

마이크로버블을 이용한 분리막 파울링 저감방법

구경환^{1,2}, 김영희^{1*}

¹호서대학교 벤처대학원 융합공학과
호서대학교 서울캠퍼스 서울특별시 남부순환로 2497

²주신우엔지니어링
경기도 의정부시 문충로 74, 한강듀클래스 지식산업센터 B동 316,317호

(2023년 1월 25일 접수; 2023년 2월 13일 수정본 접수; 2023년 3월 2일 채택)

Method of Reducing Separation Membrane Fouling Using Microbubbles

Kyung-Hwan Ku^{1,2} and Younghee Kim^{1*}

¹Hoseo Graduate School of Ventures

2497, Nambusunhwan-ro, Seocho-gu, Seoul Republic of Korea

²Room 316,317, Building B, Hangang Duclass Knowledge Industry Center,

74, Mungung-ro, Uijeongbu-si, Gyeonggi-do, Republic of Korea SINWOO Engineering Co., Ltd

(Received for review January 25, 2023; Revision received February 13, 2023; Accepted March 2, 2023)

요 약

수자원 오염 그리고 기후변화로 인한 극한의 기상현상으로 물 부족 현상 심화로 공공하수처리 시설의 폐수 배출시 총유기탄소량(TOC) 기준이 시행되고, 대체 수자원 확보를 위해 하수처리수 재이용에 연구와 관심이 증가하고 있다. 현장에서는 하폐수고도처리로 MBR(membrane bio-reactor)공법을 보편적으로 사용하며, 유기 및 무기 이온 제거 그리고 화학물질의 사용 및 배출이 없다는 친환경적인 장점이 있다. 하지만, 분리막을 사용한 MBR공정은 고농도 활성슬러지 부유물질(mixed liquor suspended solid, MLSS)로 인한 분리막의 막오염(파울링) 현상으로 잦은 막세정 비용 발생의 문제가 있다. 본 연구에서는 분리막 운영시 최대 단점이었던 분리막의 차압 상승, 통수량 저하, 파울링 현상을 개선하고자 i) 공정 개선과 ii) 마이크로버블의 세정 효율을 평가하였다. 기존 MBR공법에 원수가 유입되는 호기조와 MBR조 사이에 침전조를 설치하여 침전조를 거친 상등수가 유입된 분리막조 내부로 마이크로버블을 주입하였다. 마이크로버블은 5개월간 15일 간격으로 마이크로버블 발생장치를 작동(ON), 미작동(OFF)하여 방류수 시료(4L)를 채취 후 TOC를 측정하였다. 침전조를 거친 상등수가 분리막조로 유입하여 원수 MLSS의 95%이상 제거되어 생물막 등의 오염으로부터 막의 파울링 현상을 1차 방지할 수 있었다. 침전조를 거친 상등수에 마이크로버블의 적용으로 분리막의 차압은 1.6 ~ 2.3배 감소 및 통수량은 최대 1.4배 증가하였다. 마이크로버블의 적용(ON)으로 TOC 제거율은 58% 이상 증가했다. 호기조와 분리막조를 분리 운영함에 따라 침식식 분리막의 파울링 현상을 저감할 수 있고, 추가로 마이크로버블을 적용하여 분리막의 차압, 통수량과 막오염(파울링)이 개선으로 효율적인 고도처리공법을 제시했다.

주제어 : 마이크로버블, 파울링, MBR공법, TOC 제거, 분리막

Abstract : Due to water shortages caused by water pollution and climate change, total organic carbon (TOC) standards have been implemented for wastewater discharged from public sewage treatment facilities. Furthermore, there is a growing interest and body of research pertaining to the reuse of sewage treatment water as a secure alternative water resource. The membrane bio-reactor (MBR) method is commonly used for advanced wastewater treatment because it can remove organic and inorganic ions and it does not require or emit any chemicals. However, the MBR process uses a separation membrane (MF), which requires frequent film cleaning due to fouling caused by a high concentration of mixed liquor suspended solid (MLSS). In this study, process improvement and microbubble cleaning efficiency were evaluated to improve the differential pressure, water flow, and MF fouling, which are the biggest disadvantages of operating the MF. The existing MBR method was improved by installing a precipitation tank between the air tank and the MBR tank in which raw water was introduced. Microbubbles were injected into a

* To whom correspondence should be addressed.

E-mail: yhkim514@hoseo.edu; Tel: +82-2-2059-2354; Fax: +82-2-707-5770

doi: 10.7464/ksct.2023.29.1.31 pISSN 1598-9712 eISSN 2288-0690

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

separation membrane tank into which the supernatant water from the precipitation tank was introduced. The microbubble generator was operated with a 15 day on, 15 day off cycle for 5 months to collect discharged water samples (4L) and measure TOC. As the supernatant water from the precipitation tank flowed into the separation membrane tank, about 95% of the supernatant water MLSS was removed so the MF fouling from biological contamination was prevented. Due to the application of microbubbles to supernatant water from the precipitation tank, the differential pressure of the separation membrane tank decreased by 1.6 to 2.3 times and the water flow increased by 1.4 times. Applying microbubbles increased the TOC removal rate by more than 58%. This study showed that separately operating the air tank and the separation membrane tank can reduce fouling, and suggested that applying additional microbubbles could improve the differential pressure, water flow, and fouling to provide a more efficient advanced treatment method.

Keywords : Microbubbles, Fouling, MBR method, TOC removal, Separation membrane

1. 서 론

산업 발전과 도시화에 따른 수자원 오염 그리고 기후변화로 인한 극한의 기상현상(몬순, 가뭄 등)으로 물 부족 현상이 전 세계적으로 심각해지고 있다. 환경부는 공공하수처리 시설의 폐수 배출기준 강화의 일환으로 총유기탄소량(Total organic carbon, TOC) 배출기준을 적용(2020.1.1 시행)하고, 수질원격감시장치(tele-monitoring system, TMS) 설치 운영으로 수소이온 농도(pH), 유기물질(biochemical/chemical oxygen demand, BOD/COD), 부유물질(suspended solid, SS), 영양염류(total nitrogen/phosphorus, TN/TP) 배출을 24시간 관리하여 방류수 수질 개선을 위한 정책을 시행하고 있다[1].

