

## 관내 입자 재응집에 의한 케이크 저항의 감소

### Reduction of Cake Resistance by Floc Reaggregation in a Membrane-Feed-Pipe

김태영 · 박희경\*

Taeyoung KIM · Heekyung PARK\*

KAIST 건설 및 환경공학과

(2007년 9월 10일 논문 접수; 2007년 12월 6일 최종 수정논문 채택)

#### Abstract

Fully-grown flocs in a mixing tank of membrane filtration with dead-end membrane are ruptured while passing through a pump and the ruptured flocs are aggregated again in a Membrane-Feed-Pipe (MFP). To look at more details, this study tries to relate the reaggregation to a parameter of mixing intensity in MFP, i.e., G-value. The G-value is a function of Reynolds number, pipe diameter, friction factor and average velocity in MFP. To deal with polydispersity condition, we develop a representative particle size called in this study EDPD (Effective Diameter for Polydispersity condition in Dead-end filtration). The experimental results show that as the G-value increases, the EDPD decreases and also the cake resistance increases. Through comparison between EDPD and cake resistance, these results show that cake resistances are controlled by reaggregation phenomenon in MFP. The effect of detention time in MFP, however, does not affect the reaggregation of the broken flocs as G-values are increased

**Key words:** Reaggregation, G-value, Detention time, Membrane-Feed-Pipe, Cake resistance

**주제어:** 재응집, 속도경사, 체류시간, 막 공급 관, 케이크저항

#### 1. 서 론

막여과 설계에서 중요한 점은 충분한 투과플럭스를 얻는 것이다. 이러한 이유 때문에, 임펠러를 가진 혼화조 내에서의 응집-혼화공정은 입자크기를 크게 하고 막의 파울링을 줄이는 중요한 전처리 공정으로

자주 이용되고 있다. 그러나 이렇게 혼화조 내에서 응집-혼화공정을 거쳐서 성장한 플록들은 파이프를 통해서 막모듈에 공급될 때 가압펌프의 빠른 회전속도에 의해서 모두 깨져 버리게 된다(Kim et al., 2002, 2007). 결과적으로 응집-혼화공정에 의한 플록성장단계는 침전지가 없을 경우 불필요한 막여과 전처리 공정으로 여겨질 수 있는 것이다. 그러나 흥미로운 점

\*Corresponding author Tel: +82-42-869-3620, FAX: +82-42-869-3610, E-mail: hkpark@kaist.ac.kr (PARK, H.K.)

은 이렇게 플록들이 펌프를 통해서 깨지더라도 응집제 투입에 의한 응집효과가 관찰되며 동시에 막 케이크 층의 감소에 의한 투과플럭스가 향상되는 효과를 가진다(Wiesner et al., 1989; Lee et al., 2000; Soffer et al., 2000). 이것은 깨진 플록들이 가압펌프를 지난 이후에 어떤 이유로 재응집 되어 케이크저항을 감소시키는 결과를 초래한 것이다. Kim 등(2007)은 (A) 응집-혼화조, (B) 펌프 이후, (C) 막모듈 입구, (D) 재순환수라인으로 이루어진 4개의 지점에서의 입도분석을 통해서 막 표면위의 유동성 케이크 층에서 펌프를 통과하면서 깨진 입자들이 주로 재응집이 일어남을 보였다. 그 이유는 막표면의 전단유속(shear rate)이 0에 가깝게 되며 이러한 전단유속의 감소로 인해 깨진 입자들 사이에 재응집 효율이 증가되며, 또한 막면 케이크 층을 형성하는 입자들의 농도가 bulk쪽의 농도보다 증가하여 자연스럽게 입자들 사이의 접촉수가 증가하여 입자들 사이의 강도가 증가되므로써 막 표면위의 유동성 케이크 층에서 주로 재응집 효과가 나타난다고 설명하였다(Kim et al., 2007).

흥미롭게도 그들의 입도분포곡선으로부터 가압펌프에서부터 막모듈 입구사이의 관내에서 깨진 플록들의 재응집 되는 현상을 관찰 할 수 있었다. 게다가 몇몇의 연구자들은 유량이 시간에 따라 변하지 않는 임펠러(impeller)를 가진 조(jar)를 이용한 응집-혼화 실험에서 성장한 플록들이 임펠러의 혼화강도를 증가시켜 성장한 플록들을 모두 깨뜨린 다음 임펠러의 혼화강도를 감소시켜 조의 난류 에너지를 줄여줌으로써 플록들이 재성장하는 것을 보여주었다(Clark et al., 1991; Yukselen et al., 2002). 본 연구에서는 batch 상태의 조건이 아니라 유량이 변하는 관내에서 관경과 유량의 제어를 통해서 관내에서 발생하는 혼화강도를 조절하여 펌프에서 깨진 플록들이 펌프와 막 모듈의 입구 전단까지의 관내에서 깨진 플록들을 재응집시키는 것이 가능할 것이라는 가정에서 본 논문을 통해서 3가지의 막여과 공정 개선방향을 연구하였다. (1) 관내 유량과 관경의 변화에 의한 재응집 현상 제어, (2) 재응집에 대한 관내 체류시간의 영향, (3) 막여과 저항과 관내 재응집에 대한 상관관계 평가를 통해서 막여과 시스템에서의 관내 난류에너지 제어를 통해서 펌프를 통과하여 깨져버린 입자들의 크기를 증가시키는 것을 통해서 후단의 막 여과 저항을 제어하

는 것이 가능하게 될 것으로 판단하였다.

