

해양심층수 물질추출용 분무동결건조기에 관한 연구(1)

박성제* · 홍용주* · 김효봉* · 김현주** · 신필권**

*한국기계연구원

**한국해양연구원

A Study on the Spray Freeze Dryer for Extracting Valuable Material of the Deep Seawater

SEONG-JE PARK*, YONG-JU HONG*, HYO-BONG KIM*, HYEON-JU KIM** AND PHIL-KWON SHIN**

*KIMM, Daejeon, Korea

**KORDI, Daejeon, Korea

KEY WORDS: Spray-freezer dryer 분무동결건조기, Heat exchanger 열교환기, Refrigerator 냉동기

ABSTRACT: This paper shows the study on the design and another applications of the spray-freeze dryer for the production of valuable material powders. Powder production and handling has been an integral part of material extracting processing and pharmaceutical processing because of the wide use of oral dosage forms. There are a few commonly used powder preparation methods including mechanical milling, precipitation, spray drying, freeze drying, and so on. In general, methods available for preparing inhalation powders are limited due to certain inhalation powder's sensitive nature to the processing environments. This is particularly true for preparing dry powder aerosols where the aerodynamic particle size ($5\mu\text{m}$) and the size distribution are pivotal. Supercritical fluid antisolvent and spray freeze drying have recently emerged as promising techniques for producing powders for use in microcapsulation. However, the aerosol applications of these powders are yet to be explored. The purpose of this study is to test the feasibility of using spray freeze-dried valuable material powders for aerosolization.

1. 서 론

건조란 열, 공기유동, 압력, 진동, 냉동 등을 이용하여 물체에 함유된 수분이나 솔벤트 등과 같은 유기용제를 제거하는 것을 의미한다. 이에 건조 장치란 인공적으로 에너지를 다량 사용하여 물체가 함유하고 있는 수분을 제거하는 장치를 총칭하는 것이다.

건조장치는 에너지 과소비형 기기임을 감안, 외국에서는 에너지 절약형 기술 및 성능의 고도화를 위하여 다각적으로 기술 개발을 추진하고 있다. 우리나라의 건조 장치 기술수준은 일본의 약 1/3 수준이며, 건조 효율 역시 일본 제품의 약 70 - 80%의 수준으로 평가되고 있다.

분무진공동결건조기는 분무 건조기와 진공동결건조기를 기반으로 한 복합적인 건조기라 할 수 있다. 따라서 분무진공동결건조기에 대한 이해는 분무 건조기와 진공동결건조기에 대한 건조 메커니즘을 파악한 뒤, 각각의 장치에 대한 장단점을 비교하고 이에 따른 분무진공동결건조기의 사용 조건, 구조 및 특성을 상세히 살펴보아야 한다.

진공을 이용한 기계 장치는 건조, 냉각, 포장, 농축 등 많은 부분에 응용되고 있으며 냉동 분야에서는 냉동 원리를 접합시켜 식품의 저장에 주요한 기기로서 이용되고 있다.

빙점 이하에서의 승화 탈수의 원리는 19세기 초에 제시되어, 1900년대에 들어와 Shackell이 혈청의 건조에 처음으로 이 방법을 사용하였다. 1930년 중반에 동결 건조에 저온 탈습장치인 저온트랩이 이용되었고, 공업적 단계에의 진보는 Flosdorf와 Mudd의 이후에 달성되었다. 즉 1942년에는 페니실린의 동결 건조가 실시되었으며, 효소, 호르몬 등의 불안정한 활성물질도 장기 보존 할 수 있었다.

Dryer, D.F.(1967)와 Greaves, R.I.N(1962) 등은 동결 건조 구조에서의 승화와 열전달 관계의 연구를 수행 하였고, Harper(1966) 및 Heiss(1964) 등은 건조품의 질에 대한 보고를 하였다. 또한 De Buhr(1967) 및 Hamilton(1966) 등은 동결 건조 장치에 대한 특허를 취득 하는 등 외국에서는 개발이 완성된 단계에서 실용화에 의한 기계 장치의 개선점을 찾고 있다.

