는 분리막은 제탁을 목적으로 하는가, 용존성 물질의 제거를 목적으로 하는가에 따라 달라질 수 있다. 제탁을 목적으로 하는 경우에는 주로 정밀여과막(MF), 한외여과막(UF)을 사용한다. 본 연구에서는 응집·침전 + 모래여과를 막분리 기술로 대체하기 위한 제탁용 막분리 기술에서의 막오염으로 연구 내용을 한정시킨점과 막면에서의 균류의 증식을 막면에서의 입자의 축적으로 생각한 점을 고려하여 정밀여과막(MF)과 한외여과막(UF)을 대상으로 실험을 수행하였다. 본 연구에서 사용된 분리막의 사양과 재질을 표 1에 나타내었다. 또한 실험은 표 2에 나타낸 바와 같이 순수물 사용하는 경우의 투과플럭스를 측정하여 분리막의 고유 여과저항의 특성을 알아본 후, 원수에 대장균을 첨가하여 투과플럭스를

표 1. 분리막 종류

MF	UF
0.05 μ m(Mixed Cellulose Acetate and Nitrate)	50KDa(Polysulfone)
0.1 μ m(Mixed Cellulose Acetate and Nitrate)	100KDa(Regenerated Cellulose)
0.22 μ m(Mixed Cellulose Acetate and Nitrate)	1MDa(Regenerated Cellulose)
0.45 μ m(Mixed Cellulose Acetate and Nitrate)	

표 2. 실험 조건

실험 항목	대상 원수(25°C)	추정 항목	실소 가스 압력(기압)	비 고
1. 초순수투과유속	RO막으로 거른 초순수	flux	0.8	초순수로 충분히 적신
2. 대장균에 의한 영향	대장균희석수	flux, 대장균	0.8	70%Alcohol로 소독후 초순수로 세정
3. 탁도 및 유기물의 영향	탁도10, 30, 50, 100, 200(NTU)로 조절한 원수	탁도, TOC	2~4	초순수로 세정

측정한 경우의 여과저항을 알아보았다. 이 경우의 실험은 그림 1에 나타낸 Sterilizing Stainless 90mm Filter Holder에 분리막을 넣어서, 압력용기 (Dispensing Pressure Vessels) 로 구성된 장치에 해당 원수를 채워 넣고, 질소 가스로써 압력을 가하여 단시간에 여과하는 방법으로 MF막 및 UF막 특성에 따른 순수투과유속, 균류의 증식이 막오염에 미치는 영향, 탁도 및 유기물이 미치는 영향의 차이점을 측정하였다. 그리고 그림 2와 같이 상수 원수를 대상으로 자외선 살균 처리한 원수와 자외선을 사용하지 않은 비살균 원수를 공급한 경우에 대하여 비교하여 보았다. 이때 사용한 자외선 살균 장치의 특성을 표 3에 나타내었다.

1. 순수투과유속

막 자체의 여과 특성을 나타내는 지표로서, 단위 시간당 단위 막면적을 투과하는 순수의 양을 단위 막차압 (2kgf/cm²) 에 대하여 기준 온도 (20℃) 조건 아래 환산하였다.
2. 균류의 증식이 여과저항에 미치는 영향

막면 균에 의한 여과저항 실험은 균류 중에

서도 위생적 지표가 되고, 일반적인 크기가 0.5~1μm인 대장균을 선택하였다. 순수 분리한 대장균 배양액을 순수 10%에 넣은 인공원수를 사용하였다. 균류는 막표면에 부착 증식하여 폐색을 발생시키는 역할을 하므로 대장균 회색수를 여러 번 투과시켜 미생물 층을 형성시켜 그 영향을 측정하였다. 다른 잡균의 영향을 배제하기 위하여 70% Alcohol을 압력 용기에 채워서 질소 가스로써 Holder 및 관로를 통과시켜 소독후 순수로 세정하였다. 분리막도 동일 조건으로 소독후 순수로 세정하였다.

