

막 완결성 모니터링 신뢰성 향상을 위한 손상 유형별 막 손상 감도 평가

이 용 수 · 강 하 영 · 김 형 수* · 김 종 오†

한양대학교 건설환경공학과, *성균관대학교 수자원학과
(2017년 6월 20일 접수, 2017년 6월 26일 수정, 2017년 6월 27일 채택)

Evaluation of Membrane Damage Sensitivity by Defect Types for Improving Reliability of Membrane Integrity Monitoring

Yong-Soo Lee, Ha-Young Kang, Hyung-Soo Kim*, and Jong-Oh Kim†

Department of Civil and Environmental Engineering, Hanyang University, 222, Wangsimni-ro, Seongdong-gu, Seoul 04763, Republic of Korea

*Department of Water Resources, Sungkyunkwan University, 2066, Seobu-ro, Jangan-gu, Gyeonggi-do 16419, Republic of Korea

(Received June 20, 2017, Revised June 26, 2017, Accepted June 27, 2017)

요 약: 내염소성 원생동물인 크립토스포리디움, 지아디아 등 병원성 미생물의 제거에 대한 신뢰성을 확보하기 위해 정수 처리 공정에서 막여과 시스템이 각광받고 있으며, 이러한 신뢰성을 보충하기 위해 막 완결성에 대한 연구가 중요시되고 있다. 막 완결성 시험은 크게 직접법과 간접법으로 분류되는데, 직접법 중 압력기반의 시험은 버블포인트 이론을 근간으로 병원성 미생물의 최소 크기인 3 μm 크기 이상을 감지할 수 있는 감도로 USEPA Guidance Manual에서 제시하고 있다. 간접법은 온라인 상태에서 연속적인 운전이 가능하다는 점에서 널리 사용되지만, 직접법에 비해 현저히 낮은 막 손상 감지 감도를 가지고 있으며, 손상 부위를 특정 지을 수 없는 한계가 있기에 이러한 감지 감도를 개선해야 할 필요가 있다. 따라서 본 연구에서는 압력 손실 시험에 의한 막 완결성 시험을 통해 막 파단 형태별, 파단 개수, 초기설정압력값에 따른 압력손실률과 LRVDIT 신뢰성 범위를 상호 비교함으로써 막 손상에 따른 감도의 결과를 정량화하여 UCL 기준을 나타내어 비교 평가하였다.

Abstract: In order to secure the reliability of pathogenic microorganisms such as Cryptosporidium and Giardia, which are chlorophilic protozoans, membrane filtration systems have been widely used in water purification process. These integrity tests are classified into direct and indirect methods. Based on the bubble point theory, the pressure-based test in the direct method is presented in the USEPA Guidance Manual with sensitivity to detect a minimum size of pathogenic microorganisms of 3 μm or more. Indirect methods are widely used in that they are capable of continuous operation in on-line state, but there is a very low sensitivity of damage detection compared to the direct method, and there is a limit that can not specify the damage area, so it is necessary to improve this sensitivity. In this study, we compared the LRVDIT and UCL values according to the type of membrane defect, number of fiber breaks, and initial set pressure value through the Integrity Test by Pressure Decay Test (PDT).

Keywords: Membrane Integrity Test, Pressure Decay Test, Log Removal Value, Upper Control Limit, Defect Types

1. 서 론

산업화에 의한 유해물질의 증가와 더불어 맛·냄새 물질과 소독부산물 그리고 정수처리에 관한 기준의 제

정으로 인해 내염소성을 가진 원생동물인 크립토스포리디움(Cryptosporidium)과 지아디아(Giardia)와 같은 병원성 미생물 제거에 대한 관심이 높아지고 있다. 이에 따라 정수처리공정 중에 막여과 시스템이 각광받고

†Corresponding author(e-mail: jk120@hanyang.ac.kr, <http://orcid.org/0000-0003-1957-5894>)

Table 1. Membrane Specification

Parameter	Index	
Membrane Specification	Material	PVDF (Polyvinylidene fluoride)
	Diameter (in/out)	0.7/1.2 mm
	Area	36.8 m ²
	Pore Size	0.1 μm
	Module Size (mm)	2,227 L × 140 Φ

있는데, 기존의 정수처리공정보다도 병원성 미생물 제거 능력이 뛰어난 장점을 가지고 있기 때문이다[1-5]. 이러한 제거능력의 우수성은 기본적으로 막의 손상이나 결함이 없어야 보장할 수 있는데, 이러한 막 손상을 진단할 수 있는 막 완결성 평가가 매우 중요하다[6-9].

