

MF

Cross-Flow

1.

2.

3.

4.

1.

2.

3.

4.

5.

5.

가

ARA01Mq2 0130

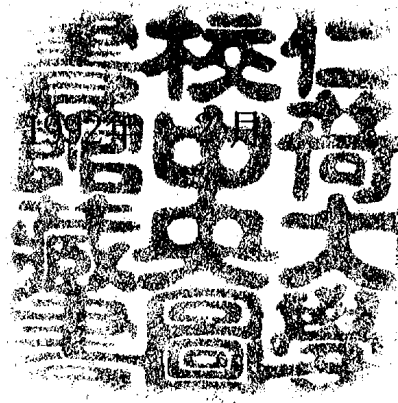
628.352

원리 영

工學碩士學位請求論文

MF막을 이용한 콜로이드성 입자의
Cross-Flow 여과에 관한 연구

A Study on Cross-Flow Filtration of Colloidal
Suspension with MF Membrane



仁荷大學校 大學院

環境工學科

元 達 植

239473

239473

工學碩士學位請求論文

MF막을 이용한 콜로이드성 입자의
Cross-Flow 여과에 관한 연구

A Study on Cross-Flow Filtration of Colloidal
Suspension with MF Membrane

1992年 2月

指導教授 徐 亨 俊

이 論文을 碩士學位 論文으로 提出함.

仁荷大學校 大學院

環境工學科

元 達 植

本 論文을元 達 植의 碩士學位 論文으로 認定 함.

1992年 2月 日

主審 _____

副審 _____

委員 _____

요 약

고액 분리 공정 중에서 막 분리 공정은 최근에 본격화 되기 시작한 것으로 막(membrane)을 이용하여 분리 조작을 행하는 것이다. 종래의 dead-end 분리 공정에서는 여과가 진행됨에 따라 막 표면에 퇴적물이 형성되어 분리 속도가 급격하게 감소하는 단점을 갖고 있으므로 이를 보완하기 위하여 유체의 흐름을 막 표면과 평행이 되게 흘려보내는 cross-flow 여과 방식으로 콜로이드성 입자를 여과하였다.

bentonite를 증류수에 현탁시킨 후 이 현탁액을 cross-flow 여과하면서 투과 유속에 영향을 주는 현탁액의 농도, 주입 유속, 압력차 등의 변수들에 대하여 분석하였으며 겔층 이론의 적용 가능성에 대하여 연구하였다.

MF 막을 이용하여 bentonite 현탁액을 cross-flow 여과시에 주입 농도가 낮을수록 투과 유속은 증가하였으며, 주입 유속이 증가 할수록 투과 유속이 증가함을 알았다. 또한 주입 농도 100 mg/L, 주입 유속 1.0 L/min일때 4 psi 이상의 압력을 받게 되면 한계 유속에 도달함을 알았다. 투과 유속과 $\log C_b$ 의 직선 관계로부터 얻은 겔층 농도는 약 1,400 mg/L에서 1,800 mg/L 사이의 값이었고, 물질 전달 계수 "Ks"는 식 (8)에서 구한 값과 상당한 차이가 있었다.

또한 Reynolds number 와 $(Sh \cdot Sc^{-1/3})$ 의 상관 관계는 이론식에서 제시한 $Sh = A \cdot (Re \cdot Sc \cdot dh/L)^{1/3}$ 의 상관 관계와 일치하였다.

Abstract

Cross-flow microfiltration is used increasingly for the concentration of suspended microparticles, bacteria and emulsion droplets. The suspension to be filtered flows parallel with membrane. When the thickness of a gel attains to a maximum thickness, a constant filtrate flux can be reached over a long period of time.

Theoretical models for the description of process and mass transfer coefficient are based on the concept of concentration polarization. This model is based on mass balance for retained solute and back diffusion from membrane into bulk solution. In this study, we could not explain the mechanism of cross flow filtration by a simple gel layer theory. But fluxes were reached to a limiting value when the pressure difference exceeded a certain level. Also the result of C.F.M.(cross-flow microfiltration) separation process corresponds with the to proposed equation : $Sh = A \cdot (Re \cdot Sc \cdot dh/L)^{-1/3}$

목 차

요 약.....	i
Abstract.....	ii
1. 서 론.....	1
2. 문헌 연구.....	3
2-1. 투과 유속.....	3
2-2. Gel층 이론.....	4
2-3. 농도 분극.....	7
2-4. 물질 전달 계수 "Ks"와 확산 계수 "Ds"의 특성.....	9
3. 실험.....	11
3-1. 실험 장치.....	11
3-1-1. 여과 장치.....	11
3-1-2. 탁도계.....	12
3-1-3. Coulter Counter.....	12
3-2. 인공 현탁액.....	13
3-3. 실험 방법.....	14

239473

4. 결과 및 고찰.....	15
4-1. 투과 유속에 미치는 농도의 영향.....	15
4-2. 투과 유속에 미치는 압력의 영향.....	19
4-3. 투과 유속에 미치는 유속의 영향.....	23
4-4. 한계 유속.....	27
4-5. 막 분리 공정의 특성 평가.....	33
5. 결 론.....	37
참고 문헌.....	38
감사의 글.....	42

1. 서 론

막 분리 공정은 장치가 간단할 뿐만 아니라 조작성이 간편하고 특정물질의 분리를 효율적으로 수행 할 수 있기 때문에 최근 들어 다공성 막의 재질 및 막 모듈 (membrane module)이 개발되면서 첨단 막 분리 기술로 인식되어 해수의 담수화, 경수의 연화, 유기 물질의 분리 및 농축, 폐수 처리, 기체 분리등 여러 분야에서 응용되고 있다.¹⁾ 특히, 환경 분야에서는 총 용존 고형물(TDS) 감소, 경도 감소, 불소 감소, 유기 물질의 감소 및 제거, 독성 중금속 및 영양염류의 제거, 탁도 제거, 바이러스를 함유한 미생물 제거 등을 위하여 막 분리 공정이 응용되고 있다.²⁾

또한 기존의 여과 공정은 여과 시간이 지남에 따라 막 표면에 퇴적하는 고형물로 인하여 여과속도가 급격히 감소하는 문제점이 있으나, cross-flow 여과가 개발됨에 따라 이를 개선할 수 있었다.^{3, 4)} cross-flow 여과는 공급액의 방향과 여과액의 방향이 기존의 여과 방법과는 다르게 막 표면에 퇴적하는 고형물을 밀어낼 수 있도록 되어 있으며, 투과 유속에 영향을 미칠 수 있는 변수들을 적절히 조절함으로써 여과 효율을 향상^{5, 6)}시킬 수 있을뿐 아니라 여과 막의 사용 기간을 연장 시킬 수도 있다.³⁾

초기에 cross-flow 여과는 다공성 막을 이용하여 Alumina , Kaolin clay와 같은 광물질 분리에 이용되었으며,^{7, 8)} 지금까지의 cross-flow 에 대한 연구는 주로 단백질과 같은 물질에 관한 것으로 겔(gel)층 이론에 의해서 성공적으로 해석되고 있다.^{9, 10)}

본 연구에서는 bentonite 현탁액을 cross-flow 여과하면서 투과 유속에 영향을 미치는 농도, 유속, 압력 등의 변수들을 분석하고, 겔층 이론을 적용하여 그 특성치를 평가하며, 실제 응용에 보다 유리한 운전 조건을 제공하고자 하였다.

2. 문헌 연구

2-1. 투과 유속

콜로이드성 입자나 단백질과 같은 거대분자의 용액을 여과할 때 투과 유속에 대한 영향 인자는 Fig. 1 과 같이 요약된다.¹¹⁾ 즉, 낮은 투과 압력하에서는 압력차가 증가함에 따라 투과 유속이 증가하며, 일정한 막 투과 압력 이상에서는 한계 유속에 도달하게 된다. 이 때에는 주입 유속이 높을수록, 온도가 높을수록, 주입 농도가 낮을수록 농도 분극 현상은 최소화되어 투과 유속은 증가할 것이다.

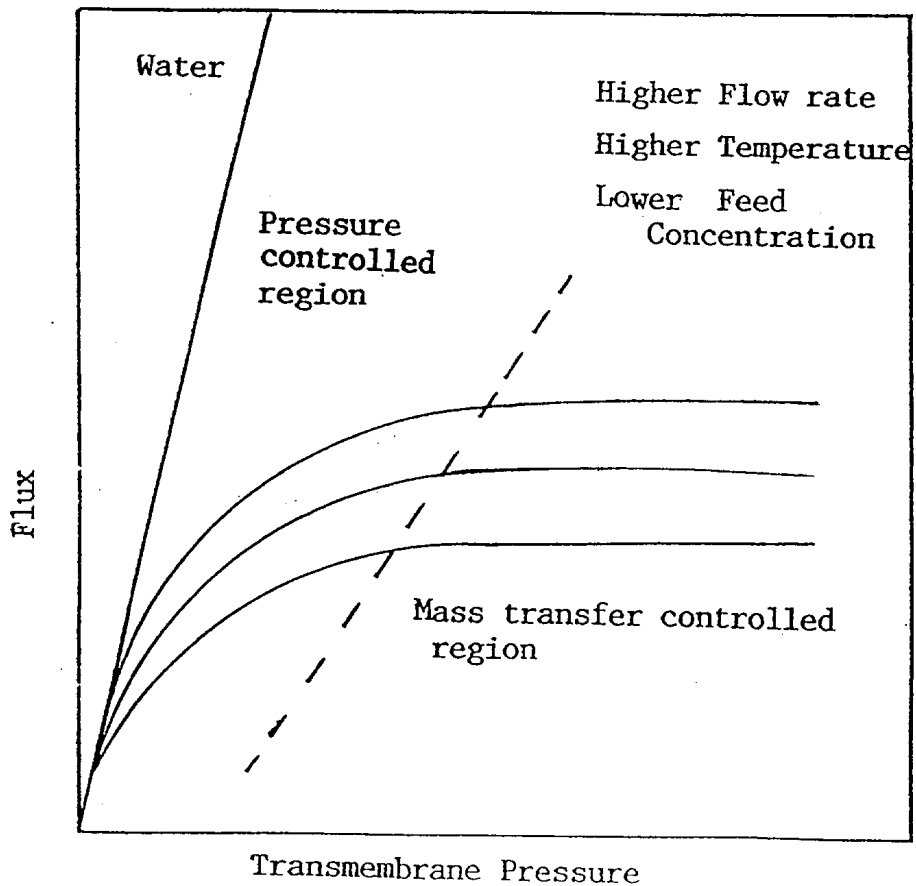


Fig. 1. Generalized correlation between operating parameters areas of pressure control and mass transfer control.¹¹⁾

이와같이 압력차의 증가와는 무관하게 일정한 투과 유속을 나타낼때 이를 한계 유속(Limiting flux)이라고 정의하며,¹²⁾ 한계 유속에 영향을 주는 인자는 물질 전달 계수 " K_s "와 주입 농도이다.¹³⁾

이러한 특성은 겔층 이론에 의해서 설명되고 있으며, 최근에는 삼투압 모델^{14, 15)}과 경계층 저항 모델^{16, 17)}로도 한계 유속에 대한 메카니즘을 설명하고 있다.

2-2. Gel층 이론

일반적으로 막 분리 공정에 있어서는 농도 분극 현상이 발생하는데 이는 용질이 막 표면위에 퇴적하여 농도 기울기를 형성하며,¹⁸⁾ 삼투압차가 발생하는 경우에는 높은 압력차를 나타내어 분리 효율이 떨어진다. 한외 여과의 경우에도 유사한 현상이 나타나지만 용질이 고분자나 콜로이드성 입자인 경우는 삼투압의 영향을 받지 않으며, 막 표면에 겔층이 형성되어 투과 유속을 감소시킨다. 여과가 진행되면서 막 표면에 입자가 축적되어 더이상 입자의 농도가 증가 할 수 없는 겔 상태가 된다. 이 때에 겔농도는 용매나, 용질의 성질에 의해서 결정되는 물리량인데 이와같은 현상을 "gel polarization theory" 혹은 "gel layer theory" 라고 한다.^{19, 20, 21, 22)} 이러한 현상을 도식적으로 나타내면 Fig. 2 와 같다.

