

## 활성슬러지 수용액 내 침지식 정밀여과용 중공사막의 산기량에 따른 임계 투과유속

정도인·정건용<sup>†</sup>

서울과학기술대학교 화공생명공학과  
(2016년 4월 20일 접수, 2016년 4월 27일 수정, 2016년 4월 28일 채택)

### Critical Flux with Respect to Aeration Rate for the Submerged Microfiltration Hollow Fiber Membrane in the Activated Sludge Solution

Doin Jeong and Kun Yong Chung<sup>†</sup>

Department of Chemical and Biomolecular Engineering,  
Seoul National University of Science and Technology, Seoul 01811, Korea  
(Received April 20, 2016, Revised April 27, 2016, Accepted April 28, 2016)

**요약:** 본 연구에서는 산기량의 변화에 따른 임계 투과유속을 투과유속단법으로 측정하였다. 유효 막 면적이 85 cm<sup>2</sup>이고 공칭 세공크기가 0.4 μm인 중공사형 막모듈을 MLSS 5,000 mg/L인 활성슬러지 수용액에 침지시켜 투과 실험하였다. 산기시키지 않을 경우 임계 투과유속은 15.2 L/m<sup>2</sup>·h로 측정되었으나 산기량을 100에서 1,000 mL/min까지 증가시키면 임계 투과유속이 20.6에서 32.5 L/m<sup>2</sup>·h까지 크게 상승하였다.

**Abstract:** In this study critical permeation flux was measured by the flux-step method with respect to aeration rate. The hollow fiber membrane module which has 85 cm<sup>2</sup> of effective area and 0.4 μm nominal pore size was submerged in the activated sludge solution of MLSS 5,000 mg/L. The critical flux for without aeration was measured of 15.2 L/m<sup>2</sup>·h. However, the critical flux increased from 20.6 to 32.5 L/m<sup>2</sup>·h as the aeration rate increased from 100 to 1,000 mL/min.

**Keywords:** critical flux, aeration rate, TMP, activated sludge, hollow fiber membrane

#### 1. 서론

분리막 생물반응기(membrane bioreactor, MBR)는 활성슬러지 반응조에 분리막을 침지시켜 분리막을 통과하는 투과수를 처리수로 생산하므로 유기물 처리성능, 안전성 및 효율성이 우수하며 장치 소요면적이 적게 필요한 장점이 있다[1]. 하지만 분리막 공정을 장기간 운전할 경우 불가피하게 동반되는 콜로이드성 물질과 각종 입자 성분 및 생물학적 물질에 의한 막오염이 지속적으로 발생한다. 특히 활성슬러지 수용액에서는 생물학적 플러크(floc)이 미생물의 대사과정에서 세포외 중합물질(extracellular polymeric substances, EPS)과 0.45

μm 이하의 용해성 대사 생성물질(soluble microbial products, SMP) 등으로 생성되어 심각한 막오염을 일으킨다[2,3]. 이러한 막오염은 분리막 표면위에 케이크 층이 형성되거나 분리막의 큰 세공 또는 세공의 일부분을 막음으로 수력학적 저항을 증가시킬 수 있다[4,5]. 특히 활성슬러지에 침지된 정밀여과용 분리막에 대한 막오염 모델은 선형압축성 케이크 오염 모델이 잘 적용됨을 알 수 있다[6]. 캐트리지형 가압식 막 모듈에 적용되는 정압운전 방식의 경우는 운전시간이 경과함에 따라 막오염이 발생하여 투과유속이 감소하며 침지식 MBR과 같은 흡입식 정용량 운전 방식에서는 분리막간 차압(transmembrane pressure, TMP)이 증가하여 분리막 운

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

**Table 1.** Water Quality for the Activated Sludge Solution

Variables	Values
COD <sub>tank</sub>	230~450 mg/L
COD <sub>permeate</sub>	30~45 mg/L
DO	1.2~2 mg/L
ORP	200~330 mV
PH	7 ± 0.5
Temperature	25 ± 1°C
MLSS	5,000 mg/L (± 5%)

