

소화가스의 막 분리 정제에 의한 도시가스용 바이오메탄 생산

최근희^{1,*} · 조민석² · 최원영³ · 천승규^{4,†}

¹서울과학기술대학교 에너지환경대학원, 박사과정

²(주)한국종합기술 환경신성장부, 과장

³(주)한국종합기술 환경신성장부, 차장

⁴서울과학기술대학교 에너지환경대학원, 교수

(2020년 9월 3일 접수: 2020년 10월 28일 수정: 2020년 10월 29일 채택)

Bio-methane production for city gas by membrane separation of digestion gas

Keun-Hee Choi^{1,*} · Min-Seok Jo² · Won-Young Choi³ · Seung-Kyu Chun^{4,†}

¹Graduate School of Energy & Environment, Seoul National University of Science & Technology, Gongneung-ro 232, Nowon-gu, Seoul, Korea

²Environmental Department for New Innovative Growth, Korea Engineering Consultants Corp., Sangil-ro 6 gil, Gangdong-gu, Seoul, Korea

(Received September 3, 2020; Revised October 28, 2020; Accepted October 29, 2020)

요 약 : 막 분리 운전방식에 따른 음폐수 소화가스의 도시가스용 바이오메탄 생산연구를 상업용 시설을 대상으로 수행하였다. 연구결과 바이오메탄의 순도는 4SBR과 3SDR 모두 98.9%를 달성할 수 있었다. 소화가스 내 메탄 회수율은 4SBR 88.1%, 3SDR 79.4%이었고, 처리 소화가스량 대비 바이오메탄 생산율도 4SBR이 53.5%로 3SDR의 49.4%보다 높았다. 그러나 막 분리시설에 공급되는 가스 중 반송 가스의 비율은 4SBR이 56.5%로 3SDR 보다 두 배가량 컸으며, 이로 인해 최대 처리량에 있어서는 3SDR이 양호한 결과를 보였다. 따라서 소화가스 200 Nm³/day 이하는 4SBR, 240 Nm³/day 이상에서는 3SDR이 경제성이 좋은 것으로 판단되었다. 공정 운전변수들의 평균값 대비 운전 값들의 상대편차는 전반적으로 4SBR이 컸으며, 또한 주 운전조절 수단인 바이오메탄 인출압력 대비 주요 지표들의 상관관계에 있어서는 3SDR가 보다 직접적인 관계를 보여주었다.

주제어 : 음폐수, 소화가스, 막 분리, 바이오메탄, 도시가스

Abstract : Research was conducted on the production of bio-methane for city gas, from food waste digestion gas using two membrane-separation methods(4SBR and 3SDR) in a commercial plant. A purity of 98.9% can be obtained using either method. The recovery rate of methane from

[†]Corresponding author

(E-mail: skchun@seoultech.ac.kr)

the digestion gas was 88.1% for 4SBR and 79.4% for 3SDR, the ratios of bio-methane production to treated digestion gas were 53.5% for 4SBR and 49.4% for 3SDR. However, the 4SBR method had a higher ratio of returned gas(56.5%), approximately twice that of 3SDR, making 3SDR the more desirable method in terms of maximum treat capacity. Therefore, 4SBR seems more economical when the digestion gas to be treated is less than 200 Nm³/day, while 3SDR is more suited to treat gas volumes of more than 240 Nm³/day. The relative deviation of each operation index, compared to mean values, was generally greater for the 4SBR method. Additionally, the correlation coefficients between major system indexes, such as bio-methane production and bio-methane draw out pressure(which is the main control measure of membrane facility) showed that these indexes are more closely related in the 3SDR method.

Keywords : Food waste water, Digestion gas, Membrane separation, Bio-methane, City gas

1. 서론

음식물류 폐기물의 사료화, 퇴비화 등 자원화 과정에서 발생하는 폐수(음폐수)는 유기질 농도가 높아 대부분 혐기성 소화를 통해 처리하며, 이때 발생하는 소화 가스는 메탄을 약 60% 함유하고 있어 [1] 각종 에너지원으로 활용할 수 있다. 소화가스 내에는 메탄 외에도 수분, 이산화탄소, 황화수소, 각종 휘발성 유기화합물 [2]이 포함되어 있다. 직접 열화수나 전력생산의 경우 수분과 황화수소등의 제거를 위한 전처리 후 바로 활용이 가능하지만, 자동차 연료나 도시가스 혼입용으로 사용되기 위해서는 이외에도 이산화탄소를 제거 [3,4]함으로써 목표로 하는 메탄의 순도를 얻어야 한다. 소화가스에 포함된 각종 불순물을 제거하기 위한 방법에는 PSA [5], water scrubbing, physical scrubbing, chemical absorption 등의 공정들이 있으며, 각각의 방법들은 최적 적용조건이나 비용을 포함한 장단점을 가지고 있다 [6,7]. 막 분리기술 역시 소화가스의 정제를 통한 바이오메탄 생산에 활용가능한 방법의 하나로서 시설과 조작성이 비교적 간단하고 위험한 화학물질의 사용이 없으며 적절한 전처리를 거칠 경우 높은 순도의 바이오 메탄을 생산할 수 있는 등의 장점을 가진다 [8,9].

