

## 배출봉을 이용한 정밀여과용 관형 모듈의 투과특성

최정규·정건용<sup>†</sup>

서울산업대학교 화학공학과

(2009년 12월 2일 접수, 2009년 12월 21일 수정, 2009년 12월 21일 채택)

### Permeation Characteristics of the Microfiltration Tubular Module using the Discharged Rod

Jeong Gyu Choi and Kun Yong Chung<sup>†</sup>

Department of Chemical Engineering, Seoul National University of Technology, Seoul 139-743, Korea

(Received December 2, 2009, Revised December 21, 2009, Accepted December 21, 2009)

**요약:** 공칭 세공크기 0.1  $\mu\text{m}$ 이고 내경이 5 mm인 정밀여과용 관형 분리막 내에 자체 설계한 배출봉을 삽입하여 막오염 감소효과에 따른 투과유속을 측정하였다. 원료용액으로는 에멀전 상태의 dioctyl tin oxide (DOTO) 입자를 사용하였으며 0.5 wt%까지 농도를 변화시키면서 1.6 bar 이내에서 운전하였다. 배출봉의 효과는 매 실험마다 배출봉을 삽입한 경우와 사용하지 않은 경우의 투과유속을 비교하여 평가하였다. 배출봉을 사용할 경우 운전압력 1.6 bar에서 최대 20%의 투과유속이 향상되었다. 또한 DOTO 농도가 증가함에 따라서 배출봉에 의한 투과유속 향상효과는 크게 나타났으며 0.5 wt% 농도에서 43%까지 투과유속이 향상되었다.

**Abstract:** The permeation experiments were carried out for the nominal pore size 0.1  $\mu\text{m}$  and 5 mm inner diameter microfiltration tubular membrane equipped with self-designed discharging rod in order to determine the effect of fouling reduction. Dioctyl tin oxide (DOTO) latex particle was used to prepare up to 0.5 wt% concentration of feed solution, and the experiments were operated within 1.6 bar. The permeation flux effect on the discharged rod was measured as a result of flux comparison between the cases of equipped and non-equipped discharge rod modules for every experiment. The permeation flux for the case using the discharged rod was enhanced to 20% at 1.6 bar operating pressure. The improvement on permeation flux for using the discharged rod was greater as the concentration of feed increased, and reached up to 43% under 0.5 wt% concentration of feed solution.

**Keywords:** tubular membrane, microfiltration, discharged rod, dioctyl tin oxide particles, permeation flux

#### 1. 서론

분리막을 이용한 분리기술은 그 원리와 공정이 비교적 간단하고 적용 범위가 광범위 하여 액체와 기체상의 분리 공정에 많이 이용되는 기술이다. 수처리용 분리막의 투과성능은 미세 기공의 형태 및 크기, 분리막의 물리 화학적 특성, 분리 물질의 특성, 그리고 용액농도, 공급유량, 운전압력 등이 복합적으로 작용하여 결정된다. 분리막 공정은 상변화를 수반하지 않는 저에너지 공정으로 제3의 용매나 침전 또는 부상 등을 위한 첨가제가

요구되지 않는 친환경적 공정으로 운전과 조장이 용이하며 스케일-업이 비교적 간단하여 환경, 에너지, 반도체, 식품 등 산업 전반에 걸쳐 광범위하게 적용되고 있다. 그러나 이상의 여러 가지 장점에도 불구하고 분리막 공정상 불가피하게 막오염이라는 큰 문제를 동반한다. 이러한 막오염 및 농도분극화 현상은 투과유속의 저하와 막여과 공정의 경제성을 크게 저하시키므로 막오염을 최소화할 수 있는 여러 가지 방법이 연구되고 있다 [1]. 이러한 연구에는 분리막 표면의 개질이나 코팅, 플라즈마 처리에 의한 anti-fouling 분리막 제조기술 개발, 공기나 순수 혹은 투과수를 이용한 역세정, 기계적으로 세척하는 물리적 방법, Taylor 또는 Dean 와류 등 유체