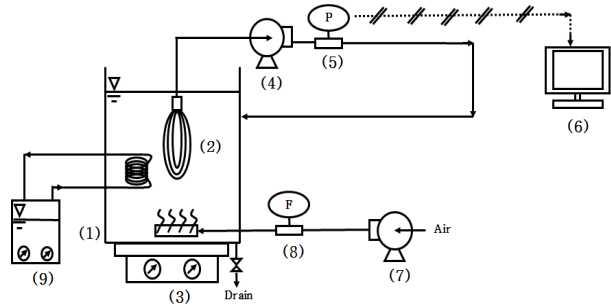
전 및 설계에 큰 어려움이 있다. MBR 공정에서는 막오염을 억제하기 위하여 일반적으로 과량의 공기를 반응조 하부에서 공급하여 막 모듈을 진동시키거나 또는 공기의 유동으로 분리막 표면의 축적물질을 감소시킬 수 있다. 또한 주기적으로 화학적 세정을 실시하여 비가역적 막오염을 감소시킬 수 있지만 이에 따른 화학약품비 또는 과량의 산기에 따른 에너지 비용의 상승 등으로 운전비용이 증가하게 된다[7]. 이 밖에 막오염을 최소화시키는 방안으로 모듈 디자인의 최적화, 간헐적 흡입, 임계 투과유속 이하 운전[8,9], 역세척[10,11], 응집제 주입[12] 등의 다양한 기술이 개발되고 있다. 그중 임계 투과유속은 장시간 안정적인 투과 운전이 가능한 한계 개념으로 사용된 이후[13] 투과유속이 증가함에 따라서 운전압력 의존영역에서 분리막 표면의 케이크층에 의존하는 물질전달 의존영역으로 전환되는 투과유속으로 사용되기도 한다[14]. 임계 투과유속은 분리막 모듈의 설계와 운전 방식에 크게 의존하게 되며, 최근에 분리막 표면에 가역적으로 막오염이나 흡착이 발생하여 화학약품 등을 사용하지 않고 물리적으로 투과유속을 회복 가능한 한계로 적용하고 있다[15-19].

본 연구에서는 활성슬러지 수용액에 침지된 중공사막형 분리막 모듈에 투과유속을 서서히 증가시키면서 이에 따른 TMP를 측정하여 임계 투과유속의 조건을 확립하고, 이를 분리막 운전 및 설계의 기초자료로 활용하고자 하였다.

## 2. 실험 장치 및 실험 방법

### 2.1. 분리막 모듈

투과실험에 사용한 정밀여과용 중공사막은 P사의 polyester 재질에 hydrophilic PVDF (polyvinylidene fluoride)로 코팅되었으며 공칭 세공크기는 0.4 μm이고



(1) MBR Reactor (2) Hollow Fiber Module (3) Magnetic Stirrer  
(4) Suction Pump (5) Pressure Gauge (6) Computer (7) Air Pump  
(8) Air Flowmeter (9) Constant Temperature Circulator

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

내경 1.0 mm, 외경 2.3 mm이었다. 이상의 중공사막을 길이 400 mm인 3가닥으로 양끝을 접어 처리수가 모일 수 있도록 3/8 inch PVC 튜브 내에 삽입하고 에폭시로 밀봉하여 U자 형태의 모듈을 제작하여 사용하였으며 유효 막 면적은 약 85 cm<sup>2</sup>이었다.

### 2.2. 활성슬러지의 특성 및 수질 측정 방법

활성슬러지는 경기도 U시 하수처리장의 반송슬러지를 채취하여 실험에 적합하도록 순응시킨 후 사용하였다. 또한 미생물의 생장을 조절하기 위하여 종균제를 주입하였다. 활성슬러지의 용존산소(dissolved oxygen: DO), pH, ORP (oxidation reduction potential), 온도, MLSS (mixed liquor suspended solid) 및 COD (chemical oxygen demand)는 Table 1과 같이 관리하였으며 MLSS는 5,000 mg/L로 실험하였다. COD는 해당 범위에 맞는 수질 분석키트(HS-COD-MR, HS-COD-LR)를 이용하여 150°C에서 2시간 전처리 후 UV 분광기로 분석하였다. 활성슬러지조 내 수용액의 COD<sub>tank</sub>는 230~450 mg/L이었으며 분리막을 통과하여 처리된 투과수의 COD<sub>permeate</sub>는 30~45 mg/L로 87% 이상의 COD 배제율을 나타내었다.

