

## 고속 비디오 시스템을 이용한 정밀여과 막오염의 시각화

정 건 용<sup>†</sup> · 김 래 현

서울산업대학교 화학공학과  
(2003년 8월 19일 접수, 2003년 9월 9일 채택)

### Visualization of Microfiltration Membrane Fouling by High Speed Video System

Kun Yong Chung<sup>†</sup> and Lae Hyun Kim

Department of Chemical Engineering, Seoul National University of Technology, Nowon-ku, Seoul 139-743, Korea

(Received August 19, 2003, Accepted September 9, 2003)

**요 약:** 본 실험에서는 십자형 흐름 정밀여과 모듈에서 분리막 투과시 막표면에 일어나는 입자층의 형성을 고속비디오 시스템으로 관찰하였다. 공칭세공이  $0.2 \mu\text{m}$  정밀여과막과 기공크기보다 훨씬 큰 100 내지  $180 \mu\text{m}$  크기의 polyacryl-copolymer 0.05 wt%의 농도 용액을 제조하여 투과실험에서는 공급유속을 0.5, 0.75, 1.0, 1.25 그리고 1.5 cm/sec으로 변화시키면서 공급유속의  $20 \pm 3\%$ 로 투과유량을 유지하였다. 공급유량이 증가할수록 입자가 보다 신속히 분리막 표면에 축적되는 것을 관찰할 수 있었고 공급유량이 낮은 0.5 cm/sec 에서는 입자층이 형성되지 않았다. 또한 입자층 형성 후 공급유속을 1.88 cm/sec 로 증가시키면 30초이내에 분리막 표면에 입자들이 대부분 제거됨을 확인하였다.

**Abstract:** In this study the formation of the particle layer near the membrane surface was observed for the crossflow microfiltration module by the high speed video system. The microfiltration membrane of  $0.2 \mu\text{m}$  nominal pore size and the 0.05 wt% solution of the polyacryl-copolymer particle distributed between 100 and  $180 \mu\text{m}$  were used for the experiment. The feed rates were changed to 0.5, 0.75, 1.0, 1.25 and 1.5 cm/sec while the permeate rates were maintained at  $20 \pm 3\%$  of the feed rates, respectively. It was observed that the particles were accumulated rapidly on the membrane surface as the feed flow rate increased, but the particles were not accumulated at 0.5 cm/sec. Also, it was confirmed that almost all of the particles in the layer already formed during filtration were removed within 30 seconds as the feed flow rate increased to 1.88 cm/sec.

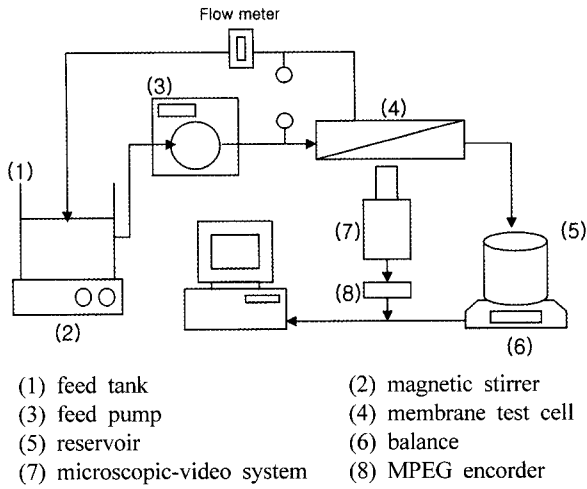
**Keywords:** visualization, microfiltration, polyacryl-copolymer particle, fouling, high speed video system

#### 1. 서 론

최근 고순도 내지는 특수 기능성 물질의 수요 증대와 환경 처리 및 에너지 절약기술의 필요성이 급증함에 따라서 실험실적 규모로부터 대규모 공정에 이르기까지 막분리 공정이 폭넓게 응용되고 있다. 그러나 한외여과 또는 정밀여과에서와 같이 콜로이드 내지는 입자를 분리할 경우, 분리막 표면에 입자가 축적되어 불가피하게 케이크가 형성되고 이는 중요한 분리저항으로 작용하고 있다. 지난 수십년간 막오염 현상에 관하

