

원판틀형 역삼투 시스템의 투과성능

노 상 호 · 이 종 일 · 김 영 채 · 배 성 렬 · 정 건 용*

한양대학교 화학공학과, *서울산업대학교 화학공학과
(2000년 10월 7일 접수, 2000년 11월 5일 채택)

Separation Performance of Disc Plate and Frame Type Reverse Osmosis System

Sang-Ho Noh, Jong-Il Lee, Young-Chai Kim, Seong-Youl Bae, and Kun-Yong Chung*

Department of Chemical Engineering, Hanyang University, Sa1-dong, Ansan-si, Kyunggi-do 425-791, Korea
*Department of Chemical Engineering, Seoul National University of Technology, Kongneung-dong, Nowon-gu, Seoul 139-743, Korea

(Received October 7, 2000, Accepted November 5, 2000)

요 약 : 공급수가 원판틀형 모듈에 잘 분포될 수 있는 역삼투형 하우징(HY)을 개발하여 실제 제작하였으며 상용화된 Rochem(RC)시스템과 투과성능을 비교하였다. 자체 개발한 HY시스템은 RC시스템에 비하여 투과유속이 약간 떨어지는 반면, NaCl 배제율은 전반적으로 높았다. 원판틀형 모듈인 type A, B, C에 대한 투과유속 및 배제율을 NaCl, sucrose 및 butanol 수용액으로 측정하였다. NaCl 및 sucrose의 경우, type C, A, B의 순으로 투과성능이 우수하였으나 butanol의 경우는 type B, C, A 순이었다. Type A에 대한 type C의 butanol 투과유속은 농도가 감소할수록 그리고 28 bar 범위내에서 운전압력이 증가할수록 향상되었다.

Abstract : The reverse osmosis membrane housing(HY) was developed for excellent distribution of a feed solution, and the separation performance was compared with the commercialized Rochem(RC) system. The permeation flux of HY system was a little lower than that of RC system. On the other hand, the NaCl rejection ratio was generally higher. Also, the permeation flux and rejection ratio for type A, B and C modules(disc plate and frame type) were measured using NaCl, sucrose and butanol solutions. The separation performance of type C module for NaCl and sucrose solutions was the most effective, and then those of type A and B were followed, respectively. However, the separation performance for butanol solution was type B, C and A order. The flux improvement ratio of type B to A increased as butanol concentration decreased or operating pressure increased up to 28 bar.

1. 서 론

역삼투 기술은 수십내지 수백기압으로 용액을 가압하여 각종 염이나 유기물질을 분리하거나 농축하는데 효율적으로 이용되는 방법이다. 역삼투법은 분리막을 사용하여 각종 용질을 분리하므로 확산계수가 작은 용질은 불가피하게 분리막 표면에 축적하여 농도분극화 현상을 유발하거나 분리막을 오염시킨다. 특히 분

리막 근방에는 매우 안정한 경계층이 형성되며 이러한 경계층은 역삼투 공정에서 주요 투과 저항요인이 되기도 한다. 따라서 장시간에 걸쳐서 높은 투과유속과 용질 배제율을 유지할 수 있는 역삼투 시스템을 개발하기 위하여 학계 및 산업체에서 매우 활발히 연구를 하고 있다. 그 중에는 막표면의 성질을 친수성 또는 친유성으로 개질시켜 용질 또는 입자가 막표면에 붙으려는 현상을 감소시키는 막소재 관련 기술, 농

도분극이나 막오염 현상을 주로 유발하는 물질을 적절하게 전처리하여 분리막 공급용액중에서 제거하는 방법, 그리고 효율적인 역세척 운전을 하거나 경제적인 분리막 세척등의 운전방법의 개선 등이 있다[1, 2]. 또한 분리막 모듈내에 난류 촉진물을 삽입하거나 유체역학적으로 난류를 자연스럽게 유발시킬 수 있는 모듈의 개발 또는 공급유속을 증가시켜 난류영역에서 운전을 하기도 한다[3-5]. 그러나 이상의 각종 방법은 막모듈 제작 비용의 증가, 대용량의 막모듈 시스템 scale-up 문제 또는 동력비 내지는 각종 약품비 등의 운전비 증가 등으로 산업체에 응용하는데에 아직까지 한계가 있다.