### 2.3. 실험 장치

투과실험에 사용한 실험장치의 개략도는 Fig. 1에 나타내었다. 20 L 크기의 생물반응조(1) 내에 중공사막형 분리막 모듈(2)을 침지시키고 교반기(3)를 이용하여 활성슬러지 수용액을 일정하게 혼합하였다. 중공사막 모듈에 연결된 흡입펌프((4), Jeniewell JWS-500)를 이용하여 투과유속을 조절하였다. 투과운전시의 생성되는 TMP는 압력계((5), Sensys PTDC-100 RCIA)로 측정하여 UTP 케이블로 연결된 컴퓨터(6)에 실시간으로 저장

되었다. 공기는 air pump ((7), (주)동양사, DY-40)를 사용하여 생물반응조 하부에 설치된 산기관을 통하여 미세기포로 공급하였다. 산기량은 air flowmeter (8)에 부착된 밸브를 이용하여 적절하게 조절하였다. 또한 항온조(9)를 이용하여 활성슬러지조의 온도를 일정하게 유지시켰다.

## 2.4. 실험 방법

### 2.4.1. 임계 투과유속 실험

중공사형 분리막의 임계 투과유속을 측정하기 위하여 활성슬러지 저장조 내에 중공사막 모듈을 침지시키고 투과유속을 점진적으로 증가시키는 투과유속단법(flux-step method)을 기반으로 실험하였다[15,19]. 모든 실험은 비가역적 오염으로 인한 막의 손상을 최소화하기 위하여 45 kPa 이하에서 운전하였다. 활성슬러지조에 공기를 산기시키지 않을 경우에는 6부터 22 L/m<sup>2</sup>·h까지 15분 단위로 2 L/m<sup>2</sup>·h씩 상승시킨 후 동일한 방법으로 2 L/m<sup>2</sup>·h씩 감소시키면서 연속적으로 TMP를 측정하였다. 또한 활성슬러지조 하부에서 산기시킬 경우에는 공기방울 상승으로 인하여 막오염이 감소될 것으로 예상되어 100, 300, 500 및 1,000 mL/min로 산기시 투과유속을 6 L/m<sup>2</sup>·h로부터 15분 단위로 투과유속을 각각 2.2, 2.5, 3.0 및 3.5 L/m<sup>2</sup>·h씩 증가시키면서 각각 최대 28, 31, 36 및 41 L/m<sup>2</sup>·h까지 상승시킨 후 동일한 투과유속과 운전시간으로 감소시켰다.

### 2.4.2. 분리막 세정

일련의 투과유속 실험을 마친 후에는 분리막 모듈을 활성슬러지조에서 빼내 순수에 침지시키고 진동시켜 분리막 표면에 붙어있는 슬러지 입자들을 물리적으로 세척하였다. 계속하여 비가역 막오염을 회복하기 위하여 0.5 wt% NaOCl 수용액에 침지시켜 30분간 화학적으로 세척하였다. 그 후, 분리막 모듈을 순수에 침지시켜 투과유속 20 L/m<sup>2</sup>·h로 유지시키면서 TMP를 측정하였고 이 값이 초기 순수로 측정한 TMP와 5% 이상 오차가 발생하면 분리막 모듈을 교체하였다.