3. 탁도 및 유기물이 미치는 영향

관당호에서 원수를 취수하는 정수장의 작수점에서 탁도 3NTU, SS 4mg/l인 실제 하천수를 장기간 농축하여 탁도 10, 30, 50, 100, 200 (NTU)로 조절된 원수를 사용하였다. 분리막의 투과수를 얻기 위해 질소의 압력을 2~4 기압으로 높여 측정하였다. 저탁도에서 고탁도에 걸쳐 실험하였으며 조건을 바꾸어 줄 때마다 분리막 내부 오염을 제거하고, 탁질 물질에 의한 cake 층을 제거하기 위해 충분히 순수로써 세정하였다.

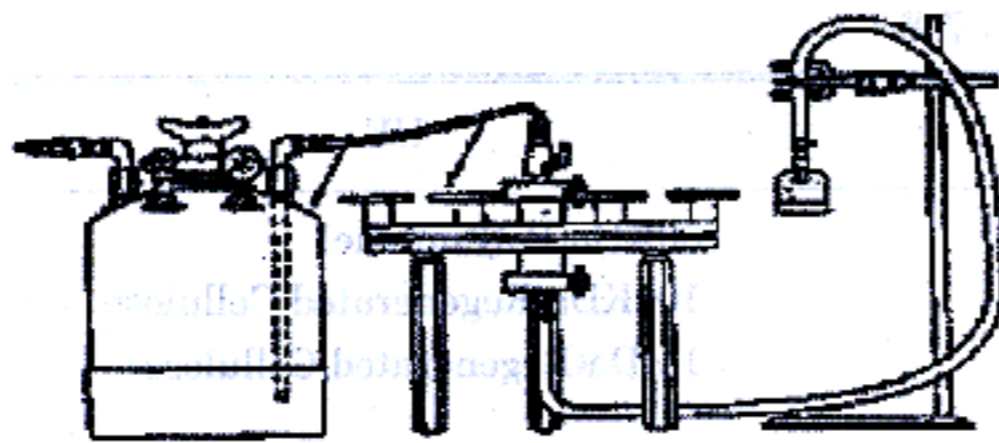


그림 1. 투과 실험 장치

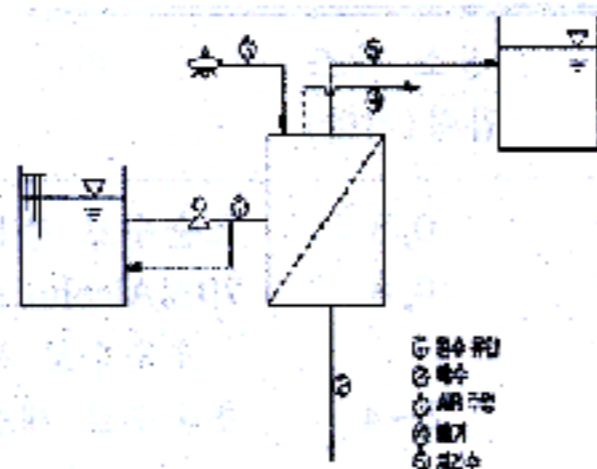


그림 2. 연속 실험 장치

3. 실험결과 및 고찰

1. 순수 투과플럭스 비교

UF막 50KDa는 Polysulfone재 질이고 100KDa, 1MKDa은 Regenerated Cellulose로 막재질이 차이가 있어서 직접 비교할 수는 없

표 3. 자외선 조사 장치

항 목	사 양
Material	stainless steel + PETP
UV lamp	NLR 1520
Operating pressure	max.10 bar
Head loss	0.1bar
Water temperature	5~25℃
Capacity	0.5m ³ /h
Supply voltage	230V, 50Hz