여 연구를 수행하고 있지만 입자와 입자간의 상호작용, 막과 입자간의 상호작용 그리고 입자 또는 막세공의 분포에 따른 오염현상등 수 많은 현상이 복합적으로 존재하기 때문에 아직까지 막오염 과정을 명확하게 규명하지 못하고 있다. 더구나 막분리 여과시 막 근방에 형성되는 이른바 농도 또는 입자 분극화 현상은 가역적으로 여과중에는 존재하지만 여과 실험이 완료되면 상당부분이 제거되어 그 현상을 규명하기 더욱 어렵다. 따라서 지난 십여년전부터는 여과중 막근방에 입자 분극화 현상을 관측하기 위한 연구가 활발히 진행되어 왔다. 이 중에는 방사성 동위원소를 이용하는 방법, 반도체 물질의 미세 배열측정법 [1,2], 초음파를

<sup>†</sup>주저자(e-mail : kychung@snut.ac.kr)



(1) feed tank (2) magnetic stirrer  
 (3) feed pump (4) membrane test cell  
 (5) reservoir (6) balance  
 (7) microscopic-video system (8) MPEG encoder

**Fig. 1.** Schematic flow diagram of a microfiltration system equipped with video system.

분리막 근방에 입사시킨 후 반향되는 기계적 파장을 전기적 신호로 변환하여 케이크층을 분석하는 이른바 ultrasonic time-domain reflectometry (UTDR) 방법 [3], 입자 분극층내에 양자(proton) 스핀밀도와 NMR 이완 시간( $T_1$ ,  $T_2$ )의 차이를 이용하는 magnetic resonance imaging (MRI) 방법 [4,5] 등이 있다. 최근에는 비디오 기술이 급속히 향상되면서 고속 비디오 카메라를 이용한 직접촬영 방법 [6,7]으로 분리막 근방에 입자 거동을 동영상화시키고 있다.

본 연구에서는 십자 흐름형 정밀여과시 분리막 표면에 형성되는 입자의 거동을 관찰하기 위하여 고속 비디오 시스템으로 입자 추적과정을 촬영하였으며 공급 유속에 대한 입자 축적의 영향을 알아 보았다. 그러나 사용한 현미경 배율의 한계로 100  $\mu\text{m}$  이상의 입자를 사용하였다.

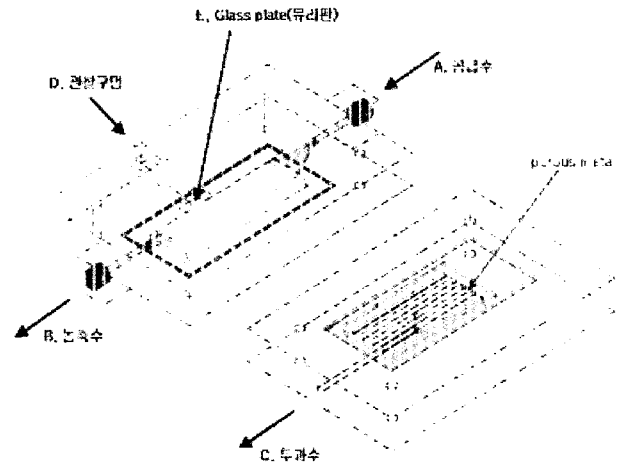
## 2. 실험방법 및 장치

### 2.1. 실험물질

100 내지 180  $\mu\text{m}$  크기의 입자 분포를 지니는 polyacryl-copolymer를 역삼투막으로 투과한 순수에 분산시켜 0.05 wt%의 수용액으로 투과 실험하였다. 또한 분리막은 공칭세공이 0.2  $\mu\text{m}$ 인 정밀여과막(Asypor, Domnick Hunter 사)을 사용하였다.

### 2.2. 장치 및 흐름도

본 실험에 사용한 실험 장치의 흐름도를 요약하여



**Fig. 2.** Details of the membrane test cell for visualization.

Fig. 1에 나타내었다. 먼저 feed tank(1)의 원료액을 tank 아래에 놓인 stirrer(2, Corning, PC-320)로 혼합하면서 feed pump(3, Cole-Parmer, Masterflex 7550-10)를 이용해서 membrane test cell(4) 공급시킨다. 분리막을 통과한 투과수는 reservoir(5)에 모이게 되고 balance(6, Satorius, LP4200S)로 무게를 측정하고 컴퓨터로 전송시켜 그 자료를 저장하였다. 실험중에 membrane test cell(4)에서 일어나는 현상은 high speed microscopic video system(7)를 이용하여 관찰하였고, 이를 MPGE encoder(8, Videomics, SCM-14MK)로 그 자료를 변환한 후 컴퓨터에 저장하였다. Membrane test cell은 십자형 여과를 관찰하기 위하여 투명한 아크릴(10.8×16.9×3.9 cm)로 제작하였으며 Fig. 2에 보다 상세하게 나타내었다. 공급수는 A를 통해서 유효 면적이 27  $\text{cm}^2$  크기의 분리막이 장치된 cell로 유입되고 그중 일부는 막을 통과하고 나머지는 B로 나온다. 이때 막을 통과한 용액은 porous metal을 거친 투과수는 C를 통하여 배출한다. 또한 분리막 근방의 막오염 관찰을 하기 위하여 관찰구멍 D가 필요하며 보다 선명하게 관찰할 목적으로 유리판을 사용하였다.