본 연구에서 관내 체류시간에 주목한 이유는 유량의 변함이 없는 조에서 깨진 입자들의 재응집을 위한 재혼화 시간이 상당히 긴 반면(재응집을 위한 혼화시간이 10분 이상) 관내 체류시간은 수초에 불과하기 때문이다. 그러므로 이렇게 짧은 체류시간 동안 깨진 플록들이 과연 재응집에 어떠한 영향을 줄 수 있는지 확인할 필요가 있는 것이다. 실험의 중요한 전제 조건으로 관내 재응집에 의한 입자의 크기와 케이크 저항에 대한 영향에만 관심을 가지므로, Crossflow 여과 조건에서 전단유속에 의해서 발생할 수 있는 입자들의 재응집 영향을 배제하기 위해서 Dead-end 여과 조건에서 모든 실험을 진행하였다.

## 2. 이론적 배경

### 2.1. EDPD(Effective Diameter for Polydispersity condition in Dead-end filtration)

Dead-end 여과 조건에서 입자 크기가 커서 막의 공극사이로 들어갈 수 없을 때 입자들은 막표면 위에 축적되며 여과가 진행될수록 케이크층을 형성하게 된다. 케이크층이 비압축성일 때, 케이크의 공극률과 저장량은 막면에 가해지는 압력차에 영향을 받지 않는다고 가정 할 수 있다. 이 경우 케이크의 단위 두께 당 케이크 저항값( $\hat{R}_c$ )은 Carman-Kozeny 식에 의해서 평가 될 수 있다.

$$\hat{R}_c = K'(1 - \epsilon_c)^2 S_c^2 / \epsilon_c^3 = K'(1 - \epsilon_c)^2 \left(\frac{3}{d}\right)^2 / \epsilon_c^3 \quad (1)$$

여기서,  $\epsilon_c$ 는 케이크의 공극률,  $S_c$ 는 케이크층의 입자부피당 단위면적이며, 입자의 지름이  $d$ 로 균일한 구형입자일 경우 단위면적  $S_c = 3/d$ 이고, 임의지점의 케이크 공극률은  $\epsilon_c \approx 0.4$ , 상수  $K'$ 는 5.0이 된다.

식 (1)은 dead-end 여과조건에서 '단일입자크기' 일 경우 케이크의 단위 두께 당 케이크 저항값( $\hat{R}_c$ )이 입자지름의 2승에 반비례함을 나타낸다. 그러나 실제 막여과 장치에 공급되는 원수의 대부분은 다양한 입경분포도와 크기를 가지고 있다(Kim and Park, 2005; Yonekawa et al., 2004). 이러한 다양한 입경분포가 존재할 경우를 polydispersity라고 하며, 입경분포가 다양한 원수조건에서는 단일한 입경크기만을 적용한

Carman-Kozeny식을 사용하는 것은 부적합하다. 이러한 상황을 해결하기 위해서 본 연구에서는 Kim과 Park(2005)이 Crossflow 조건에서 제안한 EDSD (Effective Diameter for Shear-induced Diffusion)의 식으로부터 polydispersity조건에서의 입자크기에 따른 케이크 형성정도를 확률적인 관점에서 접근하여 작은 입자일수록 그 입자지름의 제공에 반비례하여 케이크 저항을 유발하게 된다는 점을 감안하여 Dead-end 조건에서 새롭게 유도된 대표입경인 EDPD(Effective Diameter for Polydispersity condition in Dead-end filtration)를 개발하였다. 이 EDPD는 Dead-end 여과 조건에서 작은 입자일수록 더 조밀한 케이크층을 형성하는 성질을 나타낼 수 있는 성질을 가지고 있다. 다시 말해서, 원수 속에 포함된 입자 크기에 따라서 막에 파울링을 유발시킬 수 있는 확률(Probability of fouling,  $PF_i$ )을 고려한 것이다. 이러한 EDPD는 아래와 같은 공식으로 표현될 수 있다.

$$\begin{aligned} \text{EDPD} &= \sum(PF_i \cdot d_{pi}) = \sum(P_i \cdot w_i \cdot d_{pi}) \quad (2) \\ w_i &\propto R_a \propto 1/d_{pi}^2 \\ w_i &= k/d_{pi}^2 \\ \sum PF_i &= \sum(w_i \cdot P_i) = k \cdot \sum(P/d_{pi}^2) = 1 \end{aligned}$$

여기서,  $PF_i$ 는 입자지름이  $d_{pi}$ 인 입자가 막파울링을 일으킬 수 있는 확률,  $P_i$ 는 입자들 수에 근거한 입도 분포 비율(%),  $w_i$ 는 중량치,  $k$ 는 보정계수

입도분석을 해석하는 과정에서 많은 연구들의 대부분은 입자크기를 입도분포 곡선으로 입자크기의 변화 경향을 나타내고 있다. 비록 이러한 입도분포 곡선이 입도분포의 경향을 확인하는데 유리하다 할지라도, 다양한 입경을 가지는 원수조건에서의 입자 크기와 케이크 저항사이의 정량적으로 표현하는 데는 어려움이 많다. 이러한 다양한 입경분포를 가지는 원수 조건을 나타내기 위해서 유도된 EDPD는 Dead-end 여과조건에서 케이크 저항을 반영하는데 적합할 것으로 판단된다. 이러한 가정을 증명하기 위해서, 본 연구에서는 EDPD와 케이크 저항사이의 관계를 정량적으로 분석하여 EDPD의 유용성을 증명할 것이다.