## 3. 실험 결과 및 고찰

### 3.1. 산기량에 따른 TMP 변화

산기량 0, 100, 300, 500 및 1,000 mL/min에 따른 투과유속과 TMP의 변화를 Fig. 2에 나타내었다. 활성슬

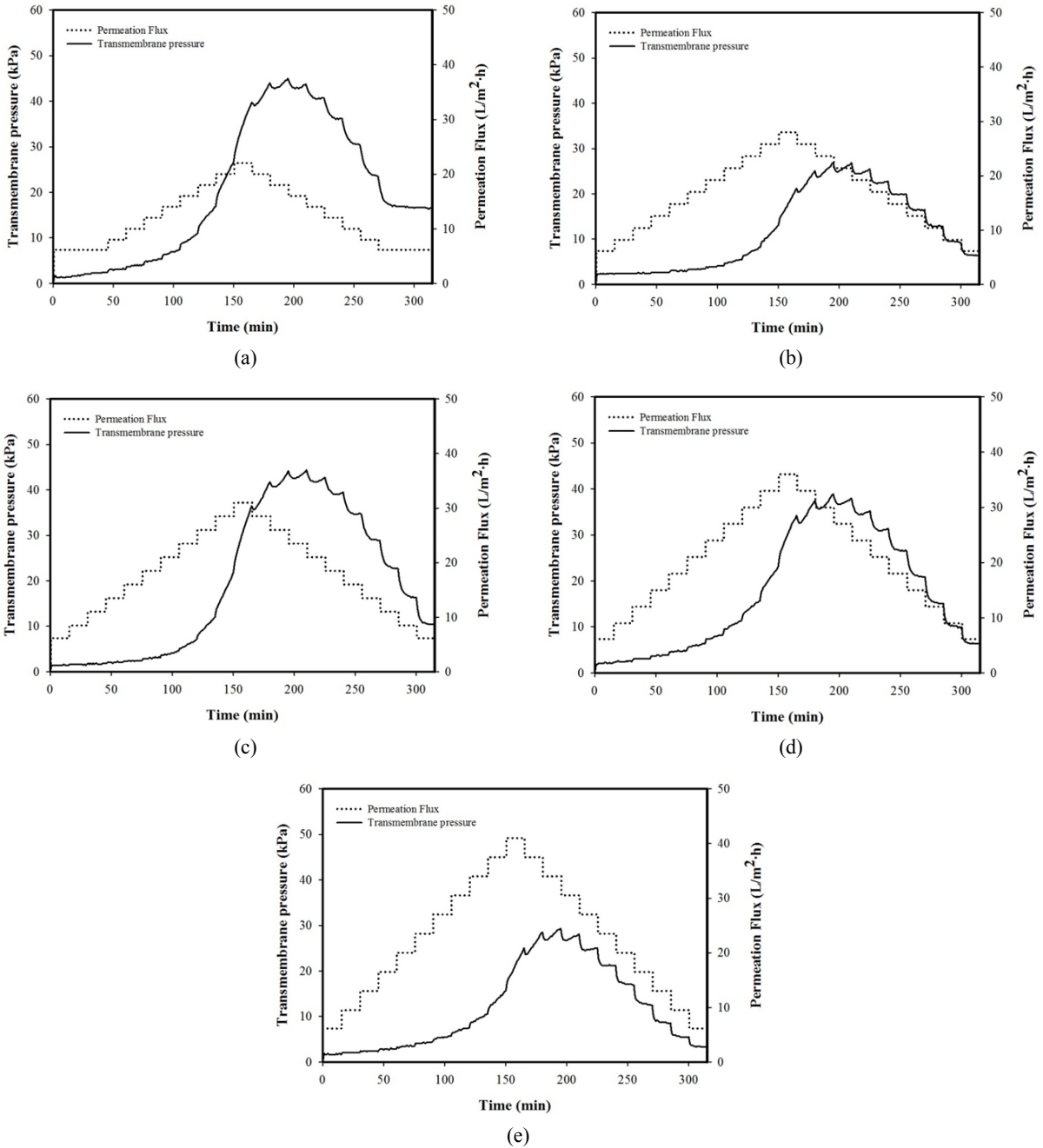
러지조에 공기를 공급하지 않을 경우는 Fig. 2(a)에서와 같이 초기에 6 L/m<sup>2</sup>·h에서 1.7 kPa부터 서서히 증가하여 최대 투과유속인 22 L/m<sup>2</sup>·h에서 40 kPa에 도달하였다. 그 후 투과유속은 감소시켰지만 TMP는 운전시간이 195분일 때 최대 45 kPa까지 증가하였으며 그 후에 급격하게 감소하여 16.6 kPa에 도달하였다. 따라서 투과실험 초기와 비교하면 14.9 kPa이 상승함을 확인하였다. 산기량이 100 mL/min일 경우, Fig. 2(b)에서와 같이 투과유속에 따른 TMP는 2.3 kPa에서부터 증가하여 최대 투과유속인 28 L/m<sup>2</sup>·h에서 21.2 kPa에 도달하였고 운전시간 195분에 이르러 최대 26.9 kPa까지 상승하고 단계적으로 감소하여 6.4 kPa에 도달하였다. 산기량이 300 mL/min일 경우, Fig. 2(c)에서와 같이 투과유속에 따른 TMP는 1.5 kPa에서부터 증가하여 최대 투과유속 31 L/m<sup>2</sup>·h에서 36.4 kPa에 도달하였고 운전시간 210분일 때 최대 44.4 kPa까지 상승한 후 단계적으로 감소하여 10.2 kPa에 도달하였다. 산기량이 500 mL/min일 경우, Fig. 2(d)에서와 같이 투과유속에 따른 TMP는 1.9 kPa에서부터 증가하여 최대 투과유속 36 L/m<sup>2</sup>·h에서 34.2 kPa에 도달하였고 운전시간 195분일 때 최대 38.9 kPa까지 상승한 후 단계적으로 감소하여 6.4 kPa에 도달하였다. 산기량을 1,000 mL/min으로 증가시키면 Fig. 2(e)에서와 같이 투과유속에 따른 TMP는 1.9 kPa에서부터 증가하여 최대 투과유속 41 L/m<sup>2</sup>·h에서 25.1 kPa에 도달하였고 운전시간 195분일 때 최대 29.3 kPa까지 상승한 후 단계적으로 감소하여 3.3 kPa에 도달하였다.