또한 본 실험의 핵심장비인 고속 마이크로 비디오 촬영장치의 개략도를 Fig. 3에 나타내었다. 고배율-장초점 거리 광학현미경인 microscope(①, Olympus, SZ1145TR)는 CCD camera(②, Toshiba, IK-642K)와 연결되어 있다. 또한 lighter(③, Olympus, LG-PS2)을 사용하여 광량을 조절하면 test cell(⑤)내에 입자거동을 실시간으로 촬영할 수 있으며 이를 monitor(④, Samsung, SCM-14MK)로 확대하여 볼 수 있다.

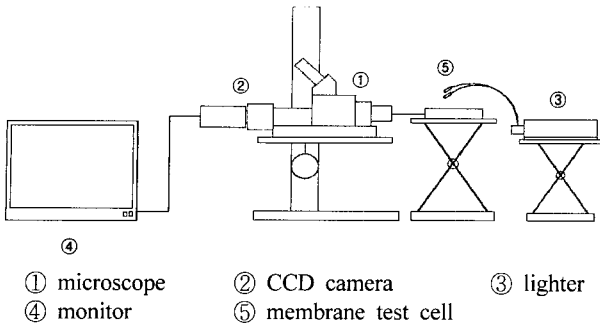


Fig. 3. Details of a high speed micro-video system.

2.3. 실험방법

먼저 순수를 이용하여 실험하고자 하는 공급유속과 membrane test cell을 통해 나오는 투과유량을 맞춘다. 본 실험에서 사용한 test cell은 아크릴로 제작되어 1 기압 이상에서는 운전이 곤란하며 또한 정밀여과막을 사용하였으므로 운전압력은 0.1 기압 이하에서 고정시켜 운전하였다. 분리막위에 입자가 축적되는 과정을 측정하기 위하여 먼저 이상의 방법으로 순수를 투과시키면서 운전상태를 정상화시킨 후, 0.05 wt% polyacryl-copolymer 입자 수용액이 되도록 원료탱크에 순간적으로 입자용액을 원료탱크에 공급하면서 magnetic stirrer로 혼합하여 test cell로 공급하면서 입자의 축적과정을 관측하였다. 운전 시간이 경과할수록 막표면에 서서히 입자가 쌓이고 막을 통해 나온 투과수는 저장조에 들어오게 되며 배제액은 다시 원료탱크로 순환된다. 이때 저장조에 쌓인 투과수량을 전자저울로 10초마다 측정해서 컴퓨터에 저장하고 막표면에서 일어나는 현상을 마이크로비디오 촬영장치를 이용해서 관찰하면서 촬영하였다. 그리고 막표면에 상당량의 입자가 쌓이게 되면 공급유속을 갑자기 증가시켜 물리적으로 세척시키면서 막표면에 쌓인 입자의 변화도 관찰하였다. 이상의 실험을 통해 저장된 동영상은 image capture program을 이용하여 분석을 시도하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 입자층 형성

수용액 공급유속을 0.5 에서 1.5 cm/sec 까지 0.25 cm/sec 씩 증가시키면서 투과 실험하였다. 분리막 투과량은 공급유속의 20 ± 3% 범위로 일정하게 유지시켰다. 운전압력은 0.1 기압 이하였으며 각각의 실험에서 운전