<sup>†</sup>주저자(e-mail : kychung@snut.ac.kr)

의 불안정 흐름 등을 이용하거나 공기를 주입하여 세정 효과를 극대화시키기도 한다[2-8]. 또한 디스크형 평판 분리막 사이에 원판을 삽입하여 회전시키거나 또는 진동자를 이용하여 분리막을 진동시키므로 막표면의 오염 물질을 제거하는 방법이 사용된다. 이 밖에 관형 분리막 내에 paddle, static mixer 등 난류 촉진체를 삽입하거나 스펀지 볼을 이용한 세정장치 등 막모듈의 최적 설계 및 운전방법 개선으로 분리막 표면 근방에 난류를 형성시켜 막오염 발생을 감소시킬 수 있다[9-11]. 하지만 이상의 대부분 모듈은 장치화시켜 시스템으로 구성하기가 복잡하며 막면적을 증가시키기가 쉽지 않아 상용화가 활발하지는 않다. 다만 현재까지 회전형 또는 진동형 분리막 시스템은 기존 모듈에 비하여 상당히 고가로 한정적으로 사용되고 있다.

본 연구에서 설계한 연속세정 관형 분리막 모듈에 공급되는 원료용액은 관형 분리막을 통과하는 투과액과 농축액으로 구분되며 그 중 농축액은 모듈 내부에 장착된 배출봉을 통하여 배출되므로 유체는 관형막의 축 방향뿐만 아니라 반경중심 방향으로도 흐르게 된다. 따라서 이러한 유체흐름이 막표면에 축적되는 오염물질을 감소시키므로 투과유속 향상에 미치는 영향을 평가하여 효율적인 관형 분리막 시스템의 운전방법을 제시하고자 한다.

## 2. 실험장치 및 방법

### 2.1. 분리막 및 실험재료

분리막으로는 공칭크기 0.1 μm이고 내경이 약 5 mm, 길이 26.5 cm인 세라믹 관형 정밀여과막을 사용하였다. 투과유속을 측정하기 위하여 사용한 입자는 건설화학에서 특별 제조한 에틸렌 상태의 평균 직경이 5 μm인 dioctyl tin oxide (DOTO) 입자를 사용하였다. 또한 본 실험에서는 수돗물을 공칭 0.5 μm 크기의 전처리용 필터를 통과시켜 순수로 사용하였다.

### 2.2. 실험장치 및 운전방법

투과실험을 위한 장치의 개략적인 흐름도를 Fig. 1에 나타내었다. 먼저 원료탱크(1) 내에 투과실험을 하기 위한 원료용액을 채운 후 펌프(2)로 가압하여 관형막 모듈(6)에 공급하였다. 분리막 모듈 전후에 위치한 압력계(3,7)로 운전 압력을 측정하였으며 유량과 압력은 압력계(7)와 유량계(9) 사이에 설치된 밸브(8)를 조절하여

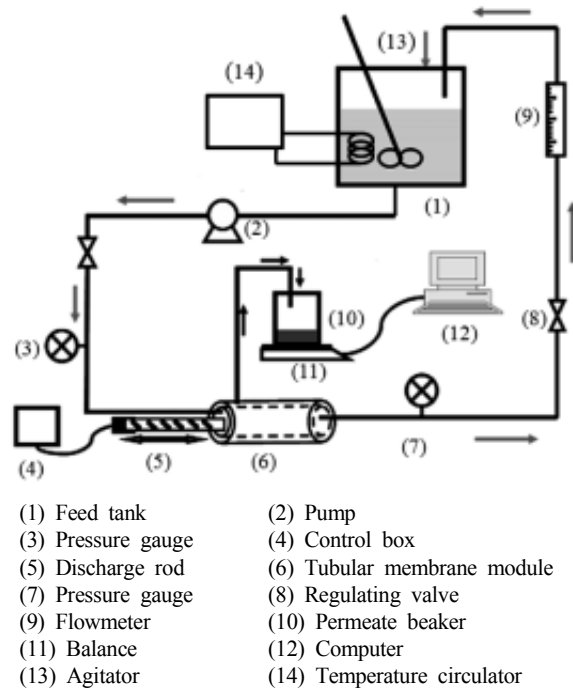


Fig. 1. Schematic diagram of the microfiltration membrane system using the discharging rod in 0.1 μm tubular membrane.

