

멤브레인 케이크 레이어 형성 과정 모사를 위한 수치 모델의 개발

김경호* · 신재호* · 이상환** · 이주희***†

Development of a Numerical Model for Cake Layer Formation Process on Membrane

Kyung Ho Kim*, Jae Ho Shin*, Sang Hwan Lee**, Ju Hee Lee***†

Key Words : Lattice Boltzmann Method(격자 볼츠만 기법), Membrane(멤브레인), Fouling(파울링), Cake Layer formation(케이크층 형성)

ABSTRACT

Membrane filtration has become firmly established as a primary process for ensuring the purity, safety and efficiency of treatment of water or effluents. Several researches have been performed to develop and design membrane systems in order to increase the accuracy and performance of the processes. In this study, a lattice Boltzmann method for the cake layer has been developed using particle dynamics based on an immersed boundary method and the cake layer formation process on membrane has been numerically simulated. Case studies including various particle sizes were also performed for a microfiltration process. The growth rate of the cake layer thickness and the permeation flow rate along the membranes were predicted. The results of this study agreed well with that of previous experiments. Effects of various particle diameters on the membrane performance were studied. The cake layer of a large particle tended to be growing fast and the permeation flow going down rapidly at the beginning. The layer thickness of a small particle increased constantly and the flow rate was smaller than that of the large particle at the end of simulation time.

1. 서론

멤브레인을 이용한 분리막 공정은 물질의 분리가 요구되는 다양한 산업분야에서 널리 사용되고 있다. 특정한 멤브레인에 최적화된 공정을 찾기 위한 노력이 현재까지도 계속되고 있다. 전산유체역학(CFD)은 멤브레인 공정에 폭넓게 적용되고 있으며⁽¹⁾, 설계에 필요한 유용한 정보들을 제공하고 있다. CFD는 실험적 연구를 수행하기 어려운 특정한 공정에 적합한 멤브레인의 해석이 가능해지고 있으며 컴퓨터의 발달로 점차 짧은 시간에 결과를 얻을 수 있게 되었다. 이러한 장점으로 인하여 멤브레인 분리막 공정에서 CFD에 의한 해석이 점점 확대 되어가는 추세이다⁽²⁾.

멤브레인 분리막 표면 위로 유체가 흐르기 때문에 오염물에 미치는 유체의 유동은 매우 중요하다. 일반적인 멤브레인

분리막 공정 해석은 크게 멤브레인 위의 자유 유동과 다공성 물질을 통과하는 유동으로 나누어 이루어진다. 이 중 자유 유동의 특성을 모사 할 때에는 점성유체로 가정하여 네비어-스톡스 방정식(Navier-stokes equations)을 적용해 해석한다. 그리고 다공성을 가지는 물질을 통과하는 유동을 해석 할 때에는 Darcy's Law에 근거해 계산하게 된다⁽³⁾. 현재까지, 자유 유동과 다공성 유동이 나타나는 멤브레인 분리막 공정에 해석에는 대부분이 자유유동에서의 네비어-스톡스 방정식과 다공성의 Darcy's Law을 결합한 모델링 기법을 적용하고 있다. 이런 결합 기법에서 유동과 다공성 물질 사이의 경계면을 따라 변화하는 유동장의 연속성을 유지하는 것이 중요한 문제로 남는다⁽⁴⁾.

초창기에는 멤브레인 분리막을 수치해석으로 시뮬레이션 하기 위해 많은 1차원 모델링 기법들이 개발되었다⁽⁵⁾. 최초의 시뮬레이션은 Berman 등⁽⁶⁾이 다공성 벽을 가진 채널에서 층류유동으로 해석한 모델링이다. 그 뒤 Galowin과 De Santis⁽⁷⁾에 의해 다양한 내벽 흡입조건과 다양한 질량유동을 가지는 다공성 관에서의 층류 유동에 관한 연구를 진행하였

* 한양대학교 기계공학과 대학원
** 한양대학교 기계공학부
*** 호서대학교 메카트로닉스공학과
† 교신저자, E-mail : juheelee@hoseo.edu

다. 1989년에는, Belfort 등⁽⁸⁾에 의해 멤브레인 분리막에 작용하는 유체역학 메카니즘을 체계적으로 요약하여 발표하였다. 현재까지도 많은 연구자들이 멤브레인 분리 공정을 최적화하기 위한 방법으로 이러한 논문을 인용하고 있다. Nasseghi 등⁽⁹⁾은 다공성 벽 조건에 처음으로 Darcy's equation을 이용하였다. 이들은 수치 해석 기법으로 유한 요소 기법을 이용하여 시뮬레이션하였고, 기존에 시뮬레이션 데이터보다 우수한 결과를 보여주었다. 이후에 Damak 등⁽⁴⁾은 유한 차분 방정식을 사용해 침투성 벽(permeable wall)을 가진 원통형의 튜브 안에서, 층류, 비압축성과 등온성을 가진 유동의 시뮬레이션을 수행 하였다. 하지만 이러한 모델링 기법은 항상 멤브레인 위에 흐르는 층류 유동과 다공성 지역의 유동의 연속성이 불분명하게 나타나는 명백한 한계를 가지고 있다⁽¹⁰⁾.

이외에 멤브레인 모델링에서 가장 중요한 부분인 케이크 레이어를 시뮬레이션 하기 위한 다양한 방법들이 개발되었다. 멤브레인 분리과정의 경우 유입되는 유동에 존재하는 입자들이 유동장의 대류를 통해 멤브레인 주위로 전달되어 지고, 그 뒤 대류와 확산의 평형상태에 도달하게 되면 입자들은 멤브레인의 표면으로 점차 적층되어진다. 멤브레인 분리과정에서 가장 중요한 문제는 이러한 입자들에 의해 발생하는 분극(concentration polarization) 현상이 여과 유량(permeate flux)을 감소시키는 것이다. 이런 분극 현상의 문제를 분석하고 예측하기 위해서는 멤브레인 표면에 존재하는 입자들의 전달 메커니즘을 이해하는 것이 필수적이다. 대부분의 경우에서 멤브레인 모델링은 유체 유동과 유체질량 전달에 관여하는 기본적인 수식을 통해 개발 되었다⁽¹¹⁾. 이후 Lee 와 Clark⁽¹²⁾에 의해 더욱 정확한 모델링 기법이 개발되었다. 이들은 십자류(cross flows mode) 여과방식 분리공정을 수치해석적으로 연구하였고, 십자류 여과방식을 갖는 한외여과막(ultrafiltration)에서 콜로이드 현탁액(colloidal suspensions)에 의한 여과 유량 감소를 멤브레인의 대류-확산 방정식을 통하여 근본적인 메카니즘으로 설명하였다. 이후 Wiley와 Fletcher⁽¹³⁾는 점성도와 확산도와 같은 용매 파라미터를 변할 수 있도록 하는 효과를 기존 방법에 추가하였고, 압력으로 구동하는 멤브레인 공정의 유동과 분극 현상을 모델링하였다. 이러한 연구를 통하여 최근에 Mendret 등⁽¹⁴⁾은 전량 여과방식 한외 여과막에서 오염물의 적층 형태(deposit construction)에 따른 불균일 효과를 수치해석적으로 연구하였다. 분리공정 모델로 다공성 벽을 가지는 채널 유동 모델을 2차원으로 모델링 하였다. 이때 광학 측정기법(optical method)인 "in situ characterization" 기법을 이용하였다. 이는 멤브레인 표면에 레이저를 쏘아 입사, 반사각의 차이로 성장된 케이크의 두께를 측정하는 기법이다. 이 방법으로 경험적인 맥-법칙을 유도 해내고 이를 통한 케이크의 여과율과 케이크 다공성도를 모델에 적용하여 공정 모델을 개발하였다. 이 모델의 장점은 국부 지역의 속도 프로파일을 계산

할 수 있어, 퇴적 입자들의 고유한 특성에 대해 시뮬레이션으로 분석 할 수 있다. 하지만 모델 파라미터의 유효성 평가가 상당히 어렵고, 실험적인 데이터를 통한 퇴적 구조의 경험적인 맥-법칙을 유추해 내야 하기 때문에 각각의 멤브레인 조건에 따른 모델 파라미터를 구하여야 하는 한계를 지니고 있다.

