

공정압 변화에 따른 중공사막의 투과플럭스 특성

김 남 수* · 신 동 호 · 이 용 택[†]

경희대학교 환경·응용화학대학 화학공학 및 신소재공학전공, *(주) 효립산업 플랜트팀
(2007년 10월 13일 접수, 2007년 11월 19일 채택)

Characteristic of the Permeation Flux of Hollow Fiber Membranes by Process Pressures Change

Nam-Su Kim*, Dong Ho Shin, and Yong Taek Lee[†]

College of Environment and Applied Chemistry, Department of Chemical Engineering, Kyung Hee University,
Gyeonggi-do 449-701, Korea

*Hyorim Industries Inc. Plant Team, 513-2, Yatap-dong, Bundang-gu Seongnam-city, Gyunggi-do 463-839, Korea

(Received October 13, 2007, Accepted November 19, 2007)

요 약: 본 연구에서는 호소수의 정수처리공정 중 폴리술폰계 중공사막을 이용한 침지형(흡인압)과 외압형을 동시에 적용한 분리막 공정으로 압력 및 공경에 따른 투과플럭스의 변화에 관한 성능을 평가하고자 하였다. 침지형(흡인압) 공정의 압력에 따른 최대 투과 플럭스는 공경이 0.3 μm 에서 평균 282 LMH, 0.05 μm 에서는 234 LMH를 나타내었으며, 외압형(외압) 공정의 압력에 따른 최대 투과 플럭스는 공경이 0.3 μm 에서 평균 443 LMH, 0.05 μm 에서는 522 LMH를 나타내었다. 또한, 흡인압과 외압을 동시에 적용한 공정의 압력에 따른 최대 투과 플럭스는 공경이 0.3 μm 에서 평균 674 LMH, 0.05 μm 에서는 648 LMH를 나타내었다. 따라서, 호소수를 이용한 정수처리공정에서 분리막으로 흡인압과 외압을 동시에 이용할 경우 단위 면적당 생산수를 최대로 할 수 있을 것으로 사료된다.

Abstract: This study was carried out to evaluate the performance of the separate membrane (HF; hollow fiber membrane with polysulfone) process applied with the external membrane types, internal pressure membrane types and external-internal types according to the variations of pressure and membrane pore size in the purification treatment process of the lake water. The maximum permeate flux was average values of 282 LMH and 234 LMH with the pore size of 0.3 and 0.05 μm respectively in the external pressure membrane process, and 443 LMH and 522 LMH with the pore size of 0.3 and 0.05 μm respectively in the internal pressure membrane process. In addition, the maximum permeate flux of the process that was applied with external and internal membrane pressure simultaneously showed the average values of 674 LMH with the pore size of 0.3 μm , and 648 LMH with the pore size of 0.05 μm . Therefore, maximum yield per unit area is supposed when the separate membrane that was applied with external and internal pressure simultaneously are used to treat the lake water.

Keywords: hollow fiber membrane, dead-end filtration, cross-flow filtration, permeation flux, external pressure, internal pressure

1. 서 론

최근 들어, 각종 상수, 하수, 오, 폐수, 하천수 등을 처리하는 수처리 공정에 있어서 중공사막을 이용

한 수처리 공정이 각광을 받고 있다. 이러한 수처리 공정 중 정수처리 공정에서도 기존의 복잡한 응집, 여과, 침전, 활성탄 및 소독 등의 공정 대신 간단하고 안정적인 수질의 확보를 위하여 중공사를 적용한 분리막 공정으로 대체하고 있는 실정이다[1-3]. 이러한 중공사막을 적용한 분리막의 방식은 크게 두 가지로 구분된다. 그

[†]주저자(e-mail : yongtlee@khu.ac.kr)

중 하나는 중공사막의 내부에 흡인압을 형성하여 정수하는 침지형 방식이고, 다른 하나는 중공사막의 외부에서 내부방향으로 압력을 가하는 가압형 방식이다. 이러한 분리막 공정은 일반적으로 침지형(흡인압; suction pressure)과 외압형(cross flow)이 있으며 현재 산업용수의 전처리로 주목받고 있는 중공사막의 특징을 Table 1에 자세하게 나타내었다.

침지형 방식은 dead-end flow로써 오·폐수 처리 시 반응조(포기조, 침전조 또는 방류조)에 직접 중공사막 모듈을 침지시켜, 유입원수의 유입부하에 대한 충격을 완화시킴으로서 유지관리 및 처리효율적인 측면에서 상당히 유리하다고 알려져 있다. 그러나 분리막 표면의 고형물 침적 및 중공사막 내부의 공경이 작기 때문에 유체의 흐름속도의 저항이 발생되어 다량의 생산수량을 확보하는데 어려움이 있다. 한편, 외압형 방식은 원수를 이송펌프로 분리막 하우징에 공급 및 압력을 가하여 고형물을 분리하는 시스템이다. 특히 교차 흐름을 주어 분리막 표면에서 발생할 수 있는 고형물의 침적을 최소화하여 생산수량을 증가시킬 수 있는 반면에 막표면의 고형물의 침적에 의한 급격한 처리수(생산수)의 감소를 야기할 수 있다. 따라서 유입원수의 고농도에 따른 변동수질에 덜 민감하여 대형화 시스템에 용이하며, 단위면적당 운전 플럭스를 높일 수 있어 설비가 콤팩트하고 부지면적을 최소화 할 수 있는 장점이 있다.

본 연구에서는 흡인압과 가압을 동시에 중공사막 내외에 적용하여 분리막 전단에 압력을 공급하고 중공사막 내부에 흡인압을 공급하여 고액 분리 및 유체의 압력 전달을 원활하게 공급함과 동시에 막 내부의 압력 손실을 최소화함으로써 처리수(생산수)량 및 플럭스를 향상 시키고자 하였다. 이를 위하여 침지형과 외압형의 각각 압력별, 길이별 성능시험으로 최적운전조건을 도출하여 흡인압과 외압을 동시에 적용한 중공사막의 플럭스 향상, 압력변화 및 투과수의 수질 등에 대하여 연구하였다.

2. 이 론

2.1. 직렬 여과저항 모델(Resistance-in-series Model)

분리막의 투과 유속의 변화를 설명하기 위해서 투과 유속의 감소를 저항의 직렬연결 개념에 근거한 직렬 여

Table 1. Comparison of Characteristic between Suction and Cross-flow (External Pressure) Process

	Suction process	External process
Filtration type	Dead-end	Cross-flow
Scale-up	Difficult	Easy
Inlet water concentration	Low	High
Operating flux	Low	High
Power consumption	Low	High
Cleaning cycle	Long	Short
Facility area	Large	Small

과저항 모델로서 막 오염의 정도를 정량화할 수 있기 때문에 막 오염 현상의 해석을 위한 방법으로 많이 사용되고 있다.