1980년대에 들어서는 Micro Heating 에 의한 동결 건조 장치의 개발이 시도 되고 있으며 이외에도 동결 건조의 열역학적인 면과 자동화, 제어면에서 많은 개발이 이루어지고 있다.

분무 진공 동결 건조 기술은 크게 진공, 분무, 동결, 건조, 멸균 등과 같은 요소기술의 복합기술이라 할 수 있다.

또한 분무진공동결건조기는 환자 치료시 주로 사용되는 혈액 주사 및 경구투여를 대체할 수 있는 치료 기술로서 호흡식 분말 의약품 제조용으로도 활용될 수 있다. 호흡식 의약품 분말 투여에 의한 치료 방법은 군 전투 또는 응급시 의학 전문가의 도움을 받을 수 없을 때 2 ~ 20 μm 입径의 분말 의약품을 사

제1저자 박성제 연락처: 대전광역시 유성구 장동 171

042-868-7394 sjpark@kimm.re.kr

용하여 호흡을 통해 직접 투여하는 방식이다.

피건조물에 존재하는 수분을 제거하는 건조 기술은 산업체의 최종 제품을 만드는 공정에 거의 필수적으로 이용되고 있다. 식품에서의 건조는 제품의 저장과 유통문제의 해결에 매우 중요하며, 그 방법으로는 가장 흔하게 이용되고 있는 태양열 건조를 비롯하여 진공 동결 건조에 이르기까지 매우 다양하다. 최근 건조 제품의 양질화, 고급화 및 편의화가 요구되어 이를 충족시키기 위한 새로운 건조 방법이 계속 개발 되어 왔다. 이러한 방법들 중에서 저온과 진공하에서 조작성이 되는 진공 동결 건조는 가장 완벽한 건조 방법으로 각광을 받아 널리 실용화 되고 있다.

의학계에서의 진공 동결 건조는 주로 민감한 제품, 즉 생물학적 고유성의 손상 없이 물을 제거하는데 사용되어 영구적으로 저장 가능한 상태로 보관할 수 있으며 물의 첨가로 원상태로 복구할 수 있어서 매우 각광을 받고 있다. 의약품 냉동건조 제품은 항생물질, 박테리아, 혈청, 백신, 검사 약물, 단백질을 포함하는 생물공학 제품들, 세포, 섬유, 화학제품 등이 있으며 주로 vial 또는 ampule 상태로 건조가 이루어진다.

하지만 진공 동결 건조 방법은 연속적인 작업이 힘들고, 배치(batch)형으로 운전되어야 하기 때문에 생산 효율이 낮고, 과다한 에너지를 소비할 뿐만 아니라 건조 대상물의 예비동결이 수반되며, 건조물의 두께에 따른 승화 조건의 악화로 건조 시간의 연장이 불가피한 상황이며 이로 인한 건조 시간의 단축에 한계가 있다. 또한 분말 상태의 제품을 얻기 위해서는 건조 후 정밀한 분쇄과정이 필요하게 되는 단점이 있다.

진공동결건조 방법의 단점을 보완한 분무(진공)동결건조 방법은 액체 상태의 원료를 진공챔버내에 분무시킴으로써 동결된 미립자로 형성되어지며, 동결된 미립자는 컨베이어에 의해 이동되면서 적외선 가열기를 통해 적정한 승화열을 공급받음으로써 원료가 분무후 건조 완료까지의 과정이 1분 이내로 이루어진다. 분쇄 과정이 필요 없는 분말 상태로 건조 완료된 분말은 진공 상태의 용기에 저장된다.

다른 건조 방법에 비해 분무 진공 동결 건조 방법의 특징은 아래의 4가지로 요약될 수 있으며

- (1) 물리적 구조의 보존성
- (2) 화학적인 안정성
- (3) 생물학적인 활동의 보존성
- (4) 제품의 높은 복원성 및 재생성

분무 진공 동결 건조 기술은 크게 진공, 분무, 동결, 건조, 멸균 등과 같은 요소기술의 복합기술이라 할 수 있다.

