

막여과에서 테일러 와류가 케이크 형성에 미치는 영향

박원철, 김현우, 최창균, 박진용*, 김재진**
 서울대학교 공과대학 화학공학과
 한림대학교 환경학과*
 한국과학기술연구원 고분자 연구부**

Effect of Taylor Vortex on Cake Formation in Membrane Filtration

W. C. Park, H. W. Kim, C. K. Choi, J. Y. Park*, J. J. Kim**
 Department of Chemical Engineering, Seoul National University
 Department of Environmental Science, Hallym University*
 Division of Polymer Science and Technology, KIST**

서론

여과가 진행됨에 따라 막의 표면에서 발생하여 여과선속을 저하시키는 케이크층의 형성은 막을 이용한 고-액 분리공정에서 발생하는 가장 큰 문제점의 하나로서 이는 막 분리공정의 경제성을 좌우하는 중요한 인자가 된다. 이러한 문제점을 극복하기 위하여 유체와 막 사이의 상대속도를 증가시켜 여과속도를 향상시키는 십자흐름 여과, 즉 CFF(crossflow filtration)에 대한 연구가 활발히 진행되어 왔다. 그러나 이러한 십자흐름 여과에서도 막과 유체 사이의 상대속도의 증가에 한계가 있고 또한, 막의 기공보다 작은 입자가 막의 기공 내에 침투하여 막을 오염시키는 현상을 예측하기 어렵기 때문에 여과기의 설계에 있어서 많은 문제점이 발생하고 있다. 이에 오염된 막을 재생시키기 위하여 기계적·화학적인 여러 가지 방법들이 개발되고 여과선속을 향상시키는 방법이 꾸준히 연구되어 분리막 기술의 경제성을 향상시켜 왔다.

본 연구에서는 매우 안정된 유동의 하나로서 막 표면의 전단력을 향상시키는 데에 효과가 있다고 알려진 Taylor와류를 응용한 회전막 여과기를 사용하여 여러 가지 크기의 입자에 대한 여과실험을 수행함으로써 이러한 유동이 케이크의 형성에 미치는 영향을 살펴보았다. 또한 여과선속에 영향을 미치는 여러 매개인자를 알아보고 실험결과를 간단한 모델식에 적용해 봄으로써 막의 저항을 예측할 수 있는 모델식으로서의 개선 방향을 제시하고자 한다.

이론

두 동심원통의 사이를 Fig. 1에 보인 바와 같이 유체가 흐를 때 내부원통의 회전속도가 어떤 임계값 이상이 되면, 유동은 원통의 축방향을 따라 규칙적으로 서로 반대 방향인 고리쌍의 배열로 와류가 형성되는데 이를 Taylor와류라 부른다. 이 때 내부원통의 회전속도가 증가함에 따라 발생하는 유체 유동의 불안정성은 내부원통의 반경에 대한 동심원통 사이의 간격의 비가 아주 작은 경우($d/r_i \ll 1$) 다음과 같이 정의되는 Taylor수에 의존한다.

$$Ta = \frac{\omega_i r_i d}{\nu} \left(\frac{d}{r_i} \right)^{1/2} = Re \left(\frac{d}{r_i} \right)^{1/2} \quad (1)$$

여기서 ω_i 는 내부원통의 회전각속도, ν 는 동점도, d 는 동심원통 사이의 간격, r_i 는 내부원통의 반경을 나타낸다. 이 때 동심원통 사이에서 유동 안정성의 기준은 Taylor 수가 41.3 이상이면 Taylor 와류가 존재하는 종류, 400 이상이면 Taylor 와류가 존재하는 난류영역으로 나뉘어 진다. 본 연구의 실험영역은 $600 < Ta < 2500$ 으로서 이러한 유동 안정성 기준에 의하면 Taylor 와류가 존재하는 난류영역에 위치한다.

한편 d/r_i 가 증가할수록 Taylor와류가 발생하기 시작하는 임계 Taylor수 Ta_c 는 증가하는 경향이 있는데 Taylor[1]는 임계 Taylor수와 d/r_i 사이의 상관관계식을 다음과 같이 제시하였다.

$$Ta_c = \frac{\pi^2 (1 + d/2r_i)^{1/2}}{[0.0571(1 - 0.0652 d/r_i) + 0.00056 (1 - 0.652 d/r_i)^{-1}]^{1/2}} \quad (2)$$

축방향의 흐름이 존재하면 유동은 더욱 안정해져서 임계 Taylor수가 증가하게 되는데, Chandrasekhar[2]는 섭동 이론으로부터 축방향의 흐름에 대한 Reynolds수가 작은 경우에 임계 Taylor 수가 축방향의 흐름이 없는 경우보다 증가함을 보인 바 있다.