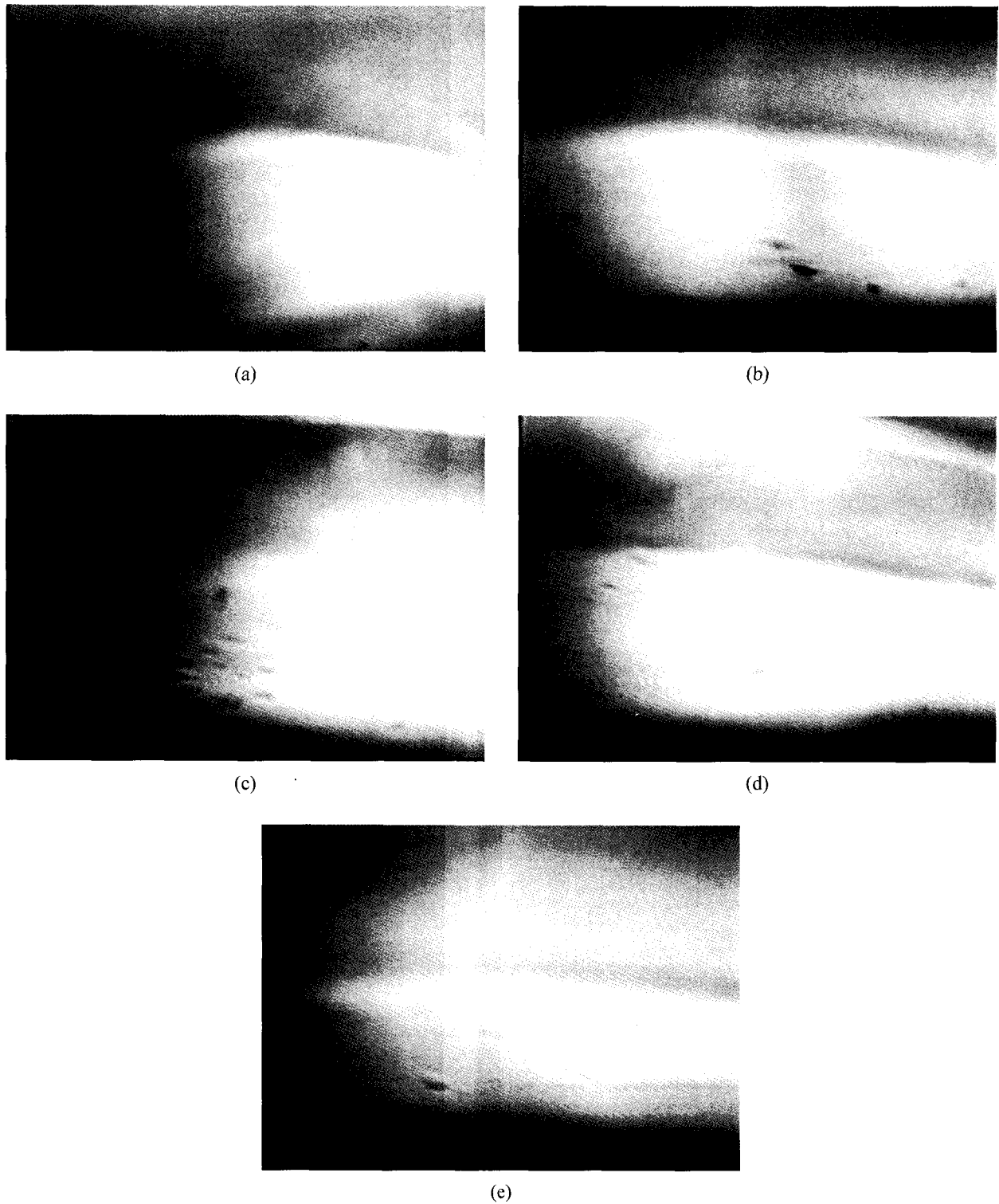
압력은 미세하게 변하였기 때문에 압력에 따른 효과는 무시하였다. 각각의 공급유속에서 투과시간에 따른 막 표면의 변화를 Fig. 4 내지 6에 나타내었다. Fig. 4는 투과실험 시작 1분후의 사진이다. Fig. 4(a) 와 4(b)는 공급유속 0.5 및 0.75 cm/sec 에서의 사진이며 순수 투과와 비교하였을 때 별다른 변화가 없었다. 공급유속이 1.0 cm/sec 에서는 약간의 입자가 분리막 표면에 축적되었음을 확인할 수 있었으며 더 높은 공급유속인 Fig. 4(d) 와 4(e) 에서는 Fig. 4(e)의 경우보다 입자가 덜 축적되었다.

Fig. 5는 투과 실험 3분 후에 분리막 표면의 사진이다. Fig. 5(a) 와 5(b)에서는 Fig. 4(a,b) 에서와 같이 순수 투과실험 사진과 크게 다른점은 없었다. 공급유속이 1.0 cm/sec 인 Fig. 5(c)는 이전과 비교했을 때 보다 많은 입자가 막표면에 쌓여있음이 관찰되었고, 더욱 공급유속이 증가된 Fig. 5(d) 와 5(e)의 경우는 급격히 많은 입자가 막표면에 쌓여 있음을 확인하였다.