본 연구에서는 판틀형 역삼투 시스템을 설계함에 있어서 공급수의 유체 흐름 분포를 향상시킬 수 있는 하우징(housing)을 설계하고 또한 분리막 근방에서 효과적으로 난류를 유발시켜 농도분극화 현상이나 막오염을 감소시킬 수 있는 각기 다른 세가지 형태의 모듈을 제작하여 실험하였다. 각각의 하우징과 모듈에 대한 투과유속과 용질 배제율을 측정, 평가하고 상품화된 독일 Rochem사의 역삼투 원판틀형 모듈과 비교하여 최적의 하우징과 모듈을 설계하고자 하였다.

2. 실험

2.1. 장치설계 및 제작

2.1.1 역삼투 하우징

원료수의 공급 방식과 유체흐름의 형태를 시각적으로 규명하기 위하여 투명한 아크릴로 역삼투 하우징을 제작하였다. 먼저, 상용화된 독일 Rochem사(모델명: RORO 100-DT)의 시스템과 같은 방식으로 Fig. 1과 같이 joining flange 부분을 제작하였다. 공급수를 시스템내로 공급하면서 주사기를 사용하여 간헐적으로 노란색 잉크를 주입하여 공급수가 공급되는 유체의 이동경로를 확인하였다. RC 시스템은 한쪽면에서 공급되는 방식이기 때문에 공급수가 공급되는 반대편에 유체가 흐르지 않는 사각지역이 확인되었다. 따라서 이러한 문제를 보완하기 위하여 공급수가 여덟 방향으로 잘 분사되도록 joining flange 부분을 새롭게 제작하였다. 유체 흐름의 distribution을 개선하기 위해 설계 제작된 이 시스템은 구조적인 면에서 한 부분으로 이루어져 있던 것이 Fig. 2와 3에서 보는 바와 같이 상단과 하단의 두부분으로 나누어지게 되었다. 이 경우 노란색 잉크를 주입하면서 공급수의 이동 경로를 확인한 결과, RC 시스템에서 나타났던 사각지역은 나타나지 않았으며 비교적 공급수가 잘 분포되어 흐름을 확인할 수 있었다. 이상에서와 같이

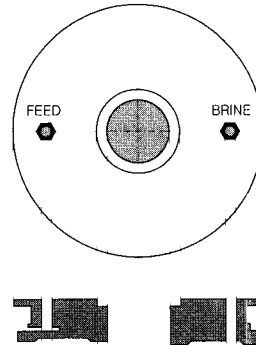


Fig. 1. Drawing of rochem joining flange(top and cross sectional view).

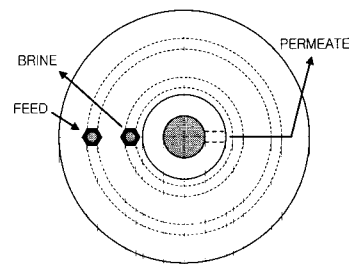


Fig. 2. Top of HY joining flange(top and cross sectional view).

시각적으로 유체의 흐름을 확인한 후, 수십 기압으로 가압할 수 있도록 stainless steel로 하우징을 제작하여 사용하였다.

2.1.2 원판틀형 모듈

원판틀형 모듈의 투과성능에 관한 수치모사 실험결과[6]를 바탕으로 Fig. 4와 같은 type A, B, C의 세가지 형태 모듈을 제작하였다. 공급수는 원판틀형내를 흐르면서 모듈 표면에 설치된 장애판(baffle)에 의하여 자연스럽게 난류를 형성하게 되고 이는 분리막 표면의 입자를 용액내로 보다 용이하게 재혼합시켜 투과성능을 향상시키는 역할을 한다. 원판틀형 모듈의 재질은 가벼우면서 기계적 강도와 내약품성이 우수한

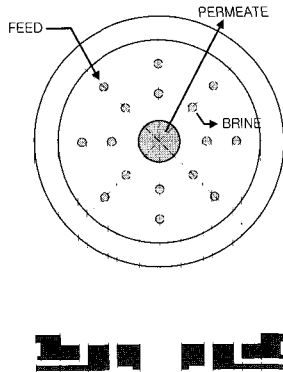


Fig. 3. Bottom of HY joining flange(top and cross sectional view).