원하는 값으로 유지하였다. 분리막을 투과한 용액은 전자저울(11) 위에 위치한 투과액 용기(10) 내로 수집되며 매 분마다 측정된 무게자료는 전자저울에 연결된 컴퓨터(12)에 저장되었다. 수집된 투과액은 원료용액의 농도를 일정하게 유지하기 위하여 농축수와 함께 원료탱크로 재순환하여 사용하였다. 또한 원료탱크 내에 교반기(13)를 설치하여 용액 내에 입자를 분산시켰으며 항온 순환기(14)를 사용하여 원료용액의 온도를 25 ± 1°C로 일정하게 유지하였다. 그리고 분리막 표면을 효율적으로 세척하기 위하여 관형 분리막 내부에는 일정한 간격(1.7 cm)마다 약 2 mm 크기의 기공이 있는 외경 4 mm, 길이 29 cm의 배출봉(5)을 삽입하였다. 원료 용액은 관형 분리막과 배출봉 사이에 형성된 원환(annulus)를 통하여 흐르며 원환의 반대편 끝부분은 O-링으로 밀봉하였다. 따라서 공급된 원료용액은 관형 분리막을 통과하는 투과액과 배출봉 기공으로 들어와 배출공 내부를 통하여 농축액으로 배출된다. 이 배출봉은 컨트롤 박스(4)와 연결되어 분리막 내부를 연속적으로 왕복 회전운동하면서 모든 관형 분리막의 표면을 배출봉의 기공이 스캐닝(scanning)하게 되고 이 배출봉 기공을 통하여 농축수와 함께 분리막 표면의 오염물질을 운전 중에 자연적으로

세척하도록 설계하였다.

또한 모든 투과실험은 다음과 같이 순차적으로 실시하였다. 먼저 실험실에서 제조한 초순수를 배출봉이 장착되지 않은 관형막에 공급하여 운전압력에 따른 투과유속을 측정하고 이 결과로부터 사용한 관형 분리막의 투과계수를 구하였다. 그리고 회전식 배출봉을 관형 분리막 모듈내에 설치하고 막오염 물질이 포함된 원료 용액을 공급하여 투과유속을 측정한다. 그 후 배출봉을 분리막 모듈에서 제거하고 순수로 관형 분리막을 세척한 후 초순수 투과유속을 측정하여 분리막의 오염 상태를 판단하였다. 마지막으로 회전식 배출봉의 성능을 비교 평가하기 위하여 배출봉을 제거하고 속이 빈 관형 분리막 모듈에 원료용액을 공급하여 투과유속을 측정하고 회전식 배출봉 설치 유무에 따른 투과유속을 비교 분석하였다.