본 연구에서는 격자 볼츠만 기법(LBM: Lattice Boltzmann Method)⁽¹⁵⁾을 기반으로 입자 적층에 의한 케이크 층의 구조 형성이 가능한 새로운 접근을 시도하였다. 이러한 모델로 멤브레인 층과 케이크 층의 통합된 메카니즘을 통한 시뮬레이션을 가능하게 하였다. 또한 입자의 직접적인 모델링으로 인해 각각의 입자들에 작용하는 인력, 척력, 충돌력 등을 통한 분극 현상을 표현 할 수 있기 때문에 모델 파라미터에 의한 실험적인 근사법에 의존하지 않고 국부적인 부분에서의 정확한 시뮬레이션이 가능하다. 본 연구에서는 최근 활발히 연구 중인 전량 여과방식(dead end mode)의 평판(flat-sheet) 멤브레인을 모델로 하였다. 멤브레인 층을 다공성 물질로 구성하여 그 위를 평판 유동이 흐르도록 모델링 하였다. 3차원 케이크 형성을 관찰하였으며 케이크 층 분포에 따른 여과 유동에 변화 양상과 케이크 층 두께의 변화 과정을 관찰하고 분석하였다. 또한 기존 모델링 기법과 비교하여 케이크 층의 불균일 특성에 따른 결과 분석을 진행 하였고, 입자직경에 따른 케이크 층의 분포 특성을 고찰하였다. 본 연구의 입자에 기반을 둔 케이크 레이어의 형성과정 모사는 멤브레인을 이루는 다공성 물질의 형태나 크기에 크게 구애받지 않기 때문에 범용적인 케이스에서 적용 및 확장이 가능할 것이다.

2. 수치해석 기법

멤브레인에서의 유동은 크게 두 가지로 나누어 생각할 수 있다. 입구에서 유입되는 자유유동 부분과 멤브레인 위에 유착되는 입자들이 있다. 유동장과 입자들이 상호 작용하면서 멤브레인 위에 입자들이 침전되어 유착된다. 유입되는 입자의 모형은 완전한 구형으로 가정하였다. 시뮬레이션은 무차원화된 값을 적용하여 계산하였다.

2.1. 모델링 기법과 경계조건

수치적 모델링 기법은 격자 볼츠만 기법을 사용하였다. 이 방법은 유체를 기반을 둔 오일러안 모델로서 주목 받고 있으며, 특히 마이크로 유동 해석 분야에서 많이 사용되고, 그 정확도가 인정되고 있다. 입자 표면에는 immersed boundary condition을 적용하였다. 이 조건은 입자를 라그랑지안 기법으로 묘사하여 다입자 계산 시에 계산 성능이 탁월하고, 병렬화가 용이하며, 높은 정확도를 가지고 있다.

2.1.1. 해석 형상

형상은 기본적으로 평판 멤브레인 구조를 기반으로 하여 특징을 대표 할 수 있는 일부분만을 시뮬레이션 하였다. 계산영역은 Fig. 1과 같이 유동 방향으로 340 μm , 너비는 120 μm 그리고 높이는 160 μm 이며, 계산 영역의 격자 크기는 170 \times 60 \times 80 이다. 모델의 아래쪽 평판의 멤브레인 층이 위치한 부분은 고체노드를 불규칙하게 배열하였다. 이 때 일정한 다공성도를 갖는 멤브레인 층을 형성하기 위해, 난수발생 함수를 이용해 고체 노드점을 랜덤하게 생성하여 멤브레인 층을 모델링하였다. Fig. 2는 본 연구에서 모델링한 멤브레인 층이 형성된 모습을 보여주고 있다.

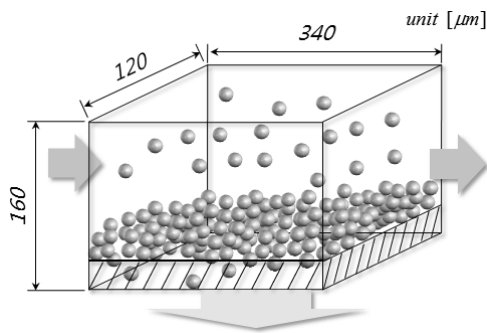


Fig. 1 Schematic view of the physical model and length of the channel domain

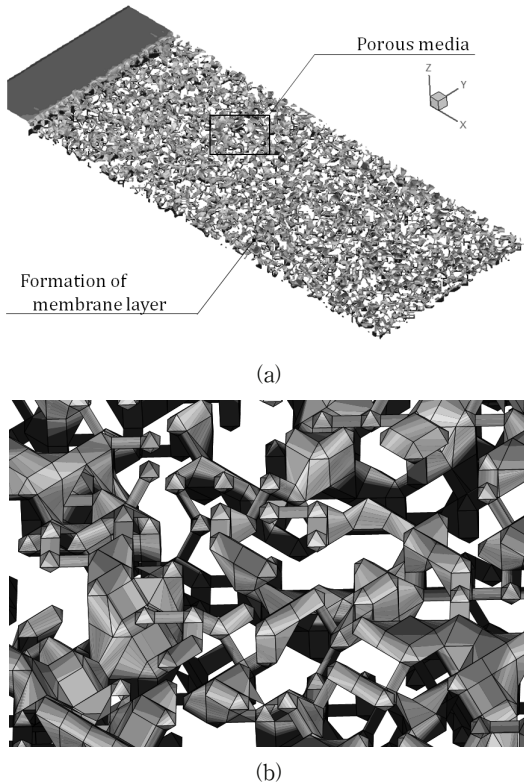


Fig. 2 Modeling of membrane layer on bottom surface:
 (a) formation of membrane layer
 (b) Detailed view of porous media in layer

2.1.2. 경계조건

Fig. 1에서 보면, 아래쪽 평판은 멤브레인 층이 존재하는 부분으로서 유체가 통과 할 수 있는 노드점과 유체가 통과 할 수 없는 고체노드 점이 랜덤하게 분포하고 있다. 이 때의 멤브레인 층에서의 노드 점들의 비율로서 멤브레인 다공성도를 나타낼 수 있으며, 본 연구에서는 70% 다공성정도를 가지도록 하였다. 이 멤브레인 층의 아래쪽 바닥면에서는 일정 압력 조건(대기압, 101.3kPa)을 주었다. 위쪽 평판은 멤브레인 면에 형성되는 경계층에 영향을 주지 않을 수 있도록 슬립(slip) 조건을 구현하였다. 유량이 처음 유입되는 면과 유출되는 면은 각각 압력 조건으로 설정하였다⁽¹⁶⁾. 이 때 유동에 평행한 면들은 무한 평판이 되도록 반복(periodic) 조건으로 설정하였다.

2.1.3. 3차원 격자 볼츠만 기법

격자 볼츠만 기법은 lattice-gas automata⁽¹⁷⁾로부터 발전되었고, Ladd^(18,19)에 의해 처음으로 유체 안에서의 움직이는 탄성력을 가진 고체입자들을 전산 모사하였다.