산업 부분에서는 대체 수자원 확보를 위해 빗물, 중수, 해수 담수화, 하수처리수 재이용 등에 연구와 관심이 증가하고 있다. 우리나라는 2001년에 하수처리수 재이용을 의무화(1일 하수처리용량 5,000 m³ 이상의 공공하수처리시설) 이후, 공공하수처리수 재이용률은 2.9%(2001년)에서 15.4%(2021년)로 매년 증가하는 추세이다[2,3]. 국내 하수처리수 재이용은 단순 전처리 후 대부분 처리장 장내용수(53.1%)와 하천유지용수(33.2%)로 사용되며, 공업용수로 이용하기 위해서는 고도처리로 정수에서 초순수의 수질 등급이 요구된다[2]. 대표적인 고도처리 방법으로 A2/O(anaerobic-anoxic-oxic), UCT(university of cape town), MBR(membrane bio-reactor), MUCT(modified UCT), VIP(virginia polytech institue) 등의 질소 및 인 제거공정이 있다[4-6].

현장에서는 하폐수고도처리로 MBR공법을 보편적으로 사용하며, 분리막 기술을 이용한 수처리 공정은 수중 내 유기 및 무기 이온 등을 제거에 이용되며, 화학물질의 사용 및 배출이 없어 친환경적인 장점이 있다[7]. 분리막은 기공 크기에 따라 하폐수처리 분야에서 사용되는 정밀여과막(microfiltration, MF, 기공크기: 100~500 nm), 한외여과막(ultrafiltration, UF, 2~100 nm)과 정수처리 및 해수담수화 분야에서 사용되는 나노여과막(nanofiltration, NF, 0.6~1 nm), 역삼투막(reverse osmosis, RO, < 0.6 nm)으로 구분된다[7-10].

그러나 분리막(MF)을 사용한 MBR공정은 운전시에 반응조 내부에 존재하는 활성슬러지 플록(floc), 미생물이 분비한 세포 외 중합 물질(extracellular polymeric substance, EPS)와 콜로이드성 물질들이 분리막 표면에서 부착 성장하여 생물막(biofilm)

형성으로 막오염(fouling)을 야기시킬 수 있다[11]. 특히, 하폐수처리수는 미생물을 포함한 입자 성분과 콜로이드 물질(0.1~0.45 μm), 고분자 유기물(0.01~0.1 μm) 등이 다량 포함되어 있다[12,13]. 분리막 표면에 형성된 생물막은 분리막 성능 저하, 막오염 세정시 미생물 그 자체뿐만 아니라 미생물의 대사산물에 의한 2차 오염 유발, 생물막의 저항에 의한 투수율 감소로 더 높은 운전압력(transmembrane pressure, TMP) 요구로 에너지 사용이 증가하는 문제가 있으며[14,15], 현장에서는 분리막조의 수위 범람과 잦은 막세정 작업으로 과다한 관리비용 발생 및 작업자의 현장피로감을 호소하고 있다.

생물막 형성 방지와 투과성 증대를 위한 일반적인 방법으로 주기적인 물리적 세척, 유입수 수질 개선(염소 처리, 응집제 처리), 분리막 모듈 구성 및 운전 방식의 변화 등이 있다. 스크러빙(scrubbing), 플러싱(flushing), 역세척(back-washing) 등과 같은 물리적 세척 방법은 생물막 제거가 어려울 뿐만 아니라 세척 시 분리막에 물리적 손상을 가할 수 있다[14-16]. 유입수 염소소독으로 생물 성장 제어방법은 소독시 사용하는 차아염소산나트륨(NaOCl)이 수중에 잔류하여, 유기물과 반응 후 트리할로메탄(trihalomethane, THM)과 할로아세트익시드(haloacetic acid, HAA)와 같은 발암성 소독부산물을 생성할 수 있다[17]. 또한, 생물막 오염 제거를 위한 화학약품(염소, 알칼리, 킬레이트, 계면활성제 등)의 과량 사용은 환경에 유해할 뿐만 아니라 분리막의 비가역적 손상으로 수투과도 및 제거율이 감소되어 막의 교체주기가 단축된다[18,19].

이러한 문제로 화학적인 방법 적용보다는 막오염을 최소화하기 위해 막표면에 공기를 과잉 공급하여 전단력(shear force)을 발생시켜 이물질을 탈리시키는 방법을 연구 및 채택하고 있다[20]. 최근에는 막오염 제어를 위해 마이크로버블을 적용하여 오염물질을 부상시켜 제거한 연구가 발표되고 있다[21]. 마이크로버블에 기반을 둔 응용기술 분야로는 수질개선 정화기술, 하수처리와 분뇨처리 기술, 용존산소량 증가를 위한 산소 발생기 응용기술, 오일 플러싱 등이 있다[22-26].

마이크로버블은 폐수처리에서는 부유물 분리를 위해 직경 10~50 μm의 크기를 이용하며, 처리방법에 따라 생물처리에서는 약 50 μm, 산화분해에서는 10~30 μm가 사용된다[27]. 마이크로버블은 분당 1~3 mm의 느린 속도로 상승하며, 수중 체류 시간이 길고, 상승하며 점점 작아짐에 따라 내압 증가로 수축 후 완전히 용해되는 특징이 있다[28]. 이러한 성질로 일반 버블

에 비하여 그 크기가 작아 비표면적이 증대됨으로써 최소의 동력만으로 질량 전달율이 극대화되어 기존 밀리버블을 사용한 부상분리 공정에 비하여 고/액분리 효율과 용해 효율이 높다 [29]. 즉, 기포와 입자들의 충돌 가능성 증가로 입자들이 보다 쉽게 부상한다. 또한, 소멸되는 마이크로버블은 초음파와 높은 음압을 생성하며 순간적으로 4,000~6,000 °C의 고열을 발생시킨다[30]. 음전하를 띤 마이크로버블이 자체적으로 파괴되거나 양전하를 띤 물질과 물리적으로 충돌하여 파괴되면서 OH 라디칼(Hydroxyl Radical)이 순간적으로 발생하게 된다. OH 라디칼은 강한 산화제로서 살균력이 우수하고 막분리조 내의 용존 산소를 높여 주는 역할을 한다[31,32]

본 연구는 마이크로버블 적용으로 분리막이 유기물과 미생물에 의해 오염되는 막오염을 방지하여 분리막의 수명을 연장하고 분리막의 잦은 교체에 따른 비용 절감 및 유지관리 용이를 목적으로 하였다.