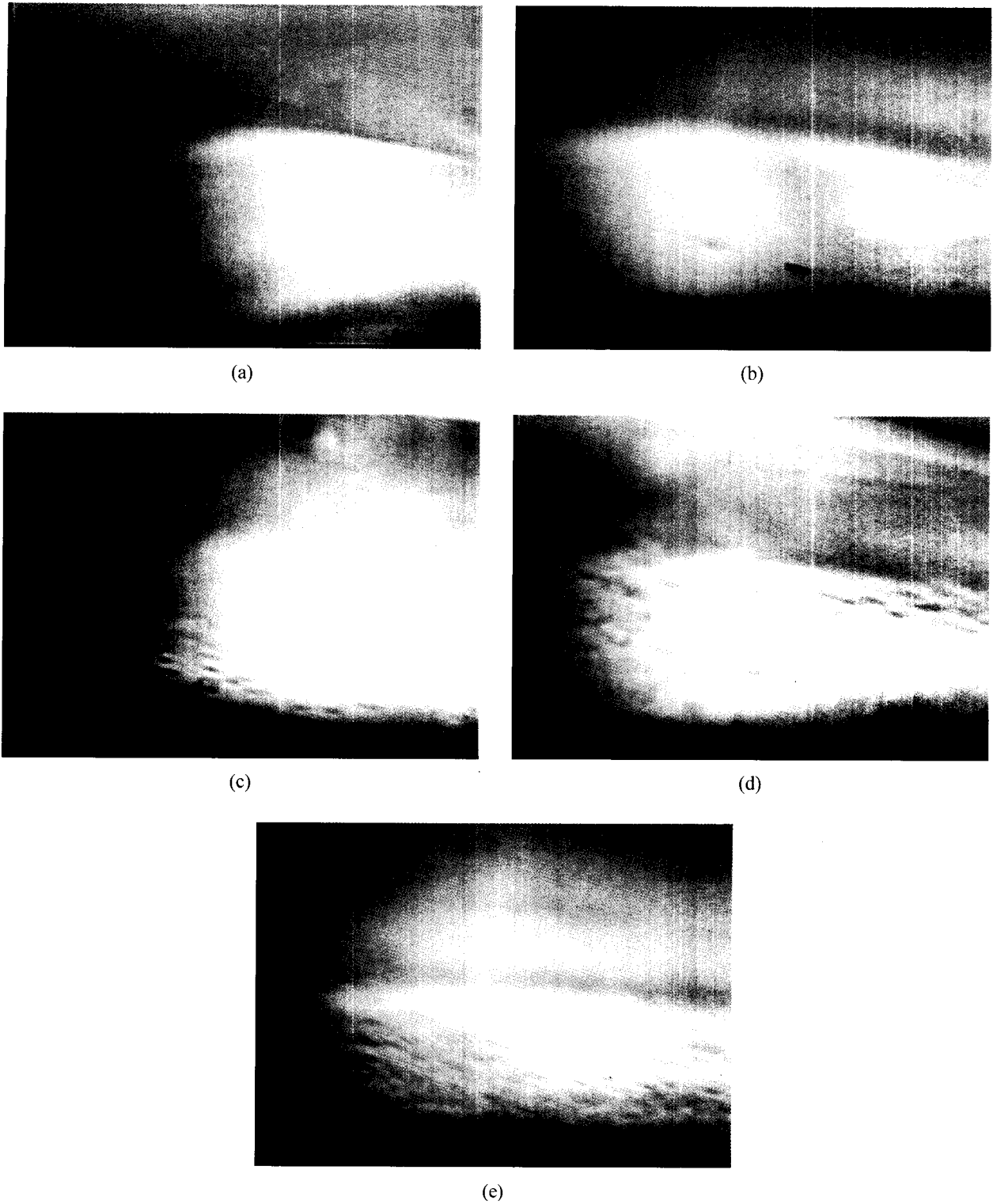
계속하여 투과실험을 진행하여 투과실험 12분 후의 막표면 관찰 사진을 Fig. 6에 나타내었다. 공급유속 0.5 cm/sec의 경우(Fig. 6(a)) 이전과 비교했을 때 몇몇 입자들의 퇴적이 관찰되었지만 명확히 구별될 정도로 쌓이지는 않았다. 계속하여 투과실험 12분 후부터 39분까지도 적은 양의 입자가 서서히 쌓였으나 확실한 층을 이루며 쌓이지 않았다. 공급유속 0.75 cm/sec의 관찰사진인 Fig. 6(b)는 이전의 변화만큼 입자가 쌓이며 입자층을 형성하였고 투과실험 12분 후부터 24분까지는 투과실험 10분 후에 형성된 입자층 위로 몇몇 입자만 쌓일 뿐 큰 변화는 없었다. 그 이상의 공급유속에서는 이미 분리막 표면에 입자층이 형성되어 더 이상의 축적 현상을 구별하여 관측하기 곤란하였다. 개략적으로 분리막 표면에 입자층이 형성된 시간을 요약하면 공급유속이 증가하면서 오히려 단시간내에 형성됨을 확인하였다. 공급유속이 1.5 cm/sec 일 경우 약 3분이 소요되었고 1.25 cm/sec에서 약 4분, 1.0 cm/sec에서 약 5분, 0.75 cm/sec에서 약 10분 그리고 0.5 cm/sec에서는 관측되지 않았다.