격자 볼츠만 기법은 이전의 CFD 방법과 비슷한 수준의 정확도를 가지면서, 비정상 상태를 효과적으로 표현하며, 임의의 복잡한 형상을 모사하는 데 있어서 뛰어난 성능을 나타내는 방법이다. 격자 볼츠만 기법의 물리적인 이론은 네비어-스톡스 방정식을 적용했던 이전의 전산 유체 모사의 방법과는 다른 특징을 가진다. 비압축성 네비어-스톡스 방정식으로서 푸아송 방정식을 해석하는 대신에, 볼츠만 분포 방정식을 바탕으로 이산화 된 속도 값을 지니면서, 시뮬레이션이 일어나는 동안 각각의 보존량을 유지하는 방법을 사용한다.

격자 볼츠만 모델은 고체 입자들에서 이에 존재하는 미세한 영역의 입자 운동량 개수를 다룰 수 있는 범위까지 줄여서 볼츠만 방정식의 본래 개념적인 관점을 매우 간략히 나타낸 것으로 볼 수 있는데, 이는 연속체를 표현 할 때 이산화 된 시간을 비슷한 개념의 이산화 된 단계로 나타냄으로서 이루어진다.

여러 개의 유체 입자들로 이루어진 한 그룹의 유체는 오직 격자 사이만을 움직이거나 머문다. 잘 알려진 격자볼츠만 기법중의 하나는 다음과 같은 단일 이완시간상수를 사용한 BGK모델이다^(20,23)

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \xi \cdot \nabla f = -\frac{1}{\lambda}(f - f^{(0)}) \quad (1)$$

여기서, $f^{(0)}$ 는 평형분포함수(Equilibrium Distribution Function)로 Maxwell-Boltzmann 분포 함수로 표현된다. $f(x, \xi, t)$ 는 입자속도 분포함수(Particle velocity Distribution Vector)이며, x 는 공간 위치벡터이며, ξ 는 입자 속도벡터, t 는 시간, λ 는 이완시간상수(Relaxation time)이다.

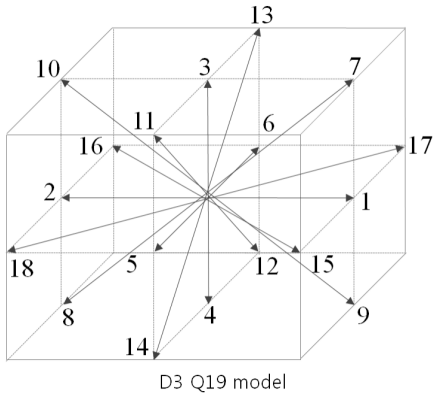


Fig. 3 Direction vectors formation of the D3Q19 model using the lattice

3차원 시뮬레이션에 가장 전형적인 모델은 정육면체로 이루어진 격자에서 19개의 속도 벡터 c_i 를 가지는 D3Q19 모델이다⁽²⁰⁾. D3Q19 모델의 구조는 Fig. 3에서 보는 바와 같이 $i=0$ 일 때 $C_i=0$, $i=1,2$ 일 때 $C_i=(\pm 1, 0, 0)$, $i=3,4$ 일 때 $C_i=(0, \pm 1, 0)$, $i=5,6$ 일 때 $C_i=(0, 0, \pm 1)$, $i=7,8,9,10$ 일 때 $C_i=(\pm 1, \pm 1, 0)$, $i=11,12,13,14$ 일 때 $C_i=(\pm 1, 0, \pm 1)$, $i=15,16,17,18$ 일 때 $C_i=(0, \pm 1, \pm 1)$ 이다. 식 (1)에 나타난 입자속도 분포를 수치적으로 나타내기 위해 Fig. 3의 이산속도 집합 c_i 에 시공간 상에서 이산화하면 다음과 같다.

$$\tilde{f}_i(x, t + \Delta t) = f_i(x, t) - \frac{1}{\tau} [f_i(x, t) - f_i^{(eq)}(x, t)] \quad (2)$$

$$f_i(x + c_i \Delta t, t + \Delta t) = \tilde{f}_i(x, t + \Delta t) \quad (3)$$

식 (2)는 충돌단계라 하며 식 (3)은 이송단계라 한다. 이러한 2단계를 거치며 유체의 유동해석이 이루어지고 매 시간 속도 분포함수가 계산된다. 여기서 $f_i(x, t)$ 는 분포 함수이고, $f_i^{(eq)}(x, t)$ 는 평균 분포 함수, \tilde{f}_i 는 분포함수의 충돌 후 상태 값, τ 는 무차원화된 이완 시간 상수이며, t 는 라티스 시뮬레이션 시간, Δt 는 시간 간격, c_i 는 i 번째 입자의 분포를 나타낸다. 평균 분포 함수 $f_i^{(eq)}(x, t)$ 는 격자 노드점의 국부 속도와 밀도에 의해 결정되며, 이는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$f_i^{(eq)} = w_i \rho \left[1 + \frac{c_i u}{c_s^2} + \frac{(c_i u)^2}{2c_s^4} + \frac{u^2}{c_s^2} \right] \quad (4)$$

여기서 ρ 는 밀도, u 는 격자점의 속도이고 웨이트 값 w_i 은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} w_0 &= 1/3, & w_1 \sim w_6 &= 1/18 \\ w_7 \sim w_{12} &= 1/36, & w_{13} \sim w_{18} &= 1/36 \end{aligned} \quad (5)$$

유체의 동점성 계수는 시간 완화 계수의 함수로 나타난다.

$$\nu = (2\tau - 1)/6 \quad (6)$$

격자의 각 점에서 거시적인 영역의 유체 밀도와 운동량은 다음과 같다.

$$\rho = \sum_{i=0}^{18} f_i \quad (7)$$

$$\rho u = \sum_{i=0}^{18} c_i f_i \quad (8)$$

2.1.4. 가상 경계법(Immersed boundary)를 이용한 유체-입자 간의 상호작용

유체와 부유하는 물질의 상호작용을 모사하기 위해, 유체 위에 입자들과 그 유체와의 경계의 계산이 필요하다. 본 연구에서는 Peskin⁽²¹⁾이 고안한 immersed boundary method(IBM)를 사용하였다. 이 방법은 다입자 연산에 있어서 모델링이 상대적으로 간단하게 이루어져 계산 시간을 상당히 줄일 수 있는 장점이 있다. 본 연구에서는 Peskin의 방법을 채택하였다.

Fig. 4는 근처에 고체노드를 갖는 부분의 유체와 그 경계 부분을 나타낸다. 여기서 흑색 원으로 된 격자점은 고체를 의미하고 백색 원의 격자점은 유체를 나타낸다. 격자 볼츠만 기법과 IBM법은 특히 이 경계점 설정에 있어서 가장 큰 차이를 나타낸다. IBM경계점은 라그랑지안 격자점이고, 이는 움직이는 고체를 따라 이동한다. 반면에 격자 볼츠만 기법은

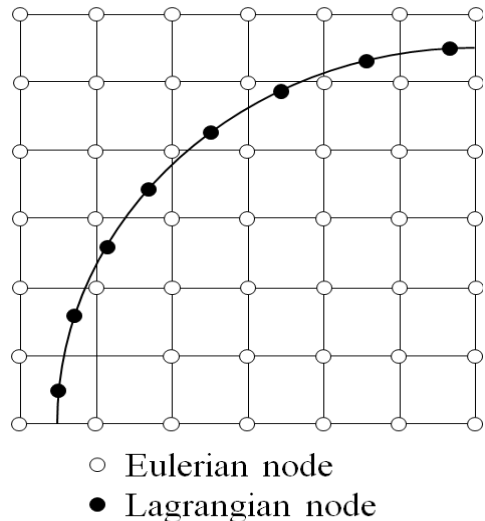


Fig. 4 Eulerian and lagrangian nodes on interface between solid and fluid

오일러안 격자로서 이산화 된 유체 노드점을 나타낸다. 고체가 유체로부터 받는 힘은 라그랑지안 격자점으로 된 경계점으로부터 계산되는데, 이는 식(8)과 같이 그 경계점의 주위 유체 노드들에 의해 결정된다.