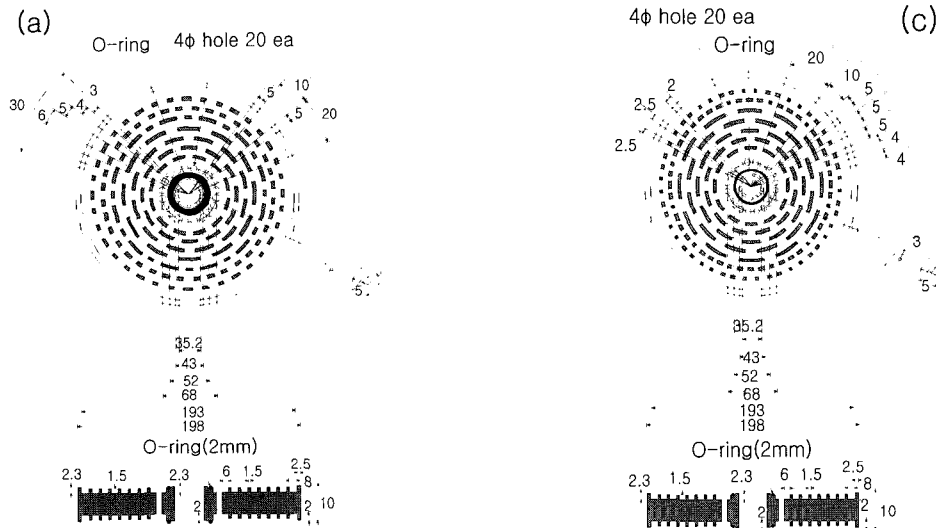


Fig. 4. Schematic drawing of disc plate and frame type modules: (a) Type A, (b) Type B and (c) Type C.

polycarbonate 수지로 제작하였다. 분리막과 모듈이 강하게 접촉할 경우, 막표면이 손상될 수 있으므로 막과 모듈 사이의 간격을 1 mm 정도로 유지하였으며, 장애판과 장애판사이를 1.5 mm의 두께로 가공하여 유체가 흐를 수 있도록 하였다. 막을 통과한 투과액과 농축액이 혼합되지 않도록 모듈의 중심부에 O-ring을 두어 밀봉하였으며, 모듈 외곽의 높이를 압축할 시에 모듈과 모듈이 밀봉될 수 있도록 설계하였다. 또한, 모듈 중앙에는 4 mm의 작은 구멍 20개를 만들어 농축액이 다음 단으로 흐를 수 있도록 하였다.

2.1.3. 원판틀형 시스템

역삼투 시스템은 Fig. 4와 같은 원판틀형 모듈을

각각 10장까지 적층하고, 중앙에 tension rod에 압력을 가하여 Fig. 5와 같이 조립하였다. 원판틀형 모듈 사이에는 가장자리가 8각 형태로 용접되어 있는 역삼투막이 설치되어 있다. 따라서 공급수는 모듈의 중심으로 공급되며 바깥 원주방향으로 일정하게 분산되어 흐르면서 분리막 표면에서 투과액과 농축액으로 분리된다. 이상의 농축액은 원주 근처에서 8각형태의 분리막과 원형 모듈사이에 형성되는 활 모양의 빈공간에서 180° 회전되며 반대편의 분리막 표면과 접촉하면서 다시 원 중심부로 흐른다. 원 중심부에서는 그 다

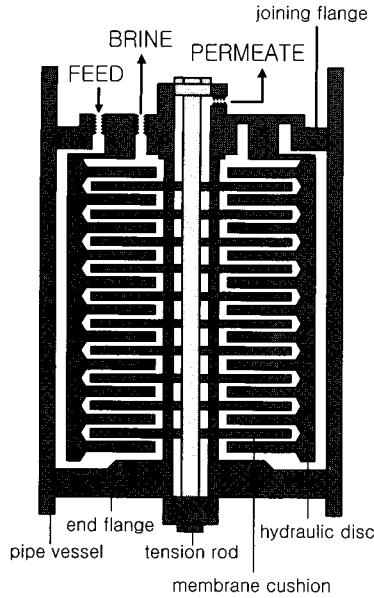


Fig. 5. Schematic drawing of disc plate and frame type module and housing.