동심원통에서 내부원통이 회전할 경우 내부원통 표면에 작용하는 전단력은 다음과 같이 정의되며 여과가 진행됨에 따라 막 표면에 형성되는 케이크층의 해석에 중요한 인자로 작용하게 된다.

$$\tau_{oi} = f \rho r_i^2 \omega_i^2 / 2 \quad (3)$$

식에서 f 는 마찰계수로서 Atsumi 등[3]은 실험을 통하여 마찰계수와 d/r_i , Reynolds수와의 상관관계식을 다음과 제시하였다.

$$f = \frac{4 (1 + d/r_i)^2}{(2 + d/r_i) Re} \quad \text{for } 20 \leq Re \leq Re_c \quad (4)$$

$$f = 0.80 (d/r_i)^{0.35} Re^{-0.53} \quad \text{for } Re_c \leq Re \leq 10^4$$

본 연구의 실험범위는 $Re_c=118, 1500 < Re < 6300$ 으로서 두 식 중 아래의 식을 사용할 수 있다.

회전막 여과기에서 순수한 물을 대상으로 실험할 경우, 일반적인 압력여과식은 다음과 같다.

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

여기서 R_m 은 막의 순수저항을 의미하며 ΔP 는 여과기내의 평균압력차를 의미한다. 그러나 막을 회전시키면 막 표면에서 원심력에 의한 압력강하 P^* 가 생기며 위 식은 다음과 같이 변형된다.

$$J = \frac{\Delta P - P^*}{R_m} \quad (6)$$

따라서 슬러리를 대상으로 막을 회전시키는 경우, 일반적인 압력여과식은 다음과 같다.

$$J = \frac{\Delta P - P^*}{R_m + R_c} \quad (7)$$

여기서 R_c 는 여과가 진행됨에 따라 형성되는 케이크층의 저항을 나타낸다.

Murase 등[4]은 고압축성 오염 케이크층을 형성하는 묽은 현탁액을 대상으로 십자흐름 정밀여과 실험을 행하여 막표면의 전단력과 정압여과계수로 이루어진 변수로 구성되는 여과식을 도출하였다. 또한 여과속도 조절 변수간의 경험적 상관식에 근거하여 케이크의 압축성과 여과액의 점도가 여과속도에 미치는 영향을 산출하였다. Park 등[5]은 실리카 슬러리를 대상으로한 일련의 여과 실험을 통하여 막 표면에서의 전단력이 케이크 층의 저항에 미치는 영향을 여러 가지 모델식을 대상으로 검증하여보고 저전단력과 고전단력 영역으로 나눈 입자전달모델로부터 새로운 여과모델식을 도출하였다.

실험

본 연구에서 사용한 회전막 여과기가 Fig. 2에 나타나 있다. 여과기의 내부원통으로 사용된 Millipore 회사의 MF 정밀여과기는 굴곡기공을 가지며 지지층이 없는 대칭막의 형태로 두께 약 $160\mu m$, 기공의 크기 $1.2\mu m$ 인 셀룰로우스 에스테르 막을 폴리프로필렌으로 양쪽에서 감싸고, 내부는 나일론 피복 강철로 지지하는 직경 5.2cm, 길이 78cm의 4단 구조 원통형이다. 이 정밀여과기의 상단부를 모터와 연결하여 회전하게 하였으며, 내부원통의 반경에 대한 동심원통 사이의 간격의 비 d/r_i 가 각각 0.15, 0.44, 0.73인 3개의 야크릴 원통을 제작하여 고정된 외부원통으로 사용하였다.

시료로는 일본 SEKISUI사 제품인 MB20X-5, MBX-12, MBX-20, MBX-50을 순수한 물과 혼합한 슬러리 형태로 사용하였다. MMA를 기본수지로 제조된 이들 입자는 구형의 형태를 가지며 입자의 평균직경이 각각 5, 12, 20, $50\mu m$ 이다.