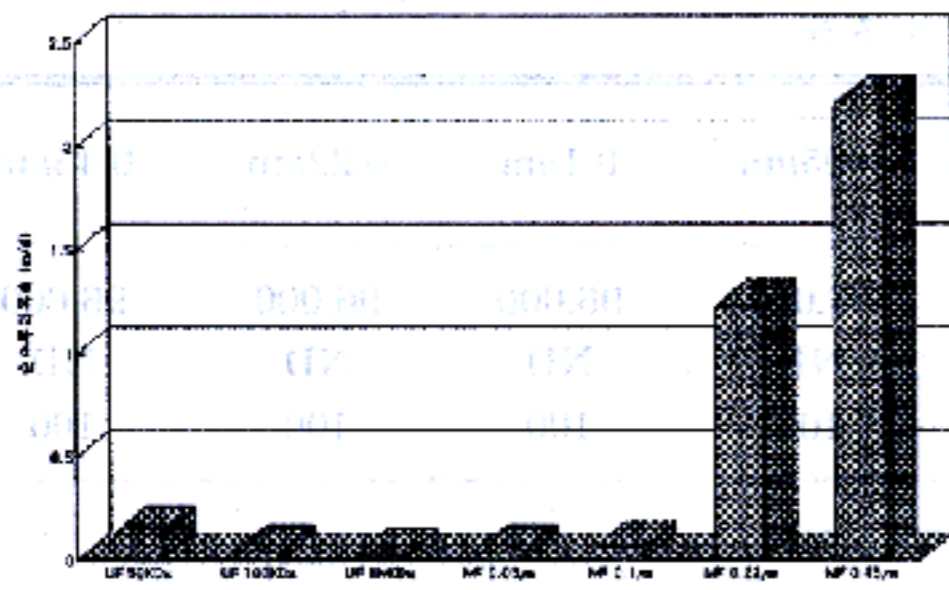


그림 3. 순수 투과 플럭스 (25°C에서)

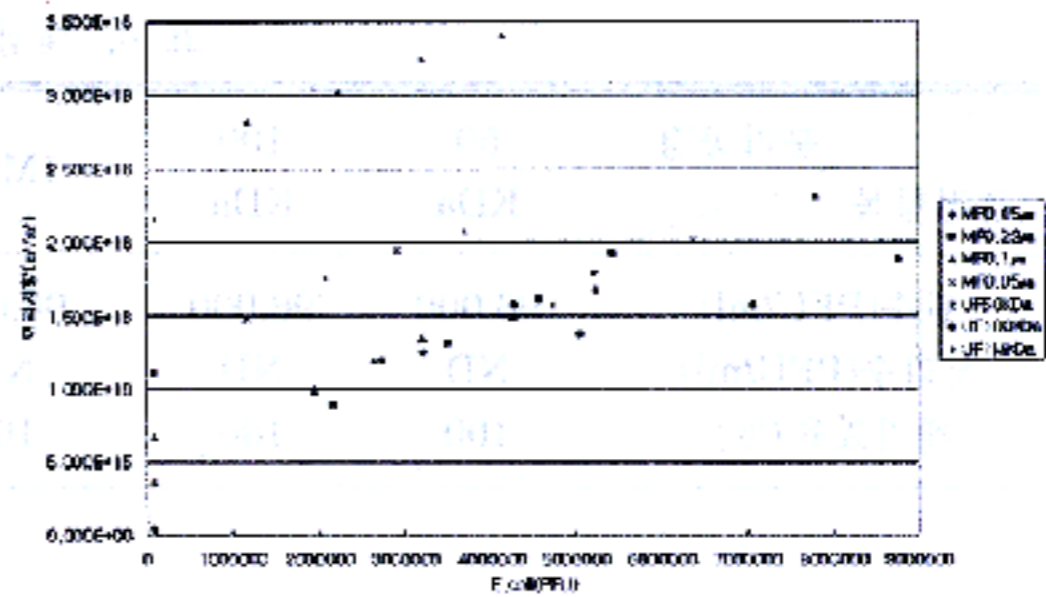


그림 4. 대장균 축식에 의한 여과 저항

였다.

MF막의 순수 투과플럭스를 분리 공경별로 비교할 때 0.05µm, 0.1µm, 0.22µm, 0.45µm의 순서대로 투과플럭스가 증가하는 경향을 보였다. 0.05µm가 가장 순수 투과플럭스가 작았고, 0.45µm가 가장 큰 수치를 보였다. 그 결과를 그림 3에 나타내었다.