그러므로, 분리막조로 유입되는 유기물 부하를 최대한 저감하기 위해, i) 공정 개선; 분리막 공정을 토대로 MBR공법에서 침전조를 거친 상등수를 분리막조로 유입시킨 후 내부에 마이크로버블을 주입하여, 마이크로버블의 적용 유무에 따른 공정 효율 및 ii) 처리수의 수질 개선; TOC 저감 효과를 조사하였다.

2. 실험방법

2.1. 분리막 형식과 대상원수

본 실험에 사용된 분리막은 국내에서 제조된 침지식 증공사형 정밀외과막(디어포스 DFM-1000 제품)으로 0.2 μm의 공극 크기를 가지고 있다. 분리막 모듈의 유효막 면적은 10 m²이고, 분리막외경 및 내경크기는 각각 2.3 mm와 0.9 mm이며, 내약품성이 우수한 PVDF(polyvinylidene fluoride) 재질의 분리막을 사용하였다. 대상 원수는 맥주 공장 폐수처리장(충남 예산, 플레티넘크래프트맥주)에서 처리된 2차 침전조 상등수를 사용하였다. 원수 및 방류수의 수질과 방류수 수질 기준은 Table 1과 같다. pH는 처리 후 기준치 이내로 측정되었으며, TOC, BOD, SS, TN와 TP 항목에서 모두 원수 대비 상당히 감소하였으며, 또한 기준치 이내로 처리되었다.

2.2. 측정 및 분석 방법

원수 또는 처리수의 수소이온농도(pH), 총유기탄소량, 생물화학적 산소요구량(Biochemical oxygen demand, BOD), 부유물질, 총질소 그리고 총인을 측정하였다.

TOC 분석은 고온연소산화법에 따라 총유기탄소 분석 기기를 사용하였다(수질오염공정시험기준 ES 04311.1c). BOD는 DO meter를 사용하여 0일째 및 5일째 배양 후 용존산소(dissolved oxygen, DO)를 측정하고 감소된 BOD₅를 계산하였다(ES 04305.1c). SS는 유리섬유여과지(glass microfiber filter, GF/C)에 일정량의 시료를 여과시킨 다음 항량으로 건조(105 °C)한 후 남아있는 잔류물의 무게를 측정하여 계산하였다(ES 04303.1b). 총질소 및 총인은 광전분광광도계로 측정하였다(ES 04363.1a 및 ES 04362.1c). 활성슬러지 부유물질(mixed liquor suspended solid, MLSS) 농도는 휴대용 부유물질 측정기(sinsche Q-TSS, ES TECH)로 측정하였다.

마이크로버블 적용 전후의 처리 효과 확인을 위해 추가로 용존산소, 장치의 유량(flow meter)과 차압(differential pressure)을 측정하였다.

DO는 전극법에 따라 DO meter (YSI 5100, USA)로 측정하였다. 유량 및 압력은 현장에서 각각 수위-유량 측정기(instantaneous water flow meter)와 복합게이지(compound gauge)로 측정했다.

분포도가 높은 대표적인 마이크로버블의 직경을 측정하기 위해 미세기포층의 깊이를 레이저 회절 산란법이 적용된 입자계수기(particle counter) (laser trac PC2400D, Chemtrac Systems, USA)로 측정하였다. 육안으로 관찰되는 기포층의 경계면을 중심으로 입자 계수기를 상하로 이동하며 기포수를 측정하였다. 시료를 정량펌프로 채취(5 ml/min)하여 입자 계수기의 측정부로 주입한 후 레이저를 통해 빛이 입자에 부딪힐 때 빛은 회절 또는 산란하였으며, 회절/산란의 강도 패턴은 입자 크기에 따라 분리하였다. 마이크로버블의 직경은 3회 반복 측정값에 대한 평균치로 산출했다. 마이크로버블 직경분포에 따라 2~5 μm는 40%, 5~10 μm는 5.8%, 10~15 μm는 2.5%, 15~25 μm는 7.9%, 25~50 μm는 28.7%, 그리고 50~75 μm는 11.9%, 75~100 μm 1.9%으로 분포했다. 마이크로버블 영역대에서는 2~5 μm를 제외한 25~50 μm 분포가 가장 높았다.

2.3. 실험 장치

본 연구에 사용된 실험 장치는 Figure 1과 같다. A2/O 공법이 적용된 분리막 공정을 토대로, 원수가 유입되는 호기조와 분리막 모듈이 설치된 막분리조 사이에 전단의 침전조로 구성된 침전조 모듈을 설치하고, 막분리조의 내부로 마이크로버블을 주입을 위한 마이크로버블 발생장치를 설치하였다[33]. 실험군의 시설용량은 실험 기준 150 m³/day 시설 규모로 운영 중이다.