경계층에서 용질에 대한 물질 수지식을 세우면 식 (1) 과 같이 된다.²³⁾

$$J \cdot C_p = J \cdot C_s - D_s(dC_s/dx) \dots \dots \dots (1)$$

위 식에서 J : 막을 통과하는 용매의 투과유속 [m³/m²·hr]
 C_s: 용액의 농도 [kg/m³]
 C_p: 투과액의 농도 [kg/m³]
 D_s: 용액의 확산 계수 [m²/sec]
 (dC_s/dx): 농도 구배 [kg/m²]

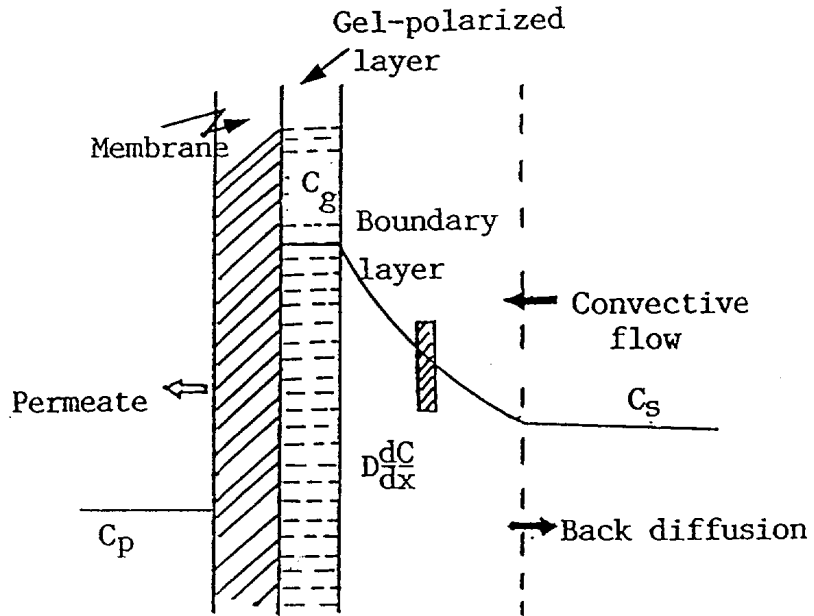


Fig. 2. Schematic diagram of the gel layer theory.

경계조건 $x = 0$ 에서 $C_s = C_b$, $x = \delta$ 에서 $C_s = C_g$ 를 식 (1)에 대입하여 적분하면 다음 식을 얻을 수 있다.

$$J = (D_s / \delta) \cdot \ln [(C_g - C_p) / (C_b - C_p)] \dots \dots \dots (2)$$

$$= K_s \cdot \ln [(C_g - C_p) / (C_b - C_p)] \dots \dots \dots (3)$$

$C_g \gg C_p$ 면

$$J = K_s \cdot \ln (C_g / C_b) \dots \dots \dots (4)$$

위 식에서 δ : 농도 분극층의 두께 [m]

K_s : 물질 전달 계수 = D_s / δ [m/sec]

식 (4)에서 C_g 는 일정하므로 여과 속도 J 는 K_s 와 C_b 에 의해서 결정되어진다. K_s 는 유체 역학적인 인자에 의해서 결정되므로 J 는 압력차에 영향을 받지 않으며 압력차가 커지면 단지 겔층의 두께만 두꺼워질뿐 여과 속도에는 영향을 미치지 않는다.

2-3. 농도 분극

막 분리 공정에 있어서 막에 의해서 용질이 배재되고 용매만이 막을 투과하기 때문에 막면 부근에서 용질의 농도는 공급액의 농도보다 높아지게 된다. 이러한 현상을 농도분극이라 하며, Fig. 3 과 같이 나타낼 수 있다.²³⁾

콜로이드성 입자나 단백질과 같은 거대 분자 용액의 여과시에 발생하는 농도 분극 현상은 물질 전달과 유체 역학적 인자에 의해서 지배된다.¹⁹⁾ 이때에 농도 분극 현상으로 인하여 용질의 농도가 증가하게 되면 용액의 점도도 증가하게 된다. 일정농도 이상에서는 Newtonian 유체의 특성에서 non-Newtonian 유체로 전환된다. 만일 농축된 용액의 여과 과정에서 농도 분극 현상이 발생하면 막 표면에 인접함에 따라 각각의 거리마다 다른 유체의 특성을 갖게 된다. 이때의 농축된 겔층은 viscosity 나 solidity 가 높기 때문에 유체의 흐름에 따라 변화하지 않는다.

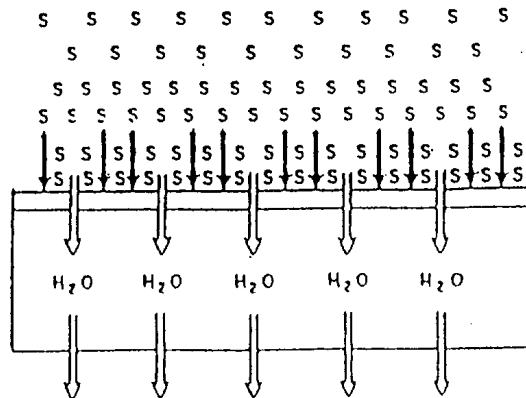


Fig. 3. Phenomena of concentration polarization

그러므로 겔층은 막의 일부로 작용하며 막을 통과하는 용매나 용질은 반드시 이 층을 통과하게 된다. 또한 겔층의 정도는 일차적으로 입자의 크기, 모양, 용질의 수화정도, 용질의 용해도 등에 따라 유체 역학적 특성에 의해 결정되어진다. 일반적으로 농축된 용질의 겔층은 막 분리 공정에 있어서 투과 유속을 저하시키며 유체의 수리학적 저항을 증가시킨다. 순수의 투과 유속은 Darcy 의 공식에 의하여 다음식과 같이 표현된다.

$$J = \frac{\Delta P}{\mu R_m} \dots\dots\dots (5)$$

여기서 R_m : 막의 저항 [m^{-1}]
 ΔP : 막의 내부와 외부의 압력차 [Pa]
 μ : 유체의 점도 [kg/m·sec]

단백질과 같은 고분자나 콜로이드성 입자를 여과할 경우 겔층의 저항으로 인하여 투과 유속은 식 (6)으로 표현된다.¹⁹⁾

$$J = \frac{\Delta P - \Delta \Pi}{\mu (R_m + R_g)} \dots\dots\dots (6)$$

여기서 R_g : 겔층의 저항 [m^{-1}]
 $\Delta \Pi$: 막과 겔층의 결합된 상태에서
 발생한 삼투압 차 [Pa]

일반적으로 콜로이드성 입자의 경우 삼투압은 무시되며, 막 자체의 저항은 겔층에 비해 대단히 작으므로 식 (6)은 다음과 같이 표현된다.²⁴⁾

$$J = \frac{\Delta P}{\mu R_g} \dots \dots \dots (7)$$

2-4. 물질 전달 계수 “K_s” 와 확산 계수 “D_s”의 특성

막 분리 공정에 있어서 농도 분극 현상을 설명하기 위해서는 물질 전달 계수에 대한 검토가 요구된다. 일반적으로 물질 전달 계수 “K_s” 는 다음과 같은 관계식을 갖는다.^{25, 26)}

$$Sh = A \cdot (Re)^\alpha \cdot (Sc)^\beta \cdot (dh/L)^\omega \dots \dots \dots (8)$$

- 여기서 Sh : Sherwood number = K_s · dh / D_s [-]
- Re : Reynolds number = dh · U / ν [-]
- Sc : Schmidt number = ν / D_s [-]
- dh : hydraulic diameter [m]
- L : channel length [m]
- U : velocity of fluid [m/sec]
- ν : kinetic viscosity (μ / ρ) [m²/sec]
- μ : viscosity of fluid [kg/m · sec]
- ρ : density of fluid [kg/m³]
- α, β, ω : exponents in equation (8)
- A : constant in equation (8)

Laminar flow 영역에서 식 (8)는 다음과 같은 상수를 갖는다.

Graetz²⁷⁾와 Leveque²⁸⁾ $\alpha=0.33$, $\beta=0.33$ 을 제안했으며 Grober등은²⁹⁾ $\alpha=0.5$, $\beta=0.33$ 을 제안했다. 상수 A의 경우 Grober는 0.664, Leveque 는 1.86 으로 규정했다.³⁰⁾

식 (1), (8) 에서 확산 계수 "D_s" 는 용질이 콜로이드와 같은 구형 입자인 경우 Stokes-Einstein³¹⁾ 의 식으로부터 얻어진다.

$$D_s = kT/6\pi\mu r_p \dots\dots\dots (9)$$

위 식에서 k: Boltzman constant(1.380E-16erg/deg)	[kg·m ² ·/sec ² ·k]
T : temperature	[k]
μ : viscosity	[kg/m·sec]
r _p : radius of paticle diffusing	[m]

3. 실험

3-1. 실험 장치

3-1-1. 여과 장치

여과 장치는 Bio-Recovery 사에서 제조한 X-FLO Lab. Module을 사용했으며, 이 장치는 여과막 2 개와 그 사이의 support plate 1개로 구성되어 있다. Fig. 4 에 X-FLO Lab. Module 의 여과 원리를 나타냈다. 공급액의 흐름 방향은 분리 막과 평행하며, 투과액의 흐름 방향은 공급액과 cross-flow하고 있다. 본 연구에서 여과막은 $0.2\mu\text{m}$ pore size 의 microfiltration membrane을 사용하였다. Table 1 에서는 본 연구에서 수행한 실험 조건을 나타내었다.

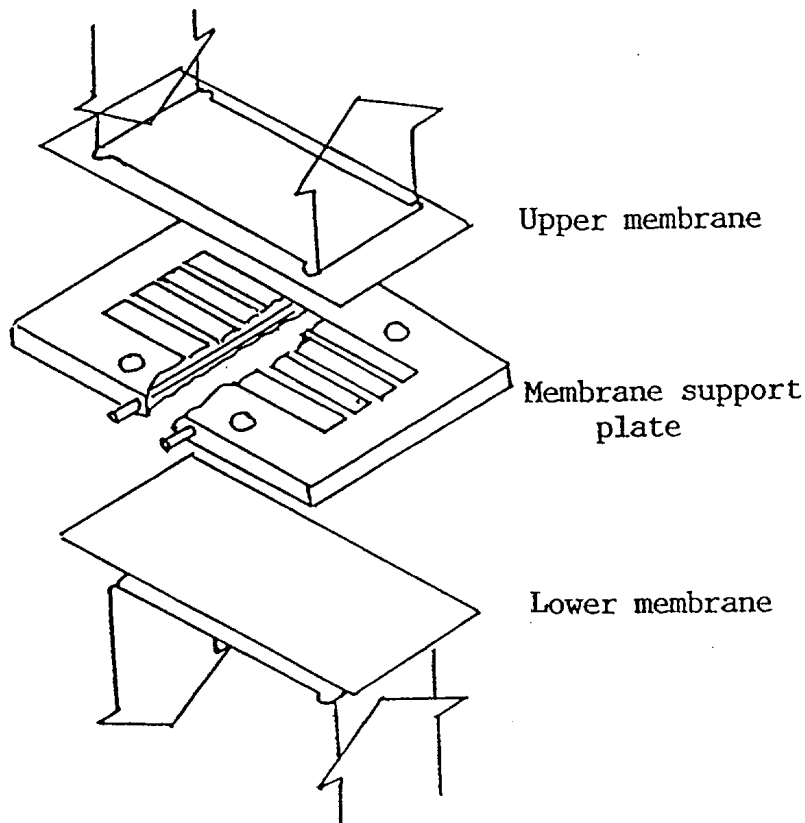


Fig. 4. Cross-flow path of X-FLO system

Table 1. Experimental condition.

Conc. : 50, 100, 150 mg/L bentonite suspension
Temp. : 30 °C
Channel height : 0.84 mm
Membrane type: 0.2 μ m pore size
Feed flow rate : 0.5, 1.0, 2.0 L/min
Pressure : 2, 4, 6 psi

3-1-2. Turbidimeter(HF instrument DRT-100)

bentonite 현탁액의 농도를 탁도(NTU)로 표현하고, 여과액의 농도를 측정하기 위해 이용했다. Table 2 에 bentonite 현탁액의 농도와 탁도의 관계를 나타냈다.

Table 2. Relation between bentonite suspension concentration and turbidity

Concentration(mg/L)	Turbidity (NTU)
50	4.5
100	9.8
150	16

3-1-3. Coulter Counter(Coulter multisizer)

시료의 입자 분포와 평균 입경을 측정하기 위하여 이용했다.

3-2. 인공 현탁액

bentonite는 화학식으로 $Al_2O_3 \cdot 4SiO_2 \cdot H_2O$ 이며 물 속에서 $1\mu m$ 이하까지 매우 미세하게 분산되는 성질을 갖는다. 분산되는 정도와 크기는 물의 온도, 교반되는 시간 등에 의존하며 $60\text{ }^\circ C$ 에서 7-8시간이면 거의 완전히 분산되나 32) 본 연구에서는 $30\text{ }^\circ C$ 에서 자석식 교반기로 약 500 rpm 으로 30분간 교반하여 현탁시킨 것을 사용하였다.