$$f(x_f) = \sum_m f(x_m) \delta(x_f - x_m) \quad (9)$$

여기서 $\delta(x)$ 는 이산화 된 델타 함수이고, 이는 Dirac delta function ⁽²²⁾의 고유값을 근사화하여 결정한다. 본 연구의 $\delta(x)$ 는 식(9)과 같이 나타낸다.

$$\delta(x) = \begin{cases} \frac{1}{4h} \left[1 + \cos \left[\frac{\pi}{2h} |x| \right] \right], & |x| < 2h \\ 0, & |x| \geq 2h \end{cases} \quad (10)$$

여기서 h 는 단위격자이다. 경계점에 속도 $u(x_m)$ 은 식(10)에 의해 주위 유체노드로 전달된다.

$$u(x_m) = \sum_f u(x_f) \delta(x_f - x_m) \quad (11)$$

이것은 유체노드 점과 경계점이 같은 속도로 움직이는 것을 보장하여 일반적인 접촉 경계조건을 만족시킨다. 또한 경계를 따라 어떠한 질량 전달도 일어나지 않을 것이다. 이러한 방식으로 IBM법에서 고체와 유체의 상호작용 되는 힘을 구하고 이를 격자 볼츠만 기법의 외력 항으로 추가한다. 유동장을 풀기 위해서는 위 식(10)의 주어진 힘을 추가적으로 계산해 주어야한다. 기본적인 격자 볼츠만 방정식의 외력항을 포함시키는 많은 방법이 존재하지만, 본 연구에서는 외력항을 충돌항에 추가하는 방법으로 계산하였다. 그리고 수정된 분포함수와 격자 볼츠만 방정식은 다음과 같이 식(11)으로 쓸 수 있다.

$$f_i(x + c_i \Delta t, t + \Delta t) - f_i(x, t) = -\frac{1}{\tau} [f_i(x, t) - f_i^{(eq)}(x, t)] + G_i \quad (12)$$

외력항은 다음과 같이 식(12)으로 표현된다.

$$G_i = \Delta t \frac{w_i \rho}{\tau c_i} e_i f(x_f) \quad (13)$$

이러한 외력항은 각각의 라그랑지안 격자에서 커널함수 (9)를 통해 주위의 유체노드점으로 분포된다.

2.1.5. 입자 간에 발생하는 상호 작용력

이러한 유체와 고체 간의 경계에 따른 상호작용 이외에 입자와 입자 사이의 충돌, 입자와 벽과의 충돌이 존재하고, 입자 자체의 부력과 중력과 같은 체적력이 존재한다. 각 입자가 받는 영향력은 식(14)과 같이 계산하였다.

$$F_i = \left(1 - \frac{\rho_f}{\rho_s} \right) M_i g + F_i^P + F_i^W \quad (14)$$

이 때의 입자와 입자 사이의 충돌력과, 입자와 벽 사이의 충돌력은 다음과 같이 각 입자들이 점착도 c_{ij} 를 가지며 이로 인해 서로 변형되어 접촉 되거나 밀어내는 효과를 가지게 된다. 이러한 입자의 모델링에는 식 (15), (16)을 이용하여 계산하였다⁽²⁰⁾.

$$F_{ij}^P = \begin{cases} 0, & \|x_i - x_j\| > R_i + R_j + \zeta \\ \frac{c_{ij}}{\epsilon_p} \left(\frac{\|x_i - x_j\| - R_i - R_j - \zeta}{\zeta} \right)^2 * \left(\frac{x_i - x_j}{\|x_i - x_j\|} \right), & \|x_i - x_j\| \leq R_i + R_j + \zeta \end{cases} \quad (15)$$

$$F_{ij}^W = \begin{cases} 0, & \|x_i - x_{i,j}\| > 2R_i + \zeta \\ \frac{c_{ij}}{\epsilon_w} \left(\frac{\|x_i - x_{i,j}\| - 2R_i - \zeta}{\zeta} \right)^2 * \left(\frac{x_i - x_{i,j}}{\|x_i - x_{i,j}\|} \right), & \|x_i - x_{i,j}\| \leq 2R_i + \zeta \end{cases} \quad (16)$$

그리고 입자가 받는 체력인 중력과 부력은 다음과 같이 식 (17), (18)로 계산하였다.

$$F_{buoyant} = \rho_f V_f g \quad (17)$$

$$F_{gravity} = \rho_i V_i g \quad (18)$$

입자가 유체로부터 전달받는 힘은 다음과 같이 고체 경계면을 따라 유체가 주는 힘을 합하여 계산한다.

$$F_{fluid} = \oint_S \sigma \cdot n dS \quad (19)$$

또한, 각 입자의 힘의 방향 성분을 고려하여 각 입자가 가지는 토크를 계산 할 수 있고 이를 통해 각 입자들이 가지는 회전관성을 구하여 적용하였다.

$$I_i = \frac{dw_i}{dt} = T_i \quad (18)$$

$$T_i = \oint_{S_i} (x - x_i) \times (\sigma \times n) dS \quad (19)$$

3. 결과 및 고찰

시간에 따른 변화 양상을 알 수 있는 시간 독립적인 모델로 시뮬레이션을 수행하였다. 유입되는 유동은 멤브레인으로 여과되거나, 출구쪽을 통해 빠져 나가게 된다. 시뮬레이션의 초기화 부분에서는 바닥 층에 멤브레인 층을 무작위로 형성하고, 입구에서 계속적으로 유량을 흘려보내 주어 출구쪽의 유량과 멤브레인층을 통해 바닥으로 빠져 나가는 여과 유량이 충분히 수렴 할 수 있도록 하였다. 이때 초기화 부분에서는 부유물질인 입자들을 생성하지 않는다. 유체가 정상 상태에 이르면 부유물질인 입자들을 입구에서 일정하게 생성시키고, 유체를 따라 흘러간다. 그 후 흘러간 입자들이 멤브레인 층 아래쪽의 낮은 압력에 영향을 받아 멤브레인 위에 증착되고 케이크 층을 형성하게 되거나, 출구로 흘러나가게 된다. Fig. 5는 이와 같은 조건에서 3차원 멤브레인에 입자가 증착된 결과이다. 유동장의 윤곽선은 유동장의 속도를 의

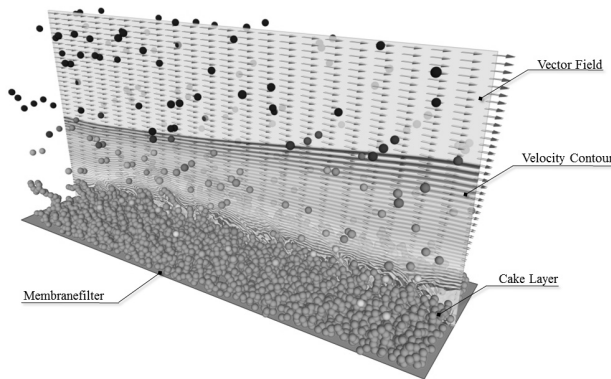


Fig 5. Simulation of membranefiltration process by particle distribution method when $D_m = 5\mu m$, $TMP = 50kPa$

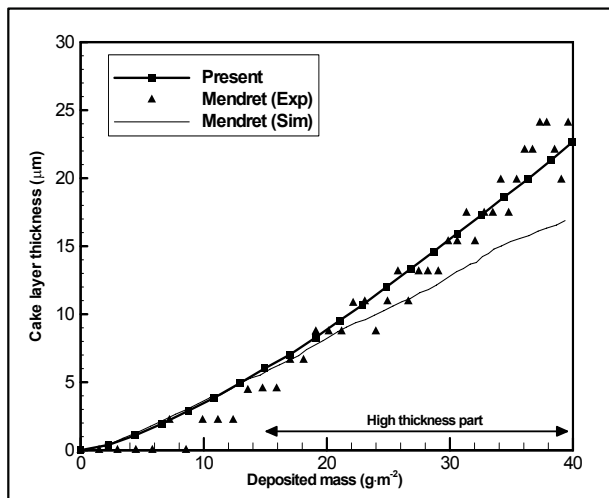


Fig. 6 Cake layer thickness of this study and Mendret's (including experiment and simulation)