Table 1. Properties of the raw water, microbubble treated effluent water, and waste effluent standard

Parameter	Unit	Raw water	Effluent water	Effluent standard
pH		6.8	7.0~7.2	5.8~8.6
TOC	[mg/L]	1749.1	28.0	75
BOD	[mg/L]	3836	2.8	120
SS	[mg/L]	1220	0.8	120
TN	[mg/L]	117.6	1.2	60
TP	[mg/L]	33.54	0.92	8

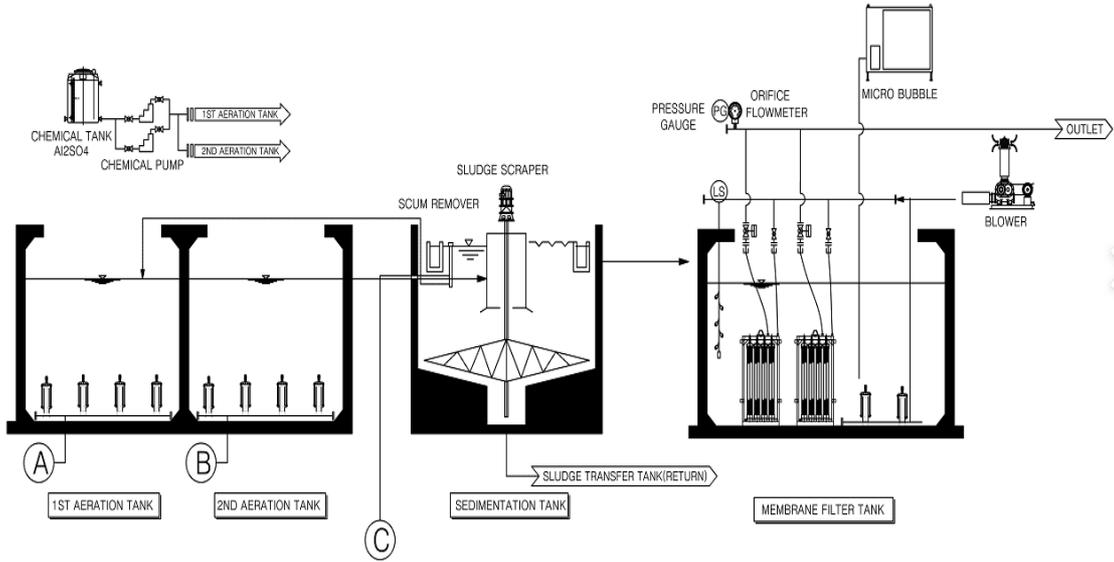


Figure 1. Schematic diagram of A2/O method using microbubbles in this study (A, B: air injection line, C: air lift to remove the floating scum in the supernatant water of the sedimentation tank and sending it to the previous reservoir).

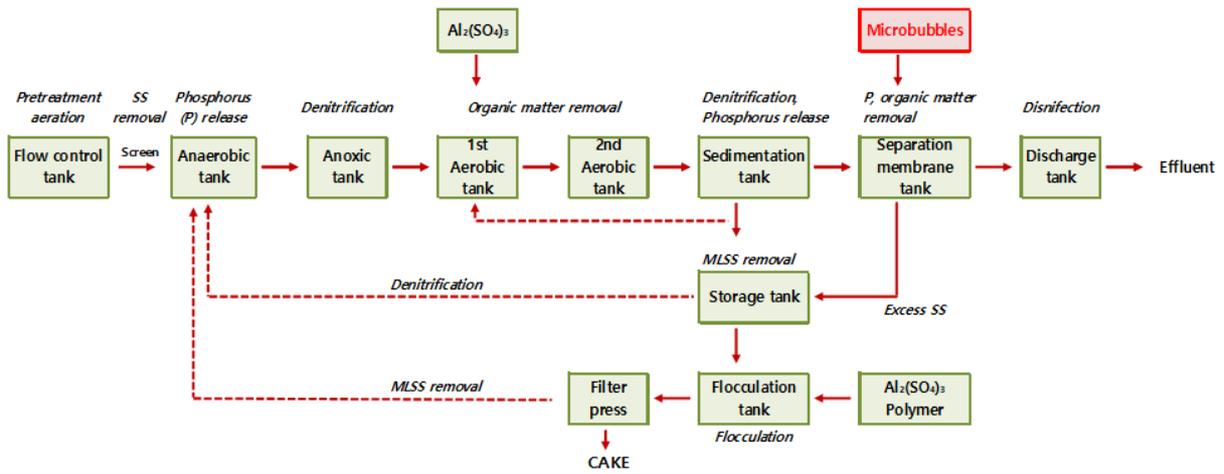


Figure 2. Process diagram of improved MBR method with microbubbles in this study.

2.4. 운전 조건

Figure 2에서 볼 수 있듯이, MBR공법에 마이크로버블을 기존 호기성 분리막조 전단에 침전조를 추가 설치하여 침전조 상등수를 분리막조로 유입하도록 하였다. 실험 수행동안 침전조에서 분리된 상등수의 평균 MLSS 농도는 97 ± 2 mg/L(TOC 114.5 ± 3.2 mg/L)로 측정되었으며, 기존 호기성 분리막조 내의 MLSS농도(1802 ± 11 mg/L)의 약 95%가 제거되어 분리막조 내 MLSS 농도는 원수 MLSS의 5%로 운영되었다.

Figure 3의 마이크로버블 발생장치로 30~50 μ m 크기의 미세 기포를 분리막조 내로 투입하였다. 마이크로버블의 발생량은 360 L/min이었고, 프레임 전면에 버블크기를 조절할 수 있는 수동 및 자동조작장치를 설치하였다. 혼합탱크의 압력(4 atm)을 일정하게 유지하도록 제작하였다. 공기흡입밸브(air inhaler valve)의 개폐 면적을 0.99, 1.98 그리고 2.97 mm²(개폐비율 1/8, 2/8, 3/8)로 변화시키면서 기포의 크기를 20~30 μ m로 조정

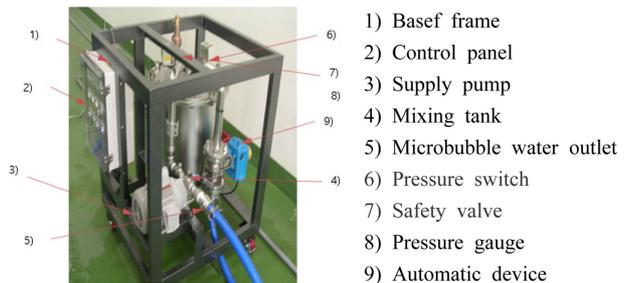


Figure 3. Microbubble generator in this study.