기존의 분무건조와 동결건조 공정의 복합형이라 할 수 있는 분무동결건조기는 현재 국내에서는 연구 및 개발이 이루어지지 않았고, 외국 제품을 전량 수입하고 있는 실정으로, 국내 연구진에 의한 체계적이고, 시급한 개발이 이루어져야 한다.

따라서 본 연구에서는 해양심층수의 소금 건조 및 유용

물질 추출용 분무동결건조기의 개발을 위한 기본 설계에 관한 고려 사항과 기초설계 및 제작된 결과 등을 제시하고자 한다.

2. 분무동결건조기

2.1 분무건조기와 분무동결건조기

분무 동결 건조기의 건조실 진공도는 4.7Torr이하의 조건에서 운전되어야 하고, 동결 및 수증기 포집을 위한 냉동 온도는 4 0℃ ~ -80℃ 이어야 하며, 건조를 위한 가열 시스템은 의약품용의 공정 온도 부근에서 0℃ 부근까지 조절 가능하여야 한다.

분무 동결 건조기는 크게 다음과 같은 핵심 부품들로 구성된다.

- (1) 컨베이어를 포함하는 건조실
- (2) 분무 노즐을 포함하는 분무동결실
- (3) 진공 펌프 시스템
- (4) 적외선 복사 히터
- (5) 수증기 포집용 고용량 응축기
- (6) 압축기를 포함하는 냉동기
- (8) 측정 및 모니터링 센서와 장비
- (9) 자동화 및 자동 제어 장치

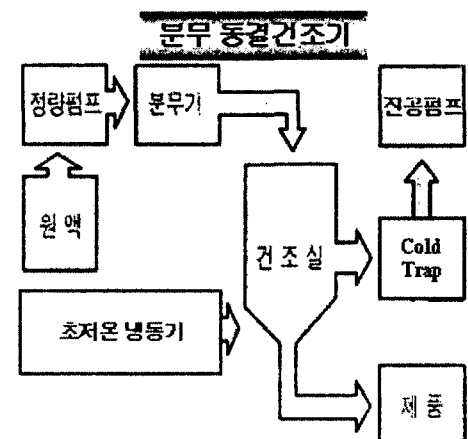
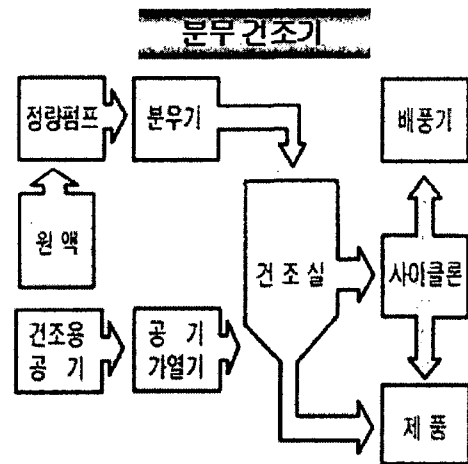


Fig. 1 Spray dryer and spray-freeze dryer

수증기 포집용 냉동장치는 오존층 파괴 및 지구 온난화 방지를 위해 Non-CFC 혼합 냉매를 사용하고, Auto cascade 사이클을 활용함으로써 에너지 절약 및 공간 효율성을 최대한 살려야 한다.

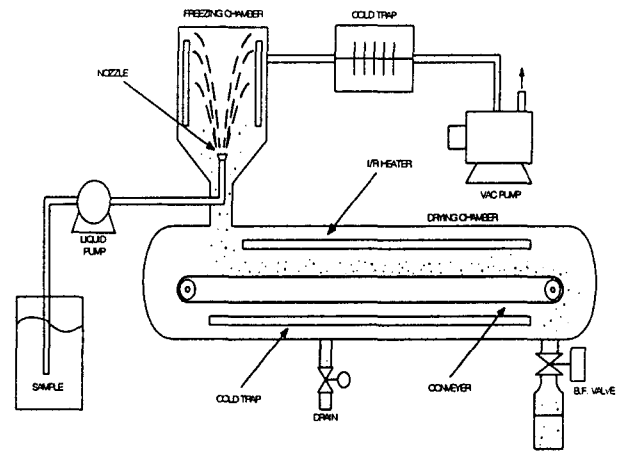
Fig. 1은 분무건조기와 분무동결건조기의 구조적인 차이를 보여주고 있으며, Table 1에서는 분무건조와 분무동결건조의 물리적 특성 및 건조과정을 비교하였으며, Table 2는 분무건조와 분무동결건조의 물리적 특성 비교의 예를 보여주고 있다.