바이오메탄의 도시가스 활용에 있어서 경제성을 확보하기 위해서는 일차적으로 생산된 바이오메탄 내 메탄 농도(순도)가 목표치 이상 보장되어야 하고, 또한 소화가스의 처리가능량과 메탄의 회수율도 만족해야한다 [10]. 즉, 현장 시설을 운

영함에 있어서 사용목적에 따른 바이오 가스의 정제효율인 순도와 회수율을 최적화하기 위한 여러 공정 요소에 대한 연구가 필요하다 [11].

이러한 공정 운전요소에는 막 모듈의 배치방식, 모듈간의 면적비, 막 모듈에 대한 공급 소화가스의 온도와 압력, 소화가스의 공급량 변동 등 여러 가지가 있다. 특히, 이들 요소는 실 규모 시설에서는 소화조와의 연계운전에 따른 여러 제약요인이 있을 수 있으며, 사용하려는 소화가스의 목적에 따른 경제성 측면에서 적용 가능한 운전범위에도 한계가 있다. 즉, 생산된 바이오메탄의 순도라는 고정요소에 따라 운전하기 때문에 실험실 규모의 연구목적 시설과는 여러 면에서 많은 차이가 있다. 따라서 실제 현장규모에서 상용화 목적으로 설치된 시설을 대상으로 이들 공정요소들 중 중요사항을 찾아내어 각 요소들의 영향도 및 최적 조건을 분석함으로써 상용화 시설에서의 막 모듈 배치방식과 실질적인 중요 운전영향 요소에 대하여 파악할 필요가 있다.

본 연구는 소화가스를 이용하여 도시가스 공급용 바이오메탄 생산을 위해 두 가지 유형의 중공사 막 [12] 모듈 배치 방식을 통해 수행하였다. 생산된 바이오메탄의 순도를 98.5% 이상으로 고정운전 시 두 가지 방식에 의한 바이오메탄 생산성, 회수율, 처리 가능량 등을 비교하고, 이를 통해 각 막 배치방식별 특성, 이들에 미치는 중요요소들을 확인함으로써 향후 유사한 형태의 소화가스 막 분리 방식에 의한 바이오메탄 생산 시에 참고할 수 있는 연구결과를 제시하였다.

2. 실험

2.1. 소화가스 전처리 및 막 분리 설비

U시에서는 관내 발생 음식물류 폐기물의 퇴비화 시설을 설치·운영하고 있으며, 이때 발생하는 음폐수는 혐기성 소화공정에 의하여 처리되고 있다. 음폐수 처리량은 연구기간 동안 72~112 m³/day으로 평균 90.0 m³/day이다. 소화조는 가수분해와 산발효 [13]가 일어나는 205 m³의 가용화조 (체류시간 1일, 45℃까지 가온), 910 m³의 메탄발효조 (체류시간 23일, 35~37℃ 중온 소화) 4기로 구성되어 있다.

발생되는 소화가스는 5,033~7,599 Nm³/day이며, 연구대상 시설인 바이오메탄 생산시설에 공급되고 있다. 소화가스 내에는 평균 3천 ppm이 넘는 H₂S가 포함되어 있으므로 배관 및 기계설비 부식 등을 방지하기 위하여 철-킬레이트 액상촉매법 [14]으로 탈황하였다. 황화수소 제거 이후에는 수분 제거를 위해 냉동기 및 건조기를 설치하였고, 냉각 및 건조된 소화가스는 다시 가스/수분 필터에 의해 이물질 및 오일을 사전 제거한 후 압축하여 막 분리시설로 공급하였다. 막 분리시설에서는 4개단의 막 모듈 [15]을 설치하였다. 이 가운데 제4단과 제2단 및 제3단에서 발생하는 투과가스는 막 분리 시설 전단으로 재순환시켰다. 제2단과 제3단을 통

과하여 최종 생산된 바이오메탄은 열량확보와 누출 사고시를 대비한 LPG 및 부취제를 혼합하여 U시 도시가스 관망으로 공급하였고, 막 분리를 통해 제거된 off 가스는 기존 악취방지시설로 이송하여 처리 후 대기로 배출하였다. Fig. 1은 바이오메탄 생산 전 과정에 대한 공정개요이며, Table 1은 전체 시설의 주요 사양이다.

2.2. 운전 및 분석방법

막 분리시설의 구성방식은 두 가지이다. 4단 분리형 재순환 방식(4 Stage Branch Return : 4SBR)은 막 면적비 2:4:4:2, 그리고 3단 직렬 재순환 방식(3 Stage Direct Return : 3SDR)은 막 면적비 2:4:4 이다. Fig.1에서 보는 것처럼 4SBR은 제1단에서 투과된 가스가 제4단에서 다시 막 분리되며 이때 투과가스를 off 가스로 처리하였고, 제4단 및 제2단과 제3단의 투과 가스는 가스압축기 전단으로 반송하였다. 3SDR의 경우 제4단은 운영하지 않고, 제1단 부터 제3단까지의 직렬방식이다. 따라서 제1단에서 투과된 가스는 off 가스로 배출되고, 제2단과 제3단에서 투과된 가스는 시스템 전단으로 반송하였다. 4SBR과 3SDR에서 최종 제3단까지 잔류 및 통과되어 생산된 바이오메탄은 이후 LPG와 부취제를 혼합하여 도시가스 관망으로 공급하였다.