하였다. 또한, 마이크로버블에 의한 산화된 유기물 잔재는 50 분당 10분 간격으로 분리막조 내의 농축방지를 위해 저류조로 반송시켰다.

마이크로버블 발생장치를 설치 후 5개월간 15일 간격으로 작동과 정지(대조군)를 반복하여 처리 효과를 확인하였다. 방류 원수는 2022년 1월 20일부터 2022년 5월 23일까지 월에 1

희석 4 L를 채취하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 마이크로버블 적용 유무에 따른 분리막 운영 평가

마이크로버블 적용/미적용의 대조 실험을 위해 5개월 동안 15일 주기로 마이크로버블 발생장치를 작동(ON) 또는 미작동(OFF)을 반복하였으며, Figure 4에 나타났다. 전단의 침전물을 거친 상등수를 분리막조 내 유입 후 마이크로버블의 적용 유무에 따른 분리막 여과 순간유량 및 압력을 측정하였다.

마이크로버블 적용(ON)에 따라 순간유량계는 1개월차 7.5 m³/h, 2개월차 7.8 m³/h, 3개월차 8.2 m³/h, 4개월차 8.5 m³/h 그리고 5개월차 8.8 m³/h로 증가하는 추세였다. 압력계치는 1개월차 0.05 bar, 2개월차 0.04 bar, 3개월차 0.03 bar, 4개월차 0.02 bar, 5개월차 0.025 bar로, 4개월차에 최저치가 측정되고 운영시간이 길어질수록 감소하는 추세였다. 마이크로버블 미적용(OFF)에 따라 순간유량계는 1개월차 5.5 m³/h, 2개월차 6.8 m³/h, 3개월차 7.2 m³/h, 4개월차 7.3 m³/h와 5개월차 7.9 m³/h, 압력계치는 1개월차 0.09 bar, 2개월차 0.08 bar, 3개월차 0.07 bar, 4개월차 0.05 bar와 5개월차 0.04 bar로 측정되었다. 마이크로버블 미적용시는 적용시와 마찬가지로, 순간유량과 분리막 차압은 각각 증가와 감소하는 추세였다.

마이크로버블 적용했을 때(ON)가 대조군(OFF) 보다 분리막의 순간유량은 1.1~1.4 배로 높게 유지되었고, 그 변동폭(최댓값-최솟값)은 적용시 1.3 m³/h로 더 좁았다(대조군: 2.4 m³/h). 분리막의 차압은 마이크로버블 적용했을 때(ON)가 대조군(OFF) 보다 1.6~2.3 배 낮게 유지되었다. 분리막의 차압의 변동폭 또한 마이크로버블 적용했을 때(ON)가 0.025 bar로 작았다(대조군: 0.05 bar). 순간유량과 분리막 차압의 마이크로버블 적용(ON)과 대조군(OFF) 간의 차이는 1개월에서 5개월로 진행할수록 각각 2 m³/h에서 0.9 m³/h, 0.04 bar에서 0.02 bar로 감소했다.

순간유량과 분리막 차압 간의 상관관계를 Figure 5에 제시하였다. 차압이 높을수록 순간유량이 낮아지는 유의한 음의 상관관계($r=-0.948$, $r^2=0.898$, $p<0.0001$)로 나타났다. 또한 마이크로버블을 적용(ON)했을 때에 미적용(OFF) 보다 차압이 낮고 순

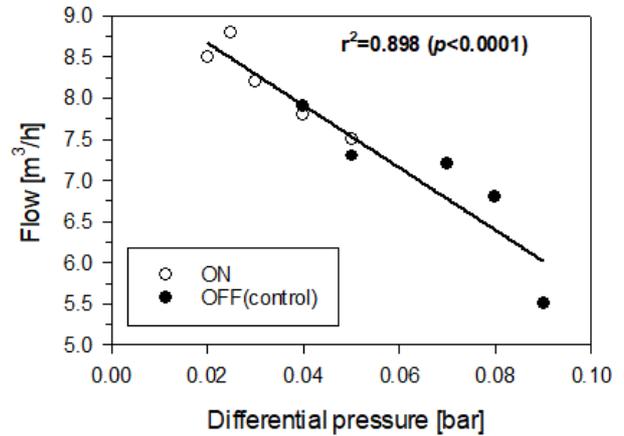


Figure 5. Relationship between flow and differential pressure with (ON) or w/o (OFF) microbubble application.

간유량이 높게 나타났다. Marui [29]에 따르면 이는 마이크로버블이 막면의 유기물에 부착하여 막면과 입자, 입자와 입자 사이의 부착력을 약화시키고, 유기물과 함께 부상한 결과로 판단된다. 마이크로버블을 적용(ON)이 분리막의 차압 감소 및 통수량 증가 효과를 확인했다.

3.2. 마이크로버블 적용 유무에 따른 막오염원 제거 평가

분리막조 내의 마이크로버블의 적용 유무에 따른 분리막 여과 후 TOC 제거량과 DO 변화를 조사하여, Figure 6에 나타났다.

마이크로버블 적용(ON)에 따라 TOC 농도는 1개월차 24.8 mg/L, 2개월차 27.5 mg/L, 3개월차 25.5 mg/L, 4개월차 25.3 mg/L, 5개월차 26.3 mg/L로 평균 25.9 ± 1.1 mg/L이었다. DO는 1개월차 5.8 mg/L, 2개월차 5.8 mg/L, 3개월차 6.5 mg/L, 4개월차 6.2 mg/L, 5개월차 6.5 mg/L 평균 6.2 ± 0.4 mg/L이었다. 마이크로버블 적용(ON)을 5개월 간 진행에 따른 TOC 농도는 유의한 변화가 없었고, DO는 3개월차에 0.7 mg/L로 소폭 증가 후 유지되는 경향을 보였다.