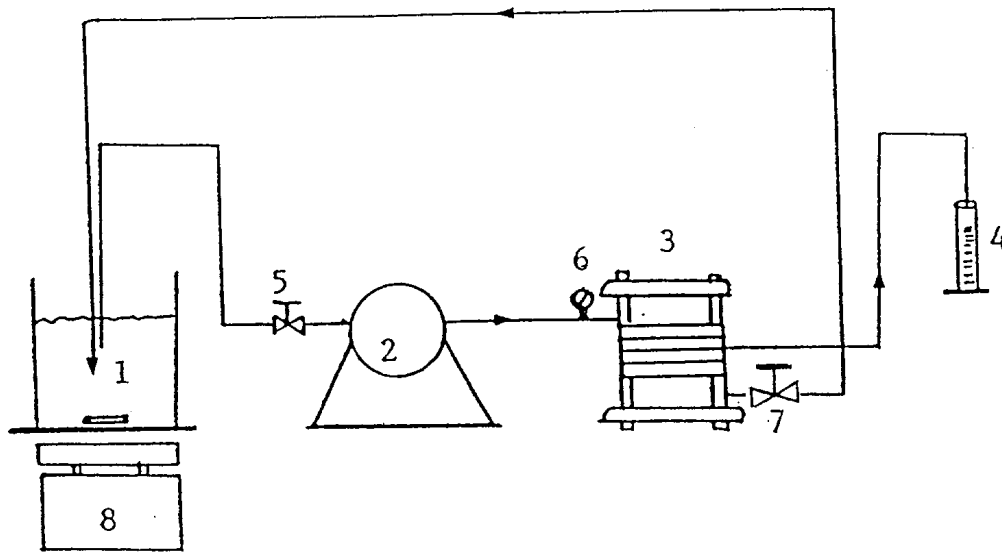
이 경우 Coulter Counter로 측정한 입도 분포를 Table 3 에 나타냈으며 평균 입경은 약 $3.483\ \mu m$ 로 나타났다. 또한 bentonite 입자는 흡습성이 커서 습도에 따라 수분 함량이 변화하므로 이에 따른 오차를 감소시키기 위하여 항상 $115\text{ }^\circ C$ 건조기에 넣어두고 평량할 때 꺼내어 사용했다.

Table.3 The result of granulemetric analysis of bentonite suspension by coulter counter.

> 5.029 μm	6.95 %
> 4.039 μm	22.1 %
> 3.703 μm	36.3 %
> 3.366 μm	57.3 %
> 3.029 μm	65.1 %
> 2.695 μm	65.9 %

3-3. 실험 방법

여과 막에 대한 분리 특성을 알아보기 위하여 재 순환되는 양을 변화시켜 가면서 실험을 수행하였다. 일정 농도의 원액에 대해서 재 순환되는 양과 여과되는 양을 시간에 따라 측정함으로써 막 투과 유속을 측정하였다. 또한 주입 속도, 현탁액 농도, 압력차를 변화시키면서 실험을 반복하였다. 이러한 변화가 막 분리 특성에 어떠한 영향을 미치는가를 알아보기 위하여 실험을 수행하였다. Fig. 5 에는 X-FLO Lab. Module 을 이용한 재 순환식 막 분리 공정도를 나타내었다.



- | | |
|-----------------------|---------------------------|
| 1. Feed solution | 5. Speed control valve |
| 2. Centrifugal pump | 6. Pressure gauge |
| 3. X-FLO module | 7. Pressure control valve |
| 4. Graduated cylinder | 8. Magnetic stirrer |

Fig. 5. Schematic diagram of experimental apparatus

4. 결과 및 고찰

4-1. 투과 유속에 미치는 주입 농도의 영향

bentonite 현탁액의 농도가 증가 할수록 투과 유속이 감소됨을 Fig. 6, 7, 8 에 나타냈다. 여과 시간 초기에는 투과 유속이 급격히 감소하다가 약 60 분이 지나면 투과 유속이 거의 일정한 값에 도달하게 되었다. Fig. 6 의 여과 압력 2 psi 에서는 평형 투과 유속에 도달하는 여과 시간 60 분에서 bentonite 현탁액 농도를 각각 50 mg/L, 100 mg/L, 150 mg/L로 하였을때 얻은 투과 유속이 각각 273 L/m²·hr, 250 L/m²·hr, 204 L/m²·hr였다. 이는 동일 압력에서 현탁액의 농도가 증가하면 한계 유속이 감소함을 나타낸다. 여과압력 4 psi 인 Fig. 7 에서는 bentonite 현탁액 농도를 각각 50 mg/L, 100 mg/L, 150 mg/L로 하였을때 각각 346 L/m²·hr, 270 L/m²·hr, 230 L/m²·hr의 투과 유속을 나타냈다. 여과 압력 6 psi 인 Fig. 8 에서도 Fig. 7 과 유사한 경향을 나타냈다. 이 실험으로 농도가 낮을수록 한계 유속이 증가함을 알 수 있었다.