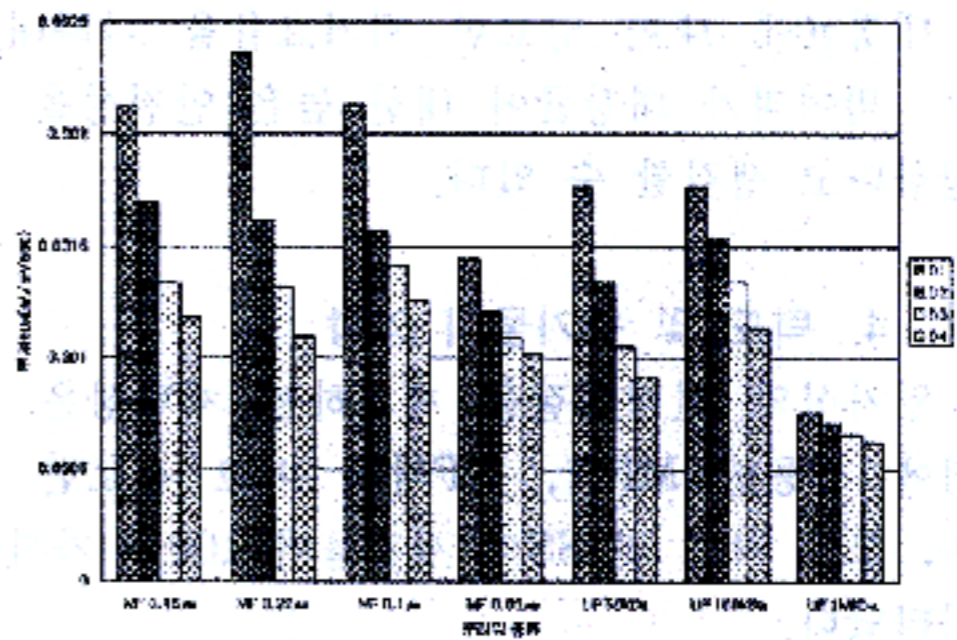


그림 5. 투과 플럭스 변화

2. 균류의 증식이 여과저항에 미치는 영향
대장균 층을 막면에 형성시켜 그 여과저항의 영향을 그림 4에 나타냈다. 막면에 대장균량이 축적되어감에 따라 전체적으로 여과저항 증가폭이 일정해지는 경향을 보였다. 분리 공경별로 비교할 때 MF 0.05µm, UF 1MDa를 제외한 나머지 MF 0.1µm, 0.22µm, 0.45µm, UF 50KDa는 거의 비슷한 영역에서 여과 저항 증가폭이 일정하였고, MF 0.05µm, UF 1MDa는 더 큰 여과 저항의 영역에 있었다.

실제 정수 처리에서 투과플럭스는 높게 안정적으로 유지되어야 하는데, 투과수량과 막오염의 관계를 보면 운전시간이 길어지고 투과수량이 많을수록 막오염이 증가하는 반비례의 관계를 가지므로 이런 것들을 모두 고려하여야 한다. 미생물 층을 형성시키고 그 위에 순수로 투과시키는 투과플럭스의 반복 측정으로 막오염 증가를 조사하여, 투과플럭스면에서 분리 공경별로 투과플럭스의 일정한 경향을 나타내는 것을 볼 수 있었다.

그림 5에서 UF 1MKDa와 MF 0.05µm는 처음부터 투과플럭스가 작았으며 그 후 감소도

줄어들었다. 이에 비해 나머지 경우는 통수개시 후 투과플럭스가 바로 0.0016m³/m²·sec 정도까지 급격하게 감소되었고, 그후 서서히 감소했다. 특히 분리 공경이 큰 막 0.45µm와 0.22µm는 투과플럭스 감소가 빨랐는데, 이것은 통수 후 초기 투과유량이 상대적으로 많기 때문에 막면에 축적되는 균류의 양이 많기 때문이라 사료된다.