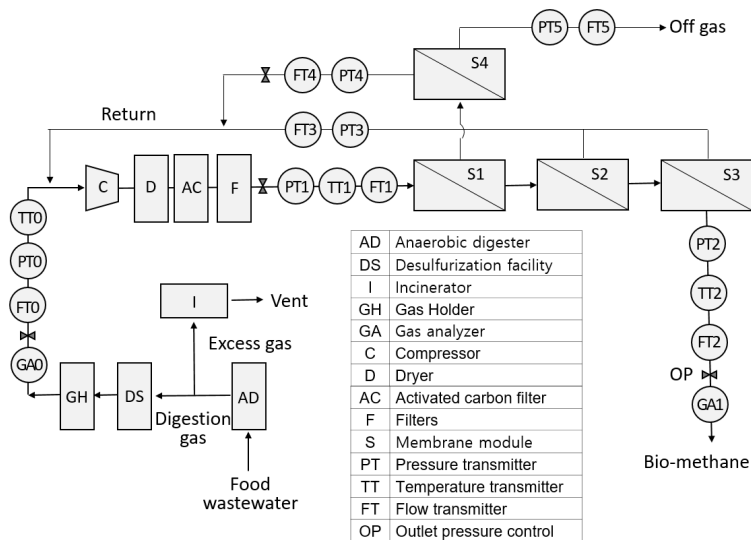


Fig. 1. Process schematic diagram of bio-methane production from digestion gas by membrane separation.

Table 1. Main specification of digestion gas pre-treatment and membrane separation facilities

Process	Specification
Desulfurization	<ul style="list-style-type: none"> - Capacity: 312m³/hr - Type: wet process(iron-chelate liquid-phase catalyst) - Treatment efficiency: inlet conc.(4,500 ppm), discharge conc.(under 3 ppm)
Moisture, oil and impurity removal	<ul style="list-style-type: none"> - Gas compressor <ul style="list-style-type: none"> ·Capacity: 210~450 Nm³/hr(maximum 9 bar.G) ·Gass compression for CH₄ recovery: 8.5kgf/cm² ·Type: Z-Screw Rotary(Oil free, Water cooling) - Chilling <ul style="list-style-type: none"> ·Capacity: 89,600 kcal/hr ·Chiller, chilling water circulation pump/tank - Dryer <ul style="list-style-type: none"> ·Capacity: 367 l /min ·Absorbent & electrical heater ·Rotating operation by two tower(regeneration of absorbent) - Gas/Oil filter
Membrane separation system	<ul style="list-style-type: none"> - Capacity: 407 Nm³/hr - Module Specification: Diameter(6 inch), Length(60 inch), Polysulfone, 100m²/module, hollow fiber 51,300/module(1 bundle = 950 hollow fiber strand, 1module = 54 bundle) - Membrane separation system: 4 stage(4 module/stage)
LPG & odorizer blend	<ul style="list-style-type: none"> - LPG: blending 5.6% ~ 5.9% of bio-methane - Odorizer: 0.025 ~ 0.030 cc/min(TBM(30%)+THT(60%))

운전기간은 4SBR 2019.3.8~12.5, 3SDR 2019.12.7.~2020.7.21이나, 소화가스 전처리 시설의 보완작업 등으로 인해 중단된 기간을 제외하면 실 운전기간은 4SBR 185일, 3SDR 105일의 총 290일이다. 막 분리시설의 공정조절은 거의 대부분 바이오메탄의 인출압력 조절을 통해 이루어졌다. 운전기간 동안 공급되는 소화가스 유량, 조성, 공급온도 및 압력, off 가스량, 생산된 바이오메탄의 유량, 조성, 온도 등은 자동계측장비를 통해 시간단위로 측정하였다. 동 시설운영의 최종 목적은 「도시가스의 품질기준 등에 관한 고시(산업통상자원부 고시 제2020-12호)」 및 도시가스 사업자와의 계약내용인 웨버지수 [16] 54.0~56.1 MJ/Nm³에 따른 바이오메탄을 생산하는 것이다. 따라서 생산되는 바이오메탄의 순도를 98.5%이상으로 설정하여 이상발생시 경보를 통해 조치할 수 있도록 하였다. 운전결과에 대한 분석은 4SBR 4,296개, 3SDR 2,448개의 시간 데이터를 사용하였고, 소화가스 처리량, 바이오메탄 생산

량, 메탄의 회수율, 주요 공정지표의 평균값 대비 편차 및 바이오메탄 인출압력에 대한 이들 각 지표들의 상관도, 온도의 영향 등을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 단 적용방식별 총괄 평가

Table 2는 4SBR과 3SDR 방식으로 운전한 결과를 정리한 것이다. 연구기간 290일 동안 소화가스는 총 $1,302 \times 10^3$ Nm³이 공급되었다. 탈황 등 전처리를 거친 후 막 분리시설에 공급된 소화가스의 메탄 평균 농도는 4SBR 60.1%, 3SDR 61.6%로 유사하였다. 바이오메탄 생산시설의 가장 중요한 운전 지표는 생산된 바이오가스 순도 98.5%이상이며, 다른 모든 공정운영 요소는 이를 위한 조절대상이다. 따라서 바이오메탄의 순도는 4SBR 98.9%, 3SDR 98.9%로 동일하였다. 반면,