Table 1 The difference of the spray dryer and spray-freeze dryer

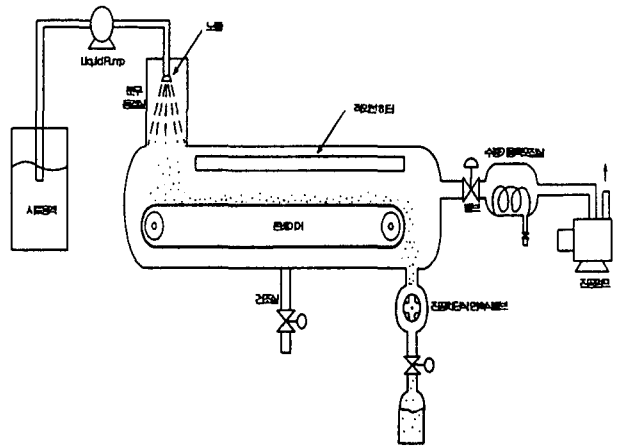
항목	분무건조	분무동결건조
물리적 특성 비교	조밀구조(밀도 높음)	Porous 구조(밀도 낮음)
	건조표면적작음	건조표면적 넓음
	공기동력학적입경 큼	공기동력학적 입경작음
	관성추종성 큼 (유선추종성 낮음)	관성추종성 낮음 (유선추종성 높음)
	살포성 낮음 (웅집, 부착력 높음)	살포성 높음 (웅집, 부착력 낮음)
건조 과정 비교	쉽고, 빠르고, 편리	상대적으로 시간 소모성
	대용량화 매우 용이	대용량화 용이
	운전비용 낮음	운전비용 높음
	생산성 낮음 (50 - 70%)	생산성 높음 (95% 이상)
	분무화 우수	분무화 매우 우수
	고온 처리	저온 처리 (고온민감성재료에 적합)

Table 2 The physical characteristics of the spray dryer and spray-freeze dryer

구분	분무건조 (SD)	분무동결 건조 (SFD)
평균입경	D_{SD}	$D_{SFD} = 2 D_{SD}$
분말 부피	V_{SD}	$V_{SFD} = 8 V_{SD}$
표면적	S_{SD}	$S_{SFD} = 40 S_{SD}$
분말 밀도	ρ_{SD}	$\rho_{SFD} = 1/10 \rho_{SD}$
공기 동력학적 입경	$d_{SD} = D_{SD} \cdot \sqrt{\rho_{SD}}$	$d_{SFD} = D_{SFD} \cdot \sqrt{\rho_{SFD}}$ $= \frac{2}{\sqrt{10}} \cdot d_{SD} = 0.63 d_{SD}$



(a)



(b)

Fig. 2 Schematic diagram of the spray-freeze dryer

2.2 분무동결건조기의 개요

분무 동결 건조기는 크게 컨베이어를 포함하는 건조실, 분무 노즐을 포함하는 분무동결실, 수증기 포집용 고용량 응축기를 포함한 냉동장치, 진공펌프시스템과 자동화 및 자동 제어 장치 등으로 구성되는데, 노즐에 의한 원액의 방향과 진공류의 흐름이 같이 수직하강 하는 수직하강병류형과 노즐에 의한 원액의 방향과 진공류의 흐름이 같이 수직상승 하는 수직상승병류형으로 구분할 수 있다.

이러한 2가지 방법에 의한 분무(진공)동결건조 방법은 기본 원리는 동일하다. 즉, 액체 상태의 원료를 진공챔버 내에 분무시킴으로써 동결된 미립자로 형성되어지며, 동결된 미립자는 컨베이어에 의해 이동되면서 적외선 가열기를 통해 적절한 승화열을 공급받음으로써 원료가 분무 후 건조 완료까지의 과정이 1분 이내로 이루어진다. 분쇄 과정이 필요 없는 분말 상태로 건조 완료된 분말은 진공 상태의 용기에 저장된다.