### 3. 실험결과 및 토론

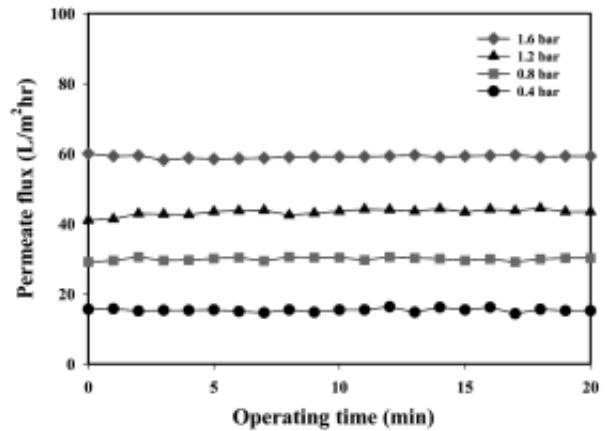
#### 3.1. 순수 투과실험

본 연구에서 사용한 정밀여과용 세라믹 분리막에 대한 순수 투과실험 결과를 Fig. 2에 나타내었다. Fig. 2(a)에서와 같이 각각의 운전압력에서 20분간 순수를 투과하였으며 초기 5분 후에는 투과유속이 안정되어 운전시간에 따라서 일정하게 유지됨을 확인하였다. Fig. 2(b)는 운전압력에 따른 순수 투과유속을 나타낸 그림이며 정밀여과용 세라믹 분리막의 투과도는  $36.2 L/m^2 \cdot hr \cdot bar$ 로 나타났다.

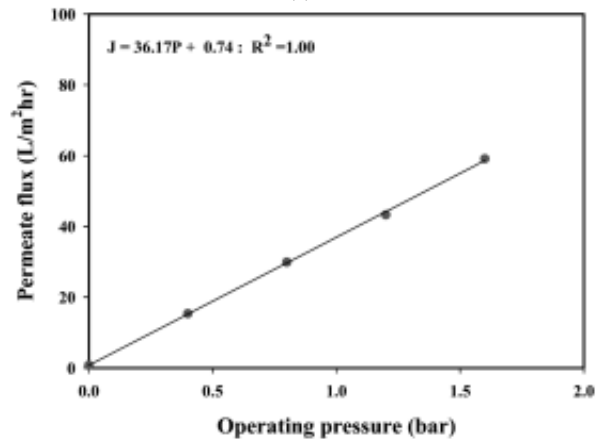
#### 3.2. DOTO 입자 수용액 투과실험

##### 3.2.1. 운전압력에 따른 투과효율

원료용액 중 DOTO 입자 농도를 0.1 wt%, 원료 공급유량을 300 mL/min로 일정하게 유지하고 운전 압력을 0.4, 0.8, 1.2, 그리고 1.6 bar로 변화시키면서 관형관 내에 배출봉 삽입 유무에 따른 투과 실험을 수행하여 그 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 순수 투과실험의 경우와 비슷하게 모든 운전압력 범위에서 투과유속은 운전시간이 경과함에 따라서 큰 차이가 없음을 Fig. 3(a)에서 확인할 수 있었다. 그러나 Fig. 3(b)에서와 같이 운전압력을 증가시키면 투과유속은 증가하였지만, 순수투과와 비교하여 투과유속이 낮게 나타났다. 또한 관형 분리막 내에 배출봉의 효과를 평가하기 위하여 식 (1)과 같이 투과유속 향상율( $E_D$ )을 계산하여 Table 1에 나타내었다.



(a)



(b)

**Fig. 2.** Pure water permeate flux for 0.1  $\mu$ m tubular membrane at  $25 \pm 1^\circ\text{C}$  (a) permeate flux with respect to operating time and (b) permeate flux with respect to operating pressure.

$$E_D(\%) = \frac{J_D - J}{J} \times 100(\%) \quad (1)$$

여기에서  $J_D$ 는 배출봉을 사용할 경우의 투과유속이고  $J$ 는 배출봉이 없는 경우 투과유속을 나타낸다. 배출봉에 따른 투과유속의 향상은 운전압력 1.6 bar에서 최대 20%로 확인되었다. 이와 같은 현상은 압력이 증가함에 따라서 투과유속이 증가하고 분리막에서 제거된 입자가 분리막 표면 근방에 축적되어 자연적으로 막오염이 증가한다. 따라서 배출봉을 사용하면 분리막 근방에 축적된 입자를 보다 효과적으로 제거하여 투과유속이 증가한 것으로 판단된다. 또한 DOTO 제거율은 투과용액의 탁도를 측정하여 결정하였으나 DOTO 입자가 분리막의 세공보다 훨씬 크므로 거의 100%에 도달하였다.