Table 2. The total operation results of each membrane separation method

			Total	4SBR	3SDR
Operation(day)			290	185	105
Digestion gas supplied(10 ³ Nm ³)			1,302	740	562
Pressure of compressure(bar)				8.3(7.1~9.0)	8.5(7.8~8.9)
Bio-methane production(10 ³ Nm ³)			673	396	277
CH ₄ recovery rate(%)			84.2	88.1(82.4~94.9)	79.4(68.9~93.4)
Gas composition (%)	Pre-treated digestion gas	CH ₄		60.1(53.7~67.7)	61.6(49.7~67.8)
		CO ₂		35.21	33.7
		O ₂		0.03	0.03
		H ₂ S		7.08 ppm	2.7 ppm
	Bio-methane	CH ₄		98.9(98.2~99.5)	98.9(98.4~99.5)
		CO ₂		1.03	0.99
		O ₂		0.00	0.00
		N ₂		0.08	0.07

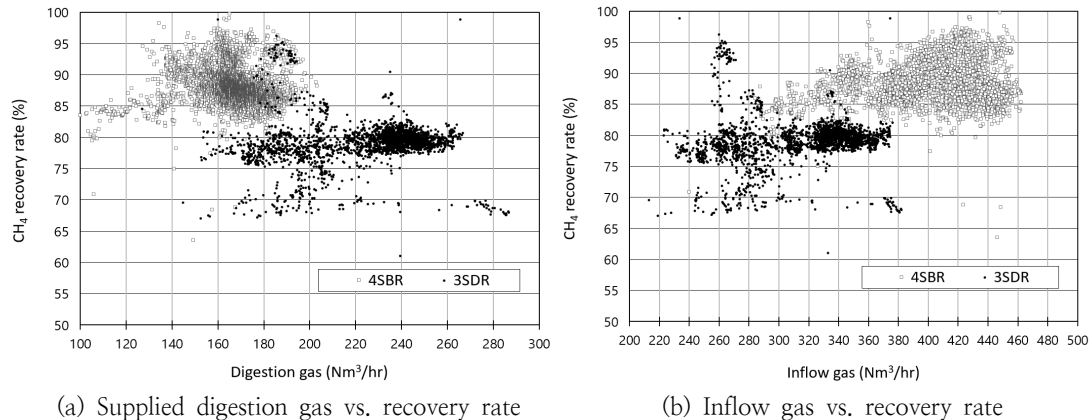


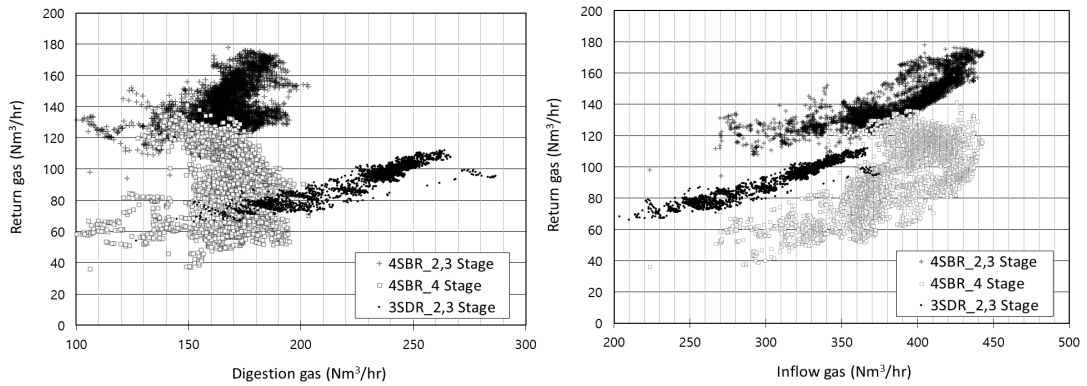
Fig. 2. Distribution of CH₄ recovery rate by two kinds of membrane separation method based on hourly data.

소화가스 내 메탄의 평균 회수율은 막 분리 투과 가스 반송의 영향으로 4SBR 88.1%, 3SDR 79.4%로서 4SBR이 높았다. 또한 바이오메탄의 생산량은 소화가스 공급량(digestion gas) 대비 4SBR 53.5%, 3SDR 49.4%이었다. 즉, 메탄의 회수율과 공급 소화가스량 대비 생산량은 3SDR 보다 4SBR이 높은 것으로 나타났다.

3.2. 회수율 분석

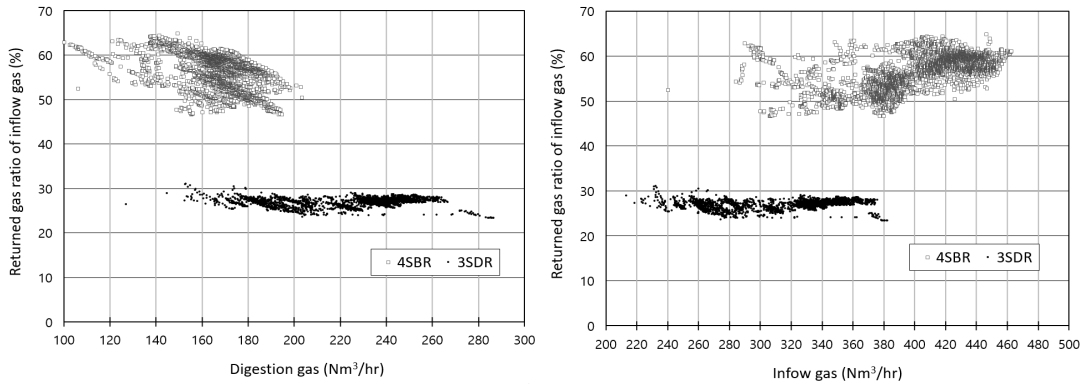
소화가스 공급량(digestion gas), 그리고 소화가스와 반송가스로 구성된 막 분리시설 공급량(inflow gas)에 따른 메탄 회수율은 Fig. 2와 같으며, 반송량이 큰 4SBR이 회수율이 대부분 높았