순수한 물에 대한 막의 고유저항과 회전막 여과기의 구동력을 알아보기 위하여 종류수를 대상으로 여과기 내의 수위에 따른 압력변화와 이 때의 여과량을 측정하였다. 또한 막의 회전에 의한 막 표면에서의 압력강하를 알아보기 위하여 회전속도를 변화시키면서 실험을 반복하였다. 다음으로 여과속도에 영향을 미치는 주요 매개인자들인 내부원통에서의 전단력, 슬러리 내의 고형 입자 농도, 고형 입자의 크기, d/r_i 등에 대한 실험을 단계적으로 실시하였다. 막의 세척을 위해 각 실험이 끝난 후 막을 고속으로 회전시키면서 내부로 물을 가압하는 역세척을 실시하였으며, 변화한 막의 저항을 순수한 물을 이용하여 측정하였다.

결과 및 토론

본 연구에서 사용한 회전막 여과기의 여과 구동력을 결정하기 위하여 순수한 물로 구동력 측정 실험을 행하여본 결과 여과기 내부의 수위가 증가함에 따라서 여과기 내의 압력이 선형으로 증가하였다.

따라서 여과기 내부의 유체의 위치에너지가 그대로 압력으로 변환되어 여과의 구동력으로 작용하고 있음을 알 수 있었다. 식 (6)에서 언급한 바와 같이 여과기의 내부원통이 회전하면 회전속도의 증가에 따라 막과 유체사이의 상대속도가 증가함에 따라서 Fig. 3과 같이 막 표면에서 압력강하가 발생하여 여과선속이 감소하였다.

중류수로 회석한 슬러리를 대상으로 하여 일반적인 압력여과식에 막의 회전에 의한 압력강하를 도입한 식 (7)을 이용하고 변화하는 막의 고유저항을 측정함으로써 여과시간의 경과에 따라 케이크층의 형성에 의해 생기는 케이크의 저항 R_c 를 누적여과부피에 대해 도시한 것이 Fig. 4이다. 내부원통을 회전시키지 않는 경우에는 재래의 회분식 여과와 마찬가지로 시간이 지나도 정상상태에 도달하지 않는 것을 알 수 있으며, 내부원통을 회전시키면 케이크층의 저항이 여과초기에는 급격한 증가를 보이다가 형성된 케이크층을 제거하는 막 표면에서의 전단력 τ_{wall} 의 작용에 의해 정상상태의 케이크층 저항 R_{cs} 에 도달함을 알 수 있다. 또한 내부원통의 회전속도가 높을수록 막 표면에 작용하는 전단력이 커져서 R_{cs} 가 더 낮음을 알 수 있다.

입자가 막에 누적되어 케이크가 형성되는 과정을 1차 모델로 설정하고 해석하여 정상상태의 케이크 저항 R_{cs} 와 회전으로 인한 전단력 τ_{wall} 와의 상관관계를 고찰해 본 뒤 이로부터 실험결과를 예측한 것이 Fig. 5이다. 변화하는 케이크층의 저항을 막 표면에서의 전단력만으로 예측하는 것은 많은 오차를 낳을 수 있음을 알 수 있으며, Fig. 6에서 볼 수 있는 것처럼 일정한 회전속도에서의 정상상태 여과선속에 입자의 크기가 영향을 미침을 고려하여 모델식을 개선하면 케이크층의 저항을 보다 정확히 예측할 수 있을 것으로 생각된다.

참고문헌

1. Taylor, G. I., Fluid Friction between Rotating Cylinders, *Proc. Roy. Soc. A*, 93, 289-343 (1923)
2. Chandrasekhar, S., The Stability of Spiral Flow between Rotating Cylinders, *Proc. Roy. Soc. A*, 265, 188-197 (1962).
3. Atsumi, et, al., Frictional Resistance of Grooved Rotor in Cylinder Dynamic Filter Chamber without Permeation or Throughflow, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, vol. 14, pp. 16-19, (1988).
4. Murase, et, al., Filtrate Flux in Crossflow Microfiltration of Dilute Suspension Forming a Highly Compressible Fouling Cake-Layer, *J. Memb. Sci.*, 108, 121-128 (1995).
5. Park, et, al., A Study on Dynamic Separation of Silica Slurry Using a Rotating Membrane Filter; 1. Experiments and Filtrate Fluxes, *J. Memb. Sci.*, 97, 263-273 (1994).

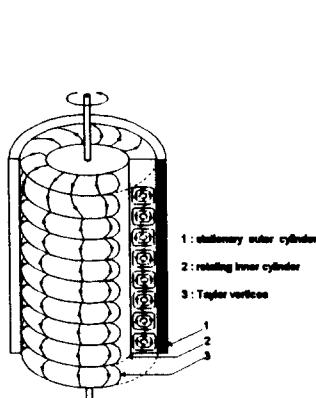


Fig. 1. Taylor Vortices between two cylinders.