## 2.2. 관내에서의 G값의 계산

Static mixer나 in-line mixer와 같은 관내 난류를 이

용한 실험에서 관내 혼화강도를 측정하기 위해서 사용하는 개념이 주로 G값이다. Clark(1985)와 Graber(1994)는 이러한 G값의 경우 2차원적인 흐름에서 유도되었고, mixer의 크기나 형태가 다르게 적용되는 3차원적인 흐름특성을 가지는 경우에는 그 사용이 부적합하다고 지적하였지만 몇 십년 동안 G값이 쉽게 계산 된다는 장점 때문에 다양한 유형의 혼화강도를 표현하기 위해서 사용되어 왔다. 본 연구에서도 이러한 계산상의 이유로 펌프와 막모듈 입구까지의 관내에서의 혼화강도를 정량적으로 표현하기 위해서 G값을 사용하고자 한다.

관내에서의 G값을 이용하기 위해서는 기존 연구자들의 경우 관내에서 마찰에 의해서 발생하는 압력손실을 계산하여 G값을 정량적으로 표현하였다 (Godfrey and Amirtharajah, 1991; Latimer and Amirtharajah, 1998; Jones et al., 2002). 처음, Godfrey와 Amirtharajah(1991)는 in-line mixer의 경우에서 마찰계수(friction factor), Reynolds수, 압력손실을 향으로 하여 아래와 같은 식을 유도하였다.

$$f = \frac{D\Delta P}{2L\rho v_a^2} = \text{Re} \frac{\mu\Delta P}{2L\rho v_a^3} \quad (3)$$

여기서,  $f$ 는 마찰계수,  $D$ 는 관의 지름,  $\Delta P$ 는 관을 통과하면서 발생하는 압력손실,  $L$ 관의 길이,  $\rho$ 는 물의 밀도,  $\mu$ 는 물의 동점성 계수,  $v_a$ 는 평균 유속이다.

두 번째로, 관내에서 압력손실과 G값의 관계를 아래와 같은 공식으로 표현할 수 있다.

$$G = \sqrt{\frac{P}{\mu V}} = \sqrt{\frac{Q\Delta p}{\mu V}} \quad (4)$$

여기서,  $P$ 는 관내에서 분산되는 에너지,  $V$ 는 관내에서의 유체의 부피,  $Q$ 는 유량,  $\Delta P$ 는 관을 통과하면서 발생하는 압력손실이다.

이러한 관내 압력손실은 물의 비중( $r$ )과 관내 수두 손실( $h_L$ )의 곱으로 표현할 수 있으며 관내 수두손실은 아래와 같이 Darcy-Weisbach 식으로 표현할 수 있다.

$$h_L = f \frac{L}{D} \frac{v_a^2}{2g} \quad (5)$$

마지막으로 관내 혼화강도를 표현하기 위해서 관

경, 동점성계수, 평균 유속, 막찰계수르 이루어진 식을 유도하는 과정은 아래와 같다.

$$G = \sqrt{\frac{P}{\mu V}} = \sqrt{\frac{Q\Delta p}{\mu V}} = \sqrt{\frac{Qrb_L v_a}{\mu QL}} = \sqrt{\frac{rb_L v_a}{\mu L}}$$

$$= \sqrt{\frac{\rho g b_L v_a}{\mu L}} = \sqrt{\frac{g b_L v_a}{\nu L}} = \sqrt{\frac{fv_a^3}{2\nu D}} \quad (6)$$

$$(\because P = Q \times \Delta p; \Delta p = \gamma \times b_L; \gamma = \rho \times \xi; \nu = \mu / \rho)$$

$$G = \sqrt{\frac{fv_a^3}{2\nu D}} = \sqrt{\frac{fv_a^3}{2D^2}} \cdot (\text{Re})^{1/2} = \left(\frac{\text{Re} \cdot f}{2}\right)^{1/2} \cdot \frac{v_a}{D}$$

$$\text{with } f = \frac{64}{\text{Re}} (\text{Re} < 2,000),$$

$$\frac{1}{\sqrt{f}} = 2 \log(\text{Re} \sqrt{f}) - 0.8 (\text{Re} > 3,000)$$

G값이 가지는 실제적 의미는 G값이 클수록 관내를 통과하는 유체의 난류에너지가 크며, 이는 관경과 관을 통과하는 유량에 따라 그 값을 변화시킬 수 있다는 것을 의미하게 된다. 또한 후속연구를 통해서 G값이 증가하게 될 때(난류에너지가 증가하게 될 때) 재응집 되는 플록들의 크기가 감소하게 되는지 살핌으로써 G값을 제어하여 플록들의 크기를 제어할 수 있는지 확인하였다.

### 2.3. 응집 기작: Charge neutralization, Sweep flocculation

막여과에서 입자와 입자 사이의 인력과 입자크기의 증가는 케이크 저항을 감소시키기 위한 중요한 인자이다. 이러한 입자와 입자사이의 인력은 응집을 통해서 증가되게 된다. 응집의 몇 가지 메카니즘 중에서 charge neutralization의 경우, 음전하로 대전된 콜로이드가 응집체의 다가 양이온(polymeric ion)이 투입되어 전화중화를 일으키는 것이고, sweep flocculation은 응집체의 용해시에 생성되는 침전성 물질(Al(OH)<sub>3</sub>)이 콜로이드 입자들과 서로 결합하여 플록들을 형성하는 것이다. Charge neutralization은 pH 4.5 이하에서 주로 일어나는 응집기작이며, sweep flocculation은 pH 6에서 8 사이의 범위에서 주로 일어나게 된다.