여과저항 모델은 완전 구형의 세공이 끊어지지 않고 뚫려 있는 이상적인 분리막에서 유도된 Hagen-Poiseuille 식에서 출발하며 이때 투과 유속 J 는 다음과 같이 표현된다[4,5].

$$J = \frac{\epsilon_s D_p^2 \Delta P}{32 \eta \Delta \chi_l} \quad (1)$$

여기에서 ϵ_s 는 표면공극률(surface porosity), D_p 는 세공의 지름, ΔP 는 분리막 전후의 압력차(transmembrane pressure), $\Delta \chi_l$ 는 분리막 표면층(skin layer)의 두께, η 는 투과수의 점도(dynamic viscosity)를 나타낸다. ϵ_s , D_p , $\Delta \chi_l$ 는 분리막에 따른 특성이며 이들을 모두 묶어서 분리막 저항(membrane resistance) R_m 과 막 표면에 형성되는 가역적인 케이크 층의 저항(cake resistance, R_c)과 세공 막힘(pore blocking) 또는 표면과 세공 내부에서의 비가역적인 흡착에 의한 저항(fouling resistance, R_f)으로 나누어 볼 수 있다. 따라서 여과 과정에서의 투과 유속 J 는 다음의 식으로 나타낼 수 있다.

$$J = \frac{\Delta P}{\eta \Delta R_t} = \frac{\Delta P}{\eta(R_m + R_c + R_f)} \quad (2)$$

흡인압을 이용한 침지형 중공사 모듈의 경우에는 중공사의 한 쪽이 막혀 있고 다른 한 쪽으로 압력을 낮춤으로써 막 차압을 만들게 된다. 따라서 중공사막의 위치에 따라서 작용하는 막 차압이 달라지며 막의 위치에

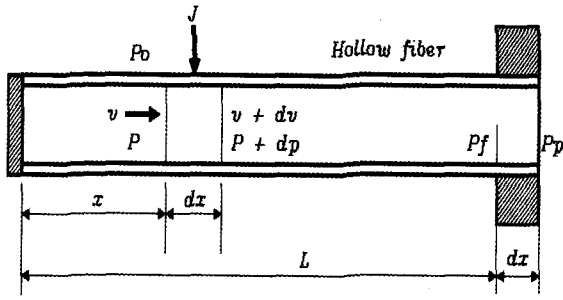


Fig. 1. Permeation through the hollow fiber membrane.

따라 플렉스 값도 각각 다르게 나타나게 된다. 여과 과정에서 막의 위치에 따른 압력의 변화는 Fig. 1에 나타낸 것처럼 표시할 때 다음과 같은 식으로 표현된다.

$$dP = -\frac{v}{g}dv - \frac{32\eta v}{gD_o^2}dx \quad (3)$$

여기에서 v 는 막 내부에서의 유체의 흐름속도, g 는 중력가속도, D_o, D_i 는 각각 중공사막의 외경과 내경, ρ 는 유체의 밀도, x 는 중공사막 내부에서의 위치를 나타낸다. 막 내부에서의 흐름속도 v 와 투과속도 J 는 다음과 같은 관계를 가지게 된다.

$$\frac{\pi}{4}D_i^2 dv = \pi D_o J dx \quad (4)$$

따라서 중공사 막의 길이 방향으로의 막 내부 흐름 속도의 변화는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{dv}{dx} = \frac{4D_o}{D_i^2}J \quad (5)$$

여기서 J 를 일반적인 직렬 여과저항 모델식과 연계시키면 다음과 같다.

$$J = \frac{(P_o - P)}{\eta(R_m + R_c + R_f)} = k_s(P_o - P) \quad (6)$$

여기서 상수 k_s 는 분리막의 투과도라고 정의할 수 있다. 이상의 식으로부터 다음과 같은 관계를 유도할 수 있다.

$$\frac{dP}{dv} = -\frac{v}{g} \left\{ 1 + \frac{8\eta}{\rho D_o k_s (P_o - P)} \right\} \approx -\frac{8\eta}{\rho g D_o k_s (P_o - P)} \quad (7)$$

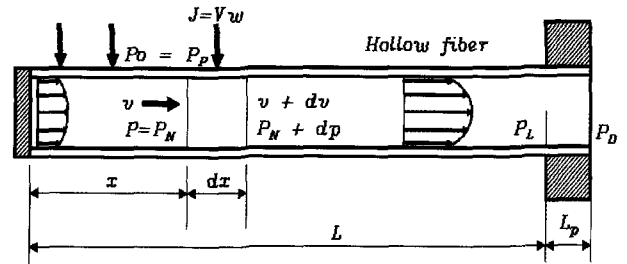


Fig. 2. Permeation through the hollow fiber membrane both internal and external pressures.

$$\frac{dP}{dx} = -\frac{32\eta}{\rho g D_i^2}v \quad (8)$$

따라서 위의 식 (7)과 (8)을 연립하여 해를 구함으로써 위치에 따른 압력 P , 막 내부에서의 흐름속도 v , 플렉스 J 를 구할 수 있다.

2.2. 흡인 및 외압을 동시에 적용한 모델

순수투과에 대한 중공사막 내의 기본 메커니즘은 직렬순수투과에 대한 중공사막 내의 압력분포 및 투과유속을 계산하기 위해서 다음과 같이 가정하여 Fig. 2에 나타내었다.

- 1) 유체는 비압축성, 뉴턴유체(Newtonian fluid)로 낮은 투과유속에 의해 처리용액의 농도분극화는 무시되고,
- 2) 모듈 내의 중공사막은 연속적으로 균등한 표면과 공칭세공을 가졌으며,
- 3) 중공사막의 표면근처에서 처리용액의 농도, 압력, 속도는 거리의 함수이고,
- 4) 분리막이 오염되지 않아 투과도 k_s 는 일정하고,
- 5) 유체의 흐름은 일정한 정상상태이며, 중공사막의 시작부와 끝부분에서 발생하는 압력손실(종말효과, end-effect)은 무시된다.