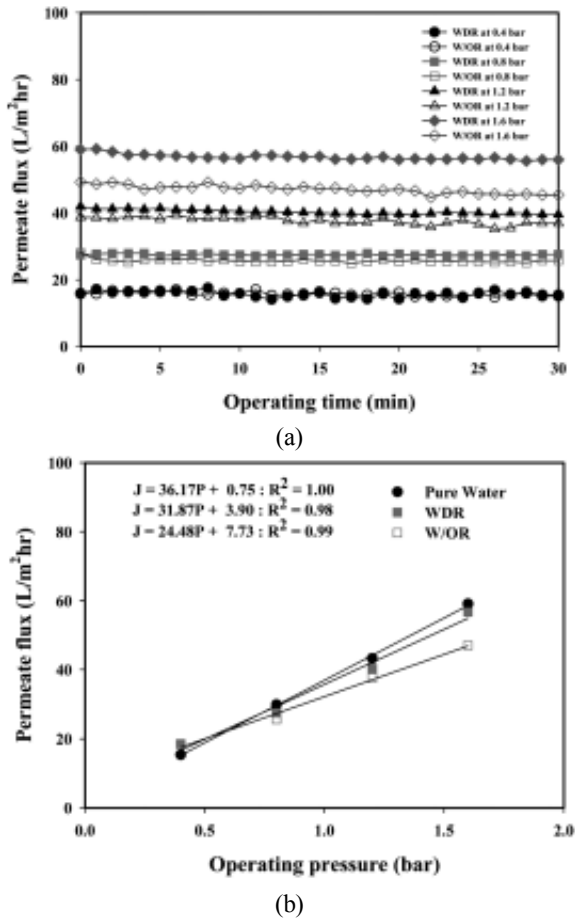


Fig. 3. DOTO latex 0.1 wt% solution permeate flux for 0.1  $\mu\text{m}$  tubular membrane using the discharging rod at  $25 \pm 1^\circ\text{C}$  (a) permeate flux with respect to operating time and (b) permeate flux with respect to operating pressure (WDR : with discharging rod and W/OR : without discharging rod in tubular membrane).

Table 1. Permeate Flux Enhancement for 0.1 wt% DOTO Latex Solution with 0.1  $\mu\text{m}$  Membrane at Various Operating Pressures

	Operating pressure	0.4 bar	0.8 bar	1.2 bar	1.6 bar
Permeate flux, with discharge rod		15.8	27.5	40.3	56.8
Permeate flux, without discharge rod		15.7	25.7	37.7	47.1
Flux enhancement, %		0.6	7.0	6.9	20.6

3.2.2. DOTO 입자 농도에 따른 투과효율

원료 공급유량을 300 mL/min, 운전압력을 0.8 bar로 일정하게 유지하면서 DOTO 입자 농도를 0.1, 0.2, 0.5 wt%로 증가시키면서 관형관 내에 배출봉 삽입 유무에