또한 건조중 피건조물의 온도와 수분함량 변화에 영향을 주는 인자는 아래 그림과 같이 축약할 수 있다. 근본적인 제어 대상은 분무량, 진공펌프, cold trap 온도, 히터,

벨트 속도로 나타나는데 실용성을 감안할 때 진공펌프 성능, cold trap 온도, 벨트 속도는 일정하게 고정시키고 분무량과 히터 가열만을 대상으로 제어한다. 이때 피건조물 온도의 목표값은 붕괴, 분말의 sticking을 방지하도록 인공 지능에 의한 스케줄로 작성된다.

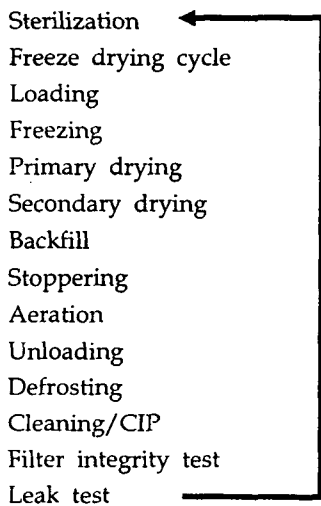
Fig. 2는 수직상승병류형 분무동결건조기와 수직하강 병류형 분무동결건조기의 개념도를 보여주고 있다.

3. 분무동결건조기의 설계

3.1 분무동결건조 사이클

해양심층수의 제염 및 유용물질 추출용 분무 진공동결 건조에서의 주요 공정은 분무, 냉동, 진공, 건조이며, 이때 필요한 주요 장치로는 분무장치, 냉동 장치, 진공 장치, 수증기 포집 장치, 가열 장치, 제상 장치 및 이들을 효과적으로 운전하기 위한 측정 및 제어 장치를 들 수 있다.

이러한 장치들을 이용한 진공 동결 과정은 다음과 같은 사이클을 형성한다.



3.2 분무동결건조 장치의 기본 설계

(1) 냉동 장치

냉동장치로는 압축식 사이클을 이용하는 냉동기가 주로 사용되는데 건조품에 따라 -40°C ~ -80°C 의 저온이 요구되며, 건조가 진행되는 동안 냉동부하가 계속 변화하므로 부분부하의 특성이 우수한 것이 좋다. 그리고 장치의 소형화, 신뢰성, 운전 경비의 경감 등을 위해서는 사용냉매의 선정이 중요하다. 냉매로서는 다음과 같은 성질을 가지는 것이 유리한 것으로 알려져 있다. 즉,

- 1) 포화증기압력 및 온도가 낮은 것
- 2) 압축비가 낮은 것
- 3) 냉동톤당 흡입냉매 증기량이 적은 것
- 4) 점성은 작고 열전도율은 우수한 것

등이다. 최근에 1개의 압축기와 혼합냉매를 사용함으로

써 장치가 간단해지고, -150°C 의 증발온도를 얻을 수 있는 Single compressor 혼합냉매 냉동기에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.

본 연구에서는 수증기 포집용 냉동기로서는 single compressor 혼합냉매 냉동기를 사용하였으며, 혼합냉매는 R123 200g, R12, R23, R14 등으로 구성되어 있다. 또한 선반온도 조절용 냉동기로서는 R402b(HP81, Dupon사) 냉매를 사용하는 2단 압축 냉동 방식으로 구성되어 있다. 냉매 중에 R12와 R402b 등은 오존층 파괴와 지구 온난화 물질로 규정되어 규제되고 있어서 대체냉매를 이용할 예정이다.

(2) 수증기 포집장치

수증기 포집장치는 대량의 수분을 제거하는 장치로서 간단한 방법으로는 드라이아이스, 아세톤, 액체질소 등의 냉각제를 이용하는 것이 있으며 이는 간단한 실험장치에 널리 사용된다. 일반적으로는 냉동기에 의한 냉각 방법, 즉 cold trap 방식이 많이 이용되고 있다. 분무동결건조장치는 냉각과 가열건조과정이 분리되어 있으므로 냉매를 직접 팽창시키는 방법을 채택한다.