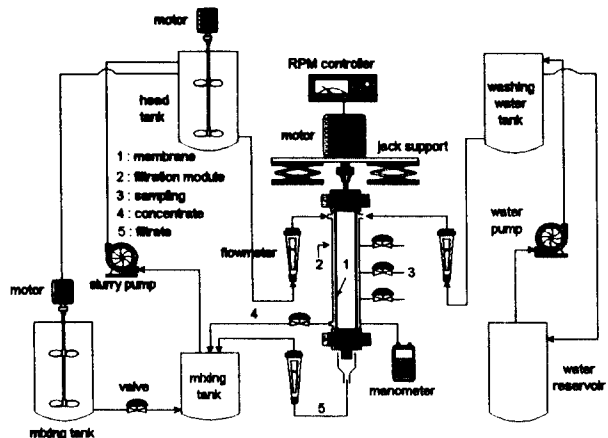


Fig. 2. Experimental Apparatus.

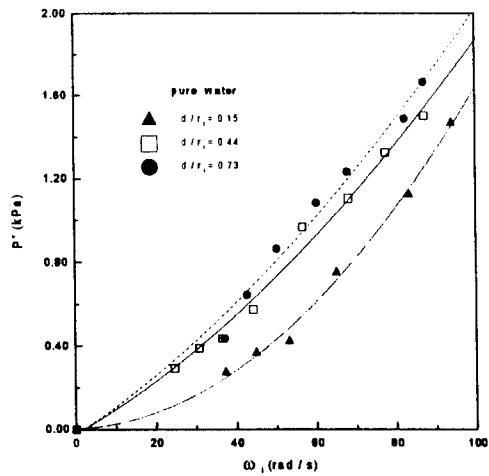


Fig. 3. Pressure drop on inner cylinder surface for pure water.

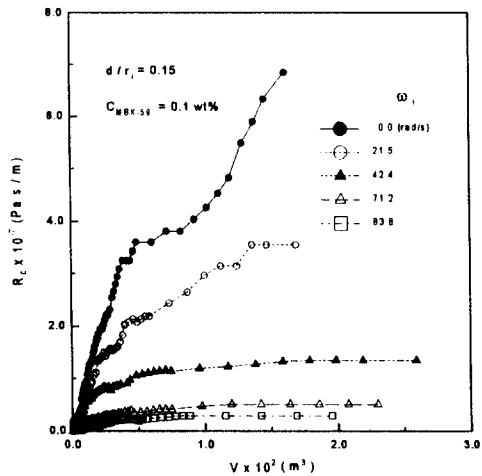


Fig. 4. Cake resistance vs. cumulative filtrate volume ($d/r_1=0.15$).

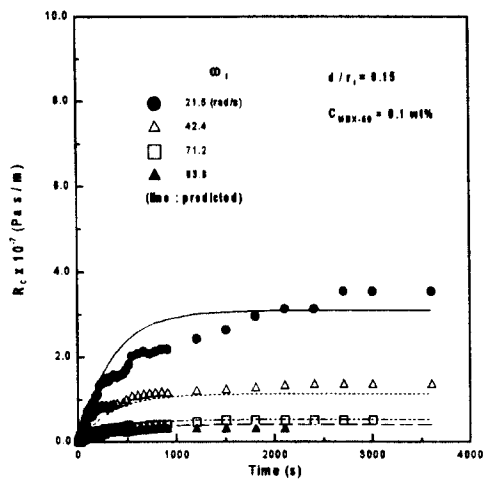


Fig. 5. Comparison of measured and predicted cake resistances ($d/r_1=0.15$).

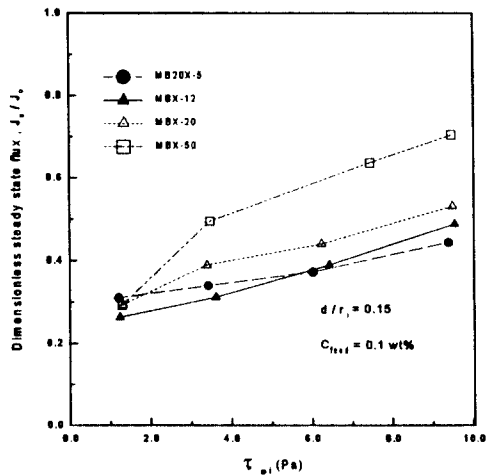


Fig. 6. Dimensionless filtrate flux vs. shear stress on inner cylinder with various particles.