다. Fig. 3에서 보는 것처럼 4SBR과 3SDR에서는 각 단에서 막 분리시설 전단의 압축기로 투과 가스가 반송되는데, 4SBR의 반송량은 평균 제2단과 제3단 141.6 Nm³/hr, 제4단 95.3 Nm³/hr로서 총 236.9 Nm³/hr이고, 3SDR은 제2,3단 91.3 Nm³/hr이다. 이에 따라 막 분리시설에 공급되는 전처리 소화가스에는 막 분리 시스템에서 재순환되는 반송 가스가 포함되고, 그 비율은 Fig. 4에서와 같이 3SDR이 평균 27.0%인 반면 4SBR은 56.5%로 약 두 배에 달한다. 따라서 바이오메탄 생산량과는 달리 소화가스의 메탄 회수율은 4SBR이 높았다. 다만, Table 2에서와 같이 양자의 평균 생산량 차이에 비하여 회수율 차이는 크지 않았다.



(a) Supplied digestion gas vs. return gas flow (b) Inflow gas vs. return gas flow

Fig. 3. Distribution of return gas flow by two kinds of membrane separation method based on hourly data.



(a) Returned gas ratio vs. digestion gas (b) Returned gas ratio vs. inflow gas

Fig. 4. Returned gas ratio according to inflow and supplied digestion gas quantity.

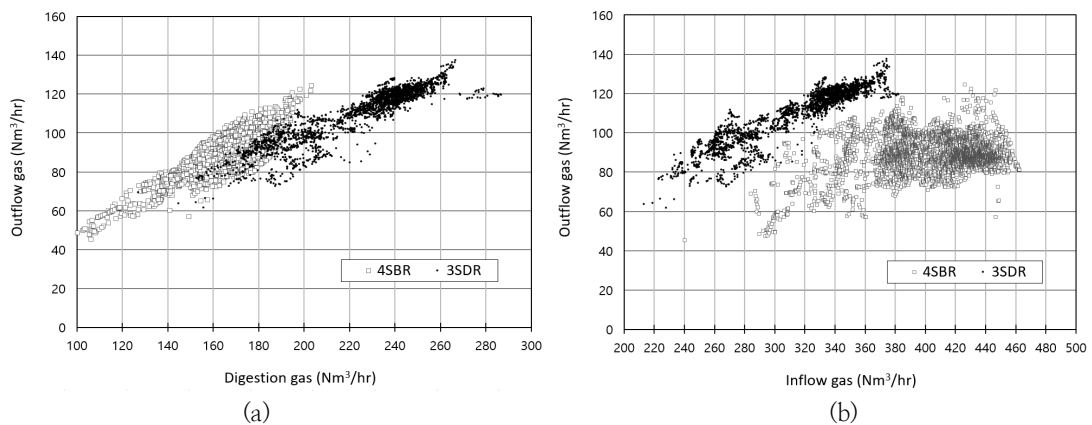


Fig. 5. Bio-methane(outflow gas) production according to digestion gas(a) and inflow gas(b).

3.3. 처리량 및 생산량

Fig. 5(a)는 처리한 소화가스량 대비 바이오메탄 생산량이며 소화가스 처리량이 커질수록 4SBR과 3SDR 모두 생산량은 증가한다. 그러나 inflow가 증가할 경우, Fig. 5(b)와 같이 3SDR은 바이오메탄 생산량이 증가하지만 4SBR은 일정 수준이상 증가하지 못했다. 이로 인해 Fig. 5(a)에서와 같이 소화가스 처리량도 3SDR은 260 Nm³/day 이상 처리가 가능하였으나, 4SBR은 약 200 Nm³/day가 최대처리량이었으며, 연구기간 중 일평균 소화가스 처리량도 3SDR이 223.6 Nm³/day인 반면, 4SBR은 166.7 Nm³/day로 적었다. 이에 따라 바이오메탄 생산량도 소화가스 처리량 기준으로 약 240 Nm³/day 이상에서는 3SDR이 높았다.