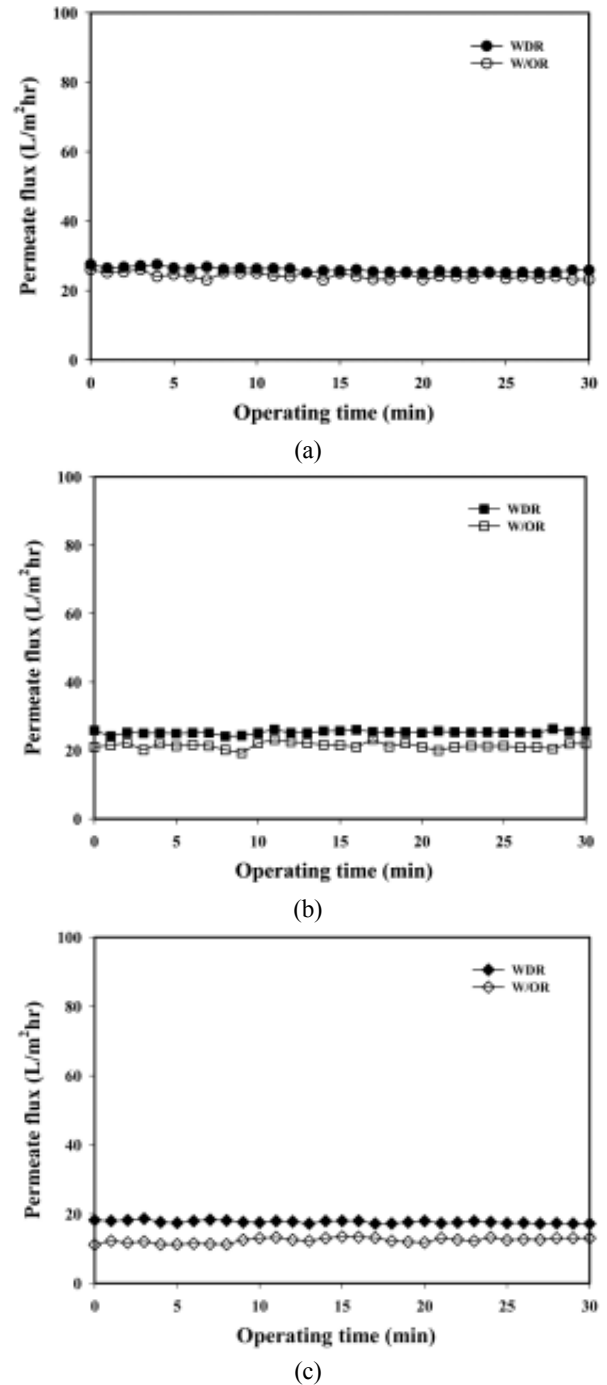


Fig. 4. Permeation flux for 0.1  $\mu\text{m}$  tubular membrane using the discharging rod at 0.8 bar and  $25 \pm 1^\circ\text{C}$  for (a) 0.1 wt%, (b) 0.2 wt%, and (c) 0.5 wt% DOTO latex solutions.

따른 투과 실험을 실시하여 Fig. 4에 나타내었다. 운전 시간에 따른 투과유속은 거의 일정하게 유지되었으나 DOTO 농도가 증가할수록 배출봉 존재 유무에 대한 투

**Table 2.** Permeate Flux Enhancement for Various DOTO Latex Solution with 0.1  $\mu\text{m}$  Membrane at 0.8 Bar

Permeate flux, $\text{L}/\text{m}^2 \cdot \text{hr}$	DOTO concentration	0.1 wt%	0.2 wt%	0.5 wt%
	with discharge rod		27.5	25.3
without discharge rod		25.7	21.4	12.4
Flux enhancement, %		7.0	18.2	42.7

과유속의 차이가 증가함을 알 수 있으며 Table 2는 DOTO 농도에 따른 투과유속 향상율을 수치적으로 나타낸 표이다. 0.1 wt% 농도 용액에서는 투과유속 향상율이 7%에 불과하지만, DOTO 농도가 증가할수록 분리막 표면에 농축되는 DOTO 입자의 양이 증가하므로 배출봉을 사용하면 분리막 표면에 존재하는 DOTO 입자를 효과적으로 제거하여 투과유속이 향상되고 결국 0.5 wt% DOTO 용액의 경우 투과유속이 최대 43%나 향상되었다.

#### 4. 결 론

분리막 오염이 높은 정밀여과용 분리막의 투과성능을 향상시키기 위하여 관형 분리막 내에 배출봉을 삽입하는 모듈 시스템을 설계하였다. 관형 분리막 내부로 공급되는 원료용액은 분리막을 투과하거나 또는 분리막 내부에 설치된 배출봉의 기공을 통하여 농축액으로 배출되면서 분리막 표면과 수직방향의 유체 흐름이 형성된다. 이와 같이 형성된 반경방향 유체흐름이 분리막 표면의 오염물질을 제거하고 효율적으로 투과유속을 향상시키는 가능성을 평가하였으며 그 결과를 요약하면 다음과 같다.