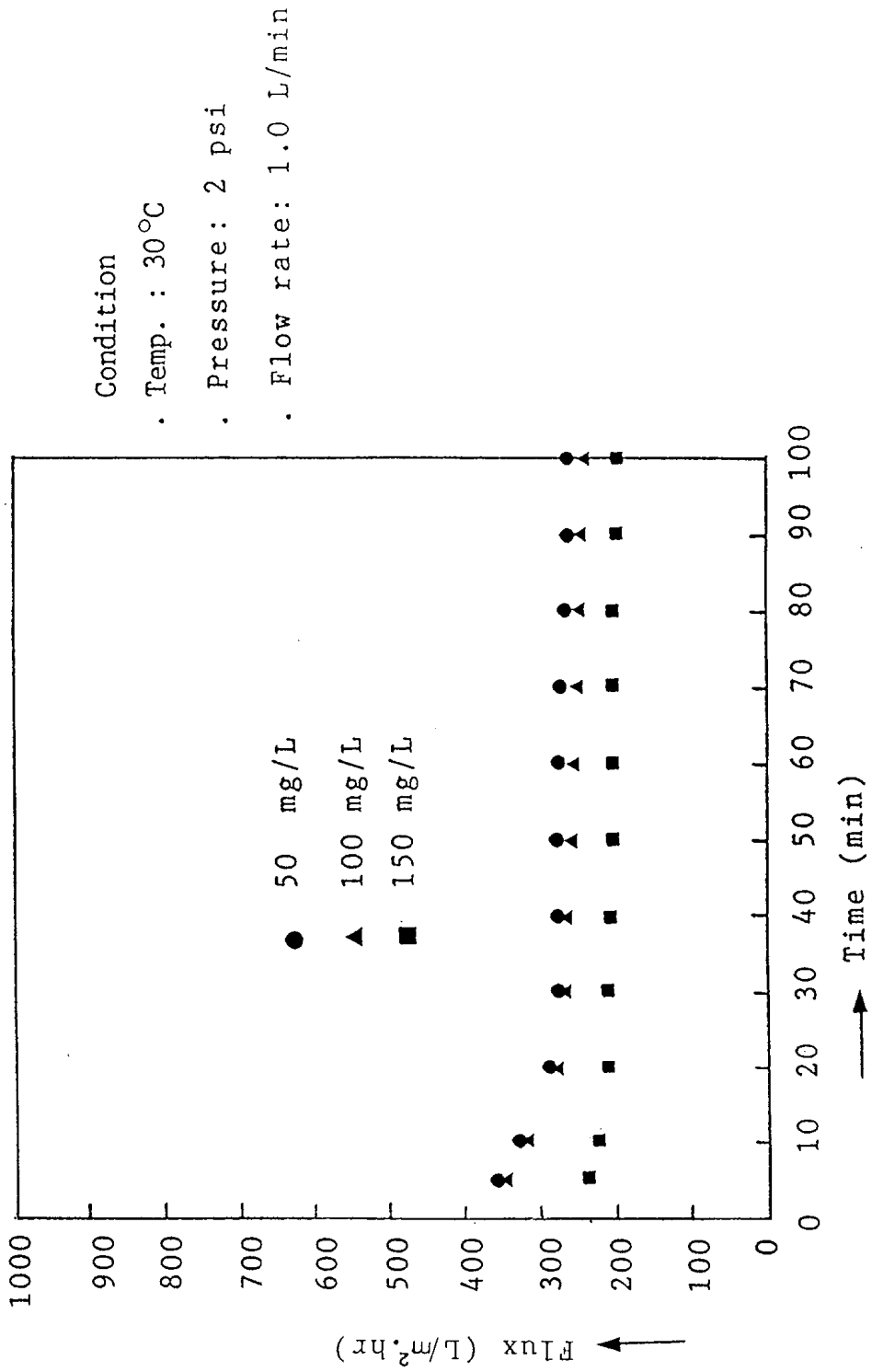


Fig. 6. Effect of bulk concentration on permeate flux

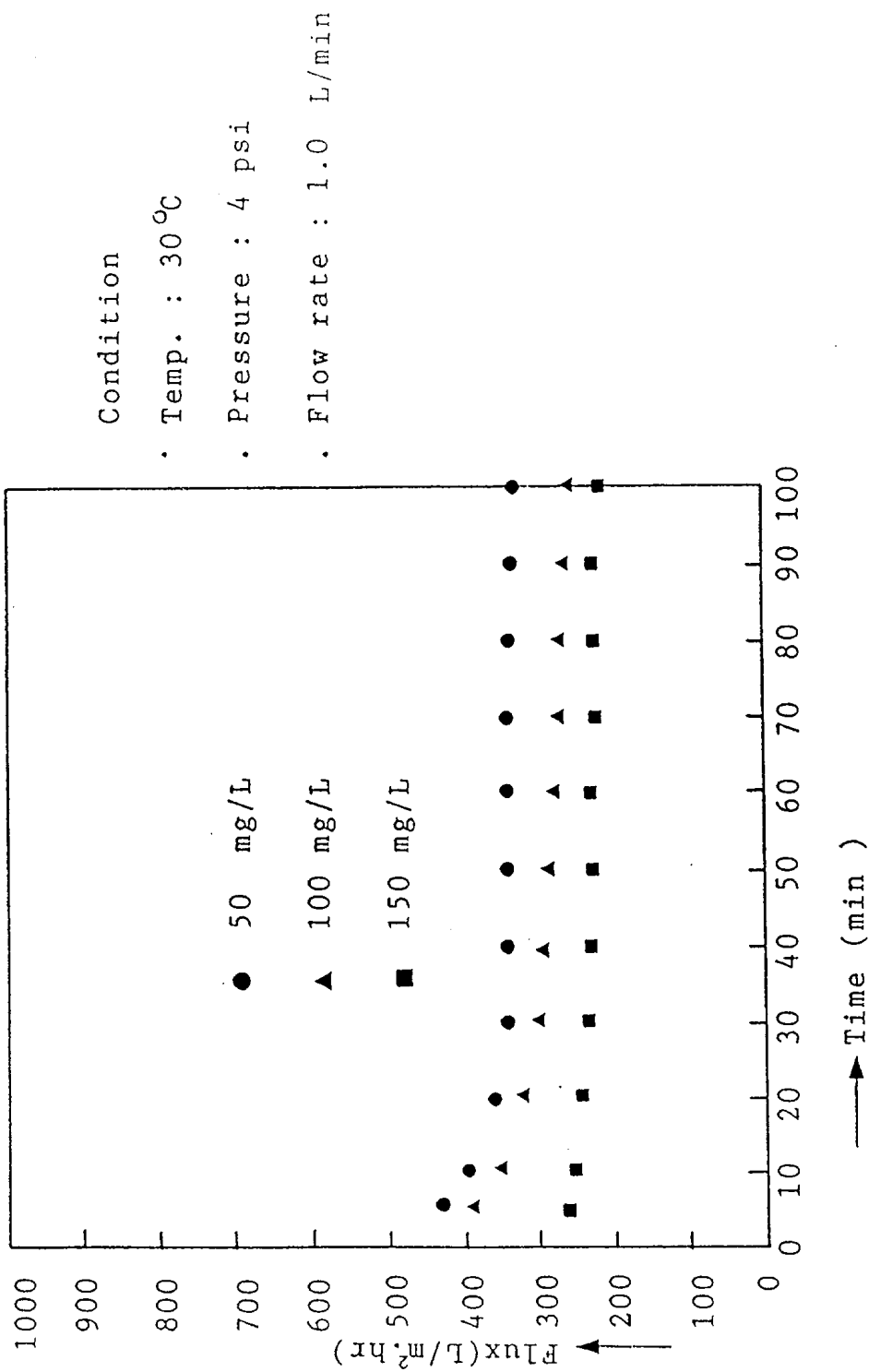


Fig. 7. Effect of bulk concentration on permeate flux

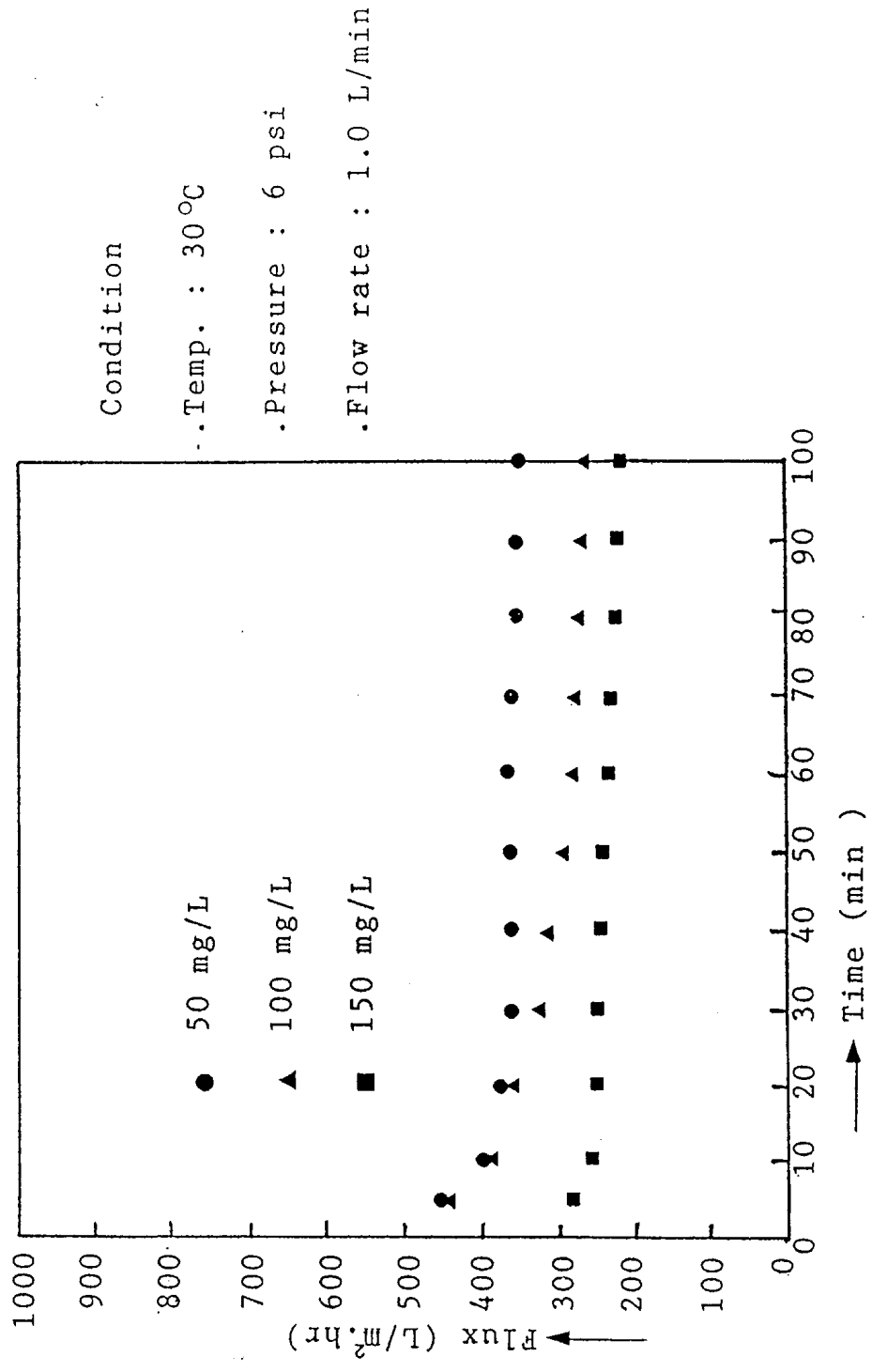


Fig. 8. Effect of bulk concentration on permeate flux

4-2. 투과 유속에 미치는 압력의 영향

투과 유속에 미치는 압력의 영향을 알아보기 위하여 bentonite 현탁액 농도 50 mg/L, 100 mg/L, 150 mg/L에 대하여 각각 다른 압력 2 psi, 4 psi, 6 psi 에서 실험한 결과를 Fig. 9, 10, 11 에 각각 나타내었다. bentonite 현탁액의 농도 50 mg/L인 Fig. 9 에서 압력이 2 psi에서 4 psi로 증가한 경우에는 상당한 정도의 투과유속이 증가하였으나 압력이 4 psi에서 6 psi로 증가한 경우에는 투과 유속의 증대에 압력이 거의 영향을 미치지 못하였다. 이는 낮은 농도에서는 적절한 압력(optimum pressure)을 선택할 수 있음을 뜻한다. 반면에 100 mg/L, 150 mg/L 에서 압력의 증가는 투과 유속에 영향을 미치지 않음을 알았으며, 여과 초기에는 압력의 영향이 컸으나 시간이 지남에 따라 압력의 영향은 감소하였다.