3. 대장균의 제거 효율

일반적으로 대장균의 크기는 0.5~1µm로 알려져 있어, 0.5µm 이하의 막을 사용하면 이론상 대장균을 모두 제거할 수 있는 것으로 볼 수 있다.

본 실험에 사용한 막의 분리공경이 MF막의 공경별로 비교할 때 0.05µm, 0.1µm, 0.22µm, 0.45µm이고, UF막은 이것보다 더 작은 범위인 50KDa, 100KDa, 300KDa으로,

표 4. 대장균 제거 효율

분리공경	50 KDa	100 KDa	1MDa	0.05 μ m	0.1 μ m	0.22 μ m	0.45 μ m
원수(PFU/ml)	96,000	96,000	96,000	96,000	96,000	96,000	96,000
처리수(PFU/ml)	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
제거효율(%)	100	100	100	100	100	100	100

제균능은 원수농도 96000PFU/ml일 때 MF, UF막 모두 100%의 탁월한 제거 결과를 보였다. 그 결과를 표 4에 나타내었다.

대장균에 대한 양호한 제거효율을 나타내므로, 막여과가 대장균에 대한 높은 안전성을 보장한다고 생각할 수 있다.

4. 탁도 및 유기물의 영향

입자성의 현탁물질을 제거하는 제탁성은 실험에 사용한 MF막, UF막을 비교 검토한 결과, 모두 탁도 및 SS의 제거율이 100% 가까이 나타났다.

그러나 용존 유기물의 경우 처리수의 수질을 TOC로 분석한 결과를 비교하면 원수 중에 포함된 유기물 제거 측면에서 UF막과 MF막 간에 그다지 큰 차이를 나타내지 않는 것을 알 수 있었다. 그 결과를 그림 6에 나타내었다.