(3) 진공 장치

진공장치의 핵심인 진공펌프는 냉동이 끝난 건조실 내부의 압력을 급속히 떨어뜨릴 수 있을 만큼의 충분한 것이 유리하다. 그리고 건조가 진행되는 동안에는 피건조물에 함유된 불응축 가스를 충분히 제거하여 수분이 액체 상태로 변하지 않도록 진공도를 유지할 수 있어야 한다. 진공펌프는 그 종류에 따라 작동범위가 다르게 나타나며 이 때 적용되는 물리적 법칙 또한 다양하다. 진공펌프를 선정할 경우에는 다음과 같은 요소들을 고려하여야 한다.

- 1) 최저 압력(lowest pressure)
- 2) 압력 범위(pressure gauge)
- 3) 배기 속도(pumping speed)
- 4) 배기 압력(exhaust pressure)

(4) 건조실(Drying chamber)

$-50 \sim 127.5^{\circ}\text{C}$ 와 진공, 고압(2.5bar_a)에 적절한 구조와 재료를 사용하며, Condenser와 Drying chamber 사이에 복사 열손실 감소용 Radiation shield 채택한다.

(5) 이송장치

이송속도는 0.1 - 5 m/min.로 설계하였으며, 이송모터축 실링은 dynamic seal(viton O-ring 사용)을 사용한다.

(6) 분무노즐

초음파 노즐을 사용한다.

(7) 기타

그 외에 Chamber isolation valve, 고압 증기에 의

한 제상장치를 설계하였으며, 마지막으로 분무동결건조시스템의 누설시험을 수행한다.

4. 분무동결건조기 및 성능시험장치 제작

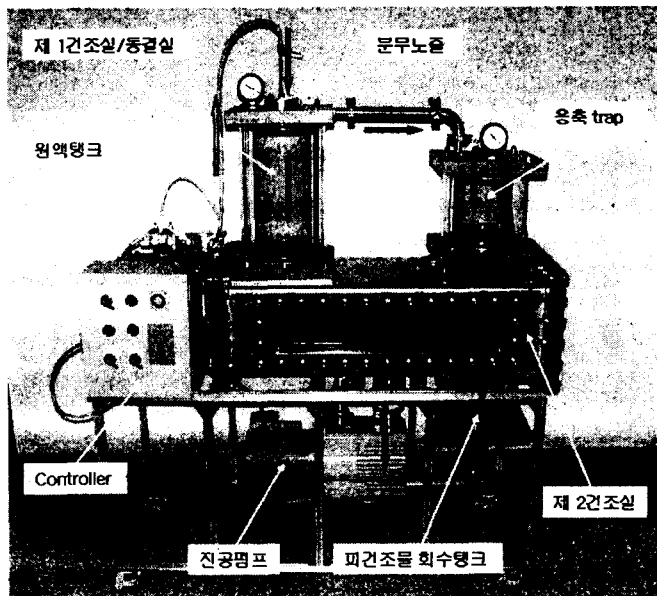
Photo 1은 건조전 분무용량 0.5kg/day급 해양심층수 유용물질 추출용 분무동결건조기의 개략 도면을 보여주고 있다. 기존의 진공동결건조기와는 달리 동결과 1차 건조가 동시에 이루어지도록 미세분말(입경 5 - 20 μm) 제조를 위한 분무노즐 및 이송, 건조장치로 구성된 2차 건조장치 및 cold trap을 1차와 2차로 구성하여 설계, 제작 하였다.

Fig. 3은 분무동결건조기 1차 시작품의 성능실험을 위한 성능시험장치의 개략도를 나타내고 있다. 1차 건조실, 2차 건조실, cold trap, 2원 냉동기 및 진공탱크 배관라인 등의 각 부위에 압력 및 진공도 센서, 온도센서와 유량센서 등을 설치하였다. 이러한 센서들로부터의 데이터는 Labview 또는 D/A converter 등을 이용하여 취득, 해석하였으며, Labview 또는 PLC를 이용하여 이송, 진공도, 원적외선 히터 및 2원 냉동기 등의 온도 등을 제어 가능하도록 구성하였다.