3.2. 입자층 제거

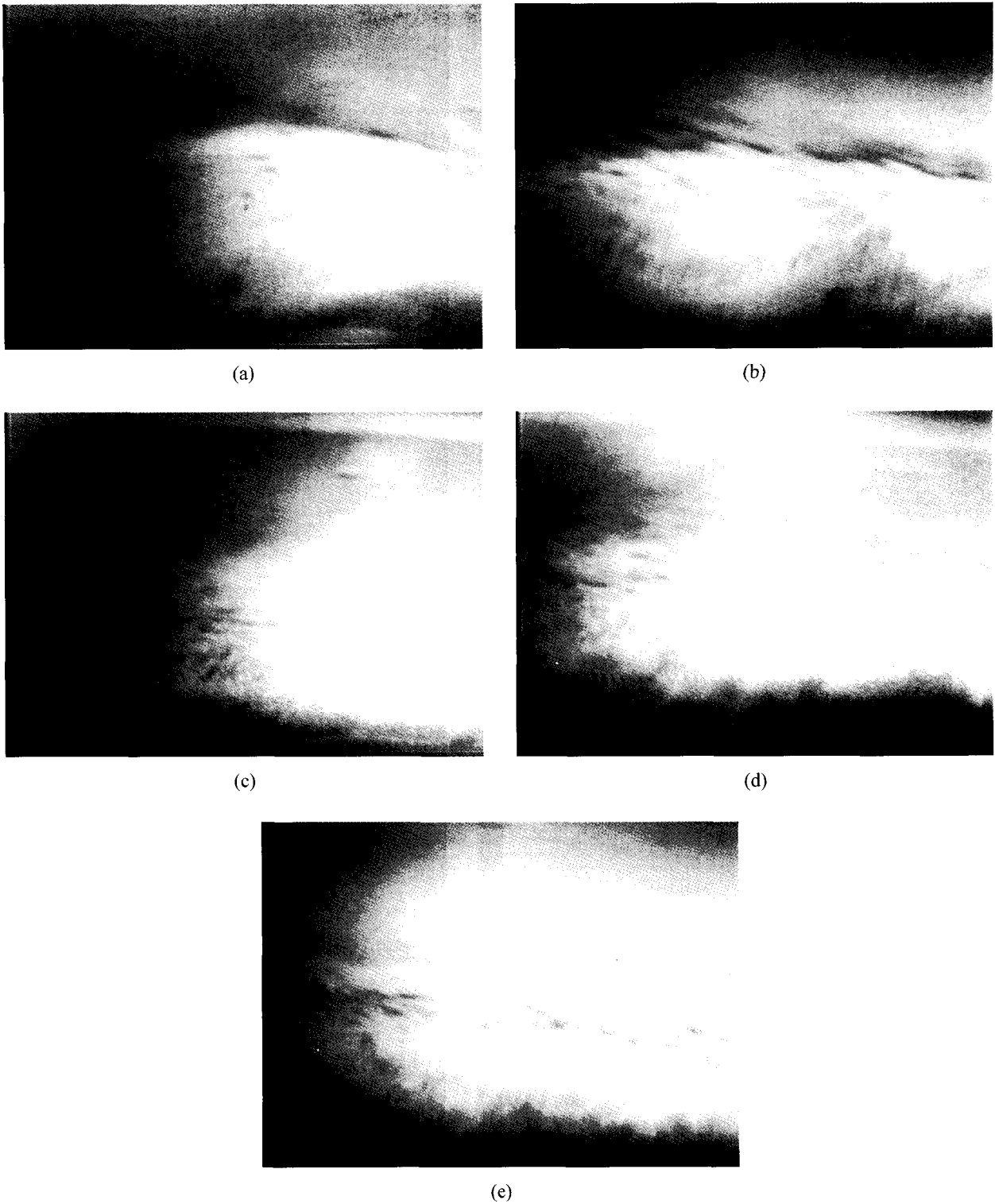
투과실험을 마친 후 막에 쌓여있는 입자층을 제거하는 실험을 하였다. 공급유속을 1.88 cm/sec으로 증가시키면 수많은 입자들이 막위로 구르듯이 흐르는 것을



