

## Glucose 수용액의 막증류

정 건 용

서울산업대학교, 화학공학과  
(2000년 11월 5일 접수, 2000년 12월 22일 채택)

### Membrane Distillation of the Aqueous Glucose Solution

Kun Yong Chung

Department of Chemical Engineering, Seoul National University of Technology, Kongneung-dong, Nowon-gu,  
Seoul 139-743, Korea

(Received November 5, 2000, Accepted December 22, 2000)

**요 약** : 공칭크기 0.2  $\mu\text{m}$ 인 소수성 PTFE 정밀여과막을 이용하여 glucose 수용액을 막증류하였다. Glucose 수용액 온도를 40°C에서 70°C로 상승시킬 경우 막 투과 유속은 3.6 LMH에서 11.2 LMH로 3배가량 증가하였으나 glucose 배제율은 99%에서 65%까지 감소하였다. 또한 glucose 수용액 농도를 2 wt%에서 4 wt%로 증가시키면 투과유속과 배제율은 각각 약 25% 및 6% 감소하였다.

**Abstract** : The aqueous glucose solution was separated by the membrane distillation with hydrophobic polytetrafluoroethylene microfiltration membrane. The nominal pore size of the membrane was 0.2  $\mu\text{m}$ . As the operating temperature increased from 40°C to 70°C, the membrane permeation flux increased from 3.6 LMH to 11.2 LMH, but the glucose rejection decreased 99% to 65%. Also, the permeation flux and rejection decreased 25% and 6%, respectively, as the concentration of glucose solution increased 2 wt% to 4 wt%.

## 1. 서 론

막증류는 소수성이 강한 0.1 내지 0.5  $\mu\text{m}$  세공크기의 정밀여과막을 통하여 혼합 액체 중 휘발도가 상대적으로 큰 성분을 증발시켜 증기압 차이를 추진력으로 분리 또는 농축하는 방법이다. 기존 증류공정은 탑 정으로 부터의 액체 환류(응축)와 탑저의 증기 공급(증발)이 필수적이므로 막대한 액체/기체 또는 기체/액체간의 상변환 에너지가 필요하다. 그러나 막증류에서는 필요 성분만 증발시킬 뿐만 아니라 증기량 역시 증류탑에 비하여 훨씬 작으므로 에너지 소비량을 크게 감소시킬 수 있다. 또한 수용액 역시 비점 이상으로 가열할 필요가 없으므로 60 내지 90°C의 운전온도로 증류탑에 비하여 훨씬 낮으며 이에 따른 열손실 감소와 폐열의 재활용 또는 태양열 에너지 등의 사용

이 가능하므로 에너지 활용을 극대화시킬 수 있는 장점이 있다. 더욱이 휘발도가 낮은 이온, 거대분자, 콜로이드, 비휘발성 물질 등을 거의 완벽하게 분리할 수 있다. 또한 막증류는 증류탑내에 증기영역(vapor space)을 약 100  $\mu\text{m}$  두께의 정밀여과막으로 대체할 수 있으므로 장치의 대폭적인 소형화를 달성할 수 있으며 압력 구동력이 아닌 열적 구동력으로 분리 가능하므로 막표면에서의 농도분극화 현상이 큰 저항으로 작용하지 않는다. 따라서 삼투압 등으로 고압에서 운전되는 역삼투, 한외여과 등의 기존 여과공정보다도 운전압력이 훨씬 낮아 펌프 동력비를 크게 절감할 수 있으며 또한 저압 장치설계에 따른 장치 및 공정 안전운전에도 매우 유리하다[1-6].

막증류는 막을 경계로 고온 및 저온의 수용액이 접촉하는 직접접촉법(direct contact membrane distillation),

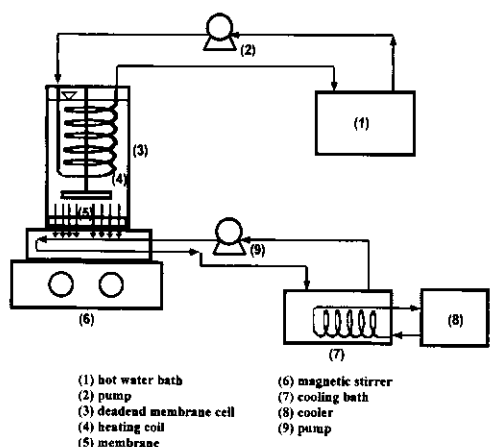


Fig. 1. Schematic flow diagram of the membrane distillation system.