### 3.2. 임계 투과유속

임계 투과유속보다 낮은 영역에서 1/J dTMP/dt의 기울기는 활성슬러지 중 비침강 물질에 기인한 가역적 저항과 관련이 있으며 식 (1)과 같이 나타낼 수 있다. 또한 임계 투과유속보다 높은 영역에서 1/J dTMP/dt는 활성슬러지의 막오염 용량과 임계 투과유속을 초과하는 J-J<sub>c</sub>의 곱으로 식 (2)와 같이 표현할 수 있다.

$$\frac{1}{J} \frac{dTMP}{dt} = k_{ns} J \quad J < J_c \quad (1)$$

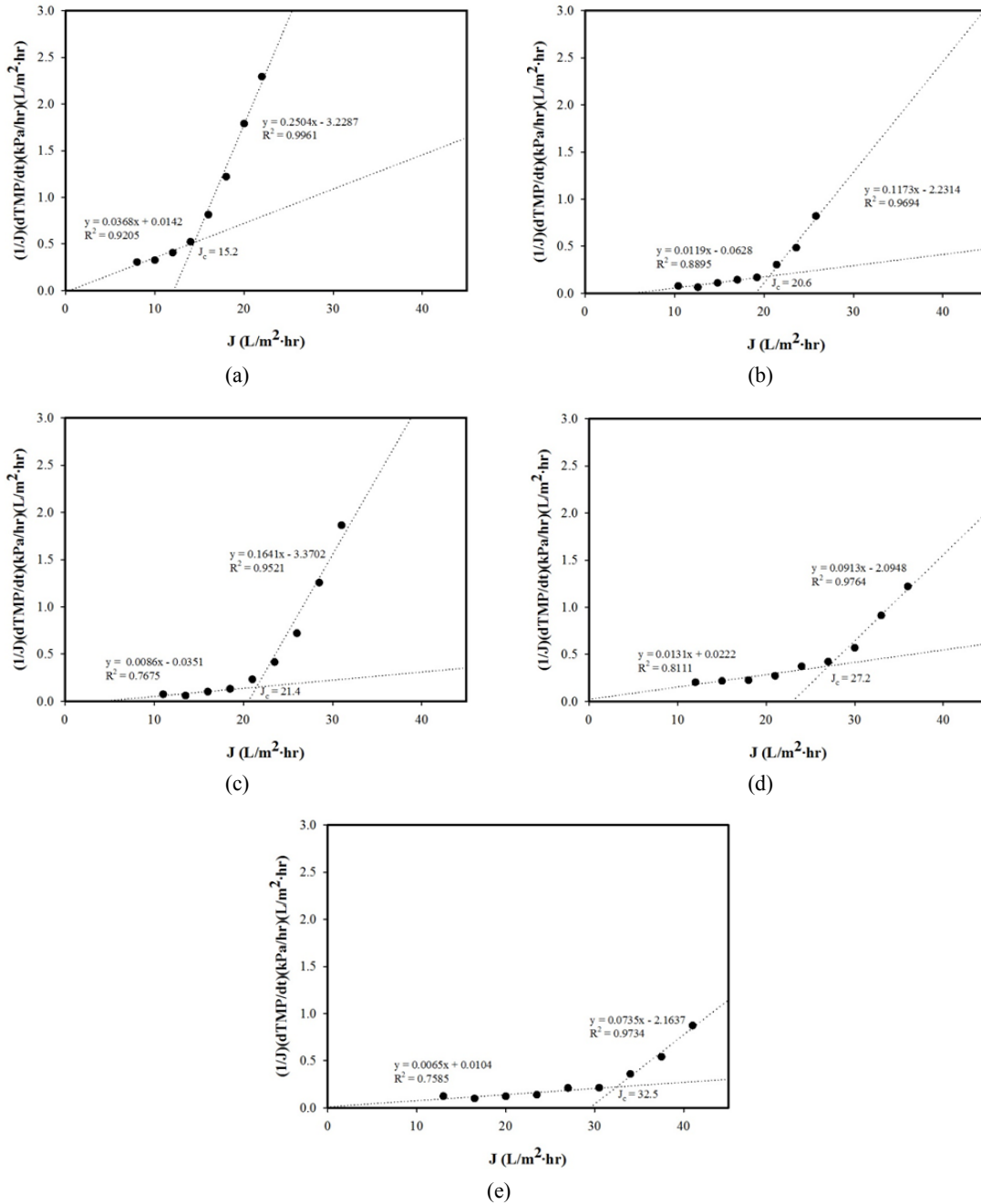
$$\frac{1}{J} \frac{dTMP}{dt} = k_{ml}(J - J_c) \quad J > J_c \quad (2)$$



**Fig. 2.** Transmembrane pressure and permeation flux for the activated sludge solution with aeration rate of (a) 0, (b) 100, (c) 300, (d) 500 and (e) 1,000 mL/min.

여기에서  $J$ ,  $J_c$ 는 각각 투과유속과 임계 투과유속을 나타낸다.  $k_{ns}$ 는 비침강 오염용량(fouling capacity of the non-settable fraction)이고  $k_m$ 는 활성슬러지의 오염용량(fouling capacity of the mixed liquor)으로 투과액의 농도, 점도, 비저항(specific resistance) 및 접착 효율인자(attachment effectiveness factor)의 곱으로 표현할

수 있다[18]. 특히 비저항은 케이크를 구성하는 슬러지의 입자크기와 케이크의 공극률에 의존하며 케이크 단위질량에 작용하는 압력저항에 해당한다.  $J$ 에 대하여  $\frac{1}{J} \frac{dTMP}{dt}$ 을 나타내면 원점을 관통하는 식 (1)과  $k_m k_c J_c$ 의 절편값을 지니는 식 (2)로 나타낼 수 있으며 이 2개 직



**Fig. 3.** Transmembrane pressure rate divided by the permeation flux versus the flux in order to determine the critical flux for the activated sludge with aeration rate of (a) 0, (b) 100, (c) 300, (d) 500 and (e) 1,000 mL/min.