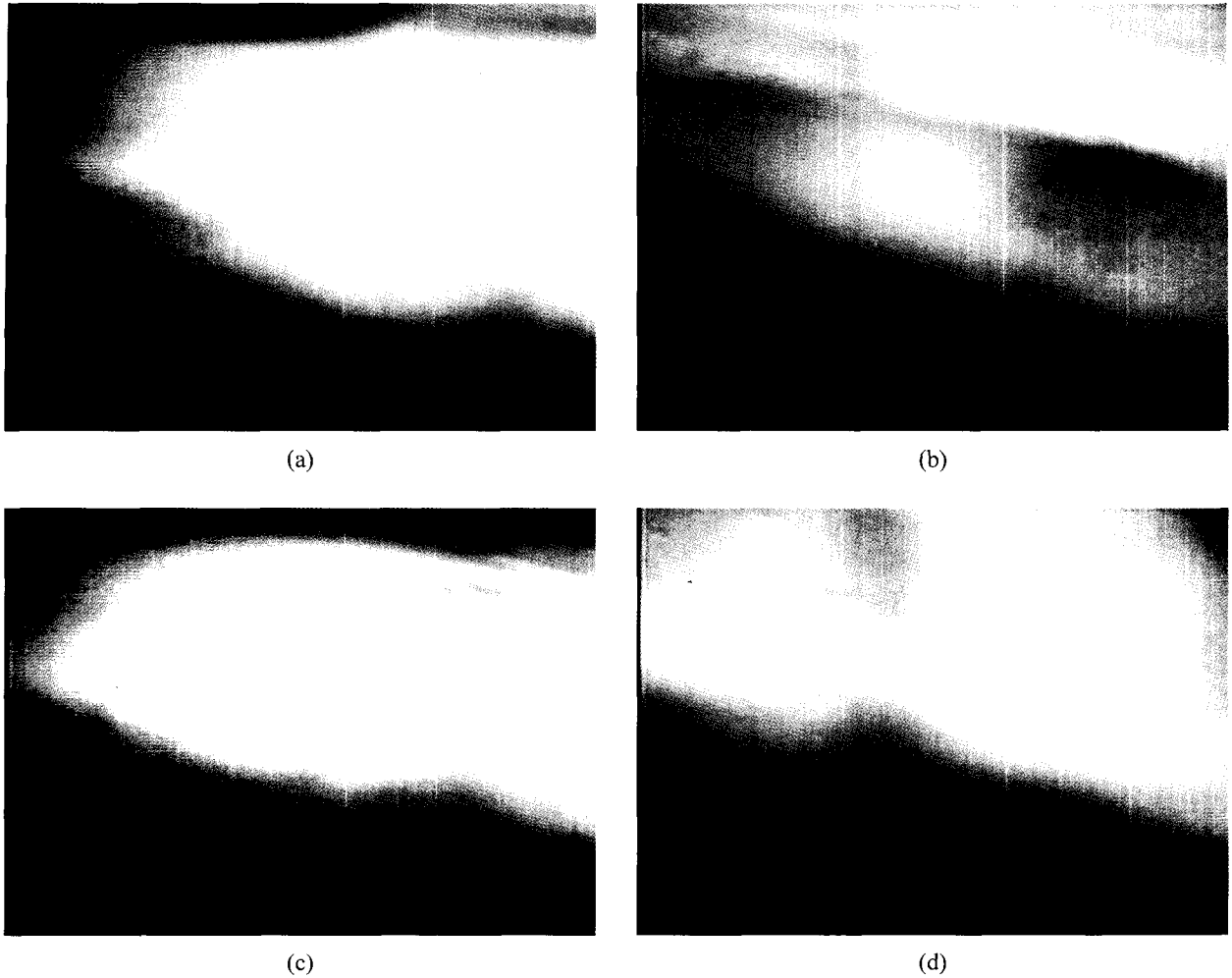
**Fig. 4.** Pictures of a membrane surface at 1 minute of the particle filtration: (a) 0.5 cm/sec, (b) 0.75 cm/sec, (c) 1.0 cm/sec (d) 1.25 cm/sec and (e) 1.5 cm/sec.



**Fig. 5.** Pictures of a membrane surface at 3 minutes of the particle filtration: (a) 0.5 cm/sec, (b) 0.75 cm/sec, (c) 1.0 cm/sec (d) 1.25 cm/sec and (e) 1.5 cm/sec.