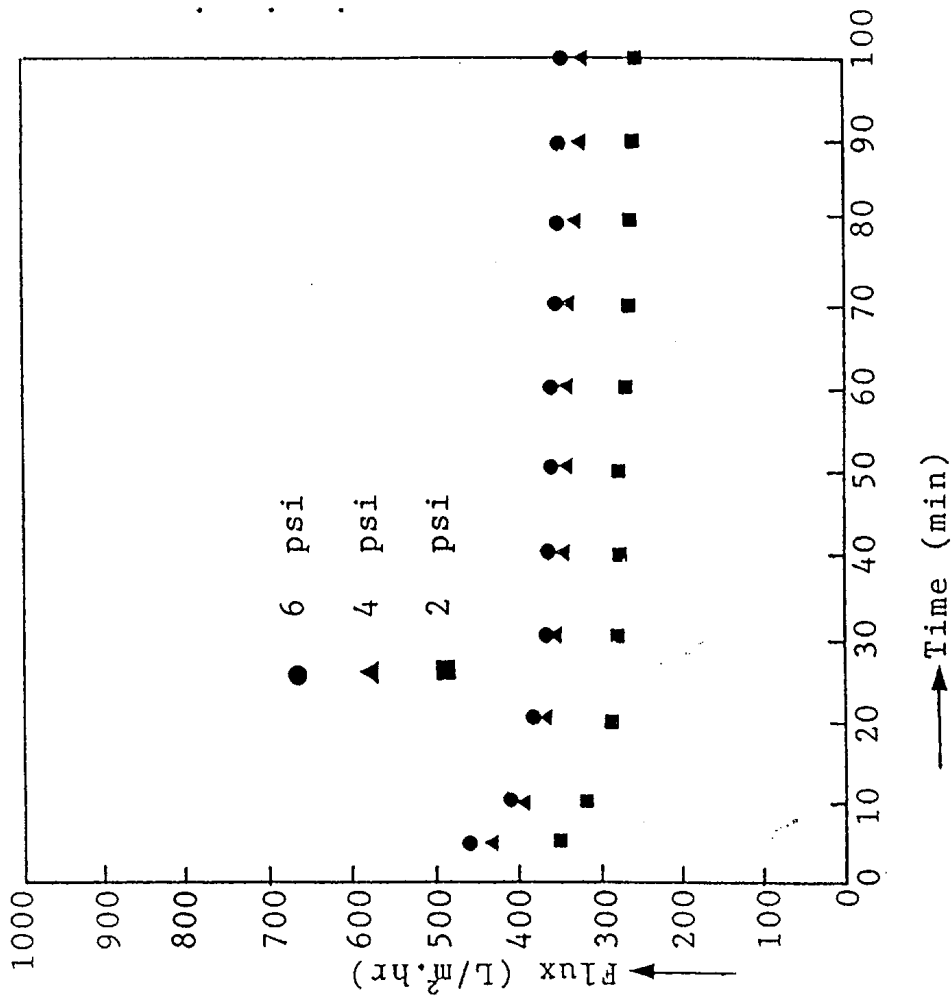


Fig. 9. Effect of pressure on permeate flux

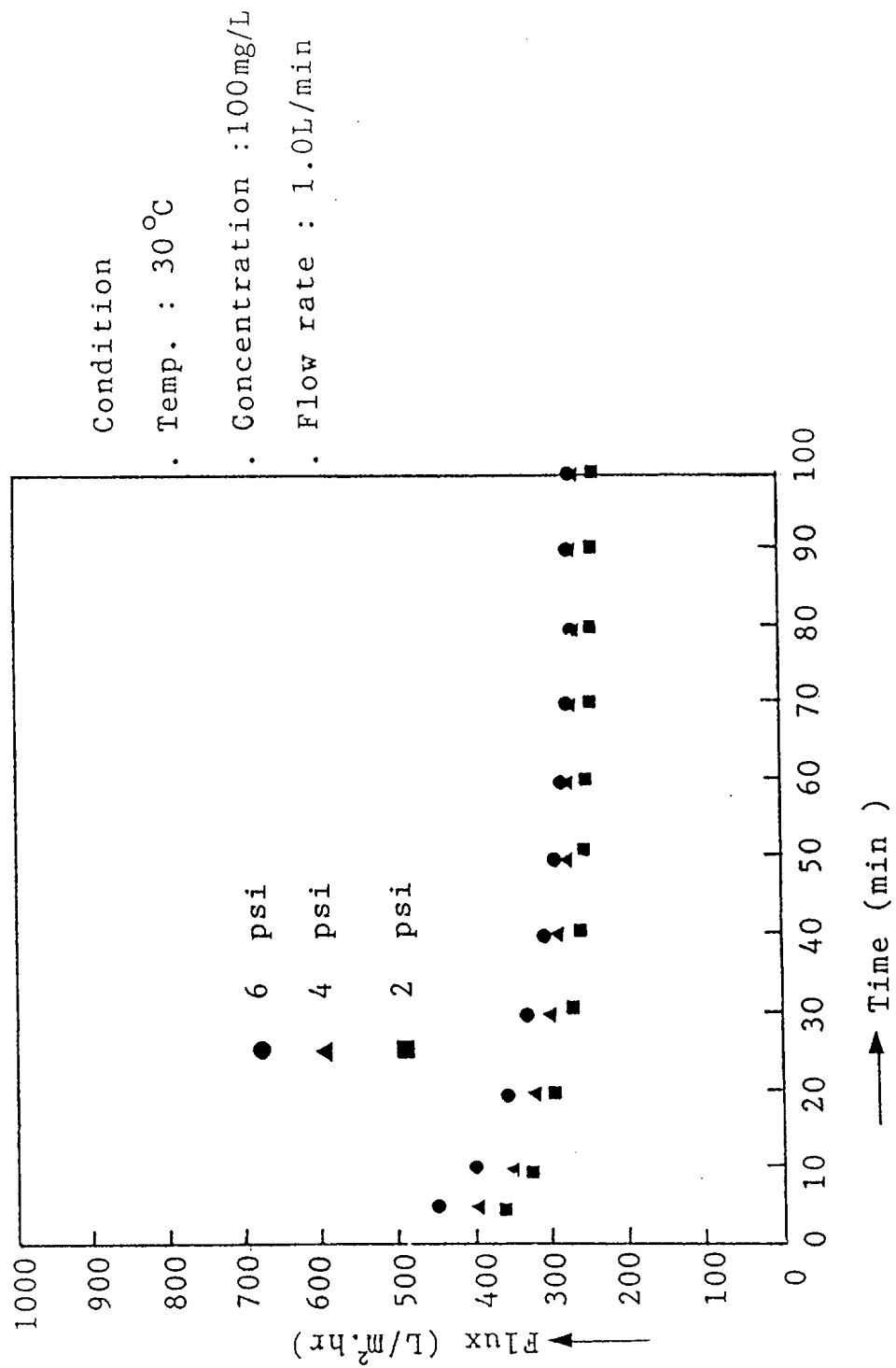


Fig. 10. Effect of pressure on permeate flux

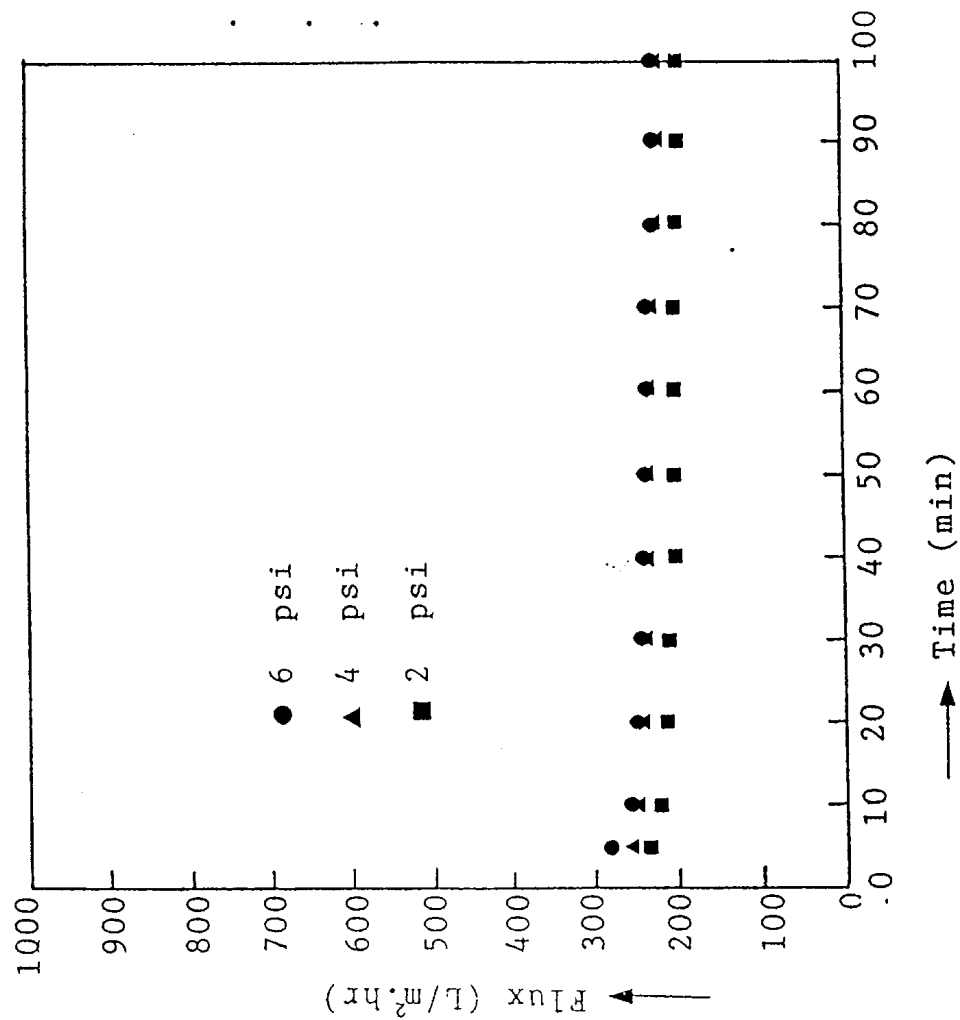


Fig. 11. Effect of pressure on permeate flux

4-3. 투과 유속에 미치는 유속의 영향

막 면위에서의 유속이 투과 유속에 미치는 영향을 알아보기 위하여 0.5 L/min, 1.0 L/min, 2.0 L/min의 유속에서 시간에 따른 투과 유속의 변화를 관찰하기 위하여 압력을 각각 2 psi, 4 psi, 6 psi 로 증가시켜 가면서 실험한 결과를 각각 Fig 12, 13, 14 에 나타냈다. 압력 2 psi인 Fig. 12 에서는 평형 투과 유속에 도달하였을 때, 유속이 각각 0.5 L/min, 1.0 L/min, 2.0 L/min 일 경우 각각 200 L/m²·hr, 250 L/m²·hr, 305 L/m²·hr의 투과 유속을 얻었다. 이는 막 면위의 유속이 증가하면 투과 유속이 상당 정도 증가함을 보여준다. 압력이 6 psi인 Fig. 14 에서는 220 L/m²·hr, 270 L/m²·hr, 330 L/m²·hr 의 투과유속을 얻었다. 앞 절에서 분석한 바와 같이 압력의 증가는 투과 유속의 증대에 큰 역할을 못하였으나, 막 면위에서 유속의 증가는 투과유속에 상당한 정도의 영향을 미치고 있음을 알 수 있었다. 막 면위의 빠른 유속은 막면에 형성되는 겔층을 감소시킬 수 있음을 알 수 있었다. 또한 여과시간 초기보다는 일정시간이 지난 후에 투과유속에 미치는 유속의 영향이 큼을 알았다.