1) 운전압력을 1.6 bar까지 증가시킬 경우 1.2 bar까지는 배출봉 삽입에 따른 투과유속의 향상율이 7% 이내이지만 1.6 bar로 운전할 경우 20%까지 투과유속이 급격히 향상됨을 확인하였다.

2) DOTO 입자 농도변화에 따른 투과유속의 향상율은 운전압력 변화에 따른 향상율보다 2배 이상 크게 나타났다. 즉, 0.1 wt% DOTO 농도의 경우 투과유속 향상율은 7%이었으나 0.5 wt%에서는 43%까지 투과유속이 향상됨을 확인하였다. 결국 분리막 표면이 심하게 오염될수록 배출봉에 의한 세척성능이 향상되어 투과유속이 향상된 것으로 판단된다.

결론적으로 본 연구에서 개발한 배출봉 시스템은 효

과적으로 관형 분리막 표면에 막오염 현상을 감소시켜 투과유속을 향상시킬 수 있는 장치로 평가된다. 하지만 산업적 응용을 위해서는 관형 분리막 모듈의 처리용량 증대에 따른 시스템에 관한 지속적인 연구가 수행되어야 한다.

#### 참 고 문 헌

1. K. Y. Chung, M. E. Brewster, and G. Belfort, "Dean vortices with wall flux in a curved channel membrane system 3. Concentration polarization in a spiral reverse osmosis slit," *J. Chemical Eng. Japan*, **31(5)**, 683 (1998).
2. S. Najarian and B. Bellhouse, "Effect of liquid pulsation on protein fractionation using ultrafiltration processes," *J. Membr. Sci.*, **114**, 245 (1996).
3. L. Broussous, E. Prouzet, L. Beque, and A. Larbot "An experimental study of helically stamped ceramic microfiltration membrane using bentonite suspensions," *Separation & Purification Tech.*, **24**, 205 (2001).
4. S. H. Lee and R. M. Lueptow, "Rotating membrane filtration and rotating reverse osmosis," *J. Chemical Eng. Japan*, **37(4)**, 471 (2004).
5. K. Y. Chung and M. S. Lee, "Flux enhancement in a helical microfiltration module with gas injection," *Separation Science & Technology*, **40**, 2479 (2005).
6. S. T. Nam and M. J. Han, "Back flushing behavior of microfiltration membrane fouled by alumina colloidal suspensions," *Membrane Journal*, **19(1)**, 34 (2009).
7. J. Y. Park and S. H. Lee, "Effect of water-back-flushing in advanced water treatment system by tubular alumina ceramic ultrafiltration membrane," *Membrane Journal*, **19(3)**, 194 (2009).
8. J. Y. Park and G. Y. Park, "Advanced water treatment of high turbidity source by hybrid process of ceramic microfiltration and activated carbon adsorption: Effect of organic materials in  $\text{N}_2$ -back-flushing," *Membrane Journal*, **19(3)**, 203 (2009).
9. L. Ding, O. Al-Akoum, A. Abraham, and M. Y.

- Jaffrin, "Milk protein concentration by ultrafiltration with rotating disk modules," *Desalination*, **144**, 307 (2002).
10. Y. S. Cho, J. P. Kim, and K. Y. Chung, "Permeation characteristics of the submerged membrane module using the rotating disks," *Membrane Journal*, **16(1)**, 51 (2006).
11. M. Frappart, M. Jaffrin, and L. H. Ding, "Reverse osmosis of diluted skim milk: Comparison of results obtained from vibratory and rotating disk modules," *Separation & Purification Technology*, **60**, 321 (2008).