**Fig. 6.** Pictures of a membrane surface at 12 minutes of the particle filtration: (a) 0.5 cm/sec, (b) 0.75 cm/sec, (c) 1.0 cm/sec (d) 1.25 cm/sec and (e) 1.5 cm/sec.



**Fig. 7.** Pictures of a membrane surface after the particle cleaning with 1.88 cm/sec: (a) 0.75 cm/sec, (b) 1.0 cm/sec (c) 1.25 cm/sec and (d) 1.5 cm/sec.

관찰할 수 있었다. 이와같이 입자층을 제거하는데 걸리는 시간은 약 30초 가량이 소비되었으며 세척과정이 끝난 후에도 몇몇 입자가 다시 막에 쌓이는 것을 관찰할 수 있었다 (Fig. 7). 결국 이상의 제거 실험으로 투과실험동안 쌓였던 입자층의 대부분은 제거할 수 있었지만 실험전의 막처럼 깨끗하지는 않았다.

일반적으로 공급유속이 증가하면 분리막 표면에 전단력이 증가하거나 난류가 강하게 형성되므로 분리막 근방에 입자가 bulk 흐름내로 역확산하여 혼합되므로 입자분극화 현상이 감소하는 것으로 알려져 있다. 그러나 물보다 밀도가 크고 100  $\mu\text{m}$  이상의 큰 입자를 사용한 본 실험에서는 오히려 공급유속에 따라서 입자분극화가 증가되었다. 계속하여 공급유속이 1.88 cm/sec 까지 증가하게 되면 힘의 균형이 깨어서 그동안 분리

막 표면에 축적되었던 입자들의 대부분이 제거되었다. 따라서 보다 상세한 유체역학적 해석은 계속 규명중이며 실제 정밀여과막에 적용되는  $\mu\text{m}$  범위의 입자 움직임을 측정할 수 있도록 고속 비디오 시스템을 보완한 후 추가적인 투과실험이 요구된다.

#### 4. 결론

정밀여과시 입자는 막표면에 입자층을 형성하게 되어 주요 여과저항으로 작용하며 본 연구에서는 고속 비디오시스템을 사용하여 정밀여과막의 오염과 세척과정을 관찰하였다. 투과유량을 공급유속의 20% 내외로 유지할 경우 1.5 cm/sec까지는 공급유속이 클수록 많은 양의 입자가 보다 신속히 분리막 표면에 축적되

는 것을 관찰할 수 있었고 공급유속이 낮은 0.5 cm/sec에서는 입자층이 형성되지 않았다. 그러나 1.88 cm/sec까지 공급유속을 증가시키면 분리막 표면에 축적되었던 입자들이 물리적으로 세척되었음을 확인할 수 있었다. 향후 수 내지 수십  $\mu\text{m}$  입자의 정밀여과막 투과거동을 측정하여 실제 정밀여과막에서의 막오염 현상을 규명할 것이다.

### 참 고 문 헌

1. M. R. Mackley and N. E. Sherman, "Cross-flow cake filtration mechanisms and kinetics", *Chem. Eng. Sci.* **47**, 3067 (1992).
2. P. H. Hodgdon, V. I. Pilay, and A. G. Fane, "Visual study of cross-flow MF with inorganic membranes: resistance of biomass and particulate cake", Proceeding of the 6th World Filtration Congress, Nagoya, 607 (1993).
3. J. Li, R. D. Sanderson, and E. P. Jacobs, "Non-invasive visualization of the fouling of microfiltration membranes by ultrasonic time-domain reflectometry", *J. Membrane Sci.*, **201**, 17 (2002).
4. J. M. Pope, S. Yao, and A. G. Fane, "Quantitative measurements of the concentration polarisation layer thickness in membrane filtration of oil-water emulsions using NMR micro-imaging", *J. Membrane Sci.*, **118**, 247 (1996).
5. K. Y. Chung, G. Belfort, W. A. Edelstein, and X. Li, "Dean vortices in curved tube flow: 5. 3-D MRI and numerical analysis of the velocity field", *AIChE J.*, **39**, 1592 (1993).
6. R. J. Wakeman, "Visualisation of cake formation in crossflow microfiltration", *Trans IChemE.* **72**, 530 (1994).
7. S. Kuiper, C. Rijn, W. Nijdam, O. Raspe, H. Wolferen, G. Krijnen, and M. Elwenspoek, "Filtration of lager beer with microsieves: flux, permeate haze and in-line microscope observations" *J. Membrane Sci.*, **196**, 159 (2002).