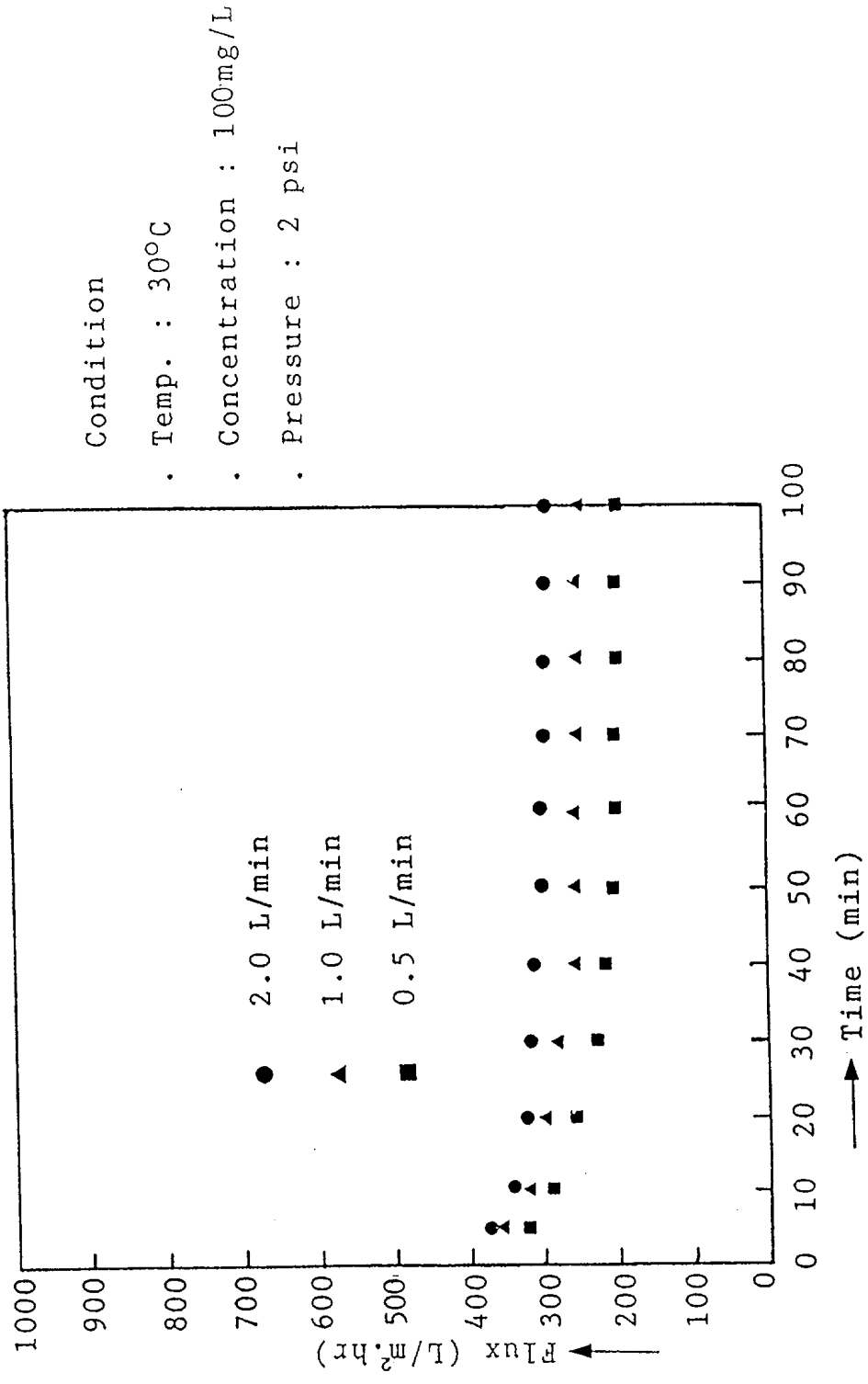


Fig. 12. Effect of flow rate on permeate flux

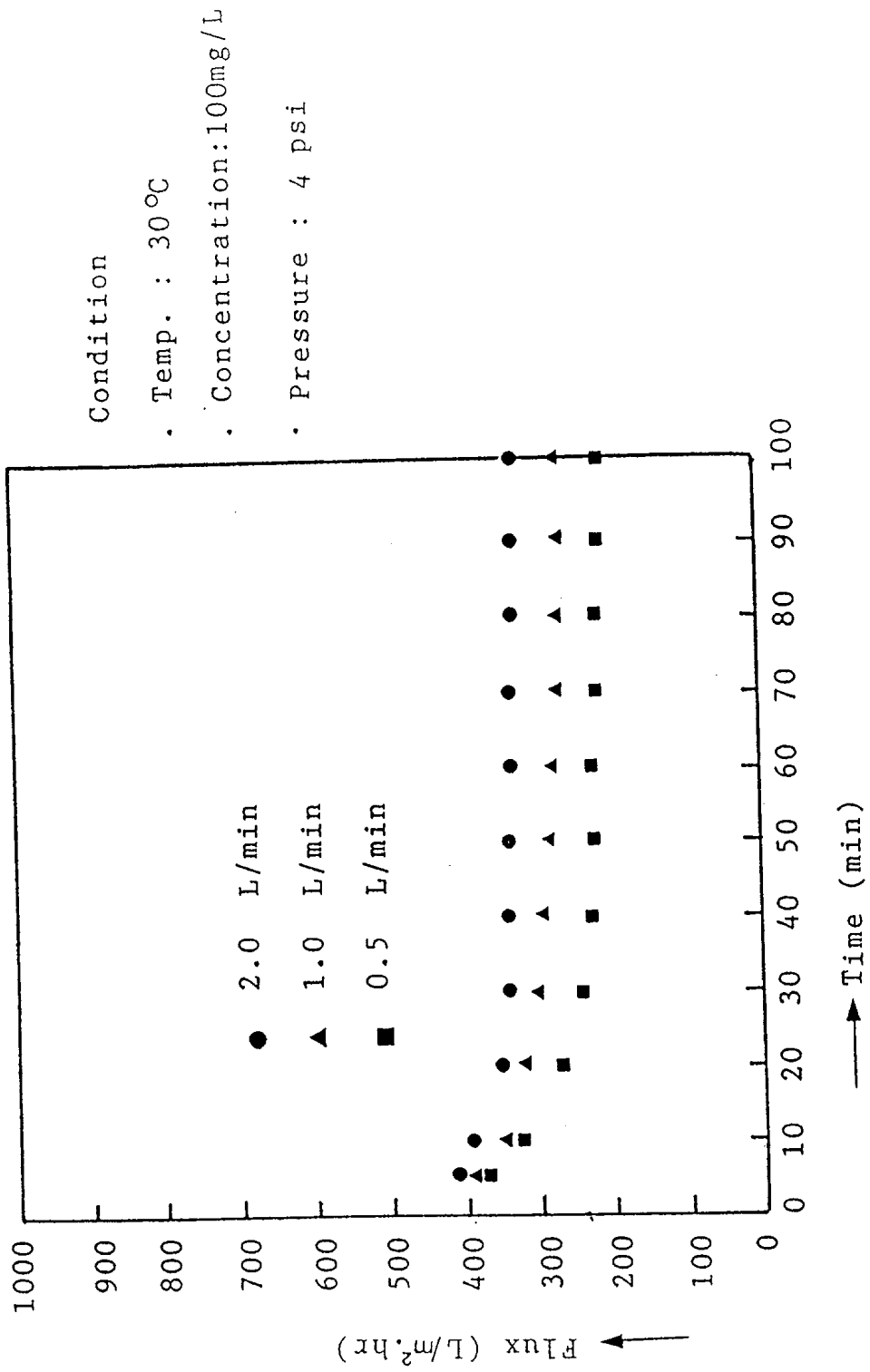


Fig. 13. Effect of flow rate on permeate flux

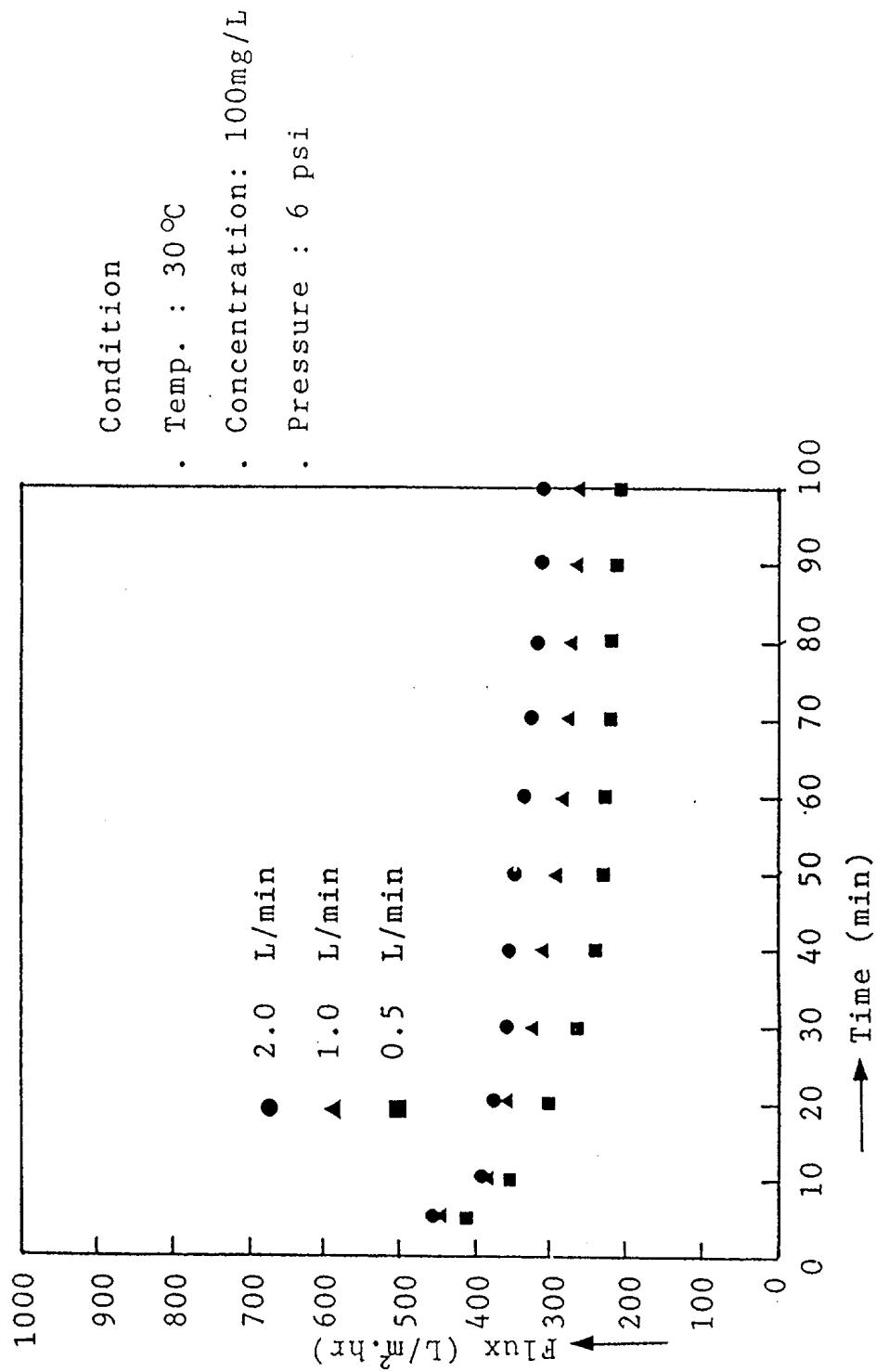


Fig. 14. Effect of flow rate on permeate flux

4-4. 한계 유속

Fig. 15, 16 에서는 현탁액의 유입 속도의 증가에 따른 투과막의 압력차와 투과 유속과의 관계를 나타냈다. Fig. 15 에서는 bentonite 현탁액 농도 50 mg/L 일때 압력이 증가함에 따라 투과 유속이 증가하였으며, 유속이 증가할수록 투과 유속이 증가함을 알 수 있었다. 또한 Fig.16 에서는 bentonite 현탁액 농도가 150 mg/L일 경우 압력의 증가는 투과 유속에 거의 영향을 미치지 않았으며 유속의 증가할수록 투과 유속이 증가함을 알았다.

Fig. 17, 18 에서는 현탁액의 농도가 증가함에 따른 투과막의 압력차와 투과유속과의 관계를 나타냈다. 이러한 경우에 투과 유속은 한계 유속에 도달한 후에는 농도에 의해서 크게 영향을 받고 있음을 알았다.

Table. 4 에서는 MF 막을 이용한 콜로이드성 입자의 cross-flow 여과에서 얻은 투과 유속을 나타낸 것으로 주입 농도가 100 mg/L, 유속 1.0 L/min 이고 압력이 각각 2 psi, 4 psi, 6 psi 일때의 투과 유속은 각각 250 L/m²·hr, 270 L/m²·hr, 270 L/m²·hr 을 얻었으며, 주입농도가 100 mg/L, 압력이 6 psi 에서 유속을 각각 0.5 L/min, 1.0 L/min, 2.0 L/min 로 했을때 얻은 투과유속은 각각 220 L/m²·hr, 270 L/m²·hr, 330 L/m²·hr 가 됨을 알았다. 이로써 주입 농도가 100 mg/L 일때 압력차가 4 psi 이상일 경우 한계 유속에 도달하며, 유속이 증가할수록 투과 유속은 증가함을 알 수 있었다.

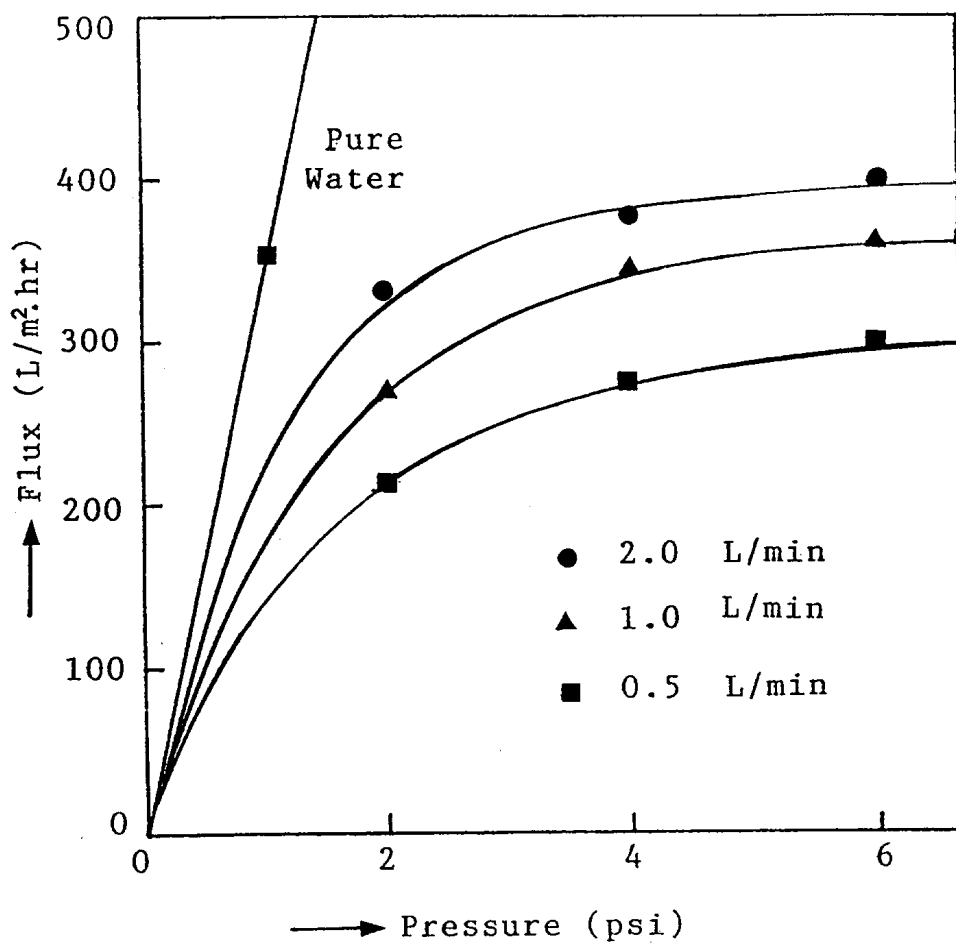


Fig. 15. Relation between limiting flux and pressure (at 50 mg/L)

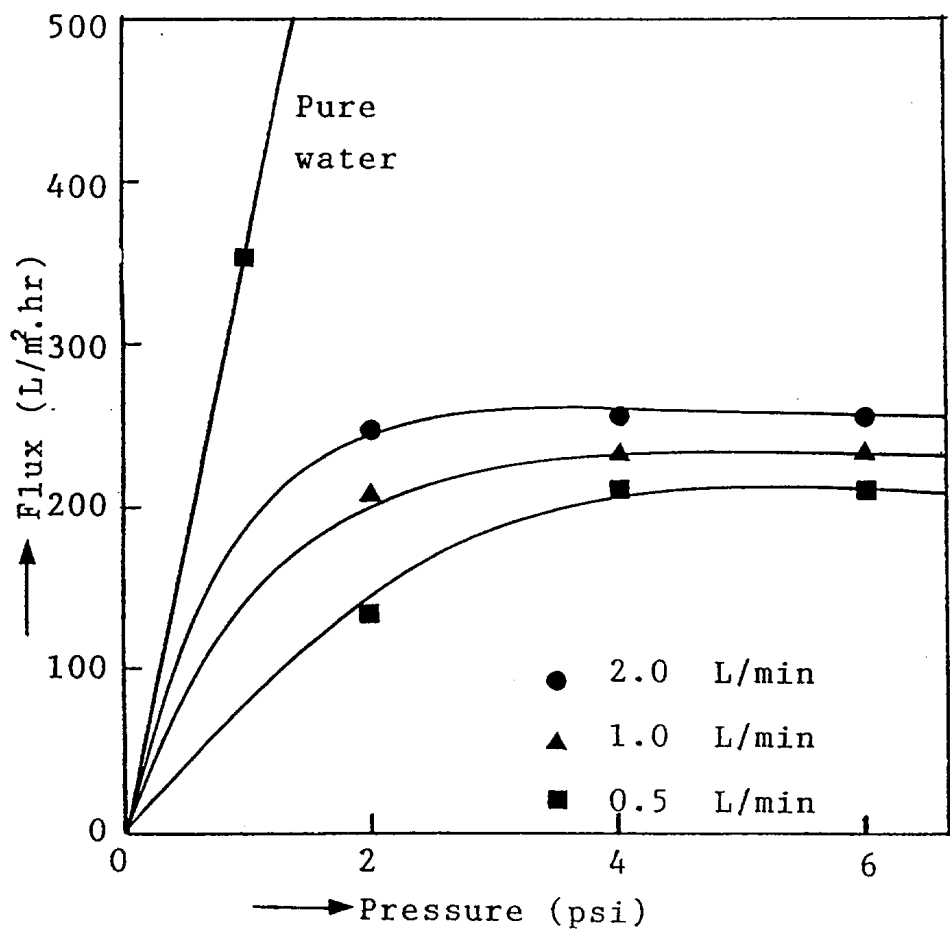


Fig. 16. Relation between limiting flux and pressure (at 150 mg/L)