마이크로버블 미적용(OFF)에 따라 TOC는 1개월차 60 mg/L, 2개월차 70 mg/L, 3개월차 60 mg/L, 4개월차 61 mg/L, 5개월차 62 mg/L로 평균 62.6 ± 4.2 mg/L이었다. DO는 1개월차 2.9

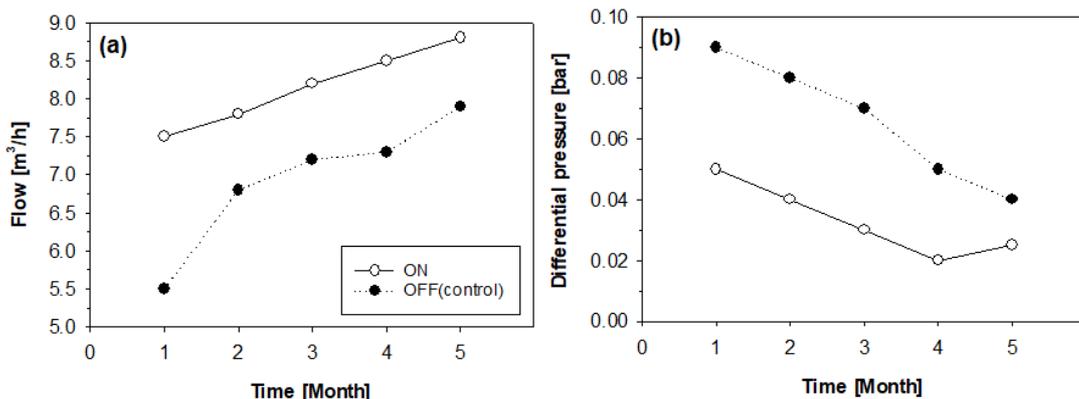


Figure 4. Relationship between (a) flow and (b) differential pressure with (ON) or w/o (OFF) microbubble application.

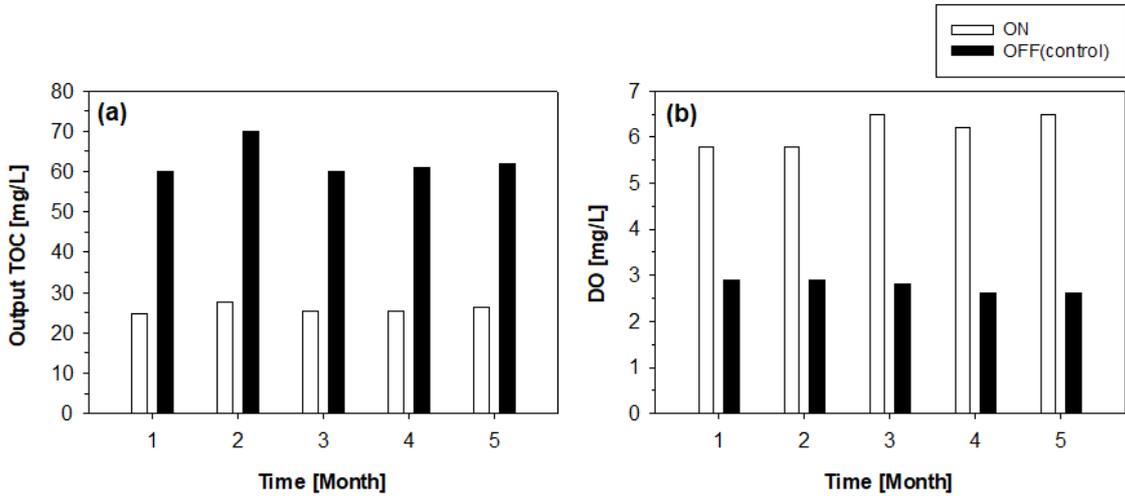


Figure 6. Variance of (a) output TOC and (b) DO with (ON) or w/o (OFF) microbubble application.

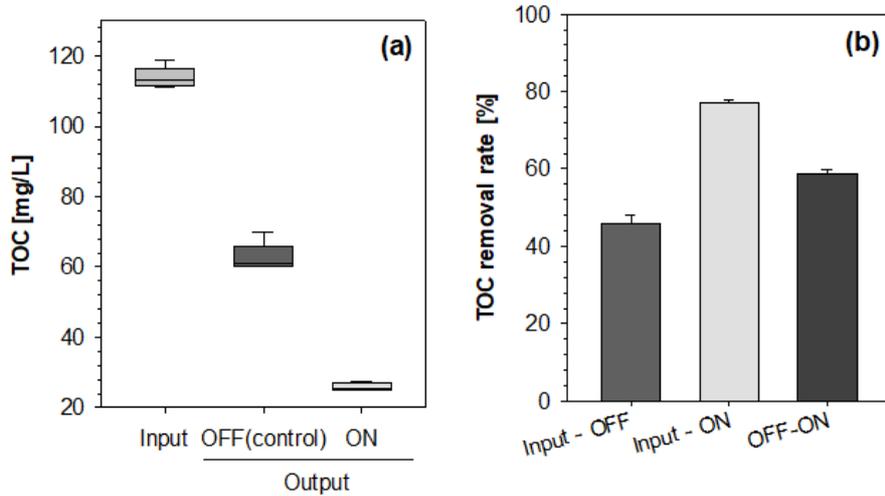


Figure 7. TOC concentration (a) of input (supernatant) and output sample with (ON) or w/o (OFF) microbubble application. Removed TOC rate in MF tank (b) by (ON) or w/o (OFF) microbubble application.

mg/L, 2개월차 2.9 mg/L, 3개월차 2.8 mg/L, 4개월차 2.6 mg/L, 5개월차 2.6 mg/L로 평균 2.8 ± 0.2 mg/L이었다. 마찬가지로, 마이크로버블 미적용(OFF)을 5개월 간 진행에 따른 TOC 농도는 유의한 변화가 없었다. DO의 경우는 4개월차에 다소 감소해 유지되는 경향을 보였다.