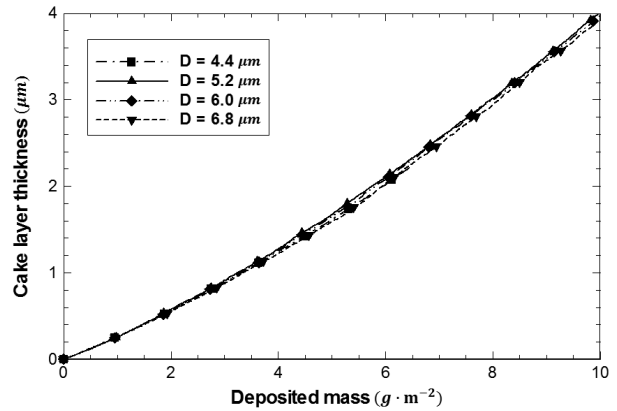


Fig. 10 Cake layer thickness versus deposited mass a various of particle diameter

미하고, 화살표들은 각 지점에서 유동의 벡터장을 보여주고 있다.

3.1 선행 연구 결과를 통한 비교 검증

본 연구에서는 시뮬레이션의 결과를 기존의 같은 조건을 가지는 실험과 시뮬레이션 결과⁽¹⁴⁾와 비교하여 정확성을 검증하였다.

3.1.1 케이크 형성층의 두께

본 연구에서 유체는 순수한 물로, 입자는 진흙의 완충도를 가지는 부유물로 모델링하여 수행하였다. 입자의 직경은 d , 입자의 밀도는 ρ , 유체의 점성계수는 μ , 속도 크기는 U 로 나타내었고, 각각의 값은 $d = 5\mu m$, $\rho = 2100kg/m^3$, $\mu = 0.001$ 와 $U = 5.61 \times 10^{-6} m/s$ 로 하였다. 압력차인 TMP(Transmembrane Pressure)는 $50kPa$ 로 조건을 주어 수행하였다. 이 수치의 모델링 변수는 무차원화를 거쳐 실험값을 시뮬레이션값에 적용하였다. Fig. 6은 퇴적 질량에 따른 케이크 층의 두께변화를 나타낸 그래프이다. 본 연구의 케이크 층 두께는 쌓이는 입자들의 높이(μm)를 각각 측정하여 멤브레인 전면에 걸쳐 공간 평균하여 계산한 값이다. 퇴적 질량은 케이크 층의 면적당 질량(g/m^2)을 의미한다.

본 연구의 시뮬레이션 값을 각각 Mendret등⁽¹⁴⁾의 실험 값 및 시뮬레이션 값(Darcy's equation사용)과 비교 분석하였다. 퇴적 질량이 약 $15 g/m^2$ 이내 인 저층 두께 영역에서는 비교논문의 시뮬레이션 데이터 값이 본 연구의 데이터 값과 비슷한 수치를 나타낸다. 그러나 퇴적 질량이 $15 g/m^2$ 이상인 영역에서 Mendret 등⁽¹⁴⁾의 시뮬레이션의 곡선은 실험치의 값 보다 점점 낮아지는 것을 볼 수 있다. 반면에 본 연구의 결과는 실험값에 비슷한 경향을 보이며 실험값에 잘 일치하고 있다. 이를 통해 본 연구의 시뮬레이션 방법이 케이크 층이 $15 g/m^2$ 이상인 영역에서 기존의 시뮬레이션보다 케이크 층의 두께를 더 잘 나타내는 것을 확인할 수 있다.

3.1.2 필터를 통하는 투과유량

Fig. 7은 퇴적 질량에 따른 여과 유량 비를 나타낸 그래프이다. 여기서 y 축의 여과 유량 비는 $T^* (= \delta_L / \delta_R) = 0$ 일 때의 초기 여과유량(J_0)으로 이후 여과유량(J)을 나눈 것으로 그 비율(J/J_0)을 의미한다. 멤브레인에 의해 여과되는 유량(J/J_0)을 실험값과 비교해 보았을 때 전반적으로 실험값과 본 연구의 시뮬레이션 값이 잘 일치하는 양상을 보여 주었다.

특히 퇴적 질량이 15 g/m^2 이내의 저층 두께 영역에 있어서는 Mendret 등⁽¹⁴⁾의 시뮬레이션 데이터와 비교했을 때 실험결과와 근접한 우수한 결과를 나타내었다. 반면에 Mendret 등이 수행한 시뮬레이션 값은 실험값에 비해 낮게 측정되고 있는 것을 확인할 수 있다. 이는 시뮬레이션 방법에 기인한다. Darcy's equation 방정식과 네비어-스톡스 방정식을 결합한 전환 방정식(transfer equation)은 성장하는 케이크 층의 저항도와 다공성도를 계산하기 위해 실험치를 추출하여 근사방정식을 유도해야한다. 이 때문에 정확한 실험값의 측

정이 전제가 되어야 정확한 케이크의 형성 모사가 가능하다. 하지만 실험값을 측정할 때 쓰이는 광학(in-situ and real-time in a non-invasive way)기법이 $3 \mu\text{m}$ 해상도와 $2.5 \mu\text{m}$ 실측 표준편차의 한계를 갖기 때문에, $3 \mu\text{m}$ 이내의 저층 두께 영역에서는 정확한 관측이 어렵다. 결과적으로 시뮬레이션 시 정확한 근사 방정식의 유도가 어렵게 되고, 이를 통해 계산되는 여과 유량이 실험값과 상당한 차이를 보이게 된다. 반면에 본 연구의 시뮬레이션 기법은 입자기반으로 케이크 층을 직접적으로 모사하기 때문에, 케이크 층의 두께가 작을 시에도 두께를 충분히 표현할 수 있다. 때문에 15 g/m^2 이하의 작은 저층 두께 영역에서도 실험치에 근사한 값을 보여 주고 있다.

3.2. 초기 케이크 형성 과정에서의 여과특성

파울링 입자의 직경에 따른 변화를 비교해 보았다. 케이크 층 두께가 $10 \mu\text{m}$ 이하인 초기부분은 여과 유량 비의 변화가 가장 급격하게 나타나며 실험값의 측정이 어렵고, 시뮬레이션의 정확도가 가장 낮은 부분이다.

3.2.1. 무차원 시간에 따른 결과

멤브레인 입구에서 유입되는 입자의 크기를 각각 $4.4 \mu\text{m}$, $5.2 \mu\text{m}$, $6.0 \mu\text{m}$, $6.8 \mu\text{m}$ 의 4가지 경우에 대하여 시뮬레이션을 수행하였다. 동일한 양의 입자들을 계속적으로 유입시켜 시간에 따른 변화를 관찰하였다. Fig. 8은 각각의 경우에서 시간에 따른 케이크 층 두께의 변화 곡선을 나타낸 것이다. x 축의 무차원 시간은 격자 볼츠만 기법에 따른 시간단위를 나타낸 것으로 격자 볼츠만 기법 100,000 step이 0.1 무차원 시간($T^* = \delta_L / \delta_R$)을 의미한다. 입자의 직경이 $4.4 \mu\text{m}$ 인 경우 축적이 가장 느리고, $6.8 \mu\text{m}$ 일 때 가장 빠르게 분포하는 경향을 보였다. 전체적으로 입자의 직경이 클수록 케이크 층의 두께가 더 높고 빠르게 쌓이는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 9는 각각의 경우에 시간에 따른 케이크 층 두께의 변