열효율을 증가시키기 위하여 저온 부위에 응축 표면을 설치하고 막과 응축표면 사이에 공기를 통과시키는 공기간극법(air gap membrane distillation) 및 진공법 등이 있으며 이는 분리막의 선택도에 의하여 분리되는 투과증발법과는 구별된다. 그러나 이상의 막증류 공정의 장점에도 불구하고 막증류 장치를 상업화하기 위하여는 소수성이 강한 적절한 막소재 (PTFE, PP, PVDF)의 개발, 세공내 용액 침입방지를 위한 운전조건 확립, 수용액을 효과적으로 증발시킬 수 있는 열전달 장치의 설계 및 scale-up 기술 등에 관한 연구가 필요하다. 현재까지 막증류는 실험실적으로 해수담수화, 염색 폐수, 의약품 폐수, 증류숙 폐수, 산/알칼리의 농축, 유스의 농축, 혈장 농축, azeotropic 혼합물 분리 등에 적용되고 있다[7-13].

본 연구에서는 소수성이 강한 평판형 PTFE 정밀여과막을 이용하여 glucose를 직접접촉식으로 막증류하는 과정에서 운전 온도, 공급 열량 및 수용액 농도가 막 투과유속 및 glucose 배제율에 미치는 영향을 파악하고자 실시하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 실험장치

본 실험에서 사용한 실험장치의 개략도는 Figure 1에 나타난 바와 같다. 투명한 아크릴로 자체 제작한 교반형 dead-end식 막여과기(3)를 사용하였고 여과기의 부피는 100 mL이다. 여과기내에서의 열 및 물질전달을 촉진하기 위하여 magnetic stirrer(6)를 설치하였으며 여과기 외부는 스펀지형의 단열재로 단열하

였다. 여과기내 있는 원료 용액에 증발열을 공급하기 위하여 여과기내에 코일형 Cu 튜브(4)를 삽입하였고 고온수조(신상계기)(1)내에서 가열된 물은 공급펌프(2)를 사용하여 가열 코일튜브내로 순환시켰다. 한편 냉각수조(7)내에 삽입형 저온냉각기(제이오테크)(8)를 이용하여  $5 \pm 1^\circ\text{C}$ 로 냉각시킨 후, 펌프(9)로 분리막(5) 투과액측으로 냉각수를 순환시켜 투과액과 함께 회수하였다. 따라서 여과기내에 원료 용액 중 증발된 수증기는 투과액측으로 이동되며 여과기내에 물이 감소하면서 용액의 농축이 가능하였다.

### 2.2. 실험재료

- 분리막 : 사용한 분리막은 강한 소수성을 지닌 polytetrafluoroethylene (PTFE) 재질의 정밀여과막으로 공칭크기는  $0.2 \mu\text{m}$ 이다(Satorius 사). 여과기에 설치된 분리막의 유효 단면적은  $18.7 \text{ cm}^2$ 이었다.

- 원료용액 : Glucose( $\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$ , Sigma사)를 Elga사의 초순수 장치로 제조한  $18 \text{ M}\Omega\text{-cm}$  이상의 초순수에 녹여서 원료용액을 제조하였다.

### 2.3. 실험방법

Glucose 용액 100 g을 막여과기에 넣은 후 머리가열 또는 냉각시킨 물을 각각의 공급펌프를 사용하여 일정한 유량으로 막여과기에 순환시킨다. 막여과기 벽에는 액위를 측정할 수 있도록 눈금을 설치하였으며 매 10분 내지는 30분마다 눈금을 읽어 분리막을 투과한 유량을 측정하였다. 또한 실험을 마친 후에는 농축된 glucose 용액을 당도계(Atago Co. Japan)로 측정후 사전에 검량된 곡선을 이용하여 농도를 측정하였다.