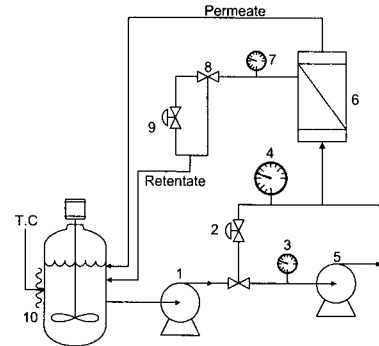
음 모듈의 중심부로 들어가며 이상의 방법으로 순차적으로 반복하여 최종 모듈까지 흐른다. 한편 투과액은 모듈의 중심부로 모여지며 tension rod 내에 공간으로 수집되어 배출된다.

2.2. 실험재료

본 실험에서 사용한 시료는 NaCl(동양화학), sucrose(제일제당), butanol(동양화학)이며, 수용액을 만들기 위한 물은 Rochem사의 역삼투 시스템(RORO DT-100)으로 제조한 초순수를 사용하였다. 또한 역삼투막은 FilmTec사의 polyamide 복합막으로 가장자리가 8각 형태로 초음파 용접되어 있으며, 분리막사이에는 투과액이 원활히 흐를 수 있도록 polyester spacer가 삽입되어 있다. 중심에는 4.5 cm 가량의 구멍이 존재하므로 분리막 사이에 spacer를 통하여 흐른 투과액이 분리막 외부로 배출될 수 있다. 따라서 양면을 분리막으로 사용이 가능하며, 유효 단면적은 434 cm² 이다.

2.3. 실험장치

설계 제작한 역삼투 시스템의 투과성능을 측정하기 위하여 Fig. 6과 같은 실험장치를 제작하였다. 대기압 상태의 원료용액을 기동 펌프(1), 금성사/PWN-262D)로 1차 가압한 후, 역삼투 시스템의 운전압력까지 고압 펌프(5, Cat pump/247)로 가압하여 역삼투 모듈(6)에 공급하였다. 역삼투 모듈의 투과수는 투과



- 1. Booster pump
 - 2. Recovery valve
 - 3. Low pressure gauge
 - 4. High pressure gauge
 - 5. High pressure pump
 - 6. Membrane module
 - 7. Pressure drop gauge
 - 8. Regulating valve
 - 9. Bypass valve
 - 10. Reservoir
- T.C : Temperature Controller

Fig. 6. Schematic flow diagram for reverse osmosis system.

유속을 측정 후 reservoir(10)로 회수되었고 농축수 역시 회수하여 원료용액의 농도를 일정하게 유지하였다. 고압펌프로 인한 원료용액의 온도 상승을 막기 위하여 항온순환기(Eyela/CTP-301)를 사용하여 원료용액의 온도가 25℃로 일정하게 유지되도록 하였으며 역삼투 모듈에 공급되는 유량과 압력은 기동 펌프와 고압 펌프 사이에 있는 bypass valve(2)를 사용하여 용이하게 조절할 수 있었다.

2.4. 실험방법

먼저 초순수 30 L를 reservoir에 넣은 후 기동펌프와 고압펌프를 가동하여 system이 정상상태가 될 때까지 최대압력 35 bar에서 1시간 가량 운전하였다. 다음에 원료용액을 reservoir에 넣고 10 에서 35 bar까지 2.5 bar씩 압력을 증가시키면서 투과실험을 실시하였다. 각각의 압력에서 약 20분간 순환시켜 system을 정상상태에 도달하도록 한 후, 투과수의 유량과 농도를 측정하였다. NaCl, sucrose 및 butanol 수용액을 각각 1, 2 및 3 wt%로 제조하여 실험하였으며 투과유량은 100 mL를 받는데 소요되는 시간으로부터 계산하였다. 각 용액의 농도는 다음과 같은 방법으로 측정하였다. NaCl 수용액의 농도는 전기전도계(Kyoto Electronics/CM-117)를 사용하였으며 sucrose와 butanol 수용액은 굴절계(Atago/Abbe type 3T) 및 GC(Hewlett Packard 6890)로 각각의 농도를 측정하였다.

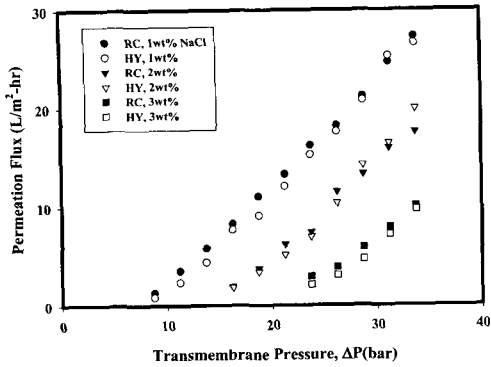


Fig. 7. Permeation flux in terms of operating pressure and NaCl concentration for RC and HY housings.