음폐수의 공급량은 4SBR 120.0 m³/day, 3SDR 123.8 m³/day로서 큰 차이가 없고, 최대 공급가능한 소화가스 량에도 기본적으로 차이가 없음에도 두 가지 막 분리 방식에서의 이와 같은 차이는 근본적으로 공급가스 중 반송가스의 비율의 차이에 따른 영향이 크다. 회수율만을 본다면 Table 2에서처럼 4SBR 88.1%, 3SDR 79.4%이다. 그러나 막 분리시설에 공급되는 가스 중 반송량의 비율이 크면 그만큼 처리 대상 소화가스 와 바이오메탄의 생산량은 줄어든다. 따라서 Fig. 5(a)에서 보듯 소화가스 처리량이 약 200 Nm³/hr까지는 동일 처리량 대비 바이오메탄 생산량은 4SBR이 많으나, 그 이상의 소화가스는 3SDR에 의한 처리만이 가능하였다. 이 경우 약 200-240 Nm³/hr까지는 처리 소화가스의 양이 증가함에도 4SBR에 의하여 200 Nm³/hr 이하 처리 시 보다는 생산량이 감소한다. 그러나 약 240 Nm³/hr이상에서는 3SDR의 생산량이 커지기 시작한다. 결국 막 모듈 운영관리 비용이나 off 가스량의 처리문제를 제외하고 순수하게 바이오메탄 생산량을 기준으로 한다면 소화가스 처리량 200 Nm³/hr 이하에서는 4SBR, 240 Nm³/hr 이상에서는 3SDR의 경제성이 좋다는 것을 확인할 수 있었다.

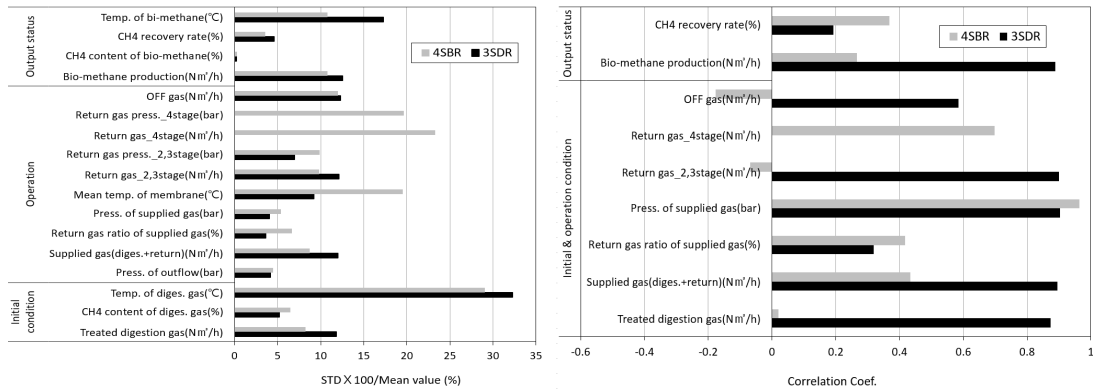
3.4. 주요 운전관련 지표 분석

Fig. 6(a)는 소화가스 관련지표, 막 분리시설의 운전요소 그리고 생산된 바이오메탄 관련 지표의 평균값 대비 표준편차 값을 백분율로 나타낸 것이다. 4SBR과 3SDR의 바이오메탄 관련지표 중 순도는 각각 0.3%, 0.2%로 매우 작았고, 회수율

은 3.6%, 4.6%, 바이오메탄 생산량은 10.8%, 12.5%이다. 소화가스 관련 지표는 온도 편차가 29.1%, 32.3%로 가장 컸는데, 이는 운전 기간 중 계절의 영향으로 판단된다. 운전요소 중에서는 4SBR의 4단 반송가스량 및 압력, 그리고 평균 막 추정 온도가 가장 컸다. 반면 4SBR과 3SDR 모두 공급 가스 내 반송 가스량 비율이나 공급 압력은 상대적으로 편차가 적었다. 공급가스, 운전요소, 생산가스 관련지표 세 부분을 비교하면 운전요소 지표가 전반적으로 편차가 컸고, 4SBR과 3SDR을 비교하면 공급 및 생산지표의 경우 유사하나 운전요소에 있어서는 전반적으로 4SBR의 변동폭이 컸다. 4SBR의 운전요소 조절 편차가 3SDR에 비하여 전반적으로 큰 것은 4SBR의 경우 상대적으로 회수율, 생산량, 순도를 최적화하는데 있어서 현장에서의 좀 더 어려운 여건을 말해준다고 할 수 있다.