막여과 시설에 적용되는 정밀여과막(MF), 한외여과막(UF)의 막 완결성 시험은 크게 직접법과 간접법으로 분류 된다. 직접법은 두 가지 방법(압력시험, 추적자시험)이 일반적으로 사용되고 있으며, 압력시험은 버블포인트 이론을 근간으로 크립토타포리디움과 같은 병원성 미생물의 최소 크기인 3 μm 크기 이상을 감지할 수 있는 감도로 USEPA Guidance Manual에서 제시하고 있다[10]. 이러한 압력 기반의 실험 중 대표적인 방법은 Pressure Decay Test (PDT)로 분리막의 여과 경계면을 기준으로 한쪽 측에 가압이나 부압 등을 걸어 압력의 손실이나 공기나 물의 이동을 감시하여 분리막의 파손을 확인하는 것이다. 막 완결성 시험의 간접법 방법들은 분리막의 결함 부위를 찾아내는 물리적인 실험은 아니지만, 간접 측정으로서 처리수 수질의 몇몇 양상들을 모니터링하는 방식으로 이루어져 있다. 정상적인 분리막의 경우 여과수의 수질은 안정적이어야 하는데, 이때 여과수 측의 탁도와 같은 수질 변화가 발생 시 막 완결성에 문제가 생겼다고 판단할 수 있다. 비록 간접법은 직접법의 막 완결성 시험과 비교하여 막 손상 감지감도가 떨어지지만, 온라인 상태에서 연속측정이 가능하다는 점과 분리막의 특성에 크게 영향을 받지 않는다는 장점이 있기 때문에 널리 사용된다. 하지만, 직접법에 비해 현저히 낮은 막 손상 감지 감도를 가지고 있으며, 손상 위치를 특정 지을 수 없는 한계로서 직접법과 같이 병행되고 있는 실정이다[11]. 막 손상 감지 감도를 개선하기 위해 PDT의 결과를 USEPA의 막 손상 감지 감도와 관련된 모니터링 인자인 Log Removal Value (LRV_{DIT}) 및 Upper Control Limit (UCL)에 적용한 연

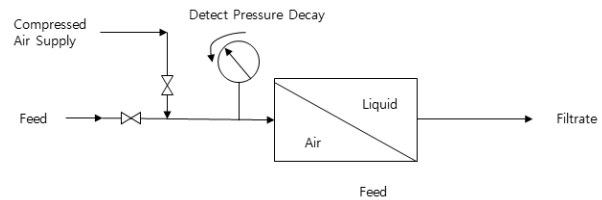


Fig. 1. Schematic diagram for measuring the Pressure Decay Test.

구가 선행되었다. 하지만 막의 손상에 대한 PDT의 압력손실을 단순히 적용만 하였을 뿐, 막의 손상 유형에 따른 LRV_{DIT}와 UCL의 변화에 대한 연구는 부족한 현실이다[12].

본 연구의 목적은 완결성 시험인 PDT에 의한 막 손상 유형별 압력손실률(Pressured Decay Rate; PDR)을 측정하고, 손상된 분리막 개수 및 손상 형태에 따른 LRV_{DIT} 값을 도출하여 막 손상에 따른 감도의 결과를 정량화하고자 하였다. 이를 통해 막 여과수의 병원성 미생물에 대한 절대적인 제거보증을 확인함과 동시에 막여과 공정의 유지관리 기술 분야에 기여할 수 있을 것으로 보인다.