Charge neutralization 기작은 양이온에 의해서 콜로이드의 표면전하 0에 근접하게 되면 입자들의 전기적

반발력이 감소하여 서로 붙쳐지게 된다. 반면에 sweep flocculation은 혼화가 잘 이루어지지 않아 입자에 흡착되지 못한 양이온들이 수화반응(Hydration)을 일으켜 입자들 사이의 인력을 증가시키게 되는 기작이다. 기존의 연구자들은 입자들의 재응집 실험에서 charge neutralization(pH < 4.5) 조건에서 재응집 효과가 증가하는 것을 밝혔다(Metnet et al., 2004; Kim et al., 2002, 2003; Lee et al., 2000). 왜냐하면 charge neutralization 조건에서 응집된 입자들이 깨지더라도 다가 양이온들이 붙어 있는 상태로 깨지게 되므로, 난류에너지를 감소시킨 후 입자들의 상호 충돌을 유도하였을 때 다가 양이온이 콜로이드 표면에 넓게 분포하여 표면전하를 0에 가깝게 만듦으로써 sweep flocculation 조건보다 재응집 효과를 증가시키게 되는 것이다. 또한 charge neutralization 조건에서 응집된 입자들은 케이크 저항값이 낮으며 공극이 큰 케이크층을 형성하는 성질을 가지고 있다(Lee et al., 2000; Antelmi et al., 2001; Kim et al., 2007).

막표면과 입자들의 부착은 입자들의 크기와 막과 입자 사이의 인력, 입자와 입자사이의 인력, 막간차압(TMP), 다양한 수리학적 조건에 의해서 영향을 받는다. Altman과 Ripperger(1997)은 TMP의 감소와 다양한 수리학적 조건 변화가 케이층의 높이와 저항값을 변화시키지 않는다고 하였다. 또한 McLaughlin(1993)과 Altman과 Ripperger(1997)은 막면에서의 입자의 lift force는 입자크기의 3승에 비례하여 그 힘이 증가된다고 하였다. 이것은 작은 입자일수록 막표면에 남기 쉬우며 큰 입자일수록 lift force가 커짐으로 인해서 막표면 위에 침적되는 입자들이 남아있질 않으므로 케이크 저항값이 감소된다는 것을 의미한다. 게다가 Kim(2003)은 polydispersity 조건에서 전단유속, 원수농도, 입자들의 크기의 변화에 따른 케이크 저항값의 변화에서 입자들의 크기 변화가 다른 변수들에 비해서 케이크 저항에 주로 영향을 미친다는 것을 증명하였다. Kwon(1998)은 1 $\mu$ m 이상의 입자들의 크기에서는 shear-induced diffusion에 의해서 막표면으로부터 쉽게 떨어져 나오게 되며 막과 입자사이의 인력은 중요하지 않게 됨을 증명하였다.

이렇듯 막여과에서 케이크 층을 저감시키는 방법은 TMP, 전단유속, 모듈내부에서의 수리학적 설계인자의 변화보다는 막 모듈내에 유입되는 입자들의

크기를 응집을 통해서 잘 조절하는 것이 가장 좋은 공정임을 지적 할 수 있다.

### 3. 실험 재료 및 방법

본 연구에서 사용한 막은 MWCO (Molecular Weight Cut Off) 30,000Da인 폴리술폰재질의 disc형의 UF막이고, 유효면적은 28.7cm<sup>2</sup>이다. 입자성 물질은 Sigma-Aldrich에서 직경이 1 ± 0.04µm인 균일한 Latex 입자를 사용하였다. 용액의 pH는 4.5로 조정하였다. 응집제로는 Junsei chemical의 Al<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> 14-18H<sub>2</sub>O로 응집제의 주입량은 5mg/l로 ZetaPlus (Brookshaven) 측정 장비에 의해서 응집 후 입자들의 제타포텐셜이 0에 가까운 지점을 측정하여 결정되었다. 관경이 4, 5, 8mm인 폴리우레탄 재질 관을 사용하여 Dead-end 여과 UF막에 재응집수를 공급하였다. Fig. 1은 이러한 실험재료를 가지고 구성한 실험 장치이다. 본 실험에서 케이크 저항값을 얻기 위해서 disc UF 막을 Amicon cell에 넣어 시간에 따른 유량변화를 측정하였다. 관내 유체의 체류시간의 변화는 유속에 따라 케이크가 변형된 크기만큼 관길이로 걸쳐 되어

하였다. 펌프이전의 관내 체류시간( $T_b$ )는 2초이며 펌프 이후의 관내 체류시간( $T_a$ )은 5초와 10초로 변화시켜 운전하였다.

대부분은 입도분석기들은 시료분석을 하는 동안 렌즈 사이로 입자들을 공급하기 위해서 펌프를 사용하게 되는 과정에서 플록들이 깨져 플록들의 정확한 크기를 측정할 수 없었다. 이러한 문제점을 해결하기 위해서, 본 연구에서는 입도분석기의 입도크기를 측정하는 렌즈 사이에 cell을 직접 설치하여 각 지점에서 채취한 시료를 렌즈 사이의 cell에 시료를 펌프를 통하지 않고 직접 주입하여 플록 깨짐 현상을 최대한 줄였다.

막투과압력(TMP)은 1.5atm 조건에서 막 케이크 저항이 식 (7)에 의해서 측정되었다.

$$R_c = \frac{TMP}{\mu j} - R_m \quad (7)$$

여기서,  $R_m$ 은 막저항( $1.13 \times 10^{12} \text{m}^{-1}$ )이며 이 값은 초순수로 측정하여 계산되었고,  $j$ 은 투과플럭스로 25°C에서 진행하고,  $\mu$ 는 동점성계수( $8.91 \times 10^{-4} \text{N} \cdot \text{s/m}^2$  at 25°C)이다