## 3. 결과 및 토의

### 3.1. 온도에 따른 막증류 효과

가열 유체 유량을  $300 \pm 2 \text{ g/min}$ , 냉각 유체 유량을  $80 \pm 2 \text{ g/min}$ 로 일정하게 유지시킨 상태에서 가열 유체의 온도를 40 내지  $70^\circ\text{C}$  범위로 변화시키면서 4 wt% glucose 용액의 투과유속과 농축도를 측정하였다. 가열 유체온도에 따른 수증기의 막투과 유속은 Figure 2에 나타난 바와 같이 증가하였다. 온도에 따른 투과유속과 증기압 곡선을 동시에 나타내면 매우 유사하게 증가함을 알 수 있다. 즉 glucose 용액의 온도가 증가하면 그 온도에 해당하는 만큼 증기압이 증가하게 되고 자연적으로 수증기가 분리막을 통과하는데 필요한 추진력, 즉 분리막 양단의 유효 압력차

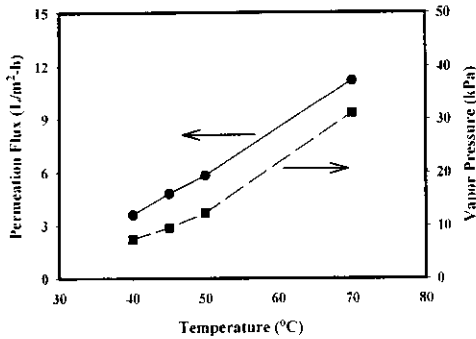


Fig. 2. Permeation flux of 4 wt% glucose solution and water vapor pressure with respect to temperature at heating (300±2 g/min) and cooling (80±2 g/min) fluid flowrates.

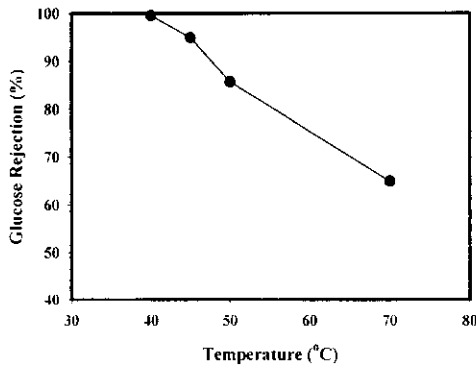


Fig. 3. Glucose rejection of 4 wt% solution with respect to temperature at heating (300±2 g/min) and cooling (80±2 g/min) fluid flowrates.

(effective trans-membrane pressure)가 증가하여 투과유속을 증가시킨다. 또한 농축용액 중 glucose의 농도를 측정하였으며 원료 및 농축용액 중 glucose 농도를 기준으로 glucose 배제율(R)을 식 (1)과 같이 계산하여 Figure 3에 나타내었다.

$$R = \frac{\text{농축용액}(g) \times \text{농축 glucose 농도}(wt\%)}{\text{초기용액}(g) \times \text{초기 glucose 농도}(wt\%)} \quad (1)$$

여과기내에 bulk 용액의 온도가 증가함에 따라서 glucose 배제율은 크게 감소하였다. 가열 유체의 온도가 40°C일 경우, R=99%로 거의 모든 glucose를 배제하여 분리하였으나 70°C에서는 R=65%로 1/3가량의 glucose가 분리막을 투과하였다. 이와같은 현상을 확

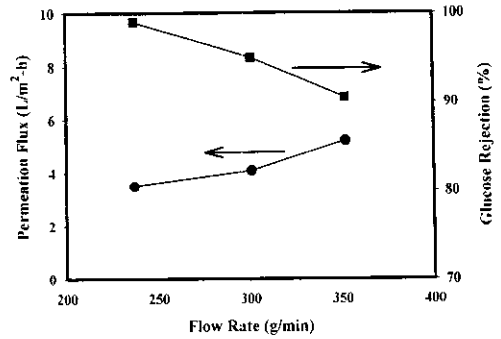


Fig. 4. Permeation flux and glucose rejection of 4 wt% solution with respect to heating fluid flowrates at 45°C and cooling fluid flowrate (80±2 g/min).

실히 규명할 수는 없지만, 온도 증가에 따라서 고분자 소재인 PTFE 막세공의 확장, 수증기 증기압 상승에 의한 투과유속의 증대와 특히 온도에 따른 PTFE 막의 소수성 강도 변화 등으로 요약할 수 있으며 향후 계속적인 연구가 이루어져야 할 것이다.