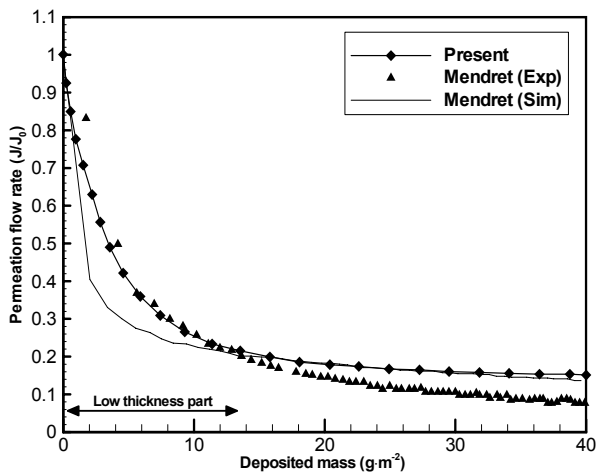


Fig. 7 Comparison of the permeation flow rate of results of simulation and experiment of Mendret and this study

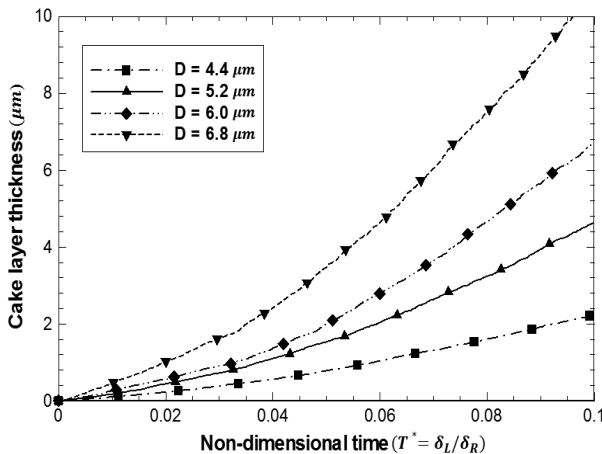


Fig. 8 Cake layer thickness with respect to particle diameter

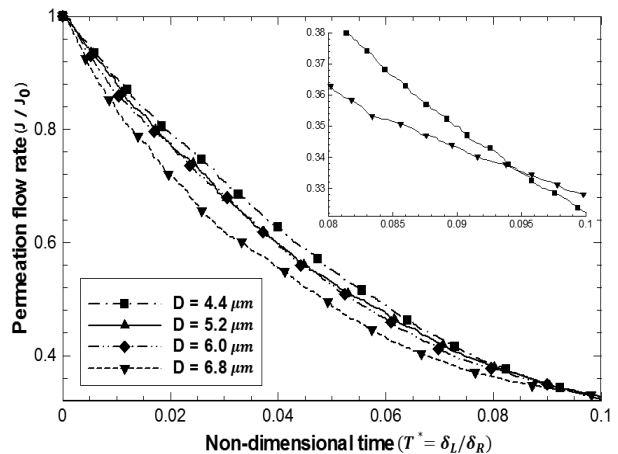


Fig. 9 Permeation flow rate with respect to particle diameter

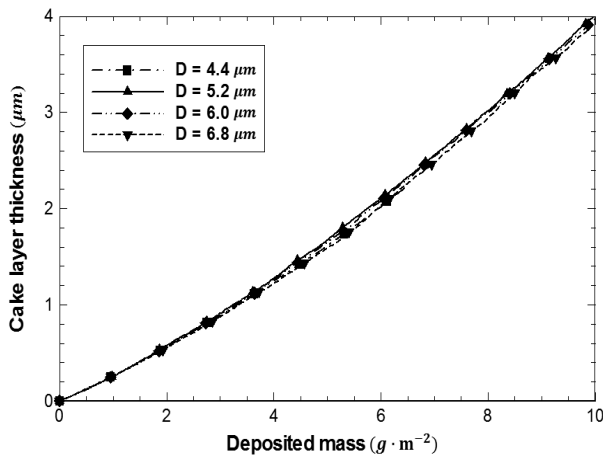


Fig. 10 Cake layer thickness versus deposited mass a various of particle diameter

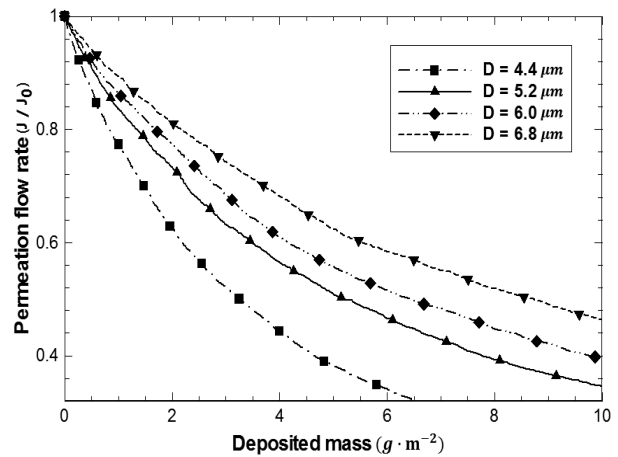


Fig. 11 Permeation flow rate versus deposited mass of a various of particle diameter

화를 나타낸 그래프이다. 가장 직경이 큰 입자인 $6.8 \mu\text{m}$ 의 여과 유량 비 곡선이 초기에 가장 큰 기울기를 지닌다. 그리고 입자의 직경이 작아질수록 더 기울기가 완만한 형태를 이루는 것을 확인 할 수 있다. 이는 초기에 직경이 큰 입자들이 작은 입자에 비해 상대적으로 멤브레인의 표면에 1차적으로 구멍을 뚫는 면적이 넓기 때문이다. 하지만 시간이 경과할수록 그 차이가 좁아지는 양상을 갖는다. 1차적으로 멤브레인 표면을 덮고 있는 입자들 위에 2, 3차적으로 유입된 입자들이 적층되면, 입자와 입자가 서로 점착하게 되고, 입자의 크기가 작을수록 점착면적이 상대적으로 커서 여과되는 유동에 더욱 큰 저항을 주기 때문이다. 그 결과로 $T^* = 0.095$ 인 지점에서는 $4.4 \mu\text{m}$ 와 $6.8 \mu\text{m}$ 의 직경을 가지는 입자의 여과 유량 비가 역전되는 것을 볼 수 있다.

3.2.2. 입자의 포집 질량

서로 다른 직경을 갖는 입자의 경우에서, 입자들에 의해 적층되는 질량에 따른 케이크 층 두께와 여과 유량 비의 변화를 그래프로 나타내어 보았다. Fig. 10은 퇴적 질량에서 케이크 층 두께를 나타낸 그래프이다. 직경이 서로 다른 입자 4가지 경우에서 퇴적 질량에 따른 케이크 층 두께가 거의 흡사하게 나타나는 것을 확인할 수 있다. 이는 입자들이 적체 쌓여 형성된 초기 케이크 층의 경우, 입자 크기의 차이에 따른 케이크 층 구조의 다공성도가 거의 비슷하다는 것을 보여준다. 또한 이 시점은 멤브레인 위에 케이크의 층들이 유동압력으로 인한 레이어의 압축이 일어나기 이전이다. 이전 연구에서 Lee와 Clark⁽¹²⁾가 점착 정도를 가지는 입자의 크기에 따른 비교 분석을 하였을 때, 입자의 직경, d_p 이 다공성도에 반비례하는 양상을 보여주었으나, 이는 완전 발달한 케이크 층의 두께이기 때문에 초기 케이크 층의 발달 특성을 다룬 본 연구에 적용하기에는 무리가 있다고 판단된다.