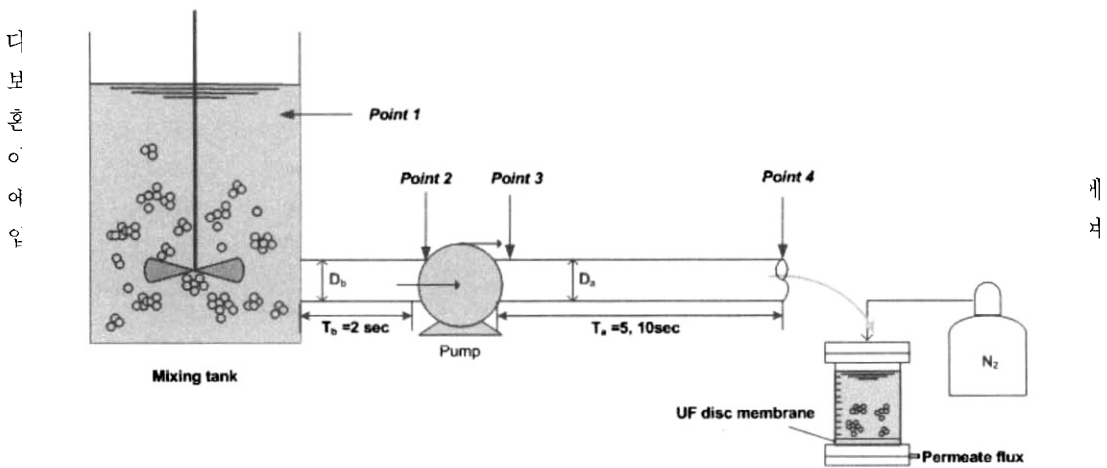
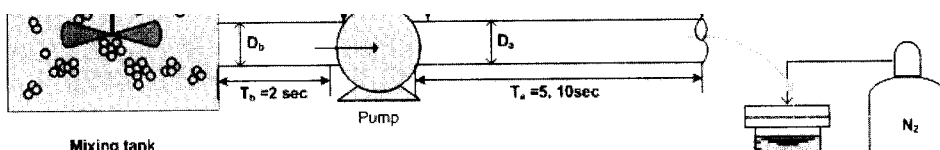


Fig. 1. Schematic of experimental setup.



**Table 1.** Experimental conditions and EDPD at point 1, 2, 3, 4 ( $T_b = 2\text{sec}$ ,  $D_b = 4\text{mm}$ )

Flow rate (ml/min)	$D_a$ (mm)	Friction factor ( $f$ )	Re	$G$ ( $\text{sec}^{-1}$ )	Ta(sec)	EDPD ( $\mu\text{m}$ )			
						Point 1	Point 2	Point 3	Point 4
350	8	0.06160	1039	82	5	77.76	52.42	22.41	55.62
					10	77.76	48.63	20.73	54.37
400	8	0.05390	1187	94	5	77.76	49.58	21.85	52.42
					10	77.76	46.46	20.03	51.38
500	8	0.04312	1484	117	5	77.76	47.34	27.31	48.73
					10	77.76	36.89	29.32	47.48
	5	0.04681	2375	480	5	77.76	41.78	23.45	59.05
					10	77.76	41.75	24.52	49.46
4	0.04367	2969	1335	5	77.76	31.70	20.21	40.57	
				10	77.76	35.09	19.54	35.13	
600	8	0.03593	1781	141	5	77.76	46.72	31.84	41.32
					10	77.76	43.85	26.44	45.12
	5	0.04422	2850	810	5	77.76	50.21	15.62	53.29
					10	77.76	35.96	19.83	48.49
4	0.04132	3562	1707	5	77.76	45.73	8.92	35.08	
				10	77.76	48.65	4.59	28.65	
700	8	0.03080	2078	164	5	77.76	38.32	14.80	34.46
					10	77.76	43.51	15.80	36.13
	5	0.04217	3325	997	5	77.76	36.66	14.54	42.12
					10	77.76	43.85	18.18	42.34
4	0.03947	4156	2104	5	77.76	32.10	7.66	24.44	
				10	77.76	52.68	6.25	21.50	
750	4	0.03868	4453	2309	5	77.76	28.65	4.23	19.93
					10	77.76	35.52	3.91	18.45
800	4	0.03796	4750	2521	5	77.76	25.81	3.45	15.48
					10	77.76	24.8	2.98	15.37
850	4	0.0373	5047	2736	5	77.76	19.12	2.54	10.92
					10	77.76	18.83	2.47	10.53
900	4	0.03684	5343	2962	5	77.76	14.11	1.82	6.74
					10	77.76	13.77	1.74	6.15
920	4	0.03647	5462	3046	5	77.76	13.52	1.57	4.52
					10	77.76	12.97	1.68	4.14
950	4	0.03621	5640	3185	5	77.76	10.47	1.45	2.97
					10	77.76	9.89	1.52	2.91
980	4	0.03582	5818	3319	5	77.76	7.52	1.41	2.74
					10	77.76	7.67	1.48	2.65
1000	4	0.03562	5937	3411	5	77.76	6.98	1.39	2.24
					10	77.76	7.05	1.42	2.12
1050	4	0.03513	6234	3645	5	77.76	5.87	1.23	1.82
					10	77.76	5.78	1.21	1.74