2. 연구 방법

2.1. 실험 장치

본 연구에 적용한 분리막은 MF 분리막을 사용하였으며 그 사양은 Table 1과 같다. PDT 시험은 USEPA에서 제시하는 방법을 적용하였으며 모식도는 Fig. 1과 같다. 측정 방법은 여과운전 중지 후 유입 밸브와 여과 밸브를 차단한다. 유입 라인에 분지된 배관으로 에어컴프레셔 공기를 주입하며, 여과수 측의 물이 나오지 않는 것을 확인 후 목표로 하는 초기설정압력값까지 가압한다. 마지막으로 모든 밸브를 차단한 후에 압력 손실 여부를 관찰한다.

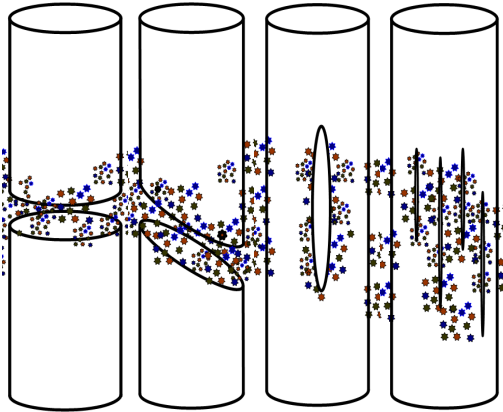


Fig. 2. Membrane broken types of Horizontal Cutting, Diagonal Cutting, Straight Defect, and Scratch Defect.

2.2. 실험 조건

본 실험은 막 손상 유형별 PDT를 병원성 물질의 제거 능력을, 입자성 물질에 대한 로그제거율로서 정성적으로 파악하고자 하였다. 손상 유형은 0~3개까지의 Fiber 파단 개수에 따른 조건 및 Fig. 2의 손상 형태별로 선정하였으며, 정량적인 실험을 위하여 인공 원수는 입자성만 존재한다고 가정하여 1,000 cm³의 중류수에 Kaolin을 1 g의 비율로 분산시켜 100 NTU로 제조한 인공원수를 사용하였다.

2.3. LRVDIT (Log Removal Value Direct Integrity Test)

본 연구는 USEPA에서 제시하고 있는 LRVDIT 이론식을 적용하여 실제 분리막 및 막여과 공정의 실제 경험값을 대입하여 손상 및 파단 유형별 탁질 물질에 대한 LRVDIT와 UCL의 변화를 관찰하였으며, 그 식의 도출 과정은 다음과 같다.

$$LRV_{DIT} = \log\left(\frac{Q_p \cdot ALCR}{Q_{air} \cdot VCF}\right) \quad (1)$$

LRVDIT = direct integrity test sensitivity in terms of LRV (dimensionless)

Q_p = membrane unit design capacity filtrate flow (L/min)

ALCR = air-liquid conversion ratio (dimensionless)

Q_{air} = flow of air through the critical damage during a pressure-based direct integrity test (L/min)

VCF = volumetric concentration factor (dimensionless)

식 (1)은 버블 포인트 이론을 기초로 하는데, 막 손상 부분을 통과하는 공기 유량을 측정하여 모든 압력시험의 감도를 계산할 때에 직접 사용될 수 있다. 감도를 계산하는데 결정하여야 하는 4가지 매개변수는 Q_p , VCF, ALCR, Q_{air} 이다. Q_p 는 설계용량의 여과유량으로 단위는 1/min이고 동일한 손상상태에선 높은 여과 유량이 높은 막 손상 감지 감도를 얻을 수 있다. Q_{air} 는 막 완결성 시험의 직접법과 관계가 있는 인자로서 확산 공기 유량과 같은 막 손상 부분에 통과 또는 누출되는 공기 유량을 측정한 실험적 결과이다. 다른 한편으로는 압력이나 부압에 의한 손실유량의 결과로 나타낼 수 있으며, 단위는 손실압력을 시간으로 나눈 값으로 나타내고 식 (2)와 식 (1)의 Q_p 를 등식으로 정리하여야 한다[10]. 테스트를 시험으로

$$Q_{air} = \frac{\Delta P_{test} \cdot V_{sys}}{P_{atm}} \quad (2)$$

Q_{air} = flow of air (L/min)