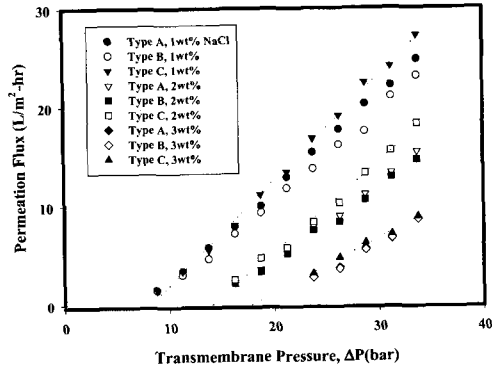


Fig. 9. Permeation flux in terms of operating pressure and NaCl concentration for type A, B and C.

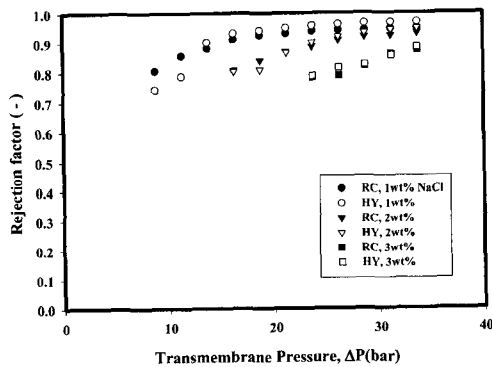


Fig. 8. NaCl rejection in terms of operating pressure and NaCl concentration for RC and HY housings.

3. 결과 및 고찰

3.1. 하우징이 분리성능에 미치는 영향

기존의 상용화된 독일 Rochem사의 분리막 모듈 하우징(RC)과 이를 보완하여 자체 제작한 HY 하우징의 분리성능을 비교하였다. 각각 1, 2 및 3 wt%의 NaCl 수용액으로 투과 유속과 제거율을 비교하는 실험을 실시하였으며 그 결과를 Fig. 7과 8에 나타내었다.

본 연구에서 사용한 용질 배제율(rejection factor)은 다음과 같이 공급용액 농도 (C_f)와 투과용액의 농도(C_p)를 사용하여 계산하였다.

$$R = 1 - \frac{C_p}{C_f} \quad (1)$$

예상과는 달리 HY 하우징의 투과유속은 2 wt% NaCl 수용액으로 운전압력이 28 bar보다 높은 조건인 경우를 제외하고는 RC 하우징의 투과유속보다 비교적 낮았으나 운전압력이 증가하면서 그 차이는 점차 줄어들었다. 그러나 Fig. 8에서와 같이, HY 하우징의 염배제율은 1, 2 wt% NaCl 용액의 15 내지 20 bar 저압 운전의 경우를 제외하고는 전반적으로 높게 나타남을 확인할 수 있었다.

3.2. 장애판의 배열에 따른 분리성능

장애판 배열에 따른 모듈의 분리성능 비교 실험은 본 연구에서 설계 제작한 HY 하우징으로 수행하였다. 먼저 Fig. 4과 같은 type A, B, C의 원판틀 사이에 역삼투막을 삽입시킨 후 이들을 각각 5개씩 적층하여 HY 하우징내로 조립하였다. Type A, B, C 모듈에 각각 1, 2, 3 wt%의 NaCl, sucrose 및 butanol 수용액을 공급하여 운전압력에 따른 투과유속과 용질의 배제율을 측정하였다.

NaCl 수용액에 대한 투과유속은 Fig. 9에 나타내었다. NaCl의 농도가 증가함에 따라서 막 표면에서 일어나는 농도분극화 및 막오염 현상이 증가하게 되고 수용액의 삼투압 역시 농도에 비례하여 증가하므로 투과유속이 급격히 감소함을 확인할 수 있었다. Type C에 대하여 투과유속이 0인 x 축까지 외삽하면 1, 2, 3 wt% 용액에 대하여 각각 약 8, 14, 18 bar 이었다. 이것은 NaCl의 삼투압에 기인하는 것으로 NaCl 삼투압 자료[7]와 비교하면 20% 범위내에서 일치함을 알 수 있었다. 1 wt% NaCl 수용액에 대하여 type A, B, C의 투과유속을 비교하면 type C에 대한 투과유속이 가장 높게 나타났으며 그 다음 순으로 type A,