이상의 가정으로 Hagen-Poiseuille 식을 도입하면,

- P_P : Positive (external) Pressure
- P_N : Negative (suction) Pressure

상기 식 (8)로부터,

$$\frac{d^2P}{dx^2} = -\frac{32\eta}{gD_i^2} \frac{dv}{dx} \quad (9)$$

식 (5)를 식 (9)에 대입하면,

$$\frac{d^2 P}{dx^2} = -\frac{32\eta}{gD_i^2} \frac{4D_o}{D_i^2} J \quad (10)$$

식 (6)을 흡인압과 외압을 적용한 식으로 변형하면,

$$J = \frac{(P_p - P_N)}{\eta(R_m + R_c + R_f)} = k_s(P_P - P_N) \quad (11)$$

($P_P - P_N = \Delta P_D$: Differential Pressure)

식 (11)을 식 (10)에 대입하면,

$$\frac{d^2 P}{dx^2} = -\frac{128\eta k_s D_o}{gD_i^4} (P_P - P_N) \quad (12)$$

$$-\frac{128\eta k_s D_o}{gD_i^4} = M^2 \text{ 이라고 두고} \quad (13)$$

식 (13)을 식 (12)에 대입하여 정리하면,

$$\frac{d^2 P}{dx^2} - M^2 P_P = -M^2 P_N \quad (14)$$

$x = 0$ 인 점에서 흡인압력의 구배는 존재하지 않고, $x = L$ 인 곳에서의 압력은 외부의 압력과 같으므로 경계조건은 다음과 같다.

$$\begin{cases} \frac{dP}{dx} = 0 & \text{at } x = 0 \\ P = P_L & \text{at } x = L \end{cases} \quad (15)$$

식 (15)을 이용하여 식 (14)를 풀면

$$\frac{P_P - P_N}{P_P - P_L} = \frac{\cosh(Mx)}{\cosh(ML)} \quad (16)$$

식 (6)에 대입하여 선속도를 구하면,

$$J = V_w(x) = k_s(P_P - P_L) \frac{\cosh(Mx)}{\cosh(ML)} \quad (17)$$

따라서, 중공사막 내부에 흐르는 유체의 부피유량은

$$\begin{aligned} Q_W &= \int_{x=0}^L \pi D_o V_w(x) dx \\ &= \frac{k_s \pi D_o (P_P - P_L)}{\cosh(ML)} \int_0^L \cosh(Mx) dx \end{aligned} \quad (18)$$

위 식을 적분하면,

$$Q_W = \frac{k_s \pi D_o}{\cosh(ML)} (P_P - P_L) \tanh(ML) \quad (19)$$

P_L 의 값을 알 수 없으므로 Hagen-Poiseuille 식을 이용하면

$$P_L = P_P + \frac{32\eta V_{avg} L_P}{gD_i^2} \quad (20)$$

여기서 V_{avg} 는 평균속도로 다음과 같이 표현된다.

$$P_L = P_P + \frac{32\eta L_P}{gD_i^2} \left(\frac{Q_W}{\frac{\pi}{4} D_i^2} \right) = P_P + \frac{128\eta L_P Q_W}{\pi g D_i^4} \quad (21)$$

식 (16)과 식 (21)에 의하여 중공사막 내부의 압력분포 식은 다음과 같이 나타내면,

$$P_P - P_N = \left[P_P - P_L - \frac{128\eta L_P Q_W}{\pi g D_i^4} \right] \frac{\cosh(Mx)}{\cosh(ML)} \quad (22)$$

따라서 중공사막 내부의 거리에 따른 압력분포는 다음과 같다.

$$P(x) = P_P - \left[P_P - P_L - \frac{128\eta L_P Q_W}{\pi g D_i^4} \right] \frac{\cosh(Mx)}{\cosh(ML)} \quad (23)$$

식 (21)과 식 (19)에 의한 투과유량은 다음과 같다.

$$Q_W = \frac{\pi D_o k_s \tanh(ML) (P_P - P_L)}{M [1 + ML_P \tanh(ML)]} \quad (24)$$

따라서 평균속도 V_{avg} 는 다음과 같다.

$$V_{avg} = \frac{4 D_o k_s \tanh(ML)(P_P - P_L)}{D_i^2 M [1 + M L_P \tanh(ML)]} \quad (25)$$

중공사막 모듈 부피에 대한 투과유속이 발생하는 중공사막의 표면적의 비를 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$S(V) = \frac{A_{Mod}}{V_{Mod}} = \frac{4(1-\epsilon)}{D_o} \quad (26)$$

ϵ 은 모듈의 공극률을 나타낸다.

따라서 모듈단위부피당 투과유량은 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\begin{aligned} \frac{Q_{Mod}}{V_{Mod}} &= \frac{Q_W}{A_{Fib}} \frac{A_{Mod}}{V_{Mod}} = \frac{Q_W}{\pi D_o L} \frac{4(1-\epsilon)}{D_o} \\ &= \frac{4(1-\epsilon)}{\pi D_o^2 L} \frac{\pi k_s D_o \tanh(HL)(P_P - P_L)}{M [1 + M L_P \tanh(ML)]} \end{aligned} \quad (27)$$

상기 식에서 A_{Mod} 와 V_{Mod} 는 각각 모듈의 면적과 체적을 나타내며, A_{Fib} 와 Q_W 는 각각 중공사막 한 가닥의 면적과 부피유량을, Q_{Mod} 는 모듈의 투과유량(L/hr)이다. 식 (27)에 의하여 계산되는 모듈단위부피당 투과유량으로부터 설계용량을 처리하기 위한 모듈의 필요면적 및 기타 부대설비를 예측할 것으로 사료된다. 또한 운전비용 중 가장 큰 비중을 차지하고 있는 동력비 등을 고려하여 설비와 운전비를 추정하기 위하여 식 (28)과 같이 모듈단위부피 및 압력강하 당 투과유량에 관한 수식을 유도하여야 할 것으로 사료된다.

$$\frac{Q_{Mod}}{V_{Mod}(P_P - P_L)} = \frac{4k_s(1-\epsilon) \tanh(ML)}{D_o M L [1 + M L_P \tanh(ML)]} \quad (28)$$

식 (28)에서 알 수 있듯이 모듈단위부피 및 압력강하 당 투과유량은 투과도에 비례하고 모듈 외경에 반비례함을 알 수 있다. 이는 중공사막의 외경이 증가하면 중공사막 내의 압력강하가 줄어들어 중공사막 자체의 투과유량은 증가하나 모듈단위부피 내의 분리막 면적이 감소하여 모듈단위부피당 투과유량은 작아진다. 반대로 중공사막의 외경이 감소하면 높은 압력강하 때문에 중공사막 자체의 투과유량은 감소하지만, 모듈단위부피

내의 분리막 면적의 증가로 투과유량은 커진다. 즉 모듈의 중공사막모듈의 투과유량에 영향을 주는 인자는 투과도뿐만 아니라, 중공사막의 외경과 내경, 그리고 길이 등 중공사막 모듈의 형태도 영향을 줄 것으로 사료된다[5,6].