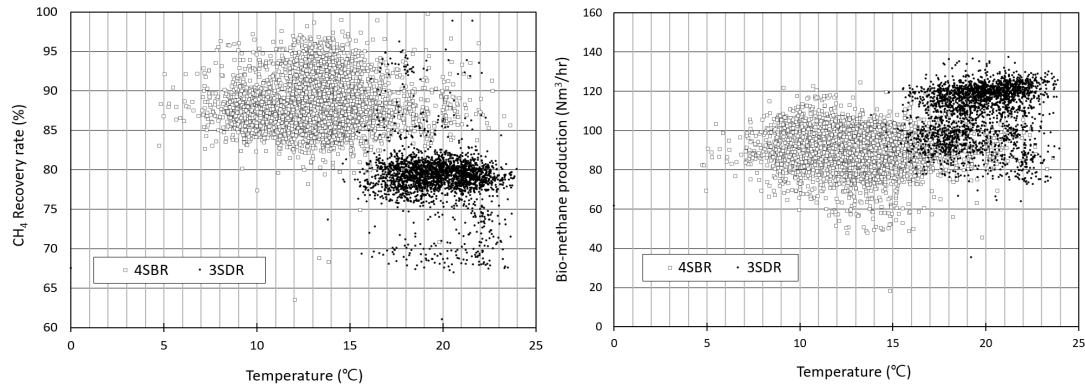
회수율 98.5% 이상을 맞추기 위한 막 분리 시설의 운전조정은 대부분 바이오메탄 인출압력 조절(Fig.1 OP)에 의하여 이루어지며, 운전요소별 시간 자료의 편차나 영향의 크기는 인출압력 조절결과를 반영한다. Fig. 6(b)는 주요 공정관련 지표의 인출압력 조절과의 상관관계를 분석한 것이다. 인출압력 조절에 가장 양의 상관관계가 큰 것은 4SBR의 경우 4단 반송가스량, 공급압력이며, 3SDR의 경우 바이오메탄 생산량, 제2단과 제3단의 반송량, 공급압력, 공급가스중 반송가스 비율, 처리 소화가스량이었다. 이는 3SDR의 경우 인출압력을 높일 경우 소화가스 처리량을 비롯하여 전반적인 처리대상 가스량이 증가하는 반면, 4SBR은 반송가스량만 증가할 뿐 직접적으로 처리가스량이나 생산량 등이 직접 비례하여 증가하지 못한다는 것을 보여준다. 이는 앞서 설명한 대로 3SDR에 비하여 4SBR이 일정 수준이상 처리해야할 소화가스량이 증가되면 생산량 증가로 이어지지 못하는 것에 대한 운영측면에서의 이유이기도 하다.

Fig. 6(a)에서 온도의 편차가 비교적 컸고, 이의 영향여부를 분석하였다 [17]. 온도는 inflow와 outflow의 평균온도(Fig. 6(a) mean temperature of membrane)를 기준으로 평가하였으며, 분석 결과는 Fig. 7과 같다. 4SBR과 3SDR이 동시에 운전된 것이 아니므로 계절의 영향 등에 따라 온도범위는 차이가 있었고, 4SBR이 보다 낮은 온도범위에서 운전되었다. 연구대상 시설이 실 규모의 상업운전 시설이므로 온도의 영향이나 한계조



(a) Standard deviation to mean values (b) Correlation coefficient to pressure of outflow

Fig. 6. The standard deviation to mean value and correlation coefficient of main system indexes to bio-methane draw out pressure (pressure of outflow).



(a) Temperature influences on CH₄ recovery rate (b) Temperature influences on bio-methane production

Fig. 7. The temperature influences on CH₄ recovery rate and bio-methane production.

건을 파악하기 위하여 타 공정 운전조건을 고정하거나 온도를 극단적으로 조절하여 운전할 수는 없었다. 그러나 Fig. 7에서 보는 바와 같이 운전이 이루어진 약 5~25 °C의 범위에서는 메탄 회수율과 바이오메탄의 생산량과는 상관성이 없었다. 즉, 타 공정 운전 요소에 비하여 온도는 시설 운영에 있어서 큰 조절변수는 되지 않는 것으로 판단된다.

한편, 운전기간 동안의 법정휴일은 4SBR 34일, 3SDR 14일이었다. 음식물류 폐기물의 수집이 휴일에 중단되므로 휴일 음폐수 공급량은 평일의 평균 4SBR 64.0%, 3SDR 61.3%로 적었고, 이로 인해 소화가스 발생량은 평일대비 4SBR 90.9%,

3SDR 87.0%로 다소 감소하였으나, 반면에 메탄의 농도는 평일 4SBR 59.4%, 3SDR 61.2%에서 휴일 4SBR 63.2%, 3SDR 64.1%로 증가하였다. 이러한 두 가지의 증감 효과의 상쇄 그리고 공정 운전 요소의 조절로 인해 평일과 휴일간의 메탄 회수율, 바이오메탄 생산량에는 거의 차이가 없었다.

4. 결론

음폐수 소화가스를 도시가스 공급용 바이오메탄으로 생산하기 위한 상업용 막 분리시설에 대상으로 막 모듈 구성방식에 따른 특성을 연구하

였다. 연구결과 4SBR과 3SDR 모두 98.9%로 동일한 순도를 확보할 수 있었다. 소화가스 내 메탄의 평균 회수율은 4SBR 88.1%, 3SDR 79.4% 그리고 공급 소화가스량 대비 바이오메탄 생산율은 4SBR 53.5%, 3SDR 49.4%로 4SBR이 높았다. 그러나 막 분리시설에 공급되는 가스 중 반송가스의 비율은 4SBR 56.5%, 3SDR 27.0%로 4SBR이 두 배가량 컸으며, 이에 따라 소화가스량과 반송가스의 합량인 inflow량이 증가할 경우, 3SDR은 260 Nm³/day 이상 처리가 가능하였으나, 4SBR은 약 200 Nm³/day가 최대처리량이었다. 이로 인해 바이오메탄 생산량도 소화가스 처리량 기준으로 약 240 Nm³/day 이상부터는 3SDR이 높았다. 따라서 소화가스 200 Nm³/day 이하는 4SBR이 그리고 240 Nm³/day 이상에서는 3SDR이 경제성이 좋은 것으로 판단되었다. 공정 운전변수 들의 평균값 대비 시간 기준 운전값의 상대편차는 바이오메탄 생산량, 회수율, 순도의 순으로 컸고, 전반적으로 4SBR이 큰 값을 보였다. 주 운전 조절요소인 바이오메탄 인출압력 대비 주요 지표들의 상관관계 분석 결과 3SDR은 인출압력 조절이 바이오메탄 생산량 등과 직접적인 관계를 보여주나 4SBR은 상대적으로 그렇지 못하였다. 아울러, 막 분리시설이 운전된 5~25 °C의 범위에서 온도의 회수율과 생산량에의 영향은 없는 것으로 분석되었다.