ΔP_{test} = rate of pressure decay during the integrity test (psi/min)

V_{sys} = volume of pressurized air in system during the test (L)

P_{atm} = atmospheric pressure (psi)

공기의 온도는 물보다 빠르게 평형이 이루어지므로 식 (2)는 물과 공기의 온도가 같다는 가정 하에 만들어진 것이다. 추가적으로 V_{sys} 와 ALCR은 같은 기준 온도와 압력에서 측정되어야 한다. 식 (2)를 식 (1)에 대입하면 식 (3)을 유도할 수 있는데, 식 (3)은 압력이나 부압의 손실 속도를 측정하는 막 완결성 시험의 감지 감도를 계산하는데 사용된다[10].

$$LRV_{DIT} = \log\left(\frac{Q_p \cdot ALCR \cdot P_{atm}}{\Delta P_{test} \cdot V_{sys} \cdot VCF}\right) \quad (3)$$

LRVDIT = direct integrity test sensitivity in terms of LRV (dimensionless)

Q_p = membrane unit design capacity filtrate flow (L/min)

ALCR = air-liquid conversion ratio (dimensionless)

P_{atm} = atmospheric pressure (psi)

ΔP_{test} = rate of pressure decay during the integrity test

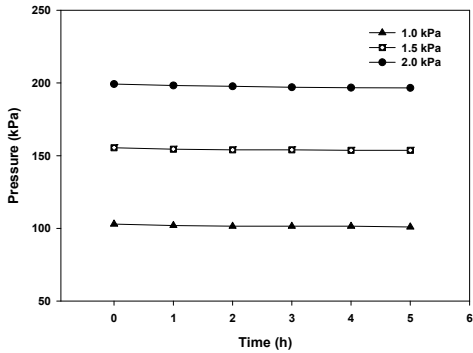


Fig. 3. The result of initial pressure value for PDT.

(psi/min)
 V_{sys} = volume of pressurized air in the system during the test (L)
 VCF = volumetric concentration factor (dimensionless)

2.4. UCL (Upper Control Limit)

USEPA에서 제시하는 Long Term 2 Enhanced Surface Water Treatment Rule (LT2ESWTR)에서 막 완결성 직접법을 위한 Control limit (CL)은 규제 40 CFR 141.728를 만족시켜야 하므로, UCL은 크립토스포리디움의 제거 능력이 보증된 분리막의 지표로 표현할 수 있다. 만약 특정 막 완결성 시험 결과가 UCL 이하 라면 해당 분리막은 병원성 미생물 제거율의 신뢰범위 보다 크거나 같은 LRV_{DIT}를 달성할 수 있어야만 한다. 만약 UCL이 초과되었다면 분리막이 손상되었는지 확인하여야 한다[10].

압력손실시험에서 UCL은 ALCR 산정법을 이용하여 계산될 수 있다. UCL을 구하는 식은 다음과 같다[10].

$$UCL = \frac{Q_p \cdot ALCR \cdot (BP + P_{atm})}{10^{LRC} \cdot V_{sys} \cdot VCF} \quad (4)$$

UCL = upper control limit in terms of pressure decay rate (psi/min)
 Q_p = membrane unit design capacity filtrate flow (L/min)
 ALCR = air-liquid conversion ratio (dimensionless)
 P_{atm} = atmospheric pressure (psi)
 LRC = log removal credit (dimensionless)
 V_{sys} = volume of pressurized air in the system during the test (L)
 VCF = volumetric concentration factor (dimensionless)