3. 실험

3.1. 실험장치

사용된 실험 장치의 구성은 원수를 저장하는 원수저장탱크(stainless steel)와 저장탱크 내 농도를 일정하게 유지하기 위한 혼합용 교반기, 외압실험을 위한 원수공급펌프(nocchi MC80/38), 흡인압 실험을 위한 흡인펌프(masterflex I/P 7529-10)로 구성되어 있으며, 원수저장탱크는 펌프의 순환 및 계절적 특성에 따른 온도변화를 방지하기 위하여 온도조절기를 이용하여 20°C를 유지하도록 하였다. 또한 중공사막은 처음과 끝부분에 원통형 아크릴에 중공사막을 bundle 형태로 포팅, 제작 후 반응기에 결합하여 압력손실을 측정할 수 있도록 구성하였다.

본 연구에서 사용된 실험 장치의 구성은 Fig. 3에 나타내었다. 중공사막의 흡인압 실험에서는 중공사막 모듈 반응조의 하부에서 흡인펌프를 가압 및 밸브를 조작하여 압력을 변화시키며 투과플럭스를 측정하였다. 외압실험에서는 원수공급펌프로 가압 및 순환밸브로 압력을 조절하여 압력을 변화시켰으며, 고형물 침적을 최소화하기 위하여 10 LPM의 유속의 교차흐름을 유지시켜 반응조 내부 유속을 1.8~2.5 m/sec으로 유지하였다. 흡인압과 외압의 실험 중 중공사막 표면의 전단압력(shear-stress)을 위한 공기유량을 1 NL/min로 공급하였다. 또한, 흡인압과 외압을 동시에 적용한 실험은 흡인압과 외압의 최대 플럭스를 기준으로 하여 흡인압과 외압 실험과 동일한 조건으로 하거나 흡인압과 외압의 유체 흐름을 반대 방향으로 하여 중공사막 표면에서의 전단압력을 최대로 하여 압력에 따른 투과플럭스 변화를 실험하였다.

3.2. 실험방법

3.2.1. 원수제조 및 중공사막

본 연구에 사용된 증류수는 순수제조기(Wheaton Co.)에서 생산된 증류수로서 pH (Istec, 460CP) 6.5 (± 0.1), 전기전도도(conductivity; Istec, 460CP) 1 $\mu\text{s/cm}$ 이하였

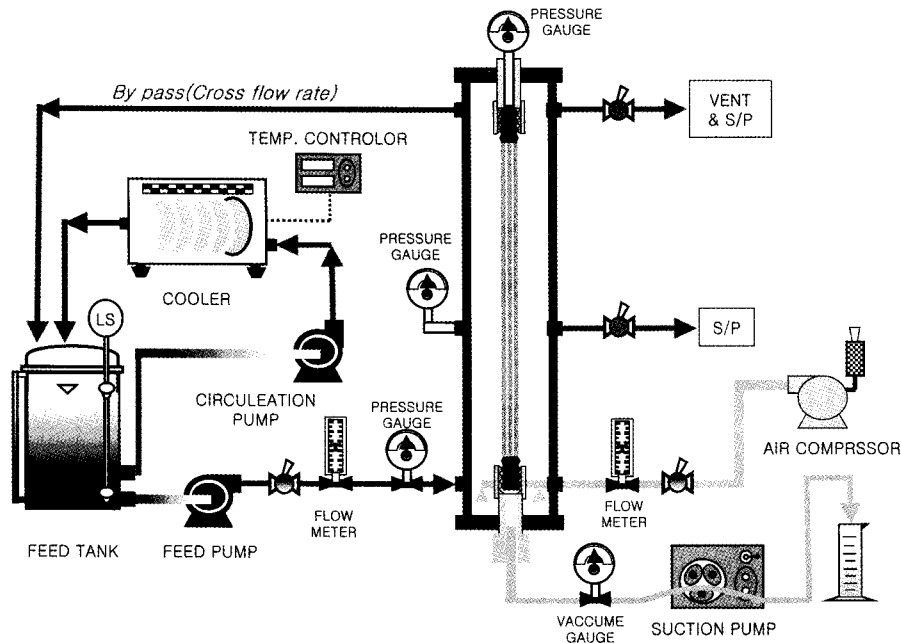


Fig. 3. Schematic diagram of hollow fiber membrane module tester for internal and external pressures.

다. 탁도 실험에서는 10 L 비이커에 증류수를 채운 후 0.1~0.4 μm 의 카올린(kaolin; SIGMA)을 주입하여 5 NTU, 100 NTU로 조제하였으며, 이때 탁도는 turbidity meter (HACH DR/2010)를 이용하여 농도 측정하였다. 조제된 탁도수는 60 L 원수공급탱크에 주입하여 교반하여 실험하였다. 압력 및 공정에 따른 투과플럭스 변화 실험을 위해 반응조에 설치하기 전 중공사막을 친수화시키기 위해 알코올수용액에 30분 동안 완전히 침적시킨 후, 증류수로 충분히 세정하여 사용하였다.

본 연구에 사용된 중공사막은 K사에서 제공된 폴리술폰 재질의 막을 사용하였으며, 그 특성은 Table 2에 나타내었다. 중공사막의 길이는 중공사막의 압력손실의 평가를 위해 30, 60, 90 cm로 제작하여 사용하였으며 모듈은 막의 끝단을 아크릴로 가공하여 중공사막을 삽입한 후 에폭시로 포팅하여 제작하였다.

3.2.2. 흡인압 실험

흡인압 실험은 중공사막 외부에서 내부로 투과되는 방식(out-in)으로 흡인압력을 -80~140 mmHg (-10.67~18.67 kPa)까지 -20 mmHg (-2.67 kPa)씩 상승시키며 투과플럭스변화 실험을 하였다. 이때 원수의 탁도는 5 NTU로 유지하였으며, 원수의 온도는 원수저장탱크의 온도를 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ 로 안정화하여 흡인압력변화에 따른 투과플럭스변화 실험을 하였다. 실험 방법은 반응조 하

Table 2. Specification of Membrane Module

Description	Model	K1	K2
Memb. size (mm, ϕ ID / OD)		1.8 / 2.0	1.8 / 2.0
Pore size (μm)		0.3	0.05
Fibers per module		4 (2)	4 (2)
Fiber length (mm)		300~900	300~900
Pure water permeability (m/sec · bar)		1.52×10^{-4}	

부의 공기 유량을 1 NL/min로 공급하여 흡인압 공정 운전 시 임계플럭스에 중요한 역할을 하는 난류를 유지하여 중공사막 표면에서 발생하는 막힘현상 및 기타 파울링(fouling)을 최소화하도록 하였다[7,8].