Photo 1은 건조전 분무용량 0.5kg/day급 분무동결건조기 1차 시작품의 사진을 보여주고 있다.

분무동결건조기 제작품에 대한 성능 실험은 다음의 3가지 순서대로 수행 하도록 한다.

- ① Installation test
- ② Operation test
- ③ Function test



- : 원액
- : 수증기
- : 건조품

Photo 1 Photograph of the 0.5kg/day spray-freeze dryer

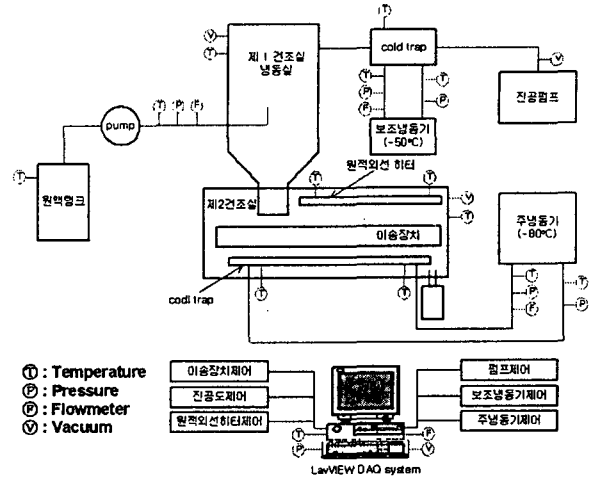


Fig. 3 Test apparatus of the spray-freeze dryer

Installation test에서는 분무진공동결장치의 구조, 재료와 타당성을 검토하고, operation test에서는 분무진공동결건조기의 기본 작동에 대한 성능 실험을 수행한다. 여기에서는 먼저 건조실 및 배관라인 등의 누설시험을 수행하고, 1차 건조실, 2차 건조실, cold trap, 2원 냉동기 및 진공탱크 배관라인 등의 각 부위에 압력 및 진공도 센서, 온도센서와 유량센서 등을 측정하여 작동 이상 유무 및 기본 성능 실험을 수행한다. 그리고 이송장치, 진공도, 승화열 공급 히터 및 2원 냉동기 등의 온도 등의 제어 기능을 점검한다.

또한 Function test에서는 분무진공동결건조기의 핵심부품인 2원 냉동기의 냉동성능실험 및 최적 고효율화에 대한 시험을 수행한 뒤, 주요 작동변수에 따른 동결 및 건조 특성을 분석하고, 건조 용량, 건조 시간 등을 측정하며, 건조 제품의 최적 건조 방법에 대한 건조 제어 실험을 수행한다.

5. 결 론

이상과 같이 해양심층수의 소금 제조 및 유용물질 추출용 분무동결건조기의 개발을 위해 각 부품들에 대한 기초 설계안을 준비하여 설계도면을 구성하였으며, 진공과 분무 기술 등을 이용하여 1차 시작품을 제작하였다.

향후 제작된 분무동결건조기에 대한 설치 시험, 작동시험 및 기능 시험을 통하여 설계의 타당성을 검토하고, 문제점을 수정 보완하여 그 결과를 제시하고자 한다.

후 기

본 연구는 해양수산부와 한국해양연구원의 지원으로 수행된 연구결과 중 일부분을 밝히며, 연구비 지원에 감사드립니다.

참 고 문 헌

Y.F. Maa, etc.(1999), "Protein Inhalation Powders: Spray Drying vs Spray Freeze Drying", *Pharmaceutical Research*, Vol. 16, No.2, pp. 249-254

1. Laipis, A. I. and Bruttini, R.(1995), Freeze drying of pharmaceutical crystalline and amorphous solutes in vials: Dynamic multi-dimensional models of the primary and secondary drying stages and quantitative features of the moving interface, *Drying technol.*, 13, pp. 43-72.

Van Zyl, A.(1988), The application of freeze drying in chemical processing industry, *ChemSa*, pp. 182-184.

2004년 10월 19일 원고 접수

2004년 월 일 최종 수정본 채택