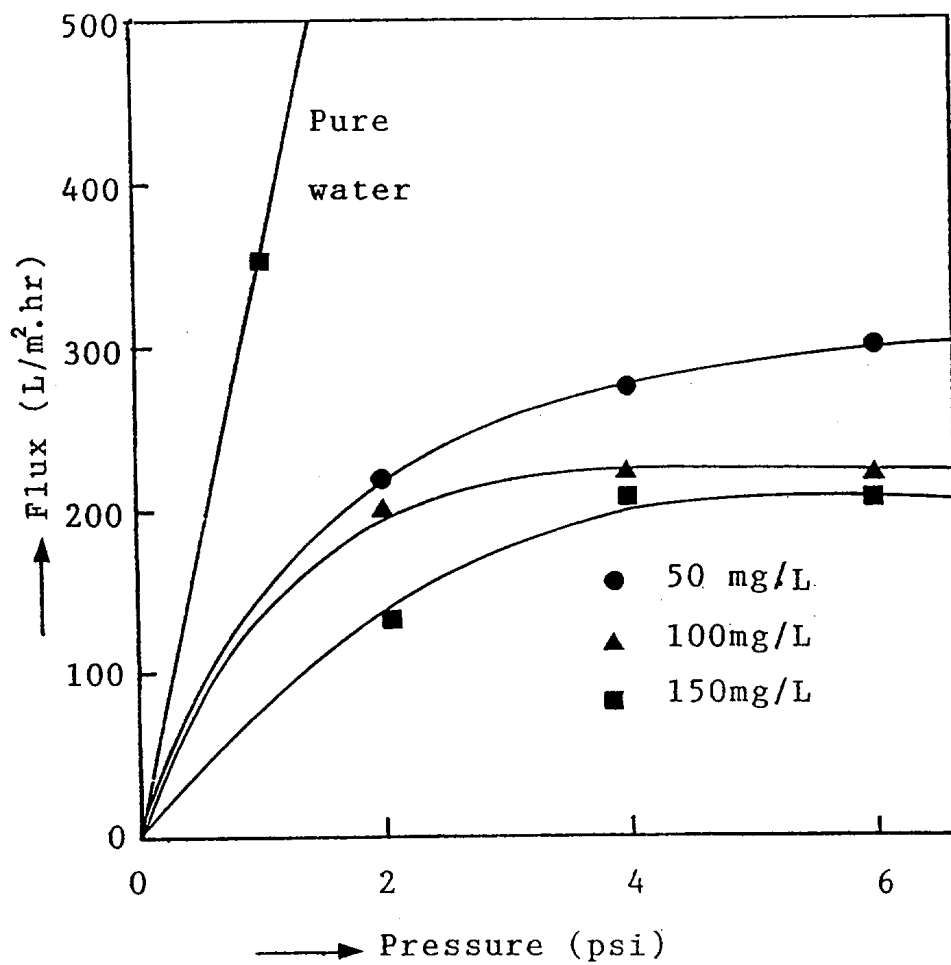


Fig. 17. Relation between limiting flux and pressure (at 0.5 L/min)

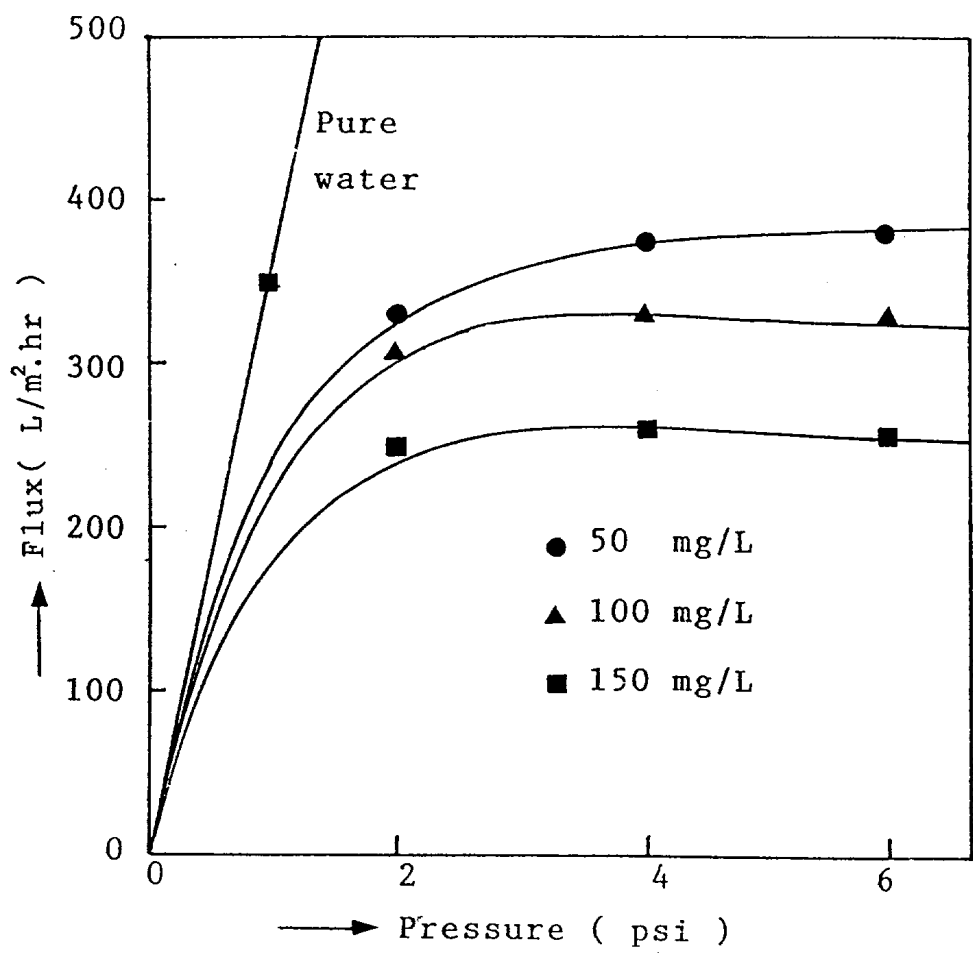


Fig. 18. Relation between limiting flux and pressure (at 2.0 L/min)

Table 4. Fluxes of obtained with cross-flow microfiltration

Conc.	Δp Q	2	4	6
		psi	psi	psi
50mg/L	0.5L/min	225	273	300
	1.0L/min	273	346	360
	2.0L/min	330	375	380
100mg/L	0.5L/min	200	220	220
	1.0L/min	250	270	270
	2.0L/min	305	330	330
150mg/L	0.5L/min	130	210	210
	1.0L/min	204	230	250
	2.0L/min	250	257	257

Unit : L/m²·hr

4-5. 막 분리 공정의 특성 평가

일정 농도의 공급액에 대한 재 순환 공정의 실험 결과는 다음과 같다. Fig. 19 에서는 투과 유속과 Log Cb 값의 직선관계를 나타낸 결과이다. 외삽법에 의하여 추정된 겔층 농도 Cg 는 약 1400 mg/L 에서 1800 mg/L 의 값을 갖으며, 얻어진 기울기 값 "Ks" 를 Table 5 에 나타냈다. 이론식에 의하여 구한 Ks와 상당한 차이를 나타내며 이는 확산을 기본으로 한 겔층 이론에 있어서 물질 전달 계수 "Ks"는 단순한 확산 이외의 또 다른 메카니즘에 의해서 결정될 수 있다는 가능성을 보여주고 있다. Fig. 20 에서는 Reynolds number 와 투과 유속의 관계를 나타낸 결과이다. 비교적 높은 Reynolds number 보다는 낮은 Reynolds number에서 압력의 영향이 크게 나타남을 알 수 있었으며, 낮은 압력 하에서 Reynolds number에 민감함을 알 수 있었다. Fig. 21 은 Reynolds number 와 Sherwood number, Schmidt number 의 상관 관계를 나타내고 있다. 이 때에 얻은 기울기 값 0.33 은 Laminar flow 영역에서의 이론식 $Sh = A \cdot (Re \cdot Sc \cdot dh/L)^{1/3}$ 에 나타난 상관관계 0.33과 일치하였다.

Table 5. Mass transfer coefficients in $L/m^2 \cdot hr$ from Fig. 19.

Mass transfer coefficient	Flow rate (L/min)		
	0.5	1.0	2.0
K_s	79	102	124
K_s^*	0.13	0.16	0.21

K_s^* : 30 °C 에서 구한 D_s 값 $1.59E-9 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 와
 ν 값 $0.8039E-2 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 를 이용하여 계산하였다.

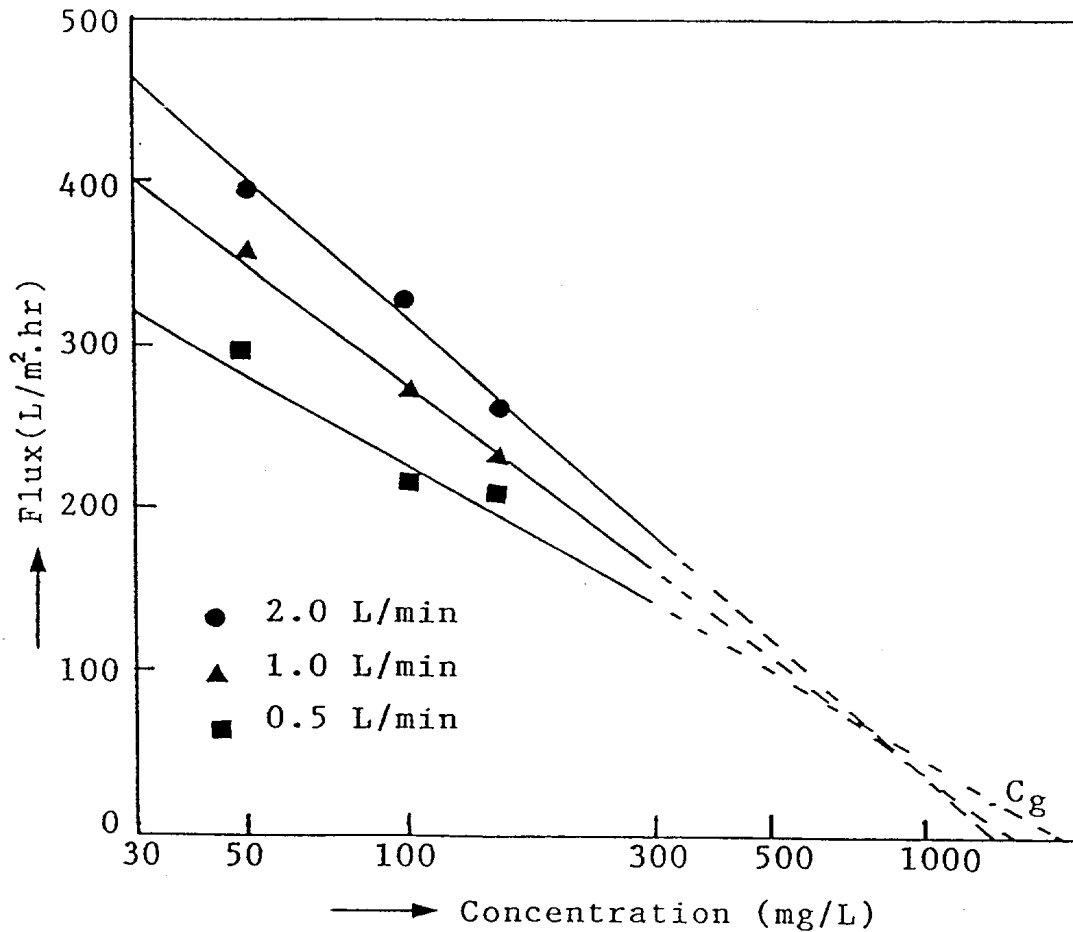


Fig. 19. Relation between flux and logarithm of bulk concentration (at 6 psi)