3.2.3. 외압 실험

외압 실험은 반응조 내에 중공사막을 장착하여 중공사막 외부에서 내부로 투과되는 방식으로 원수공급펌프로 원수를 공급하고 바이패스 라인의 밸브를 조작하여 교차흐름을 주어 0.6~1.2 kgf/cm^2 (58.84~117.68 kPa)로 0.2 kgf/cm^2 (19.61 kPa)씩 상승시키며 플럭스변화 실험을 하였다. 이때 하부의 공기 유량은 흡인압 실험과 동일 조건으로 하여 중공사막 표면에 난류를 유도하여 막표면의 농도분극을 최소화하였고, 교차흐름 유

속을 1.8~2.5 m/sec으로 유지하였으며, 실제 반응조 내부의 유속은 공기의 상승에 따른 유속변화로 교차흐름의 유속 2.5 m/sec 이상일 것으로 판단된다. 원수공급탱크의 교반 및 교차흐름에 의한 원수의 온도상승에 의한 원수의 점도 변화를 방지하기 위하여 온도조절기를 설치하였으며, 이때의 온도는 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ 로 안정화하여 압력변화에 따른 투과플럭스변화 실험을 하였다. 외압 실험은 Fig. 3의 흡입 펌프를 제거하여 순환시켰다.

3.2.4. 흡인압과 외압을 동시에 적용한 실험

흡인압과 외압을 동시에 적용한 실험에서는 흡인압 공정과 동일하게 흡입펌프의 인버터에 의해 회전수의 조절과 밸브를 조작하고, 동시에 외압공정에서의 원수공급펌프를 가동하여 교차흐름을 주었다. 압력변화는 흡인압 -60~120 mmHg (-8.0~16.0 kPa), 외압 0.4~0.8 kgf/cm² (39.23~78.45 kPa)로 압력별 투과플럭스변화 실험을 하였다. 이때 하부의 공기 유량 1 NL/min, 교차흐름 유속 1.8~2.5 m/sec을 유지하여 중공사막 표면의 오염물질들의 침적으로 인한 막힘현상이나 농도분극현상의 발생이 최소화 되도록 하였다. 원수공급탱크는 순환수로 인한 온도상승 및 공급원수의 점도 변화를 방지하기 위하여 온도조절기를 설치하였으며, 이때의 온도는 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ 로 안정화하여 압력변화에 따른 투과플럭스변화 실험을 하였다. 흡인압과 외압을 동시에 적용한 실험 모식도는 Fig. 3과 동일하다.

4. 결과 및 고찰

4.1. 압력에 의한 플럭스 변화

4.1.1. 흡인압

압력변화에 따른 투과플럭스를 Table 3에 나타내었다. 공경은 K사에서 각각 공급된 0.3, 0.05 μm , 길이는 60 cm이며, 압력은 -80~-140 mmHg (-10.67~-18.67 kPa)로 20 mmHg (-2.67 kPa)씩 변화시키며 압력에 따른 플럭스 변화를 평가하였다. 그 결과 초기 플럭스는 480~660 LMH로 변화하였으나 약 1시간 운전 후 플럭스는 65~77 LMH로 안정되어 흡인압 -100 mmHg (-13.33 kPa) 이상에서는 압력을 상승시켜도 플럭스 증가가 거의 일어나지 않는 것으로 나타났다. 이는 초기 중공사막에 전달되는 압력이 상승함에 따라 투과플럭스가 상승하며 일정압력 이상에서는 중공사막 표면에 오염물질의 침적이 진행된 것으로 사료된다. 즉, 압력상

Table 3. Flux Change by Various Pressure

No	Pore size (μm)	Length (cm)	Pressure		Flux (LMH) 1 hr after
			Internal (mmHg)	External (kgf/cm ²)	
1	0.3	60	-80		65
2			-100		75
3			-120	-	76
4			-140		77
5	0.05	60	-80		63
6			-100		76
7			-120	-	82
8			-140		87
9	0.3	60		0.6	130
10				0.8	100
11			-	1.0	95
12				1.2	85
13	0.05	60		0.6	135
14				0.8	135
15			-	1.0	130
16				1.2	130

승에 따른 플럭스 상승의 효과가 적기 때문에 흡인압 공정(dead-end)의 운전은 고압보다 저압운전이 경제적으로 유리할 것으로 보이며 고농도의 경우 고압으로 운전할 때는 막오염의 가속화를 초래할 것으로 사료된다[9].

또한 공경이 0.05 μm 막으로 실험한 결과 초기 플럭스는 467~557 LMH이며, 약 1시간 운전 후 플럭스는 63~87 LMH로 나타났으며, 공경 0.3 μm 의 결과보다 다소 높은 플럭스를 나타내었다. 이는 원수의 탁도 유발물질인 카올린이 0.1~0.4 μm 로서 MF 막의 공극과 오염물질의 크기가 비슷하여 상대적으로 공극이 작고 매끄러운 UF보다 중공사막 표면에서 막힘현상이 빨리 일어나 일정한 시간이 지난 후 플럭스의 감소가 더욱 빨리 일어나게 되는 것으로 사료되며 이는 dead-end방식에서 현저하게 나타나는 것으로 보고된다[10].

4.1.2. 외압

압력변화에 따른 투과플럭스를 Table 3에 나타내었다. 동일한 길이와 공경(0.3, 0.05 μm)의 막으로 압력은 0.6~1.2 kgf/cm² (58.84~117.68 kPa)으로 0.2 kgf/cm² (19.61 kPa)씩 변화시키며 압력에 따른 플럭스 변화를 평가하였다.

그 결과 0.3 μm 막의 초기 플럭스는 1,590~1,810 LMH이며, 약 1시간 운전 후 플럭스는 130~85 LMH으로 외압을 상승시킬수록 플럭스 감소하는 것으로 나

타났다. 이는 외압 공정 시 교차흐름의 속도가 압력에 비례하여 상승되어야 오염물질에 의한 중공사막 표면의 막힘현상을 감소시켜 일정한 투과플럭스를 유지할 수 있다. 그러나 본 연구의 교차흐름의 속도는 압력이 상승함에 따라 1.5 m/sec으로 제한되어 중공사막 표면의 오염물질에 의한 침적이 진행되어 표면저항 증가에 따른 투과플럭스가 감소된 것으로 사료된다[11].