Fig. 11은 퇴적 질량에 따른 여과유량의 비를 나타낸 그래

프이다. 직경이 $4.4 \mu\text{m}$ 인 입자의 경우 가장 빠르게 여과유량 비가 감소하는 것을 볼 수 있다. 반대로 입자의 직경이 클수록 여과유량의 하락비가 완만해 지는 것을 보여주고 있다. 이전 연구의 실험값과 비슷한 양상을 나타내고 있으며, 이는 입자의 직경이 작을수록 같은 퇴적 질량에서 케이크 층의 저항이 더 커지는 것을 의미한다. Fig. 9에서 보여 주듯이, 저층 두께 영역의 케이크 층에서 입자의 직경에 따른 각 층의 다공성도의 차이는 거의 없다. 그렇기 때문에 여과 유량 비의 차이는 입자의 크기뿐만 아니라 케이크 층을 형성하는 인접한 입자들 간의 거리에 의해 결정되어 진다는 것을 보여 주고 있다.

3.3. 입자 포집양의 불균일성

3.3.1. 필터 투과 유량의 분포

멤브레인의 압력은 $TMP = 50kPa$, 입자의 크기를 $D_p = 5 \mu\text{m}$ 로 하여 시뮬레이션을 수행하였고, 시간 변화에 따른 케이크 층 두께 분포의 변화를 조사하였다.

Fig. 12는 멤브레인 표면에서 $T^* = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4$ 일 때 각각의 여과 유량의 분포를 나타낸 그림이다. 그림의 왼쪽 편은 유동이 유입되는 부분이고, 오른쪽 편은 유동이 나가는 부분이다. 유입되는 지점으로부터 $40 \mu\text{m}$ 지점까지는 입구영역, 유출되는 지점으로부터 $20 \mu\text{m}$ 부분은 출구영역으로 시뮬레이션 상의 오차를 줄이기 위해 케이크 층이 계산되지 않는 지역이다. Fig. 12에서 음영이 진하게 나타난 부분은 유동이 멤브레인 표면을 지나 여과되어 흐르고 있는 부분이고, 음영이 없는 부분은 케이크 층이 적층되어 유동이 흐르지 못하는 부분을 나타낸다. $T^* = 0.1$ 에서는 빈 공간에 비해 음영이 진한 부분이 많아 유동이 잘 통과하고 있음을 알 수 있다. 하지만 시간이 흐름에 따라 점점 음영이 나타난 부분이 점점 사라지고, $T^* = 0.4$ 에 이르면 빈 부분이 더 많아진다. 이는 입자들이 멤브레인 표면에 증착하여 유동의 흐름을

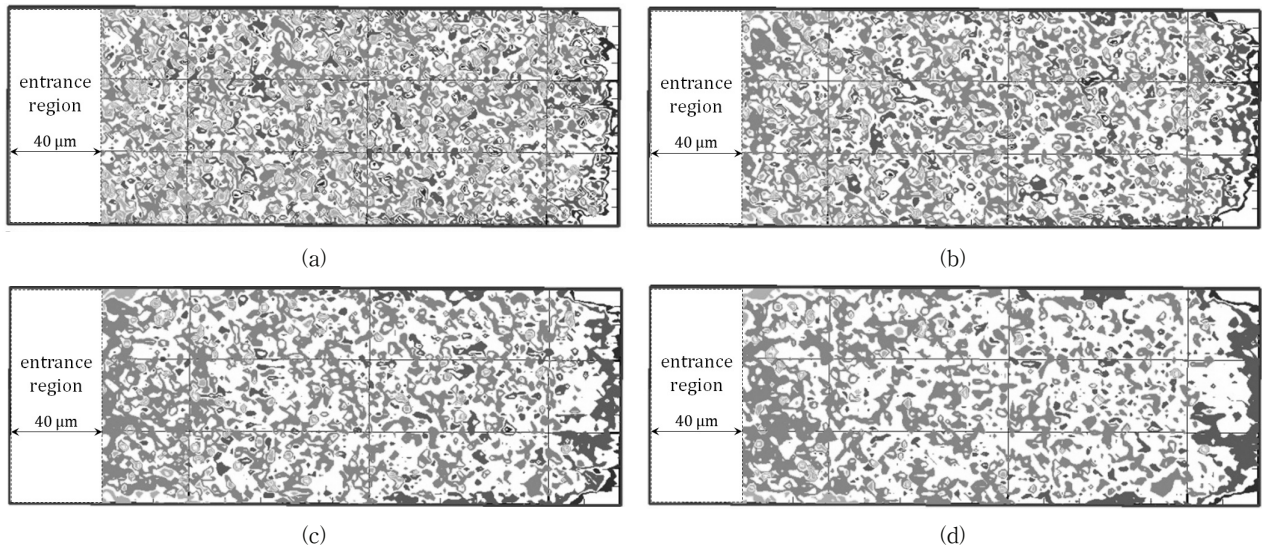


Fig. 12 Distribution of permeation flow rate on the membrane surface at different dimensionless time:

(a) $T^* = 0.1$; (b) $T^* = 0.2$; (c) $T^* = 0.3$; (d) $T^* = 0.4$

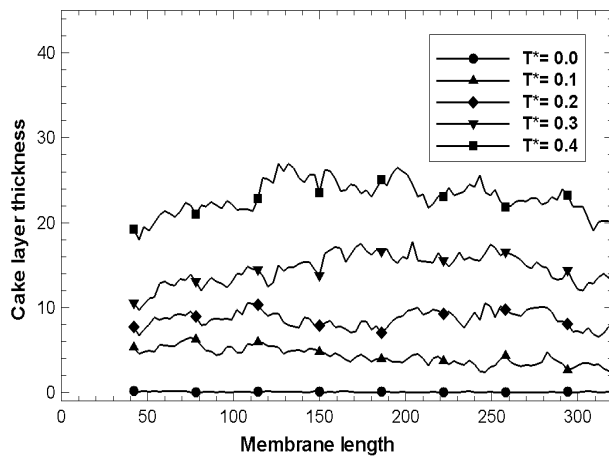


Fig. 13 Distribution of cake layer thickness along the flow direction at a various of dimensionless time

방해하고 있음을 보여준다. 전체적으로 상당히 불규칙적으로 케이크 층이 나타나고, 유동 또한 상당히 복잡한 형상으로 흐르고 있음을 확인할 수 있다. 이전 연구의 대표적 시물레이션 방법인 Darcy Brinkman 모델을 이용 할 경우 유체와 다공성 물질 사이의 표면 모델링을 균질하게 표현 할 수 밖에 없지만, 본 연구의 시물레이션 방법은 불규칙적 모사를 통해 멤브레인의 더욱 현실적인 물리현상 모사가 가능하다는 것을 보여주고 있다. 또한 유체와 다공성 물질 간의 경계면에서 slip 조건과 같은 불필요한 조건을 배제할 수 있어 더욱 정교한 모사와 정확한 데이터의 수집이 가능하다.