### 3.2. 가열 유체 유량에 따른 효과

가열 유체 온도를 45°C, 냉각 유체 유량을 80±2 g/min로 일정하게 유지시킨 상태에서 가열 유체 유량을 변화시키면서 4 wt% glucose 용액의 투과유속과 배제율을 측정하여 Figure 4에 나타내었다. 가열유체의 유량이 증가하면 가열코일 입/출구에서의 가열 유체 온도차가 감소하며 따라서 삽입된 여과기내의 온도를 보다 높게 유지할 수 있으므로 투과유속이 증가할 수 있다. Glucose 배제율은 가열 유체 유량이 240 g/min일 때 100%로서 완전 분리가 가능하였으나 350 g/min까지 유량이 증가하면서 90%로 감소하였다. 온도 변화에 대한 결과인 Figure 3의 경우 보다는 배제율 감소 폭이 작았다. 배제율의 감소는 투과유속이 증가함에 따라서 PTFE막의 소수성 강도가 감소하고 따라서 부분적이지만 액체 상태의 용액이 투과하면서 용액 중 glucose도 함께 투과된 것으로 판단된다.

### 3.3. 농도에 따른 막증류 효과

2 wt% 또는 4 wt% glucose 용액 100 g을 여과기에 채운 후 50°C의 가열 유체 유량을 300±2 g/min, 5±2°C 냉각 유체 유량을 80±2 g/min 로 유지시킨 상태에서 막증류를 실시하여 투과유속을 측정하였다. 또한 여과기내 용액 20 g을 제거한 후, 농축 용액 중

glucose 농도를 측정하여 배제율을 추정하였다. 2 wt% 및 4 wt% 용액의 투과유속은 각각  $8 \text{ L/m}^2\text{-hr}$  및  $6 \text{ L/m}^2\text{-hr}$ 이었으며 glucose의 배제율은 각각 99%, 93%로서 농도가 증가할 경우 점차 투과유속과 배제율이 감소하는 것으로 나타났다.

#### 4. 결 론

Glucose 수용액의 온도가 상승할수록 막증류 투과유속이 증가하였으며 이는 온도에 의한 수증기압 상승 경향과 매우 유사하였다. 그러나 수용액 온도가  $40^\circ\text{C}$ 에서  $70^\circ\text{C}$ 로 상승할 경우 glucose 배제율은 99%에서 65%까지 감소하였다. 또한 가열 유체의 유량이 증가할 경우, 수용액에 공급되는 열량이 증대되어 투과유속이 증가하였으나  $350 \text{ g/min}$ 에서의 glucose 배제율은 90%로 약 10% 감소하였다. 이와같은 현상은 온도 증가에 따른 PTFE 막 세공의 확장 및 소수성도의 변화등으로 추정되나 향후 정량적인 규명이 요구된다. 마지막으로 2 wt%에서 4 wt%로 glucose 농도를 증가시키면 투과유속과 배제율은 각각 약 25% 및 6% 가량 감소하였다.

#### 감 사

이 논문은 서울산업대학교 교내 학술연구비에 의하여 연구되었으며, 실험 보조한 여선아, 오미경 양에게 감사드립니다.

#### 참 고 문 헌

1. K. W. Lawson and D. R. Lloyd, *J. Membrane Sci.*, **120**, 111 (1996).
2. P. Godino, L. Pena, and J. I. Mengual, *J. Membrane Sci.*, **121**, 83 (1996).
3. K. W. Lawson and D. R. Lloyd, *J. Membrane Sci.*, **124**, 1 (1997).
4. L. Martinez-Diez, M. I. Vazquez-Gonzalez, and F. J. Florido-Diaz, *J. Membrane Sci.*, **144**, 45 (1998).
5. M. Gryta and M. Tomaszewska, *J. Membrane Sci.*, **144**, 211 (1998).
6. A. Burgoyne and M. M. Vahdati, *Filtration & Separation*, Jan./Feb. 49 (1999).
7. W. S. Winston Ho and K. K. Sirkar, "Membrane Handbook", Van Nostrand Reinhold, NY, NY (1992).
8. M. Tomaszewska, M. Gryta, and A. W. Morawski, *J. Membrane Sci.*, **102**, 113 (1995).
9. R. Rautenbach, R. Knauf, A. Struck and J. Vler, *Chem. Eng. Technol.* **19**, 391 (1996).
10. F. A. Banat and J. Simandl, *Chem. Eng. Sci.*, **51**(8), 1257 (1996).
11. G. W. Meindersma and M. Kuczynski, *J. Membrane Sci.*, **113**, 285 (1996).
12. E. Drioli, Korea Italy Seminar on Sci. & Tech., Hanyang Univ., (1998).
13. M. Gryta and K. Karakulski, *Desalination*, **121**, 23 (1999).