선의 교차점과 각각의 기울기로부터 임계 투과유속과  $k_{ns}$  및  $k_{ml}$ 를 구할 수 있다.

따라서 Fig. 2의 투과실험으로부터 각각의 임계 투과유속을 구하기 위하여 시간에 대한 TMP의 미분형인  $\frac{1}{J} \frac{dTMP}{dt}$ 를 계산하여 Fig. 3과 같이 나타내었다. 각각의

1차 회귀선의 기울기로부터  $k_{ns}$  및  $k_{ml}$ 를 구하였으며 또한 교차점으로부터 임계 투과유속을 외삽하여 Table 2에 요약하였다. 산기량이 0에서 100, 300, 500 및 1,000 mL/min로 증가함에 따라서 임계 투과유속이 각각 15.2, 20.6, 21.5, 27.2 및 32.5  $\text{L} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{hr}$ 로 증가함을 확인할 수 있었다. 또한 산기량이 증가함에 따라서 비침

**Table 2.** Critical Flux ( $J_c$ ), Fouling Capacity of the Non-settable Fraction ( $K_{ns}$ ) and the Mixed Liquor ( $K_{ml}$ ) with Respect to Aeration Rate

Aeration (mL/min)	$J_c$ ( $L/m^2 \cdot h$ )	$k_{ns} \left( \frac{kPa}{(L/m^2 \cdot h)^2 \cdot min} \right)$	$k_{ml} \left( \frac{kPa}{(L/m^2 \cdot h)^2 \cdot min} \right)$
0	15.2	0.0368	0.2504
100	20.6	0.0119	0.1173
300	21.5	0.0086	0.1641
500	27.2	0.0131	0.0913
1,000	32.5	0.0065	0.0735

강 및 활성슬러지의 오염용량인  $k_{ns}$ 와  $k_{ml}$ 이 낮아지는 경향을 보였다. 특히 산기량을 0에서 100 mL/min로 증가시킬 경우  $k_{ns}$ 와  $k_{ml}$ 의 값은 0.0368 및 0.2504  $kPa/((L/m^2 \cdot h)^2 \cdot min)$ 에서 각각 0.0119 및 0.1173  $kPa/((L/m^2 \cdot h)^2 \cdot min)$ 으로 1/3 내지 1/2로 급격하게 감소함을 알 수 있었다. 하지만 투과실험과 동시에 TMP를 미분하는 과정에서 오차가 발생하여 산기량 300 mL/min일 때  $k_{ml}$ 과 산기량이 500 mL/min일 때  $k_{ns}$ 가 산기량에 따른 전반적인 경향에서 벗어남을 알 수 있었다.

#### 4. 결 론

활성슬러지 수용액 내에 실험실적 규모의 중공사막 모듈을 침지시키고 산기량에 따른 막오염 절감 효과를 평가하기 위하여 투과유속단법(flux-step method)을 기반으로 임계 투과유속을 측정하였다. 분리막 모듈에 공기를 공급하지 않을 경우 임계 투과유속은  $15.2 L/m^2 \cdot h$ 로 매우 낮았지만, 투과 실험 중 최저치인 100 mL/min를 산기시켜도 임계 투과유속이  $20.6 L/m^2 \cdot h$ 로 35% 가량 증가하였다. 산기량을 더욱 증가시키면 임계 투과유속 역시 증가하였으며 최대 1,000 mL/min까지 증가시킬 경우 임계 투과유속이  $32.5 L/m^2 \cdot h$ 까지 증가함을 확인하였다. 또한 산기량이 증가함에 따라서 비침강 및 활성슬러지의 오염용량인  $k_{ns}$ 와  $k_{ml}$ 은 산기량을 0에서 100 mL/min로 증가시킬 경우 각각 1/3 내지는 1/2로 급격하게 감소하였다. 따라서 산기량을 증가시키면 임계 투과유속은 지속적으로 증가하고 막오염은 감소하지만, 산기에 필요한 소요 동력을 고려하면 산기량이 100 mL/min일 경우 가장 경제적인 운전 조건으로 평가된다.