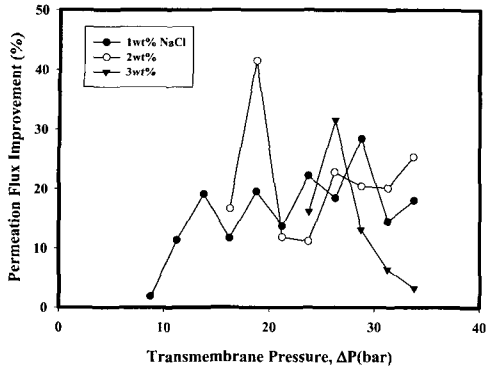


Fig. 10. Permeation flux improvement of type C to type A for NaCl solutions.

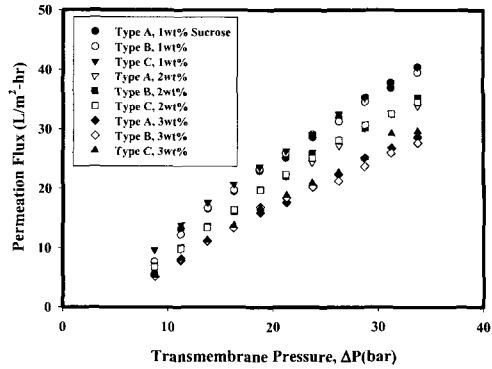


Fig. 12. Permeation flux in terms of operating pressure and sucrose concentration for type A, B and C.

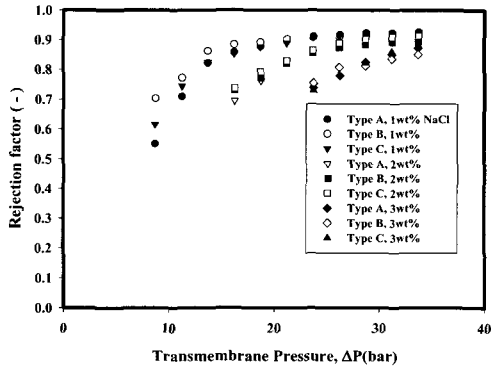


Fig. 11. NaCl rejection in terms of operating pressure and NaCl concentration for type A, B and C.

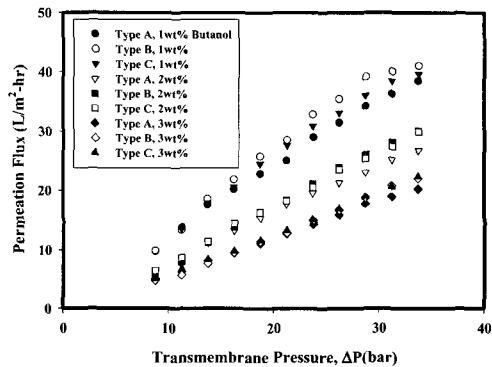


Fig. 13. Permeation flux in terms of operating pressure and butanol concentration for type A, B and C.

B이었다. 또한 투과유속이 가장 낮은 type A에 대한 type C의 투과유속 향상율을 식 (2)와 같이 정의하고 Fig. 10에 나타내었으나, 운전압력 또는 NaCl 수용액 농도에 따른 type C의 투과유속 향상율의 경향은 명확하지 않았다. 전반적으로 농도가 낮은 1, 2 wt% NaCl 수용액에서는 운전압력이 증가함에 따라서 type C의 투과유속 향상율이 증가하는 경향을 보였으나 3 wt% NaCl 수용액에서는 오히려 운전압력에 따라서 감소하였다. 또한 type A, B 및 C에 대한 NaCl 배제율을 Fig. 11에 나타내었다. Fig. 8에서와 같이 운전압력이 증가함에 따라서 배제율이 증가하였으며 type A, B, C의 배제율도 거의 비슷하게 유지되었으나 고압 운전시 type C의 배제율이 다소 높았다.

$$\text{permeation flux} = \left[\frac{(\text{permeation flux})_{\text{typeC}} - (\text{permeation flux})_{\text{typeA}}}{(\text{permeation flux})_{\text{typeA}}} \right] \times 100(\%) \quad (2)$$

1, 2, 3 wt% sucrose 수용액에 대한 투과유속은 Fig. 12에 나타난 바와 같다. NaCl 수용액에서와 같이 type C, A, B순으로 투과유속이 높았으나 type C의 투과유속 향상율은 감소하였다. 또한 sucrose의 삼투압은 NaCl에 비하여 훨씬 작으므로 그 영향이 크게 감소하였으며, 배제율은 운전압력과 농도변화에 무관하게 모든 조건에서 95% 이상으로 높게 유지되었다.