또한, 0.05 μm 막의 초기 플럭스는 1,100~1,350 LMH이며, 약 1시간 운전 후 플럭스는 135~130 LMH으로 외압을 상승시켜도 일정한 플럭스를 유지하였다. 이는 중공사막의 공경이 오염물질보다 작고, 침적할 수 있는 공간을 제공하지 않기 때문에 막힘현상이 배제되어 일정한 투과 플럭스를 유지할 수 있었으며 교차흐름의 유속이 4 m/sec 이상을 유지하면 입자의 침적(deposition)을 조절하여 투과플럭스를 100 LMH 이상으로 유지할 수 있다고 보고되고 있다[12]. 하지만, 교차흐름의 유속의 증가는 운전비용을 상승할 뿐만 아니라 생물학적 처리와 접목한 형태에서는 펌핑에 의한 플럭의 파괴를 유발시키는 등의 부정적인 영향이 미칠 것으로 사료된다[13].

4.2. 길이에 의한 플럭스 변화

4.2.1. 흡인압

흡인압을 이용한 중공사막 길이에 따른 투과플럭스 변화를 Table 4에 나타내었다. 이 실험에서 흡인압 -100 mmHg를 선정하여 공경 0.05 μm , 길이는 30, 60, 90 cm로 30 cm 변화 시 실험을 하였으며, 이때의 초기 플럭스는 590~450 LMH이며, 약 1시간 운전 후 플럭스는 80~65 LMH를 나타내었다. 30 cm와 60 cm에서는 투과플럭스에 큰 차이가 없었으나 90 cm에서는 플럭스가 다소 감소하였다. 이는 out-in방식의 운전 시 중공사막 공경에 따른 막 내부의 마찰 및 투과의 압력손실에 의한 실제운전압력이 미치지 못하여 발생하는 것으로 사료된다.

4.2.2. 외압

외압 0.6 kgf/cm^2 (58.84 kPa)과 0.8 kgf/cm^2 (78.45 kPa)을 선정하여 동일한 중공사막과 길이에 따른 투과 플럭스변화를 Table 4에 나타내었다. 그 결과 초기 플럭스는 1,240~1,050 LMH이며, 약 1시간 운전 후 플럭스는 150~130 LMH를 나타내었다. 외압 0.6 kgf/cm^2 로 실험하였을 경우 길이에 따라 플럭스의 감소가 일정하게 나타났으며, 90 cm의 경우 30분 정도 운전 시 투

Table 4. Flux Change by Various Length

No	Pore size (μm)	Length (cm)	Pressure		Flux (LMH) 1 hr after
			Internal (mmHg)	External (kgf/cm^2)	
1		30	-100		80
2		60	-100	-	75
3		90	-100		65
4	0.05	30	-100		150
5		60	-100	0.6	140
6		90	-100		130
7		30	-100		135
8		60	-100	0.8	135
9		90	-100		125

과플럭스의 감소가 두드러지게 나타났다. 이는 중공사막의 표면에 침적이 일어나는 동안 교차흐름 속도가 낮아 발생한 것으로 사료되며, 일반적으로 표면의 침적을 줄이기 위해 공기 버블(air-bubble)을 공급하여 감소시킬 수 있는 것으로 보고되고 있다[14].

외압 0.8 kgf/cm^2 (78.45 kPa)일 때 초기 플럭스는 1,390~1,140 LMH이며, 약 1시간 운전 후 플럭스는 135~125 LMH를 나타내었다. 0.8 kgf/cm^2 (78.45 kPa)으로 실험하였을 경우 0.6 kgf/cm^2 (58.84 kPa)의 경우보다 누적 투과플럭스가 일정하게 감소하였다. 이는 압력상승에 따른 막표면의 압력전달이 상승되어 중공사막 내부의 압력손실의 감소에 따른 유체흐름 속도를 증가시킴으로 인한 투과플럭스가 상승하게 된 것으로 사료된다.

4.3. 흡인압 및 외압을 적용한 공정의 플럭스 변화

4.3.1. 공경 0.3 μm

흡인압과 외압을 동시에 적용한 공정에서의 압력에 따른 투과플럭스변화를 Table 5에 나타내었다. 0.3 μm , 길이 60 cm막을 가지고 흡인압과 외압 각각 -60 mmHg (-8.0 kPa)와 0.4, 0.6, 0.8 kgf/cm^2 (32.23, 58.84, 78.45 kPa), -80 mmHg (-10.67 kPa)와 0.6 kgf/cm^2 (58.84 kPa)으로 변화시켜 실험하였다. 그 결과 초기 플럭스는 1,470~1,970 LMH으로 나타났으며, 일정시간이 지난 후 플럭스는 80~130 LMH을 나타내었다.

흡인압과 외압을 동시에 적용한 공정에서의 플럭스 변화는 운전 초기에는 외압에 의한 막표면의 교차흐름과 흡인압에 의한 중공사막 내부의 유체흐름저항을 최소화함에 따라 투과플럭스가 상승하게 되었으며, 일정시간이 지난 후 외압공정만 단독으로 실시한 경우와 같

Table 5. Flux Change Adapted for Simultaneity of Internal and External Pressures

No	Pore size (μm)	Length (cm)	Pressure		Flux (LMH) 1 hr after
			Internal (mmHg)	External (kgf/cm^2)	
1	0.3	60	-60	0.4	80
2			-60	0.6	75
3			-60	0.8	110
4			-80	0.6	130
5	0.05	60	-60	0.6	135
6			-60	0.8	135
7			-80	0.6	140
8			-80	0.8	135
9			-100	0.6	180
10			-100	0.8	205

이 급격한 투과플럭스 감소현상이 일어나게 되었다. 특히 외압의 압력을 상승시킬수록 막표면의 교차흐름속도 변화에 따른 투과플럭스는 증가하였다. 이는 오염물질이 중공사막 표면에서 교차흐름 및 버블링에 의한 입자의 재배열이 일어나면서 투과플럭스를 감소시킴과 동시에 침적 두께가 감소하는 현상이 일어난 것으로 사료된다[11].