#### 감 사

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

#### Reference

1. K. Sutherland, “The rise of membrane bioreactors”, *Filtr. Separat.*, **47**, 14 (2010).
2. M. Pribyl, F. Tucek, P. A. Wilderer, and J. Wanner, “Amount and nature of soluble refractory organics produced by activated sludge micro-organisms in sequencing batch and continuous flow reactors”, *Water Sci. Technol.*, **35**, 27 (1997).
3. V. J. Boero, W. W. Eckenfelder, Jr., and A. R. Bowers, “Soluble microbial product formation in biological systems”, *Water Sci. Technol.*, **23**, 1067 (1991).
4. J. Hermia, “Constant pressure blocking filtration laws-application to power-lar non-newtonian fluids”, *Trans. Inst. Chem. Eng.*, **60**, 183 (1982).
5. S. Chellam and W. Xu, “Blocking laws analysis of dead-end constant flux microfiltration of compressible cakes”, *J. Colloid Interf. Sci.*, **301**, 248 (2006).
6. D. C. Kim and K. Y. Chung, “Membrane fouling models for activated sludge cakes”, *Membr. J.*, **24**, 249 (2014).
7. A. Fenu, J. Roels, T. Wambecq, K. De Gussem, C. Thoeye, G. De Gueldre, and B. V. D. Steene, “Energy audit of a full scale MBR system”, *Desalination*, **262**, 121 (2010).
8. J. Lebegue, M. Heran, and A. Grasmick,

- “Membrane bioreactor: distribution of critical flux throughout an immersed HF bundle”, *Desalination*, **231**, 245 (2008).
9. W. S. Guo, S. Vigneswaran, H. H. Ngo, and W. Xing, “Experimental investigation on acclimatized wastewater for membrane bioreactors” *Desalination*, **207**, 383 (2007).
  10. 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).
  11. Y. K. Choi, O. S. Kwon, H. S. Park, and S. H. Noh, “Mechanism of gel layer removal for intermittent aeration in the MBR process”, *Membr. J.*, **16**, 188 (2006).
  12. 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).
  13. R. W. Field, D. Wu, J. A. Howell, and B. B. Gupta, “Critical flux concept for microfiltration fouling”, *J. Membr. Sci.*, **100**, 259 (1995).
  14. E. H. Bouhaba, R. Ben Aim, and H. Buisson, “Microfiltration of activated sludge using submerged membrane with air bubbling”, *Desalination*, **118**, 315 (1998).
  15. 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.*, **227**, 81 (2003).
  16. P. Marel, A. Zwijnenburg, A. Kemperman, M. Wessling, H. Temmink, and W. Meer, “An improved flux-step method to determine the critical flux and the critical flux for irreversibility in a membrane bioreactor”, *J. Membr. Sci.*, **332**, 24 (2009).
  17. S. Chellam and N. G. Cogan, “Colloidal and bacterial fouling during constant flux microfiltration: Comparison of classical blocking laws with a unified model combining pore blocking and EPS secretion”, *J. Membr. Sci.*, **382**, 148 (2011).
  18. V. Diez, D. Ezquerro, J. L. Cabezas, A. Garcia, and C. Ramos, “A modified method for evaluation of critical flux, fluxing rate and in situ determination of resistance and compressibility in MBR under different fouling conditions”, *J. Membr. Sci.*, **453**, 1 (2014).
  19. D. Jeong, S. H. Jung, S. Lee, and K. Y. Chung, “Transmembrane pressure with respect to backwashing and sinusoidal flux continuous operation modes for the submerged hollow fiber membrane in the activated sludge solution”, *Membr. J.*, **25**, 524 (2015).