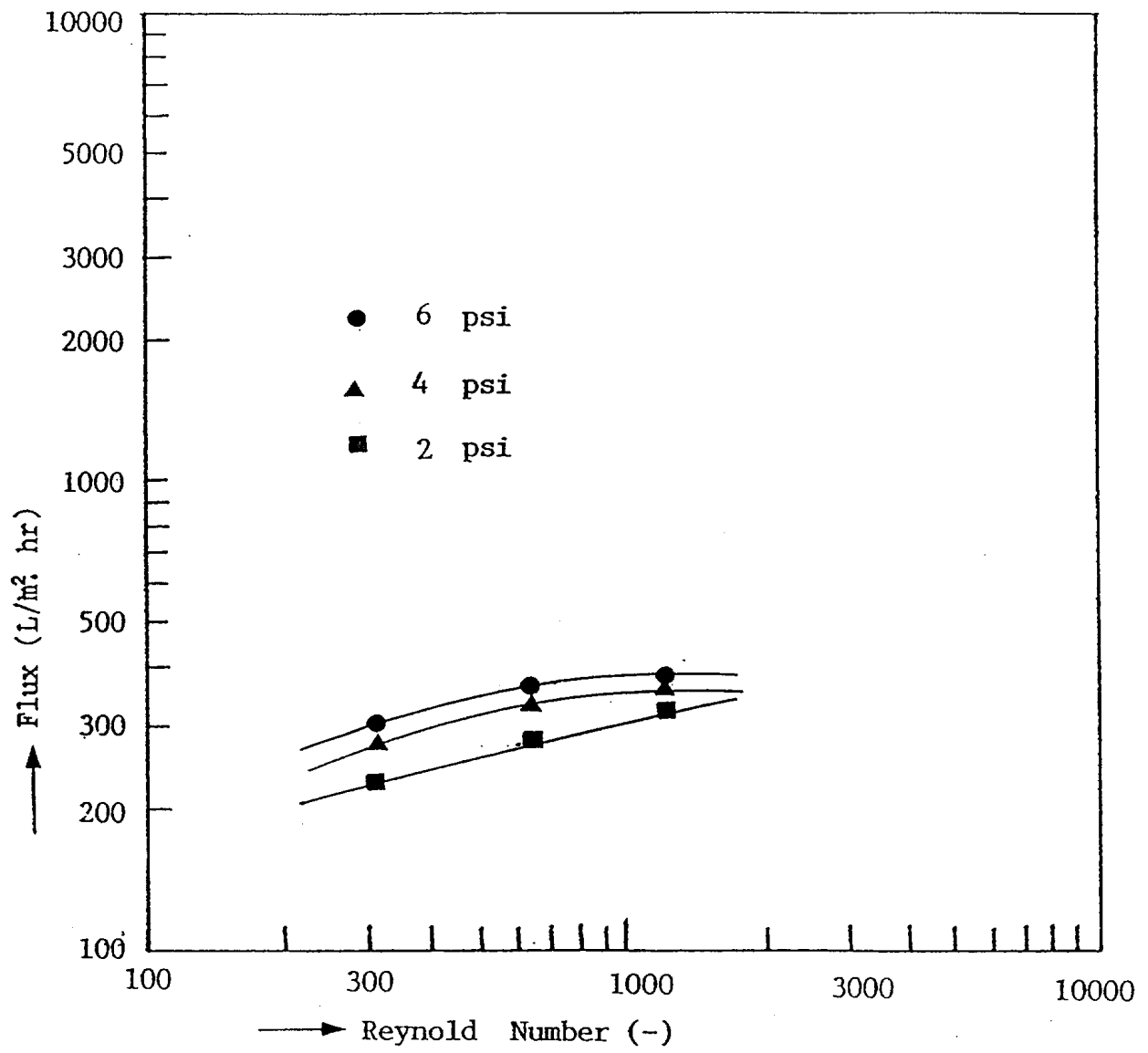


Fig. 20. Relation between Reynolds number and limiting flux (at 50 mg/L)

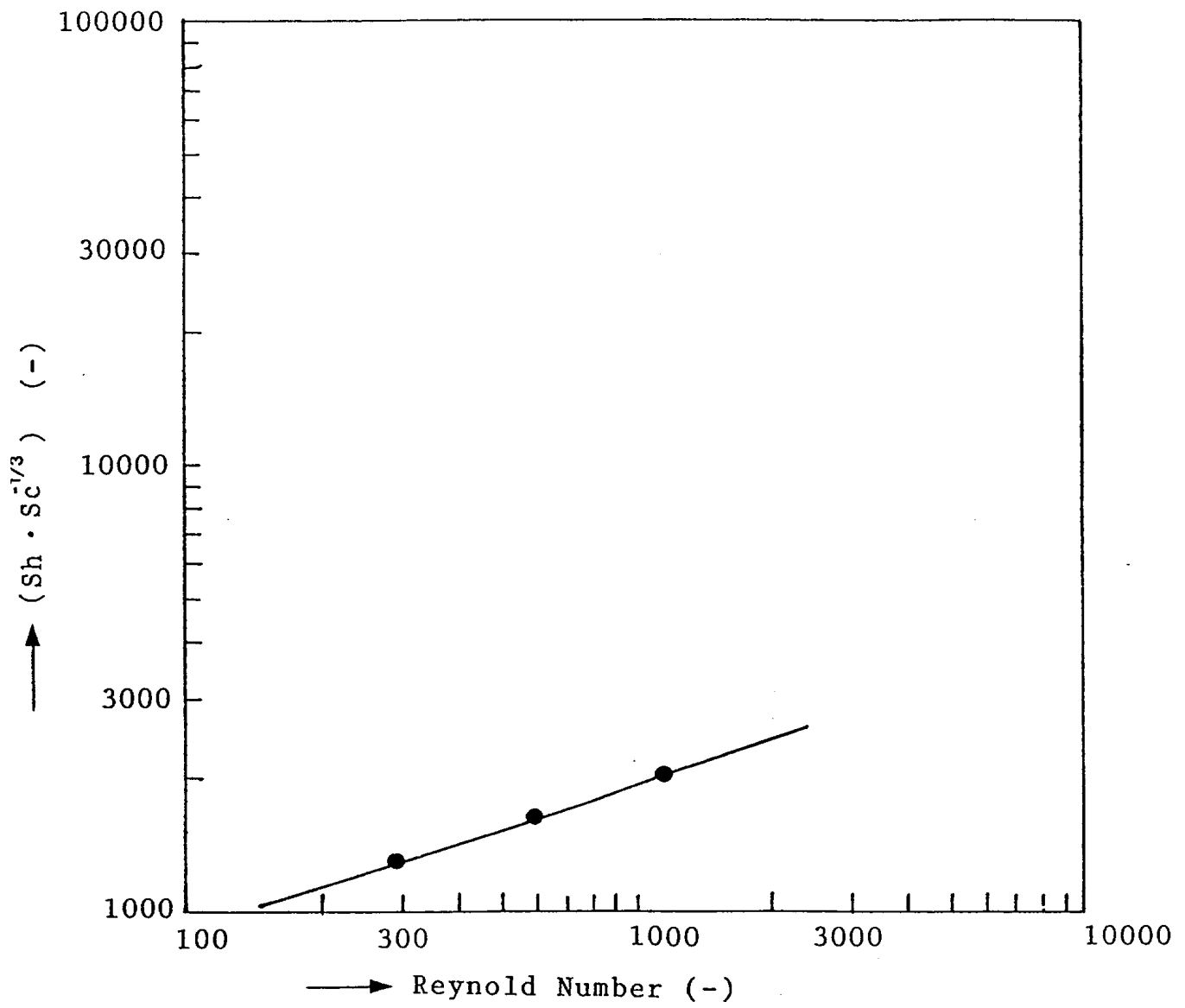


Fig. 21. Relation between Reynolds number and $Sh \cdot Sc^{-1/3}$ in laminar flow

5. 결 론

막 분리 공정의 분리 특성과 흐르는 유체의 물리적 유체 역학적 특성 사이의 함수 관계에서 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 겔층의 형성으로 인해 한계 유속 현상이 나타남을 알았다.
2. 한계 유속 현상이 발생하는 압력 이상에서의 투과 유속은 압력에 의해서 영향을 받지 않았으며, 공급액의 농도와 주입 속도에 의해서 결정되었다.
3. 콜로이드성 입자의 cross-flow 여과에서 확산을 기본으로 한 겔층 이론은 성공적으로 적용할 수 없었으며 또 다른 메카니즘의 존재 가능성을 보여 주었다.
4. 실험을 통하여 얻은 연관 변수들간의 정량적 수식값인 무차원군 ($Sh \cdot Sc^{-1/3}$) 과 Re 와의 상관 관계는 이론식에서 제시한 $Sh = A \cdot (Re \cdot Sc \cdot dh/L)^{1/3}$ 의 함수 관계와 일치하였다.

참고 문헌

1. 노 용우, 김 화용, 박 원희, 한외 여과 투과 유속에 대한 유분 점도의 영향, 화학 공학, Vol.27, No.4, August pp.446-450 (1989)
2. Robert, L. Sanks, Water Treatment Prant Design, Ann Arber Science, pp.649-651 (1979)
3. M.C. Porter and L. Nelson, Recent Development in Separation Science, Vol.2, N.N.Li Ed, pp. 227 (1972)
4. 강 영권, 목 영일, 접선투 분리막을 이용한 미생물 재 순환 연속 에탄올 발효, 아주 대학교 논문집, (1988)
5. Alan V. Quirk and John. R. Woodraow, Enzyme Microbiol. Tech. Vol. 6 pp. 201 (1984)
6. Georges Befort, J. Membrane Science, 40, pp. 123 (1989)
7. Zhevnovatyi, A. I., Int. J. Chem. Eng., 4, pp.124 (1964)
8. Dahlheimer, J. A., Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev. 9, pp.566 (1970)
9. Porter, C., Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev., 11, pp.234 (1972)

10. Deverreux, N. and Hoare, B. B., *Biotechnol. Bioeng.*, 28, pp.422 (1986)
11. Munir Cheryan, *Ultrafiltration Handbook*, Technomic Publishing Co., Lancaster, Pennsylvania, pp. 76-82 (1986)
12. Sin-ichi Nakao, Tsuyosihi Nomura and Shoji Kiura, *Ultrafiltration and Macromolecular Solutions*, World Congress 3d of Chemical Engineering, Tokyo, pp.262-265 (1986)
13. 이 울락, 장 호남, 실관막에 의한 미생물의 Cross-flow 여과, *화학 공학* Vol.26, February, pp. 97-103 (1988)
14. Gold Smith, R.L., *Ind. Eng. Chem. Funda.*, 10(1), pp. 113 (1971)
15. Kozinski, A. A. and Lightfoot, E. M., *ALChE. J.* Vol.18, No. 5, pp.1090 (1972)
16. Wijmans, J. G., Sin-ichi Nakao, Van Den Berg, J. W. A., Torearita, F. R. and Smolders, C. A., *J. Membrane Science*, 22, pp. 117 (1985)
17. Nakao, S., Wijman J. G. and Smolders C. A., *J. Membrane Science*, Vol. 26, pp.165 (1986)

18. Kishihara, S., Fujii, S., Komoto, M., Tamaki, H., Wakabayashi, S.,
Kagaku Kogaku Ronbun shu, 12, pp. 199 (1986)
19. Blatt, W. F., et al., Solute Polarization and Cake Formation in
Membrane Ultrafiltration : Cause, Consequences and Control
Techniques, Membrane Science and Technology, J. E. Film Ed., New
York, Plenum Press, pp. 47 (1970)
20. Kimura, S. and Sourirajan, S., Analysis of Data in Revers Osmose
with Porous Cellulose Acetate Membrane Used, ALChE J. Vol. 13,
pp. 497 (1967)
21. Michaels, A. S., New Separation Technique for the CPI., Chem. Eng.
Prog., Vol. 64, No.12, pp. 31 (1968)
22. Wijmans, I. G. et al. Hydrodynamic Resistance of Concentration
Polarization Boundary Layers in Ultrafiltration, J. Membrane
Science, Vol. 22, pp.117 (1985)
23. 高 錫汶, 朴 清吉, 金 五植, 膜 分離 技術, 東和 技術, (1986)
24. Fill, W. H., L. J. Derzansky and M. R. Doshi, Convective Diffusion
in Laminar and Turbulent Hyper Filtration(Reverse Osmosis) System,
Surface and Colloid Science, Vol. 4, E. Matijecvic Ed., pp. 261
(1971)

25. Treybel, R. E., Mass Transfer Operations, McGraw-Hill, New York, (1981)
26. Sherwood, R. K. et al., Mass Transfer, McGraw-Hill, New York (1975)
27. Graetz, L., Ann. Phys. Chem. 18 (1883)
28. Leveque, M. A., Ann. Mines, 13, April (1928)
29. Grober, H. et al., Fundamentals of Heat Transfer, McGraw-Hill, New York, (1961)
30. Hwang, S. and Kammermeyer, K., Membranes in Separations, John Wiley, New York, (1975)
31. A. Einstein, Investigation on the Theory of Brownian Movement, R. Furth(Ed.), pp. 47 (1970)
32. Yim, Highly compressible cake filtration application to the filtration of flocculated particles., 4th world filtration congress, A1 - A7, (1986)

감사의 글

본 논문이 완성되기까지 세심한 지도와 격려로 배움의 길을 이끌어 주신 서형준 교수님께 진심으로 감사드리며 학위 과정 동안에 많은 가르침을 주신 조광명 교수님과 윤 태일 교수님께 감사를 드립니다. 또한 바쁘신 중에도 따뜻한 격려를 아끼지 않으신 조 석연 교수님과 본 논문을 심사해 주신 정재기 교수님, 임 성삼 교수님께 진심으로 감사를 드립니다.

그리고 실험실에서 배움을 함께 나눈 이 정권, 박 수영, 범 봉수 선배님들과 박 준호, 오 호영, 고 광범, 김 재훈, 이 정식, 김 근현, 장 원석, 김 대곤 학우들에게 감사를 드리며 많은 조언을 아낌없이 해주신 문 백수, 오 세현, 추 완종, 석 종혁 선배님들께도 감사를 드립니다.

또한 항상 사랑과 격려를 아끼지 않으신 누님과 매형을 비롯한 가족들께 감사의 전하며 오늘날까지 한없는 사랑으로 보살펴 주신 할머니님과 부모님께 작으나마 이 논문을 올립니다.

1991. 12.