Butanol 수용액에 대한 type A, B, C의 투과유속은 Fig. 13에 나타난 바와 같다. NaCl, sucrose 수용액 투과시 투과유속이 가장 낮았던 type B의 투과유속이 오히려 가장 높게 나타났으며, 그 다음 순서로 type C와 A이었다. Type A에 대한 type B의 투과유속 향상율을 계산하여 Fig. 14에 나타내었다. 운전압력 28 bar까지는 type B의 투과유속 향상율이 증가하였으나 압력이 증가하면서 향상율 증가가 둔화되

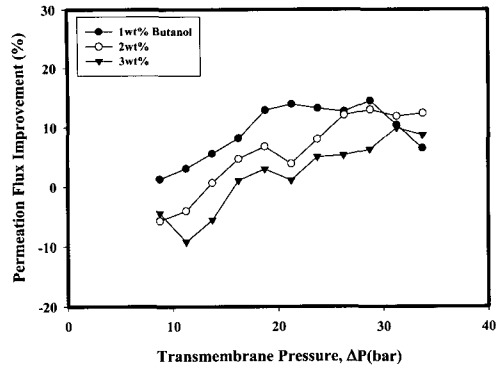


Fig. 14. Permeation flux improvement of type B to type A for butanol solutions.

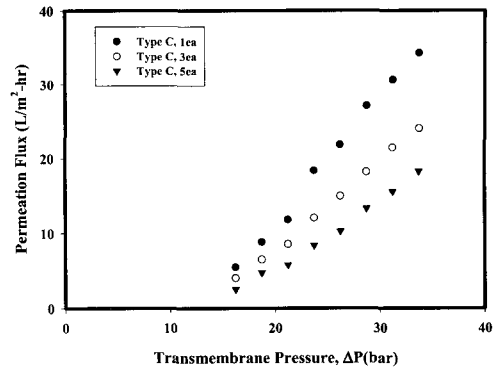


Fig. 16. Membrane module(type C) stack effect on permeation flux for 2 wt% NaCl solution.

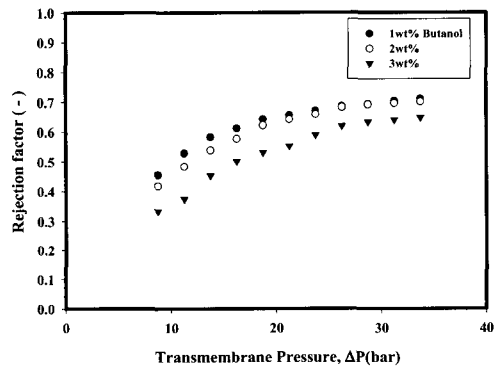


Fig. 15. Butanol rejection in terms of operating pressure and Butanol concentration for type C.

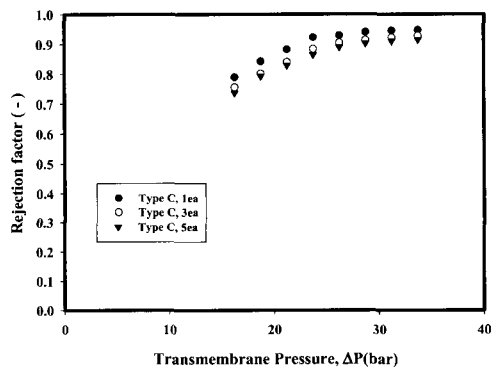


Fig. 17. Membrane module(type C) stack effect on NaCl rejection for 2 wt% NaCl solution.

있으며 28 bar 이상에서는 오히려 향상율이 감소하였다. 특히 2, 3 wt% butanol 수용액의 경우, 운전압력이 13 bar 이하일 때 향상율이 음수를 나타내었는데, 이는 type A의 투과유속이 오히려 type B보다 높음을 의미한다. 또한 butanol 수용액의 농도가 증가함에 따라서 type B의 투과유속 향상율은 감소하였다. Type C에 대한 butanol 배제율은 Fig. 15에 나타낸 바와 같다. 1 wt%, 34 bar에서의 배제율은 71%이었으며, 운전압력이 감소할수록 또는 농도가 증가할수록 배제율은 감소하였다.