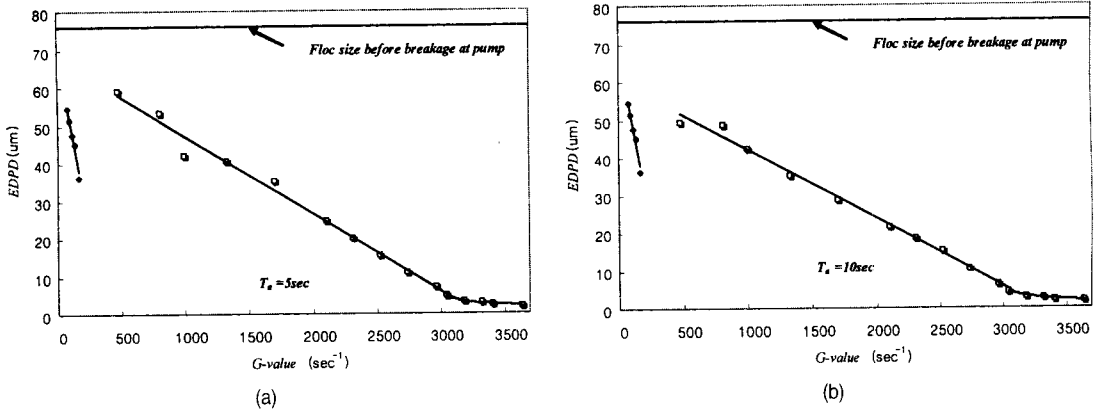


Fig. 2. Relationship between (a) G-value and EDPD at point 4 with  $T_a = 5\text{sec}$ ; (b) G-value and EDPD at point 4 with  $T_a = 10\text{sec}$  ( $T_a = 2\text{sec}$ ,  $D_b = 4\text{mm}$ ).

과에서 막표면 위의 전단유속의 감소에 의해서 생기는 플록 재응집현상을 배제하기 위해서 Dead-end 조건에서 여과를 진행한다. Table 1과 같이 다양한 수리화학적 조건에서 실험을 진행하여 10개의 EDPD 값을 측정하여 평균값을 적용하였다.

EDPD값들의 변화에서 살펴볼 수 있듯이, 혼화조에서 성장한 플록들이 펌프를 통과하면서 깨진 이후 관내에서 다시 재응집 되는 것을 관찰 할 수 있다. Point 4에서 EDPD값들을 G값의 변화에 따라서 나타내보면 Fig. 2와 같이 그 경향성이 총류와 난류조건에 따라서 나뉘게 된다는 것을 알 수 있다. 이것은 입자들 사이의 충돌특성이 유체의 흐름특성에 영향을 받기 때문이다. Fig. 3에서처럼 총류에서의 속도분포는 단면에 걸쳐서 포물선 형상을 가지고 움직이며, 관벽으로부터 임의의 주어진 주거리에서 속도는 시간에 대해서 일정하다. Smoluchoski(1917)는 이러한 총류 조건에서 입자들이 유체의 흐름선을 따라서 직선으로 이동하며 다른 흐름선과 만나게 될 때에 입자들이 충돌하게 된다고 가정하였다. 난류의 경우에는 와(eddy)가 흐름을 어느 정도는 충분히 혼합시키기 때문에 대부분의 단면에 걸친 속도분포는 총류의 경우보다 더 균등한 분포를 가지게 된다. 이러한 불규칙한 난류 흐름 속에서 입자들의 충돌은 크게 증가하게 된다. 이러한 유체의 흐름특성에 따라서 충돌특성이 달라지는 것을 관내에의 입자 재응집에서도 관찰 할 수 있다.

총류와 난류의 경우, EDPD값은 G값이 증가함에

따라서 거의 직선적으로 감소하게 된다. Table 1에서처럼, point 4에서 측정된 재응집된 플록크기들은 1.74~59.05 μm까지 다양한 크기를 가지며 나타난다. 이러한 결과로부터 5초라는 짧은 체류시간에도 불구하고 깨진 입자들의 재응집현상이 관내에서 일어나게 됨을 확인할 수 있었으며 동시에 재응집되는 입자들의 크기가 G값에 따라서 영향을 받게 됨을 확인할 수 있었다. 이것은 관내의 수리화학적 조건이 재응집되는 플록들의 크기를 결정하게 되며 막여과처항에 영향을 미칠 수 있음을 의미한다. 게다가 펌프이전단계에서 혼화조 내에서의 응집과 혼화를 통한 전처리 공정의 조건변화가 더 이상 지금까지 알고 있던 막여과에 중요한 영향을 끼치지 않음을 새롭게 알 수 있다.

임펠러를 가진 혼화조 내에서의 플록의 재응집현상을 관찰했던 논문들에서, 깨진 플록들의 회복률은 혼화조 내에서의 혼화강도를 조절하는 G값과 재응집을 위한 혼화시간에 따라서 그 영향을 크게 받고 있다(M.M. Clark et al., 1991; Yukselen and Gregory, 2004). 그들의 연구결과에서 혼화조내에서의 G값을 감소시키고 충분한 혼화시간을 가질 때 플록들이 크게 성장함을 나타내고 있다. 그러나 본 연구에서는 G값에 감소에 따라서 재응집되는 플록들의 크기가 커진 것은 사실이지만, 관내 매우 짧은 체류시간에 불구하고 재응집 현상이 나타났으며 동시에 5, 10초와 같이 체류시간을 2배로 늘어나더라도 재응집되는 플록들의 크기가 영향을 거의 받지 않음을 알 수 있다. Yukselen과 Gregory(2002, 2004)는 높은 혼화강도에