4.3.2. 공경 0.05 μm

흡인압과 외압을 동시에 적용한 공정에서의 압력에 따른 투과플럭스변화를 Table 5에 나타내었다. 공경 0.05 μm , 길이 60 cm로 흡인압과 외압을 각각 -60 mmHg (-8.0 kPa)와 0.6, 0.8 kgf/cm^2 (58.84, 78.45 kPa), -80 mmHg (-10.67 kPa)와, 0.8 kgf/cm^2 (78.45 kPa), -100 mmHg (-13.33 kPa)와 0.6, 0.8 kgf/cm^2 (58.84, 78.45 kPa)로 변화시켜 실험하였다. 그 결과 초기 플럭스는 1,170~1,310 LMH으로 나타났으며, 일정시간이 지난 후 플럭스는 135~205 LMH을 나타내었다. 흡인압과 외압을 동시에 적용한 공정에서의 플럭스변화는 외압의 경우 0.6 kgf/cm^2 (58.84 kPa)를 기준으로 하였을 경우 외압을 단독으로 운전하였을 경우와 비슷하게 투과플럭스를 유지하였다. 또한 0.8 kgf/cm^2 (78.45 kPa)를 기준으로 하였을 경우 외압에 의한 막표면의 교차흐름과 흡인압에 의한 중공사막 내부의 유체흐름 저항을 최소화함에 따라 투과플럭스가 상승하게 되었다. 그 결과 일정시간이 지난 후에도 투과플럭스가 흡인압 및 외압 공정의 단독으로 실시한 경우와 달리 플럭스 감소현상이 선형적(linear)으로 감소되어 총 투과 유량이 증가하

Table 6. Flux Change in Turbidity Adapted for Simultaneity of Internal and External Pressures

No	Pore size (μm)	Length (cm)	Turbidity (NTU)	Pressure		Flux (LMH) 1 hr after
				Internal (mmHg)	External (kgf/cm^2)	
1	0.05	60	100	-80	0.4	105
2	0.05	60	100	-80	0.6	105
3	0.05	60	100	-100	0.4	115
4	0.05	60	100	-100	0.6	120
5	0.05	60	100	-120	0.4	115
6	0.05	60	100	-120	0.6	115

게 됨을 알 수 있었다.

4.4. 탁도에 의한 압력별 플럭스 변화

탁도 100 NTU의 원수에서 흡인압과 외압을 동시에 적용한 공정에서 탁도 주입에 따른 압력별 투과플럭스변화를 Table 6에 나타내었다. 공경 0.05 μm , 길이는 60 cm로 흡인압과 외압을 각각 -80 mmHg (-10.67 kPa)와 0.4, 0.6 kgf/cm^2 (39.23, 58.84 kPa), -100 mmHg (-13.33 kPa)와 0.4, 0.6 kgf/cm^2 (39.23, 58.84 kPa), -120 mmHg (-16.0 kPa)와 0.4, 0.6 kgf/cm^2 (39.23, 58.84 kPa)로 변화시켜 실험하였다. 이때 시료수는 비이커에 증류수를 채운 후 카울린으로 100 NTU제조하여 원수공급탱크에 채운 후 운전하였다. 초기 플럭스는 615~695 LMH이며, 약 1시간 운전 후 플럭스는 105~115 LMH를 나타내었다.

교차흐름의 유속에 따른 중공사막 내부의 흡인압의 상승함에 따라 초기의 플럭스는 상승하였으나, 점차 중공사막 표면의 막힘현상을 증가시켜 급격한 플럭스감소를 초래하였다. 이와 같이 원수의 고농도의 탁도성분에 의한 플럭스 감소가 급격히 일어나는 것은 중공사막에 카울린 케이크 층이 임계압력 이상이 되면서 점점 크게 형성된다. 이 결과는 외압의 교차흐름 및 공기유량에 따라 표면전단력보다 케이크 층이 빨리 형성됨으로써 투과플럭스를 감소시키기 때문일 것으로 사료되며, 이는 공기버블의 양을 증가시킴으로써 중공사막의 표면의 케이크 침적을 최소화할 수 있는 것으로 보고되고 있다[15,16].

4.5. 압력손실에 따른 플럭스 변화 예측 및 비교

흡인압과 외압을 동시에 적용한 실험결과와 압력손실을 기준으로 식 (24)에 적용하여 시뮬레이션 한 결과

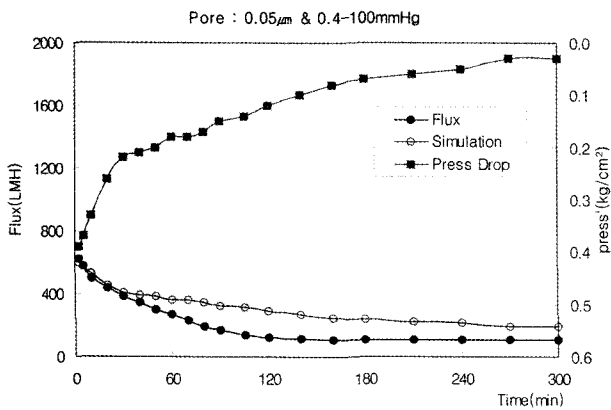


Fig. 4. Comparison of correlation predictions with experimental results (-100 mmHg & 0.4 kgf/cm²); based on the experimental (test) pressure drop.

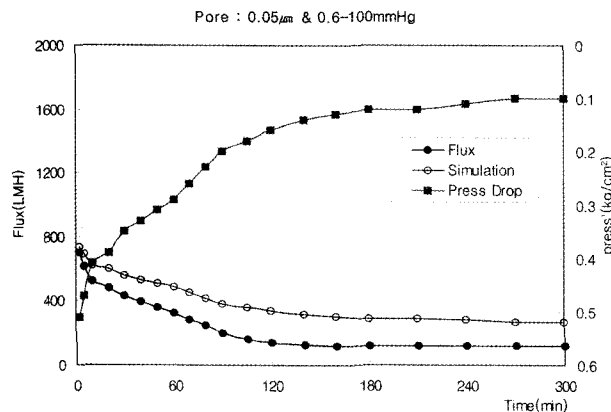


Fig. 5. Comparison of correlation predictions with experimental results (-100 mmHg & 0.6 kgf/cm²); based on the experimental (test) pressure drop.

를 수투과도의 변화로 예측·비교하여 Fig. 4, Fig. 5에 나타내었다. 실험에 사용된 시료수는 비이커에 증류수를 채운 후 카울린으로 100 NTU 제조하여 원수저장조에 채운 후 흡인압과 외압을 가하여 실험하였다. 이때 흡인압과 외압력은 각각 -100 mmHg (-13.33 kPa)과 0.4, 0.6 kgf/cm² (39.23, 58.84 kPa)을 적용하였으며, 중공사막의 공경은 0.05 μm, 길이는 60 cm로 에탄올과 증류수로 혼합한 용액에 중공사막을 침지시켜 표면을 친수화된 중공사막을 사용하였다. 수투과도의 예측은 실제 실험에서 발생하는 각각의 압력손실을 기준으로 하여 중공사막 내부의 직접 전달되는 압력을 구한 후 식 (24)에 적용하여 Q_w 값을 구하였으며, 이 실험에 적용한 중공사막의 면적을 계산하여 수투과도로 환산하여 예측·비교하였다. 예측 프로그램의 시뮬레이션에