마이크로버블 적용했을 때(ON)가 대조군(OFF) 보다 TOC 농도는 평균 36.7 ± 3.3 mg/L 감소했고, DO는 평균 2.2 배 상승했다. 마이크로버블 적용했을 때(ON) 상당한 TOC 저감 및 분리막조 내의 산소 포화량 상승 효과를 확인했다.

5개월 간 침전조 상등액, 분리막조 내 마이크로버블의 미적용(OFF)과 적용(ON)시의 평균 TOC 농도는 각각 114.5 ± 3.2 mg/L, 62.6 ± 4.2 mg/L과 25.9 ± 1.1 mg/L로 Figure 7에 제시했다. TOC 제거율은 분리막조 전단에 침전조를 추가 설치한 공정 개선에 따라 $45 \pm 2.4\%$ (Input - OFF)로 나타났다. 또한, 분리막조 내 마이크로버블의 적용(ON)에 따라 TOC 제거율은 침전조 상등액 대비 $77.3 \pm 0.4\%$ (Input - ON)와 마이크로버블 미적용 대비 $58.6 \pm 1.3\%$ (OFF - ON)로 상당히 증가했다. 이러한 유

기물 제거 효과는 마이크로버블이 막면의 유기물과 함께 부상하고 소멸하면서 입자의 표면을 세정하기 때문으로 보고되었다[34].

4. 결 론

본 연구에서는 하수재이용 막여과 공정에서 마이크로버블의 적용 유무에 따른 세정효율 및 막면의 오염물질 제거 효과를 평가하기 위해 연구를 수행한 결과 다음과 같은 결론을 도출하였다.

- 1) 공정 개선의 측면에서는 침전조를 거친 상등수가 분리막조로 유입되게 됨으로써 기존처리시설에서의 폭기조 내의 분리막조와 차이점을 두었으며 이 결과, 원수 MLSS의 95% 이상이 제거되어 생물막 등의 오염으로부터 막의 막오염(파울링) 현상을 1차 방지할 수 있었다.
- 2) 또한, 침전조를 거친 상등수에 마이크로버블의 적용으로 분리막의 차압은 1.6~2.3배 감소 및 통수량은 최대 1.4배

증가하였다. 이는 마이크로버블이 막면의 유기물에 부착하여 막면과 입자, 입자와 입자 사이의 부착력을 약화시키고, 유기물과 함께 부상한 결과로 설명된다.

- 3) 마이크로버블 적용 유무에 따른 막오염원 제거를 비교 평가한 결과, 마이크로버블의 적용(ON)으로 TOC 제거율은 58% 이상 증가했다. 또한, 분리막조 내의 DO 포화도는 평균 2.2배 증가했다. 이러한 유기물 제거 효과는 마이크로버블이 막면의 유기물과 함께 부상하고 소멸하면서 입자의 표면을 세정한 결과로 추측된다.

그러므로, 호기조와 분리막조를 분리 운영함에 따라 침식식 분리막의 파울링 현상을 저감할 수 있고, 추가로 마이크로버블을 적용하여 분리막의 차압, 통수량과 파울링이 개선되어 대량으로 처리할 수 있는 고도처리공법의 운영에 더 발전된 운영관리를 기대할 수 있을 것으로 판단된다.

Appendices

- TOC: total organic carbon
- BOD: biochemical oxygen demand
- COD: chemical oxygen demand
- SS: suspended solid
- TN: total nitrogen
- TP: total phosphorus
- A2/O: anaerobic-anoxic-oxic
- MBR: membrane bio-reactor
- MF: microfiltration or separation membrane using microfiltration
- MLSS: mixed liquor suspended solid
- DO: dissolved oxygen

References

1. ‘물환경보전법 시행령 및 시행규칙’ 국가법령정보센터(www.law.go.kr)
2. Lee, G.-O. and Park, J.-Y., “A Case Study on Utilization of Industrial Wastewater Reuse,” *Journal of the Korean Society of Industry Convergence*, **23**(1), 17-24 (2020).
3. Ministry of Environment (MOE) “2021 Statistics of Sewerage,” (<https://me.go.kr/home/web/index.do?menuId=10264>) (accessed Jan. 2023)
4. Pausta, C. M., Eusebio, R. C., Beltran, A., Huelgas-Orbecido, A., and Promentilla, M. A., “A decision modelling approach for selection of biological nutrient removal systems for wastewater,” In MATEC Web of Conferences, 156, 03013, EDP Sciences (2018)
5. Lei, S., Zhao, J., Xie, S., Zhao, J., Min, J., Ma, X., and Yan, C., “Comparisons of nitrogen and phosphorus removal efficiency in A2/O process, UCT process, MUCT process, enhanced phosphorus removal process and inverted A2/O process based on GPS-X simulation,” In IOP Conference

Series: Earth and Environmental Science 983(1), 012114, IOP Publishing (2022, February).