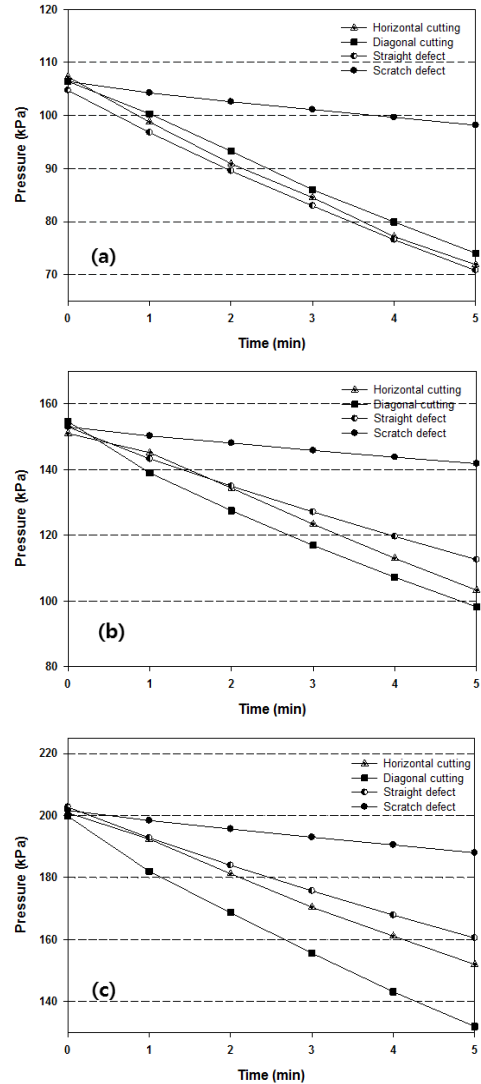


Fig. 4. PDT results by membrane defect type at P_{test} (a) 100 (b) 150 (c) 200 kPa.

3. 결과 및 고찰

3.1. 초기설정압력값 측정

막의 손상 유/무를 확인하는 PDT 측정 시 동일한 파 단이 일어났을 경우 물리적인 측면에서 압력이 클수록 압력손실률도 크다. 이는 압력 저하 변화량에 의한 결과이므로 압력을 점차적으로 올려가며 확산이 일어나기 전까지의 초기설정압력값(P_{test})을 측정하였으며 그 결과는 Fig. 3과 같다.

PDT의 설정 P_{test} 를 알아보기 위하여 100~200 kPa의 범위로 5 kPa씩 점차적으로 가압하여 압력손실을 테스트한 결과 확산에 의한 압력손실은 없는 것을 확인할

Table 2. Integrity Sensitivity Basis Factor

f	d _{fiber}	L (broken points)	K	P _{atm}	P _{test}	BP	(P _{test} - BP)/(P _{test} + P _{atm})	Y	V _{sys}
-	mm	cm	-	kPa	kPa	kPa	kPa	-	cm ³
0.023	0.7	10.83	3.56	101.3	100	14.7	41.0	0.78	30000
0.023	0.7	10.83	3.56	101.3	150	14.7	52.3	0.725	30000
0.023	0.7	10.83	3.56	101.3	200	14.7	59.8	0.685	30000

Table 3. ALCR, LRV_{DIT} and UCL per PDR at Cutting Number

Cutting Number	P _{test}	ΔP _{test}	VCF	ALCR	LRV _{DIT}	UCL (by 4 log)	UCL (by 3 min)
	kPa	kPa	-	-	-	kPa/min	kPa/3 min
Normal	100	2.7	1	16.47	3.89	0.30	0.91
	150	2.4	1	21.53	4.05	0.40	1.19
	200	3.7	1	26.06	4.09	0.48	1.44
1 Fiber Cutting	100	48.8	1	16.47	2.63	0.30	0.91
	150	65.8	1	21.53	2.62	0.40	1.19
	200	67.4	1	26.06	2.69	0.48	1.44
2 Fiber Cutting	100	91.4	1	16.47	2.36	0.30	0.91
	150	116.3	1	21.53	2.37	0.40	1.19
	200	152.0	1	26.06	2.34	0.48	1.44
3 Fiber Cutting	100	111.1	1	16.47	2.16	0.23	0.7
	150	163.5	1	21.53	2.26	0.43	1.28
	200	202.8	1	26.06	2.24	0.51	1.53

수 있었다. 따라서 100, 150, 200 kPa 3가지 조건에 따른 PDT 측정 및 감도평가를 실시하였다.