Table 7. Simulation Factors of Hollow Fiber Membranes Adapted for Dual Pressures

Factor (unit)	Value	Factor (unit)	Value
Pure water permeability (m/sec · bar)	1.52×10^{-4}	Lp (m)	3.5×10^{-2}
Viscosity (μ) (kg/m · sec)	1.005×10^{-3}	Fiber length (m)	0.6
Rm (L/m)	6.6×10^3	Density (ρ) (kg/m ³)	1,030
Rc (L/m)	6.6×10^4	Do (m)	2.0×10^{-3}
Mem. area (MA) (m ²)	7.54×10^{-3}	Di (m)	1.8×10^{-3}
Permeance (Ks) m/sec · kPa	1.37×10^{-5}	g (m/sec ²)	9.8
M (L/m)	5.853	Fiber Q'ty (Fq)	2

적용된 인자의 투과도(Ks)는 순수투과도에서 실제 실험의 투과값을 기준으로 하여 계산하여 적용하고, 막면적(M_A), 모듈포팅의 두께(L_P), 중공사막의 외경(D_O), 내경(D_I), 중공사막 수량(F_q), 중공사막 길이(L)는 실험에 적용한 모듈의 실제수치이며, 밀도(ρ), 중력(g), 점도(μ)는 상온에서의 물의 표준값을 적용하여 Table 7과 같이 요약하였다.

Table 7의 인자 값을 식 (24)에 적용한 플럭스 변화는 Fig. 4, Fig. 5에 나타난 바와 같이 실제 실험과 시뮬레이션한 결과값의 초기 플럭스변화는 비슷한 경향을 보였다. 이는 중공사막 내부(lumen side)에서의 압력 전달이 상승함에 따라 투과플럭스도 상승함을 알 수 있었다. 또한 시간이 경과함에 따라 예측치와 실험값의 투과플럭스가 편차가 증가하는 경향을 보였으며, 이는 본 연구에 적용한 모델식에서 막표면에 생성되는 케이크층 두께에 의한 저항 및 전단인력(shear-stress)에 의한 케이크층 감소현상에 따른 플럭스변화를 적용하기 곤란하여 발생하는 오류라고 판단된다. 앞으로 전단인력(crossflow, air bubbling & etc)에 의한 중공사막 표면에서의 케이크층 변화를 더욱 더 연구하여야 할 것으로 사료된다.

5. 결 론

중공사막을 이용한 압력별, 길이별, 외압과 흡인압을 동시에 적용한 공정, 고농도 원수의 투과플럭스를 연구

한 결과는 다음과 같다.

1) 흡인압과 외압을 동시에 적용한 공정에서의 플럭스 변화는 공경 0.3 μm 과 공경 0.05 μm 모두 초기 플럭스가 흡인압 및 외압 단독공정의 경우보다 초기 투과 플럭스가 상승하였다.

2) 고농도 탁도성분 100 NTU에서 외압 및 흡인압의 상승에 따른 초기 플럭스는 상승하였지만 점차 중공사막 표면의 막힘현상이 증가되어 급격한 플럭스감소 현상이 발생하였다. 이는 고농도의 탁도성분에 의한 중공사막 표면에 케이크 층이 형성되어 임계압력 이상이 되면 외압의 교차흐름 및 공기유량에 따른 표면전단력보다 케이크 층이 빨리 형성됨으로써 투과플럭스를 감소하였다.

3) 흡인압 -100 mmHg (-13.33 kPa)과 외압 0.4, 0.6 kg/cm^2 (39.23, 58.84 kPa)을 동시에 적용한 실험의 압력손실을 기준으로 유도한 모델식에 적용하여 플럭스 변화를 예측·비교하였다. 고농도 탁도성분 100 NTU에서 실험한 값과 비교하여 초기 플럭스 변화는 비슷한 경향을 나타내어 중공사막 내부(lumen side)에서의 압력 전달이 상승함에 따라 투과플럭스도 상승함을 알 수 있었다.

참 고 문 헌

1. Y. T. Lee and J. K. Oh, "A study on the optimization of process and operation condition for membrane system in tap water treatment", *Membrane J.*, **9**(4), 193 (1999).
2. J. H. Lee, J. H. Kim, and Y. T. Lee, "Characterization of permeation and fouling of UF/MF hollow fiber membranes for drinking water treatment", *Membrane J.*, **10**(2), 75 (2000).
3. Y. T. Lee and J. K. Oh, "Membrane fouling effect with organic-inorganic material using the membrane separation in drinking water treatment process", *Membrane J.*, **13**(4), 219 (2003).
4. M. Cheryan, "Ultrafiltration and Microfiltration Handbook", Technomic (1998).
5. M. Mulder, "Basic Principles of Membrane Technology", 2nd ed., Kluwer Academic Publishers, 320 (1996).
6. G. Schulz and S. Ripperger, "Concentration polarization in crossflow microfiltration", *J. Membr. Sci.*, **40**, 173 (1989).
7. Sheng Chang, and Anthony G Fane, "Filtration of biomass with laboratory-scale submerged hollow fibre modules-effect of operating conditions and module configuration", *J. of Chem. Technol. Biotechnol.*, **77**, 1030 (2002).
8. J. A. Howell, "Sub-critical flux operation of microfiltration", *J. Membr. Sci.*, **107**, 165 (1999).
9. Y. Kaiya, Y. Itoh, S. Takizawa, K. Fujita, and T. Tagawa, "Fouling analysis in membrane process for drinking water production", *Membrane Tech. in Environ. Management*, Tokyo (1999).
10. L. Wang and L. Song, "Flux decline in crossflow microfiltration and ultrafiltration: experimental verification of fouling dynamics", *J. of Membrane Sci.*, **160**, 41 (1999).
11. M. Hamachi, and M. Mietton-Peuchot, "Experimental investigations of cake characteristics in crossflow microfiltration", *Chem. Eng. Sci.*, **54**, 4023 (1999).
12. E. Tardieu, A. Grasmick, A. Geaugey, and J. Manem, "Hydrodynamic control of bioparticle deposition in a MBR applied to wastewater treatment", *J. of Membr. Sci.*, **147**, 1 (1998).
13. M. Brockmann and C. F. Seyfried, "Sludge activity and cross-flow microfiltration - a non-beneficial relationship", *Water Sci. Technol.*, **34**(9), 205 (1996).
14. R. Rautenbach and R. Albrecht, "Membrane processes", John Wiley & Sons (1989).
15. S. Chang and A. G. Fane, "The effect of fibre diameter on filtration and flux distribution relevance to submerged hollow fibre modules", *J. Membr. Sci.*, **184**, 221 (2001).
16. T. Ueda, K. Hata, Y. Kikuoka, and O. Seino, "Effects of aeration on suction pressure in a submerged membrane bioreactor", *Wat. Res.*, **3**, 489 (1997).