5. 원수 살균에 의한 연속운전실험

위와 같은 여러 가지 실험을 통한 결과와 성수 처리용 막분리 시스템은 대용량 처리를 목적으로한다는 점을 고려하여, 완벽한 현탁물질

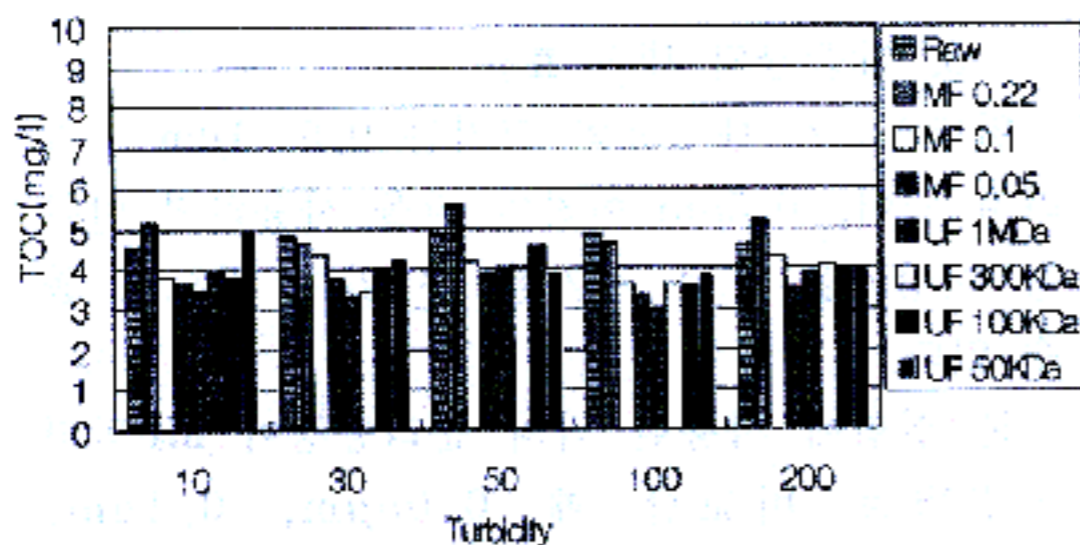


그림 6. 탁도 변화에 따른 TOC 제거율

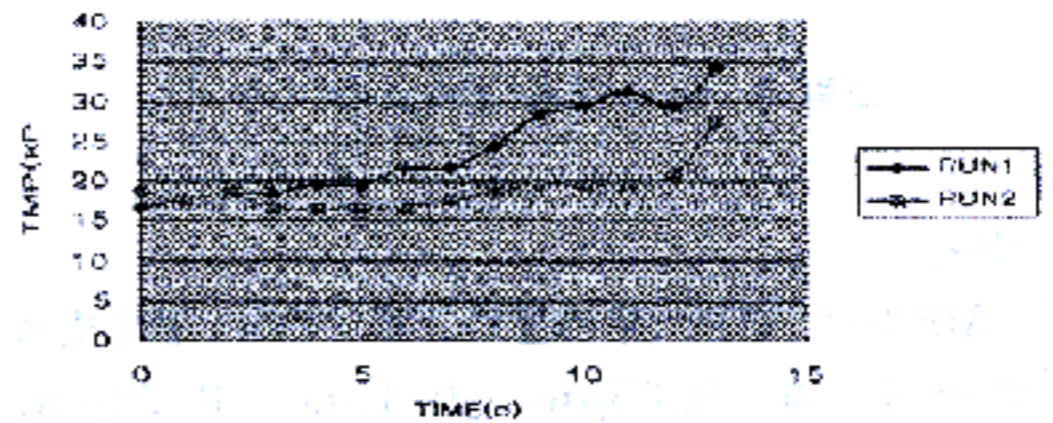


그림 7. 연속운전 실험 결과

의 제거와 동시에 가능한 많은 투과수를 얻을 수 있는 분리공경 0.1 μ m의 MF 증공사막을 이용하여 그림2와 같은 실험 장치로 원수를 자외선으로 살균하여 공급하는 방법과 살균하지 않고 공급하는 방법을 비교하여 약 2주간 연속운전실험을 행하였다. 그 결과를 그림 7에 나타내었다. 그림 7에서 보는 바와 같이 원수를 살균하여 공급하는 경우에 막오염을 상당 부분 감소시킬 수 있었다.

4. 결 론

본 연구에서 막면에서의 균류의 증식이 여과저항에 미치는 영향을 알아보기 위하여, 몇가지 실험을 통해 검토한 결과는 다음과 같다.

1) 막면에서의 균류에 의한 여과저항은 대장균 증이 축적되어감에 따라 전체적으로 여과저항 증가폭이 일정해지는 경향을 보였다. 분리공경별로 비교할 때 MF 0.05 μ m, UF 1MDa를 제외한 나머지 MF 0.1 μ m, 0.22 μ m, 0.45 μ m, UF 50KDa는 거의 비슷한 영역에서 여과저항 증가폭이 일정하였고, MF 0.05 μ m, UF 1MDa는 더 큰 여과저항 영역에 있었다.

2) 분리공경이 큰 0.45 μ m와 0.22 μ m의 경우

는 투과플럭스 감소가 빨라서, 실제 적용한 경우에는 여러 가지 복합된 원수 조건에 의해 초기의 투과플럭스 감소가 더욱 가속될 것을 고려하여 신중한 검토가 필요하다고 사료된다.

3) 대장균 제거능은 원수농도 96000PFU/ml 일 때 MF, UF막 모두 100%의 탁월한 제거효율을 나타내므로 대장균의 제거에 막여과는 높은 안전성을 보장할 수 있다고 사료된다.

4) 입자성의 한탄물질 제거능은 MF막, UF막 모두 탁도 및 SS의 제거율이 100% 가까이 나타났다.

5) 원수를 사외선으로 살균하여 공급한 경우에 막오염을 상당 부분 제어할 수 있는 것으로부터 막면에서의 균류의 증식이 막폐색을 일으키는 원인중의 하나라는 것을 알 수 있었고, 실제 적용되는 경우에는 막면에서 증식하는 균류와 콜로이드 등 무기물질과의 상호 작용에 의한 여과저항 메커니즘을 명확히 규명할 필요가 있다고 사료된다.