3.2. 막 손상 유형별 PDT 결과

Fig. 4는 1개의 Fiber를 총 4가지 손상 유형별로 PDT를 수행한 결과로, P_{test} 값을 100, 150, 200 kPa으로 설정하여 측정한 PDR 결과이다.

3.3. 막 완결성 감지 감도 인자 정량화 결과

막 손상 PDT 결과를 3분 경과했을 때를 기준으로 다음 Tables 2, 3에서 정리하였다. P_{test} 변화량은 파단개수가 증가할수록, 결손 면적이 큰 형태일수록 크게 나타났으며, 모든 조건에서 초기압력값을 크게 설정할수록 크게 측정되었다.

위의 Table 2의 인자들은 Darcy pipe flow식으로 ALCR 값을 구할 때 필요한 값으로, K는 분리막의 외경과 내경의 차이인 d_{fiber}와 손상부까지의 거리인 L을 통해 구간 상수값으로 Crane's chart를 이용하여 순확장

인자(net expansion factor) Y를 구한다[10].

Table 3의 Normal 상태일 때 막의 LRV_{DIT} (로그제거율)은 4 log 미만이거나 근소하게 4 log를 충족함을 알 수 있는데 이는 분리막이 보증 제거율에 간신히 만족함을 알 수 있다. 특히 Fiber가 1개라도 손상이 된다면 2 log까지 감도가 떨어지는 것으로 보아 경미한 손상 여부를 LRV_{DIT}로 확인할 수 있다.

Table 4의 경우 4 log를 보장하는 손상 유형은 없으며 Scratch Defect만 3 log이며 나머지는 모두 2 log의 제거율을 나타내는데 이는 Scratch Defect의 손상 면적이 제일 작기 때문인 것으로 보인다. UCL은 Diagonal Cutting 외에는 전부 동일한 값을 유지하고 있으며 전 구간에서 P_{test} 설정값이 100, 150, 200 kPa 순으로 커질수록 UCL이 높아지는 것을 볼 수 있으며, 손상 유형에 상관없이 높은 P_{test}일수록 손상감도가 높다고 판단된다.

Table 4. ALCR, LRV_{DIT} and UCL per PDR at Broken Types

Broken Types (1 fiber)	P _{test}	ΔP _{test}	VCF	ALCR	LRV _{DIT}	UCL (by 4 log)	UCL (by 3 min)
	kPa	kPa	-	-	-	kPa/min	kPa/3 min
Diagonal Cutting	100	48.8	1	16.47	2.56	0.30	0.91
	150	65.8	1	21.53	2.58	0.40	1.19
	200	67.4	1	26.06	2.57	0.48	1.44
Straight Defect	100	44.6	1	16.47	2.54	0.23	0.7
	150	77.9	1	21.53	2.72	0.43	1.28
	200	93.4	1	26.06	2.78	0.51	1.53
Scratch Defect	100	46.8	1	16.47	3.15	0.23	0.7
	150	55.7	1	21.53	3.28	0.43	1.28
	200	58.1	1	26.06	3.27	0.51	1.53
Horizontal Cutting	100	11.4	1	16.47	2.63	0.23	0.7
	150	15.4	1	21.53	2.62	0.43	1.28
	200	18.8	1	26.06	2.69	0.51	1.53

3. 결 론

분리막의 손상 유형에 따른 손상 감지 감도를 평가하기 위해 분리막 Fiber의 파단 개수를 변화시키며 측정하였고, 또한 손상 형태별 PDR 및 감도인자를 비교 평가하였다. 주요 인자로써 P_{test}의 설정범위으로써 100, 150, 200 kPa 각 세 가지 조건을 선정하였고, 이에 따른 손상 개수 및 형태별 PDR 변화를 LRV_{DIT}, UCL에 적용함으로써 막 완결성 시험 모니터링을 위한 감지 감도를 정량화하였다.