3.3. 모듈수에 따른 분리성능

막모듈의 수에 따른 분리성능의 비교 실험은 HY 하우스징과 type C 모듈을 사용하여 수행하였다. NaCl 수용액 2 wt%에 대해서 모듈의 수를 1개와 3개, 그리고 5개로 나누어 실험하였으며 투과유속과 배제율을 Fig. 16과 Fig. 17에 각각 나타내었다. 여러 개의 모

듈을 적층하여 투과시킬 경우, 첫번째 모듈을 통과한 농축액이 두번째 모듈을 통과하는 공급수가 되므로 모듈의 갯수가 많아짐에 따라서 각각의 모듈에서 유입농도가 순차적으로 증가하기 때문에 투과유량은 감소된다. 또한 공급수가 1개와 3개, 그리고 5개로 적층된 모듈을 통과할 수록 NaCl 배제율이 감소하였으며 이는 직렬로 연결된 모듈을 통과하면서 각각의 모듈에 공급되는 NaCl 수용액의 농도가 증가하여 Fig. 8과 11에서와 같이 배제율이 감소한 것으로 판단된다.

4. 결론

본 연구에서 설계 제작한 HY 및 Rochem사의 하우스징이 투과성능에 미치는 효과를 비교, 검토하였으며 장애판의 형태가 서로 다른 type A, B, C 모듈에

NaCl, sucrose 및 butanol 용액을 공급하여 투과유속을 비교하였고 그 결과를 요약하면 다음과 같다.

1) Rochem사의 하우징에서는 공급수가 공급되는 반대편에서 유체가 흐르지 않는 이른바 사각지대가 관측되었으나, HY(Hanyang) 하우징의 경우에는 공급수가 잘 분포되어 흐름을 확인할 수 있었다.

2) HY 하우징에 대한 1, 2, 3 wt% NaCl 수용액의 투과유속은 2 wt%, 28 bar 보다 높은 운전압력에 서만 RC(Rochem) 하우징보다 우수하였고, 염배제율은 15 내지 20 bar 저압 운전의 경우를 제외하고는 전반적으로 RC 하우징보다 높게 나타났다.

3) 세가지 형태의 장애판을 지닌 type A, B, C에 대한 투과유속은 1, 2, 3 wt% NaCl, sucrose 및 butanol 수용액으로 측정하였다. NaCl 및 sucrose 수용액의 경우 type C가 가장 높은 투과유속을 나타내었으며 그 다음으로 type A 그리고 B이었다. Sucrose의 투과유속 향상율은 NaCl보다 작았으며 향상율은 운전압력 또는 NaCl 수용액의 농도에 따라서 일관된 경향을 보이지 않았다. Butanol 수용액에서는 type B가 가장 높은 투과유속을 나타내었고 그 다음순으로 type C와 A이었다. Type A에 대한 type B의 투과유속 향상율은 운전압력에 따라서 증가하였으나 28 bar 이상에서는 오히려 감소하였다. 또한 butanol 수용액의 농도가 증가함에 따라 Type B의 향상율은 감소하였다.

4) HY 하우징내에 막 모듈의 적층수가 증가할수록 평균의 투과유속 및 NaCl 배제율은 감소하였다.

감 사

본 연구는 산업자원부의 에너지기술개발사업의 연구지원으로 수행된 것으로 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. H. B. Winzeler and G. Belfort, *J. Membrane Sci.*, **80**, 35 (1993).
2. J. A. Howell, V. Sanchez, and R. W. Field, "Membranes in Bioprocessing", Blackie Academic & Professional, London, UK (1993).
3. K. Y. Chung, R. Bates, and G. Belfort, *J. Membrane Sci.*, **81**, 139 (1993).
4. K. Y. Chung and E. J. Kim, *Chem. Eng. Comm.*, **153**, 319 (1996).
5. 박민수, 배성렬, 정건용, *멤브레인*, **7(2)**, 75 (1997).
6. S. C. Yi, S. Y. Bae, J. M. Won, and B. H. Ha, The 4th Japan-Korea Symposium on Separation Technology, 1081, Waseda Univ., Tokyo, Japan (1996).
7. S. Sourirajan, "Reverse Osmosis", Academic Press Inc., NY (1970).