감사의 글

본 연구는 1997년 10월 부터 1998년 9월까지 한국학술진흥재단 신진교수 연구과제 지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. 新田 弘之 외 1인: "膜濾過를 이용한 淨水處理方法의 研究·開發과 課題", 첨단환경기술, Vol. 5, No. 4, pp.11-19, 1996
2. 藤田賢二, 渡邉海, 金子英廣: "精密ろ過及び限外ろ過膜による濁度, 大腸菌, ウイルス及びフミンの除去", 水道協會雜誌, 60(3), pp.13-18, 1991.
3. 藤田賢二 等: "精密濾過膜及び限外濾過膜による濁度, 大腸菌, ウイルス及びフミンの除去", 水道協會誌, 678, pp.13-18, 1993.
4. 趙奉行, 藤田賢二, 膜分離 淨水處理에 있어서 膜形象과 操作因子, 한국상하수도학회지, No. 4, pp.16-22, 1993.

5. 金炯秀: "膜分離淨水處理における膜閉塞抑制方法に関する研究", 東京大學 博士學位論文, 1994.
6. 金炯秀: 藤田賢二, "中空絲膜의 오존洗淨의 效果", 第45回 全國水道研究會表講演集, pp.124-125, 1994.
7. 김형수, 藤田賢二: "오존洗淨에 의한 膜閉塞抑制에 관한 研究" 대한상하수도학회지, 9(3), pp.78-87, 1995.
8. 白天 智章 外: 第47回, "中空絲 精密濾過膜의 膜막힘 因子에 관한 研究(I)", 全國水道研究發表會, pp.226-227.
9. 白天 智章 外: 第47回, "中空絲 精密濾過膜의 膜막힘 因子에 관한 研究(II)", 全國水道研究發表會, pp.228-229.
10. 瀧澤 智, 白川 智章, 藤田賢二, 大垣眞 郎, 大瀧 雅寬, "中空絲精密濾過膜의 膜目詰因子에 관한 研究(I)", 第45回 全國水道研究會 發表 講演集, pp.226-227, 1996.
11. 瀧澤 智, 白川 智章, 藤田賢二, 大垣眞 郎, 大瀧 雅寬, "中空絲精密濾過膜의 膜目詰因子에 관한 研究(II)", 第45回 全國水道研究會 發表 講演集, pp.228-229, 1996.
12. 瀧澤 智, 藤田賢二, 大垣眞-郎, 神子直之, 大瀧 雅寬, 安樂幸-, "膜分離淨水プロセスにおける紫外線照射前處理による膜目詰まりの抑制", 水環境學會誌, 18(11), pp.924-928, 1995.
13. 瀧澤ら, "中空絲 精密濾過膜의 膜目詰因子에 관한 研究", 第46回 全國水道研究會 發表 講演集, pp.238-239, 1995.
14. 瀧澤ら, "膜分離淨水プロセスにおける紫外線照射前處理による膜目詰의 抑制", 環境學會誌 18(11), pp.86-90, 1995.
15. 大垣ら, "紫外線前處理における膜濾過淨水システムの膜目詰抑制에 關する 考察", 第32回 全國環境工學研究發表(フォーラム)講演集, pp.63-65, 1995.
16. 貝谷ら, "淨水處理における汚染物質(II)", 第46回 全國水道研究會發表講演集, 1995.
17. 高橋, 大垣, 藤田賢二, 神子, 貝谷, "中空絲精密濾過膜による大腸菌ファージ及び從屬營養細菌의 除去特性", 水道協會雜誌, 63(4), pp.51-61, 1994.
18. 高橋, 大垣, 藤田賢二, 神子 等, "大ききの異なる2種의 膜濾過膜의 精密濾過膜에 對하여의 除去特性", 水道協會雜誌, 65(1), pp.15-23, 1996.