PDT 결과 Fiber의 손상 개수가 증가함에 따라 LRV_{DIT}는 감소하지만 UCL은 손상 개수와 상관없이 일정함을 확인할 수 있다. 또한 같은 손상 개수 조건에서 설정 P_{test}가 클수록 모든 UCL이 증가함을 확인할 수 있었다. 이 결과를 토대로 LRV_{DIT}는 손상 개수와 설정 P_{test} 두 가지 인자에 모두 영향을 받지만 UCL의 경우는 손상이 개수와는 상관없이 설정 P_{test}에만 영향을 받음을 확인할 수 있다.

손상 유형에 따른 PDT 결과는 Diagonal Cutting 형태가 압력변화량이 제일 크게 측정되었는데, 손상 면적이 제일 크기 때문인 것으로 판단된다. LRV_{DIT}의 경우 Scratch Defect일 때에 가장 높고, 그 외의 경우는 차이가 거의 없다. UCL은 막 손상 개수에 따른 결과와 비슷한 경향으로, 손상형태에 따른 UCL의 변화가 관찰되지 않았다. 따라서 높은 감지 감도의 주요 인자로써

손상 유형과 상관없이 설정 P_{test}가 가장 크게 영향을 미치는 것으로 판단된다.

감 사

본 연구는 환경부 “글로벌담 환경기술개발사업(2016 002100004)”으로 지원받은 과제입니다.

Reference

1. Y. H. Park and S. Y. Nam, “Characterization of water treatment membrane using various hydrophilic coating materials”, *Membr. J.*, **27**, 60 (2008).
2. A. Liden, E. Lavonen, K. M. Persson, and M. Larson, “Integrity breaches in a hollow fiber nano-filter-Effects on natural organic matter and virus-like particle removal”, *Water Res.*, **105**, 231 (2016).
3. S. S. Adham, J. G. Jacangelo, and J. M. Laine, “Low-pressure membranes: Assessing integrity”, *J. Am Water Works Assoc.*, **87**, 62 (1995).
4. A. Banerjee, M. Lambertson, J. Lozier, and C. Colvin, “Monitoring membrane integrity using high sensitivity laser turbidimetry”, *Water Sci. Technol.*, **1**, 273 (2001).

5. K. Farahbakshs and D. W. Smith, "Estimating air diffusion contribution to pressure decay during membrane integrity tests", *J. Membr. Sci.*, **237**, 203 (2004).
6. A. Gijssbertsen-Abrahamse, E. Cornelissen, and J. Hofman, "Fiber failure frequency and causes of hollow fiber integrity loss", *Desalination*, **2194**, 251 (2006).
7. H. Huang, N. Lee, T. Young, A. Gary, J. C. Lozier, and J. G. Jacangelo, "Natural organic matter fouling of low-pressure, hollow-fiber membranes: effects of NOM source and hydrodynamic conditions", *Water Res.*, **41**, 3823 (2007).
8. O. Ferrer, R. Casas, C. Galvan, F. Lucena, A. Vega, O. Gibert, J. Jofre, and X. Bernat, "Challenge tests with virus surrogates: An accurate membrane integrity evaluation system?", *Desalination Water Treat*, **51**, 25 (2013).
9. J. Naismith, "Membrane integrity-direct turbidity measurement of filtrate from MF membrane modules at an operating potable water treatment plant", *Desalination*, **179**, 25 (2005).
10. USEPA, "Membrane Filtration Guidance Manual", USEPA 815-R-06-009 (2005).
11. H. Guo, Y. Wyart, J. Perot, F. Nauleau, and P. Moulin, "Low-pressure membrane integrity tests for drinking water treatment: A review", *Water Res*, **44**, 41 (2010).
12. J. H. Lee, S. K. Hong, H. C. Hur, K. J. Lee, and Y. J. Choi, "Sensitivity analysis of initial pressure and upper control limit on the pressure decay test for membrane integrity evaluation", *Sujil Bojeon*, **179**, 793 (2008).