References

1. M. Miltner, A. Makaruk, M. Harasek, "Review on available biogas upgrading technologies and innovations towards advanced solutions", *J. Clean. Prod.*, Vol.161 pp. 1329-1337, (2017).
2. S. Nilsson Pålédal, K. Arrhenius, J. Moestedt, Engelbrektsson, J. and Stensen, K., "Characterisation and treatment of VOCs in process water from upgrading facilities for compressed biogas (CBG)", *Chemosphere*, Vol.145 pp. 424-430, (2016).
3. S. I. Han, K. S. Hwang, "Study on Materials and Process Systems for CO₂ separation from Combustion of Fossil Fuels", *J. Korean Oil Chem. Soc.*, Vol.31 No.3 pp. 375-386, (2014).
4. J. H. Lee, G. H. Lee, K. S. Choi, J. Poudel, S. R. Kim, S. C. Oh, "Separation Characteristics of CH₄/CO₂ Mixed Gas by Polyamide Composite Membrane", *J. Korean Oil Chem. Soc.*, Vol.29 No.3. pp. 478-485, (2012).
5. S. Kuroda, T. Nagaishi, M. Kameyama, K. Koido, Y. Seo, K. Dowaki, "Hydroxyl aluminium silicate clay for biohydrogen purification by pressure swing adsorption: Physical properties, adsorption isotherm, multicomponent breakthrough curve modelling, and cycle simulation", *Internatl. j. hydrogen energy*, Vol.43, pp. 16573-16588, (2018).
6. I. Angelidaki, L. Treu, P. Tsapekos, G. Luo, S. Campanaro, H. Wenzel, P.G. Kougias, "Biogas upgrading and utilization: Current status and perspectives", *Biotechnol. Advances*, Vol.36 No.2 pp. 452-466, (2018).
7. L. Lombardi, G. Francini, "Techno-economic and environmental assessment of the main biogas upgrading technologies", *Renew. Energy*, Vol.156 pp. 440-458, (2020).
8. J. Peppers, Y. Li, J. Xue, X. Chen, C. Alaimo, L. Wong, T. Young, P.G. Green, B. Jenkins, R. Zhang, M.J. Kleeman, "Performance analysis of membrane separation for upgrading biogas to biomethane at small scale production sites", *Biomass and Bioenergy*, Vol.128 pp. 1-9, (2019).
9. M. G. Buonomenna, J. Bae, "Membrane processes and renewable energies", *Renew. Sustainable Energy Reviews*, Vol.43 pp. 1347-1390, (2015).
10. S. Haider, A. Lindbråthen, M. B. Hägg, "Techno-economical evaluation of membrane based biogas upgrading system: A comparison between polymeric membrane and carbon membrane technology", *Green Energy Environ.*, Vol.1 No.3 pp. 222-234, (2016).

11. M. Scholz, M. Alders, T. Lohaus, M. Wessling, "Structural optimization of membrane-based biogas upgrading processes", *J. Membr. Sci.*, Vol.474 pp. 1-10, (2015).
12. A. K. Zulfairun, M. N. Subramaniam, A. Samavati, M. K. N. Ramli, M. Krishparao, P. S. Goh, A.F. Ismail, "High-flux polysulfone mixed matrix hollow fiber membrane incorporating mesoporous titania nanotubes for gas separation", *Sep. Purif. Technol.*, Vol.180 pp. 13-22, (2017).
13. Y. Li, Y. Chen, J. Wu, "Enhancement of methane production in anaerobic digestion process: A review", *Applied Energy*, Vol.240 pp. 120-137, (2019).
14. I. Iliuta, F. Larachi, "Concept of bifunctional Redox iron-chelate process for H₂S removal in pulp and paper atmospheric emissions", *Chem. Eng. Sci.*, Vol.58 No.23-24 pp. 5305-5314, (2003).
15. T. Katoh, M. Tokumura, H. Yoshikawa, Yoshinori Kawase, "Dynamic simulation of multicomponent gas separation by hollow-fiber membrane module: Nonideal mixing flows in permeate and residuesides using the tanks-in-series model", *Sep. Purif. Technol.*, Vol.76 No.3 pp. 362-372, (2011).
16. N. Pannucharoenwong, A. Worasaen, C. Benjapiyaporn, J. Jongpluempiti, P. Vengsungnle, "Comparison of Bio-Methane Gas Wobbe Index In Different Animal Manure Substrate", *Energy Procedia*, Vol.138 pp. 273-277, (2017).
17. K. Berean, J. Z. Ou, M. Nour, K. Latham, C. McSweeney, D. Paull, A. Halim, S. Kentish, C. M. Doherty, A. J. Hill, K. Kalantar-zadeh, "The effect of crosslinking temperature on the permeability of PDMS membranes: Evidence of extraordinary CO₂ and CH₄ gas permeation", *Sep. Purif. Technol.*, Vol.122 pp. 96-104, (2014).