6. Park, J. H. and Park, H. D., “Advanced biological wastewater treatment,” In Current Developments in Biotechnology and Bioengineering, 107-123, Elsevier (2021).
7. Lee, H. D., Cho, Y. H., and Park, H. B., “Current Research Trends in Water Treatment Membranes Based on Nano Materials and Nano Technologies,” *Membrane Journal*, **23**(2), 101-111 (2013).
8. Park, Y. H. and Nam, S. Y., “Characterization of Water Treatment Membrane Using Various Hydrophilic Coating Materials,” *Membrane Journal*, **27**(1), 60-67 (2017).
9. Cha, B. J. and Kim, H. S., “Introduction of new business: Trends and market outlook in development of membrane technology for water treatment,” *News & Information for Chemical Engineers*, **30**(4), 417-420 (2012).
10. Cha, B. J., Chi, S. D., and Kim, H. S., “Membrane Market for Water Treatment,” *Korean Industrial Chemistry*, **14**(6), 2-8 (2011)
11. Zuthi, M. F. R., Ngo, H. H., Guo, W. S., Zhang, J., and Liang, S. “A review towards finding a simplified approach for modelling the kinetics of the soluble microbial products (SMP) in an integrated mathematical model of membrane bioreactor (MBR),” *Int. Biodeterior. Biodegradation*, **85**, 466-473 (2013).
12. Meng, F., Zhang, S., Oh, Y., Zhou, Z., Shin, H. S., and Chae S. R., “Fouling in membrane bioreactors: An updated review,” *Water Res.*, **114**, 151-180 (2017).
13. Laabs C. N., Amy G. L., and Jekel M., “Understanding the size and character of fouling-causing substances from effluent organic matter(EfOM) in low-pressure membrane filtration,” *Environ. Sci. Technol.*, **40**(14), 4495-4499 (2006).
14. Chung, G. Y., Kim D. C., and Won I. H., “Method for reducing membrane fouling in the water treatment apparatus,” Patent No. WO2016/068639A1 (2016).
15. Jung, J., Kim, Y., Nam, H., Kim, Y., Lee, E., Lee, Y., and Kweon, J., “Surface characterization and evaluation of biofouling inhibition of reverse osmosis membranes coated with Epigallocatechin gallate (EGCG)/vanillin,” *Journal of Korean Society of Water and Wastewater*, **28**(6), 713-723 (2014).
16. Saratale, G. D., Saratale, R. G., Shahid, M. K., Zhen, G., Kumar, G., Shin, H. S., Choi, Y. G., and Kim, S. H., “A comprehensive overview on electro-active biofilms, role of exo-electrogens and their microbial niches in microbial fuel cells (MFCs),” *Chemosphere*, **178**, 534-547 (2017).
17. Hung, Y. C., Waters, B. W., Yemmireddy, V. K., and Huang, C. H., “pH effect on the formation of THM and HAA disinfection byproducts and potential control strategies for food processing,” *J. Integr. Agric.*, **16**(12), 2914-2923 (2017).
18. Gukelberger, E., Gabriele, B., Hoinkis, J., and Figoli, A. “MBR and integration with renewable energy toward suitable autonomous wastewater treatment,” In Current Trends and Future Developments on (Bio-) Membranes, 355-384. Elsevier (2019).

19. Xu, H. and Lui, Y., "D-Amino acid mitigated membrane biofouling and promoted biofilm detachment," *J. Memb. Sci.*, **376**, 266-274 (2011).
20. Le Clech, P., Jefferson, B., Chang, I. S., and Judd, S. J., "Critical flux determination by the flux-step method in a submerged membrane bioreactor," *J. Memb. Sci.*, **227**(1-2), 81-93 (2003).
21. Lee, C.-H., Kim, G.-Y., Kim, H.-S., Kim, J.-H., and Lee, K.-I., "Applicability evaluation of microbubble for membrane fouling reduction in wastewater reuse membrane process," *Journal of the Korean Society of Water and Wastewater*, **31**(2), 169-175 (2017).
22. Nam, G. W. and Jung, J. H., "Application of Ozone Microbubbles in the Field of Water and Wastewater Treatment," *Ecology and Resilient Infrastructure*, **3**(4), 256-262, (2016).
23. Jang, J. K., Jin, Y. J., Kang, S. W., Kim, T. Y., Paek, Y., Sung, J. H., and Kim, Y. H., "Simultaneous Removal of Organic Pollutants, Nitrogen, and Phosphorus from Livestock Wastewater by Microbubble-Oxygen in a Single Reactor," *J. Korean Soc. Environ. Eng.*, **39**(11), 599-606 (2017).
24. Song, D. H., Kang, J. H., Park, H. S., Song, H. J., and Chung, Y. G. "Simultaneous Removal of NO and SO₂ using Microbubble and Reducing Agent," *Clean Technol.*, **27**(4), 341-349 (2021).
25. Kim, G.-R. "Water Purification by Microbubble - Case of Domestic Application," *Korea Fisheries Infrastructure Promotion Association*, **103**, 37-42 (2013).
26. Hong, S.-H., Lee, K.-H., and Jeong, N.-W., "Development of Oil Flushing System with Microbubble Generator," *Tribol. Lubr.*, **38**(3), 109-114 (2022).
27. Cha, H. S., "Present State and Future Prospect for Microbubble Technology," *Bull. Food Technol.*, **22**(3), 544-552 (2009).
28. Agarwal, A., Ng, W. J., and Liu, Y., "Principle and applications of microbubble and nanobubble technology for water treatment," *Chemosphere*, **84**(9) 1175-1180 (2011).
29. Marui, T., "An Introduction to Micro/Nano-Bubbles and Their Applications," *Systemics, Cybernetics and Informatics*, **11**(4), 68-73 (2013).
30. Kyllönen, H. M., Pirkonen, P., and Nyström, M., "Membrane filtration enhanced by ultrasound: a review," *Desalination*, **181**, 319-335 (2005).
31. Li, P., Takahashi, M., and Chiba, K., "Enhanced Free-Radical Generation by Shrinking Microbubbles Using a Copper Catalyst," *Chemosphere*, **77**, 1157-1160 (2009).
32. Radha, K. V., and Sirisha, K., "Chapter 11: Electrochemical oxidation processes. In Advanced oxidation processes for waste water treatment," Academic Press. 359-373 (2018).
33. Ku, K.-H., "Separation membrane water treatment apparatus using microbubble," Patent No. 10-2019-0033317 (2017)
34. Zhou, Z. A., Xu, Z., Finch, J. A., Masliyah, J. H., and Chow, R.S., "On the role of cavitation in particle collection in flotation - A critical review. II," *Miner. Eng.*, **22**(5), 419-433 (2009).