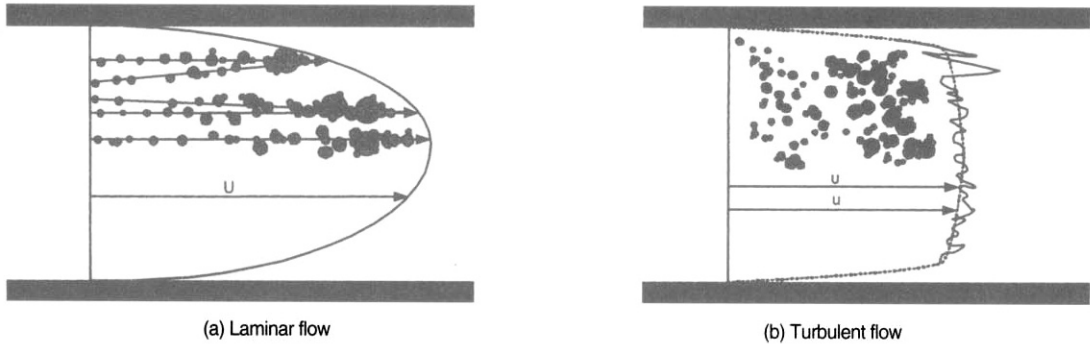


Fig. 3. Collision types at laminar and turbulent flow in MFP

서 플록들이 깨지는 시간이 짧으면 짧을수록 깨진 플록들의 회복률이 증가함을 지적하였다. 본 연구에서는 기존의 혼화조내서의 플록들의 깨짐과 비교하여 펌프에서 매우 짧은 시간(1초 미만) 동안 입자들이 깨져버림으로써 펌프 이후의 관내에서 재응집에 유리한 조건이 형성되어 짧은 체류시간에도 불구하고 재응집현상이 잘 나타남을 알 수 있다.

#### 4.2. 관내 재응집이 막의 케이크 저항에 미치는 영향

앞선 실험결과들은 관내 유량과 관경, Reynolds값과 관계있는 G값에 의해서 재응집 되는 입자 크기가 제어될 수 있음을 보여준다. 이것은 G값의 제어에 의해서 좀 더 큰 입자를 만들어 막면 위에 다공성 케이크 층을 형성시킬 수 있음을 의미한다. 이런 다공성의 케이크층의 형성은 막의 여과저항을 줄여 투과 플럭스를 향상시킨다. 관내 재응집에 의한 케이크 저항 감소 현상을 실험하기 위해서 본 연구에서는 G값에 의해서 제어된 입자크기와 막투과 플럭스에 관련된 실험을 진행하였다. 구체적으로 Fig. 1의 원수조에서의 응집-혼화 이후에 펌프를 통과한 후 G값에 따른 난류에너지 제어에 의해서 관내 재응집으로 입자 크기를 제어하고 이를 Amicon cell에 공급하였다. 투과수는 0.5분마다 측정되었으며 케이크 저항은 식 (7)을 사용하여 투과플럭스와 막케이크 저항을 측정하였다.

케이크 저항에 대한 재응집된 입자크기의 영향을 평가하기 위해서 EDPD와 케이크 저항사이의 관계를 관찰하였다. Table 2의 결과에서 보듯이 케이크 저항에 대한 재응집된 입자 크기의 영향은 분명하게 나타

났다. 입자크기가 작으면 큰 케이크 저항을 유발하고, 반면에 큰 입자들은 케이크 저항을 감소시키게 되는 것이다. 본 실험결과를 이용하여 polydispersity 조건에서 케이크 저항값을 표현하는데 있어서 실험에서 사용한 EDPD가 dead-end 여과조건에서 케이크성장 모델을 유도함에 있어서 그 유용성을 가질 것으로 판단하기 위해서 아래 식 (8)과 같은 회귀모델식을 적용하였다.

$$R_c = A \cdot (\text{particle size})^\alpha \quad (8)$$

위의 회귀모델식에서 체류시간이 5, 10초일 때 A 값이 각각 32.567과 32.147이고,  $\alpha$ 값은 각각 -0.7038

Table 2. Effect of particle size to cake resistance ( $T_0 = 2\text{sec}$ ,  $D_0 = 4\text{mm}$ )

Condition		Reaggregation Dead-end filtration	
G (sec <sup>-1</sup> )	Detention time (sec)	EDPD ( $\mu\text{m}$ )	$R_c (\times 10^{-11} \text{m}^{-1})$
2736	5	10.92	6.42
	10	10.53	6.48
3046	5	4.52	10.13
	10	4.14	11.24
3185	5	2.97	14.72
	10	2.91	14.95
3319	5	2.74	15.92
	10	2.65	16.49
3411	5	2.24	19.15
	10	2.12	18.94
3645	5	1.82	22.35
	10	1.74	22.93



과 -0.6953으로 나타났다. 또한  $R^2$  값이 각각 0.9819와 0.9919로 본 연구에서 처음 polydispersity 조건에서 입자크기의 '1/2'에 반비례하여 dead-end 여과 막에서 케이크층을 형성하게 된다는 것을 증명한다고 봐야한다. 이러한 polydispersity 조건에서의 대표입경으로 제안된 EDPD의 경우, 비케이크저항 값을 예측하는 모델식에서 중요한 역할을 담당 할 수 있을 것으로 기대된다.

### 5. 결 론

관내 재응집 현상에 영향을 미치는 인자들의 제어를 통한 입자 크기의 제어 및 케이크 저항에 관한 연구를 진행하면서 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 펌프를 지난 관속에서 깨진 입자들의 물리적인 충돌로 인해서 입자들이 서로 가까워 질 때 입자들의 표면전하에 의해서 재응집 현상이 일어남을 확인 할 수 있었다. 이러한 재응집에 대한 주요 영향인자로 제시할 수 있는 Reynolds값에 따라 입자충돌 유형이 구분되어 지며, G값에 따라 난류에너지를 제어하여 입자들의 재파괴 속도와 재응집 속도를 제어할 수 있게 되며 G값이 증가할수록 재응집 되는 입자들의 크기가 선형적 관계를 가지면서 감소하는 것을 확인하였다. 이러한 G값에 의한 난류에너지 제어를 통해서 공급수에 포함된 입자들의 크기를 제어하게 되면 케이크 저항과 막 투과플럭스를 제어할 수 있음을 확인하였다.