3.3.2. 채널의 길이 방향에 따른 케이크층의 두께

Fig. 13은 $T^* = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4$ 일 때의 멤브레인에 축적된 케이크 층 두께의 변화 양상을 나타낸 그래프이다. 케

이크 층의 두께는 유동의 방향에 수직면을 평균하여 구하였다. 입구부터 볼 때 $40 \sim 320 \mu\text{m}$ 의 영역을 나타냈으며, $40 \mu\text{m}$ 이하의 구간은 입구영역으로 배제하였다. $T^* = 0$ 일 때는 거의 평평한 표면을 나타내고, 시간이 흐르면서 케이크 층이 점차 상승하는 것을 확인할 수 있다. 모든 시간대에서 케이크 층의 두께가 상당히 불규칙적으로 나타나는 것을 볼 수 있다. $T^* = 0.1$ 일 때, 유동에 입구로부터 $40 \mu\text{m}$ 지점의 케이크 층 두께가 $5 \mu\text{m}$ 정도인 것에 비해, $300 \mu\text{m}$ 지점에서는 약 $4 \mu\text{m}$ 로 약간 낮다. 하지만 그 다음인 $T^* = 0.2$ 에서는 다시 약 $7 \mu\text{m}$ 정도로 비슷해지는 것을 확인할 수 있다. 이는 케이크 층이 적게 쌓인 부분에 유량이 더 많기 때문에, 입자들이 케이크 층이 더 낮게 분포한 쪽으로 더 잘 쌓이기 때문이다. 이와 같이 $T^* = 0 \sim 0.4$ 까지 어느 한쪽으로 큰 치우침 없이 케이크 층이 쌓여 가는 것을 볼 수 있고, 불규칙적인 분포로 불균일 특성 (local characterization inhomogeneity) 효과를 잘 나타내고 있음을 확인할 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 수치적방법을 이용하여 케이크 층 형성 과정을 모사하였다. 격자 볼츠만 기법에 기반해 유동장을 모델링하였고, 입자들은 IBM 기법을 통해 모사하였다. 이를 통해 유동장은 입자와 상호작용 및 힘을 주고받으며, 입자는 중력, 부력, 회전력, 점착력, 충돌력 등을 각각 고려하여 모사하였다. 난수함수를 이용하여 초기 멤브레인 층을 형성하고 시간이 지남에 따라 멤브레인에 입자들이 적층되어 케이크 층을 이루는 것을 직접 모사 하였다. 이는 실험을 통한 경험식을 유도하지 않고 수치적 모델링만으로 시물레이션을 하

기 때문에 다양한 분야에 적용이 가능하다. 본 연구는 입자를 기반으로 한 케이크 층 모사기법으로 입자들에 의한 케이크 층의 두께를 얻을 수 있으며, 케이크의 두께가 두꺼운 영역(15 g/m^2 이상)에서 케이크 층 두께가 정확한 값을 보여주었다. 여과 유량 비가 가장 급격하게 변하는 초기부분에서는 구멍을 뚫는 입자의 직접적인 모사로, 네비어-스톡스 방정식과 Darcy's Law을 조합한 이전 연구의 결과보다 우수하였다. 실측이 어렵고, 네비어-스톡스 방정식과 Darcy's Law을 이용한 방법으로는 해석이 어려운 케이크 층 생성 초기에 관하여 4가지 다른 입자의 크기에 관하여 시뮬레이션을 수행하여 결과를 분석을 하였다. 시간에 따른 케이크 층 두께의 변화와 여과 유량 비의 변화를 보았을 때, 입자의 직경이 클수록 초기에 케이크 층이 더 빠르게 상승하고, 여과 유량비가 빠르게 하락 하는 경향을 보였다. 하지만 직경에 따른 여과 유량들이 시간이 지남에 따라 역전되는 현상을 볼 수 있었다. 이 때 퇴적 질량에 따른 케이크 층 두께는 4가지 경우가 거의 비슷한 값을 나타내었고, 이는 퇴적 적층구조가 층이 얇은 초기부분에서는 다공성도가 거의 같다는 것을 보여주고 있다. 그렇기 때문에 낮은 케이크 층의 경우 이러한 여과 유량 비의 차이는 입자 크기뿐만 아니라 케이크 층을 형성하는 인접한 입자들 간의 거리에 의해 결정된다는 것을 의미함을 알 수 있었다.

참고문헌

- (1) Y. Bessiere, 2005, Filtration frontale sur membrane: mise en évidence du volume filtré critique pour l'anticipation et le contrôle du colmatage, Thèse de l'Université Paul Sabatier, Toulouse.
- (2) K.J. Howe, M.M. Clark, 2002, "Fouling of microfiltration and ultrafiltration membranes by natural waters," Environ. Sci. Technol. Vol. 36, pp. 3571-3576.
- (3) P. Bacchin, M. Meireles, P. Aimar, 2002, "Modelling of filtration: from the polarised layer to deposit formation and compaction, Desalination," Vol. 145, pp. 139~146.
- (4) S. Karode, 2001, "Laminar flow in channels with porous walls," revisited, Journal of Membrane Science, Vol. 191, pp. 237~241.
- (5) B. Espinasse, 2003, "Approche théorique et expérimentale de la filtration tangentielle de colloïdes: flux critique et colmatage," Thèse de l'Université Paul Sabatier, Toulouse.
- (6) A. S. Berman, 1953, "Laminar flow in channels with porous walls," Journal of Applied Physics, Vol. 24, pp. 1232-1235.
- (7) L. S. Galowin, M. J. De Santis, 1974, "Investigation of laminar flow in a porous pipe with variable wall suction," AIAA Journal, Vol. 12, pp. 1585~1594.
- (8) G. Belfort, 1989, "Fluid mechanics in membrane filtration: recent development," J. Membr. Vol. 40, pp. 123-147
- (9) V. Nasseghi, 1998, "Modelling of combined Navier-Stokes and Darcy flows in crossflow membrane filtration," Chemical Engineering Science, Vol. 53, pp. 1253~1265.
- (10) S. Chang, S. A. G. Fane, T. D. 2006, "Waite, Analysis of constant permeate flow filtration using dead-end hollow fiber membranes," Journal of Membrane Science, Vol. 268, pp. 132~141.
- (11) S. Geissler, U. Werner, 1995, "Dynamic model of crossflow microfiltration in flat-channel systems under laminar flow conditions," Filtration and Separation, Vol. 32, pp. 533~537.
- (12) Y. Lee, M. M. Clark, 1998, "Modelling of flux decline during cross-flow ultrafiltration of colloidal suspensions," Journal of Membrane Science, Vol. 149, pp. 181~202.
- (13) D. E. Wiley and D. F. Fletcher, 2003, "Techniques for computational fluid dynamics modeling of flow in membrane channels," J. Membr. Sci., Vol. 211, pp. 127~137.
- (14) J. Mendret, C. Guigui, C. Cabassud, 2010, "Numerical investigations of the effect of non-uniform membrane permeability on deposit formation and filtration process," Desalination, Vol. 256, pp. 367~377.
- (15) U. Frisch, B. Hasslacher, Y. Pomeau. 1986, "Lattice-gas automata for the Navier-Stokes equations," Phys. Rev. Lett. Vol. 56, pp. 1505.
- (16) Z. G. Feng, E. E Michaelides, 2002, "Proteus: a direct forcing method in the simulations of particulate flows," J. Computational Physics, Vol. 202, pp. 20-51.
- (17) U. Frisch, B. Hasslacher, Y. Pomeau. 1986, "Lattice-gas automata for the Navier-Stokes equations," Phys. Rev. Lett., Vol. 56, No. 1505.
- (18) A. J. C. Ladd. 1994, "Numerical simulations of particulate suspensions via a discretized Boltzmann equation Part I. Theoretical foundation," J. Fluid. Mech, Vol. 271, pp. 285-310.
- (19) A. J. C. Ladd. 1994, "Numerical simulations of particulate suspensions via a discretized Boltzmann equation Part II. Numerical results," J. Fluid. Mech, Vol. 271, pp. 311-339.
- (20) Y. H. Qian, d'Humieres D, Lallemand P. 1992, "Lattice BGK models for Navier Stokes equation," Europhys Lett, Vol. 17, pp. 479-484.
- (21) C. S. Peskin, 2002, "The immersed boundary condition," Acta Numerica, pp. 1-39.
- (22) Y. Bessiere, D. F. Fletcher, P. Bacchin, 2008, "Numerical simulation of colloid dead-end filtration: Effect of membrane characteristics and operating conditions on matter accumulation," Journal of Membrane Science, Vol. 313, pp. 52~59.
- (23) P. L. Bhatnagar, E. P. Gross, and M. Krook, 1954, "A Model for Collision Processes in Gases. 1. Small Amplitude Processes in Charged and Neutral One-Component Systems," Phys. Review, Vol. 94, pp. 511.