(2) Reynolds값이 2200에서 3300 사이에서 같은 유량조건일 때의 층류조건보다 재응집된 입자들의 크기가 더 크게 나타남을 보였다. 이것은 G값을 감소시키기 위해서 관경을 확대시킨 층류조건보다는 오히려 난류에너지에 의한 입자들 사이의 유효충돌기회를 제 공함으로써 입자들이 다시 깨지는 속도보다 입자들이 재응집되는 속도가 더 크게 나타남을 의미한다. 또한 Reynolds값이 3300 이상에서 G값이 지속적으로 증가 하게 될 경우 재응집되는 입자들의 크기 또한 상당히 작아지는 것을 알 수 있다. 이를 통해서 막여과 공정에서 공급되는 유량이 일정할 때 관경을 적정한 Reynolds와 G값으로 낮추어 관내의 짧은 체류시간

동안의 일어나는 재응집 현상에 의해서 막의 케이크 저항을 상당히 감소시킬 수 있을 것이다.

(3) 재응집현상은 주로 관내에서 5초 이내에 일어나게 되며, G값이 증가할수록 체류시간에 대한 영향은 고려하지 않아도 될 것으로 판단된다. 본 실험에 앞서 체류시간이 길어지게 된다면 입자들의 충돌기회가 늘어나서 재응집에 더 유리할 것으로 생각되었으나 입자들의 재응집에 미치는 영향인자는 체류시간이 아니라, 난류에너지를 통한 유효충돌을 제어하는 G 값 제어가 더 효과적이다.

### 사 사

본 연구는 2007년 교육인적자원부의 BK21연구 지원 및 한국학술진흥재단의 지원을 받아 수행된 연구임(KRF-2007-511-D00142).

### 참고문헌

1. Altmann, J. and Ripperger, S. (1997) Particle deposition and layer formation at the crossflow microfiltration, *J. Mem. Sci.*, **124**, pp. 119-128.
2. M.M. Clark (1985) Critique of camp and stein's rms velocity gradient, *J. Environ. Eng.*, **116**(6), pp. 741-754.
3. M.M. Clark, and J.R.V. Flora (1991) Floc restructuring in varied turbulent mixing, *J. colloid and interface sci.*, **147**(2), pp. 407-421.
4. Graber, S.D. (1994) A critical review of the use of the G-value (RMS velocity gradient) in environmental engineering, *Dev. Theor. Appl. Mech.*, **17**, pp. 533-556.
5. Godfrey, J.C., Amirtharajah, M.M. Clark (1991) Mixing in coagulation and flocculation, AWWARF. Denver.
6. Kim, S., Cho, S.H., and Park, H. (2002) Reduction of cake layer by re-aggregation in coagulation-crossflow microfiltration process, *Water Sci. and Technol.: Water Supply*, **2**(5-6), pp. 329-336.
7. Kim, S. (2003) Characteristics and control of cake formation in crossflow microfiltration at polydisperse condition, Ph.D. thesis, Dept. of Civil and Environmental Engineering, KAIST, Daejeon, South Korea.
8. Kim, S., and Park, H. (2005) Effective diameter for shear-induced diffusion for characterizing cake formation in crossflow microfiltration at polydisperse conditions, *J. Environ. Eng.*, **131**(6), pp. 865-873.
9. Kim, S., Park, N., Kim, T., Park, H. (2007) Reaggregation of

- flocs in coagulation-cross-flow microfiltration, *J. Environ. Eng.*, **133**(5), pp. 507-514
10. Kwon, D.Y. (1998) Experimental investigation on Critical flux in cross-flow microfiltration, Ph.D. thesis, Faculty of Engineering and Environmental Engineering Group, Univ. of Technology, Sydney, Australia.
  11. Lee, J.D., Lee, S.H., Jo, M.H., Park, P.K., Lee, J.H., Kwak, J.W. (2000) Effect of coagulation conditions on membrane filtration characteristics in coagulation-microfiltration process for water treatment, *Environ. Sci. Technol.*, **34**, pp. 3780-3788.
  12. MaLaughlin J.B. (1993) The lift on a small sphere in wall-bounded linear shear flows, *J. Fluid Mech.*, **246**, pp. 249-265.
  13. Mehmet A.Y., John G. (2004) The effect of rapid mixing on the break-up and re-formation of flocs, *J. Chemi Technol Biotechnol.*, **79**, pp. 782-788.
  14. R.J. Latimer, Appiah Amirtharajah (1998) Pilot scale comparison of static mixers and backmix reactors for coagulation, AWWA Annual Conference, pp. 705-740.
  15. S. Casey Jones, Fotis Sotiropoulos, and Appiah Amirtharajah. (2002) Numerical modeling of helical static mixers for water treatment, *J. Environ. Eng.*, **128**(5), pp. 431-440.
  16. Smoluchoski, M. (1917). Versuch einer mathematischen Theorie der Koagulationskinetic kolloider Lungen, *Z. Phys. Chem.*, **92**, pp. 129-168.
  17. Soffer, Y., Ben, A.R., and Adin, A. (2000) Membrane for water reuse: effect of pre-coagulation on fouling and selectivity, *Water Sci. Technol.*, **42**(1-2), pp. 367-372.
  18. Wiesner, M.R., Clark, M.M., and Mallevalle, J. (1989) Membrane filtration of coagulated suspensions, *J. Environ. Eng.*, **115**(1), pp. 20-40.
  19. Yukselen, M.A., and Gregory, J. (2002) Breakage and Re-formation of Alum flocs, *Environ. Eng., Sci.*, **19**(4), pp. 229-236.
  20. Yukselen M.A., Gregory J. (2004) The effect of rapid mixing on the break-up and re-formation of flocs, *J. Chemi Technol Biotechnol.*, **79**, pp. 782-788.