

Dextran 용액의 한외여과에서 농도분극 및 막 투과 Flux

김우식·염경호·이호원·이충수

연세대학교 공과대학 화학공학과
(1987년 5월 2일 접수, 1987년 8월 14일 채택)

Concentration Polarization and Permeate Flux in Ultrafiltration of Dextran Solution

Woo-Sik Kim, Kyung-Ho Youm, Ho-Won Lee and Chung-Soo Lee

Department of Chemical Engineering, College of Engineering, Yonsei University, Seoul 120, Korea
(Received 2 May 1987; accepted 14 August 1987)

요 약

2종류의 cellulose acetate 한외여과막으로 Dextran(M. Wt.; 15,000-20,000) 용액의 한외여과 실험을 행하여 막 투과 flux 및 용질배제계수를 측정하였다. 막 투과 flux를 수정된 삼투압 모델 및 경계층 저항 모델의 계산값과 비교한 결과 상대오차 0.2이내에서 일치하였으며, CA(0) 및 CA(20K)막에 의한 Dextran 용질의 실질배제계수는 각각 평균 0.94 및 0.85이었다. 또한 본 실험범위에서 농도분극율은 100이하 이었다.

Abstract— The permeate flux and solute rejection coefficient are obtained from the ultrafiltration experiment of Dextran (M.Wt.; 15,000-20,000) solution using CA(0) and CA(20K) ultrafiltration membranes. The permeate flux is consistent with the predicted value by the modified osmotic pressure model and boundary layer resistance model in the range of relative error 0.2. The true rejection coefficient of Dextran on CA(0) and CA(20K) membranes are about 0.94 and 0.85 respectively. In the range of this experiment, the concentration polarization modulus is not more than 100.

1. 서 론

압력차를 추진력으로 하는 막 분리공정인 한외여과법은 중분자 및 고분자 용질의 분리에 적합하며, 특히 상온 및 무균상태 조작이 가능하고 공정상 열이 불필요하여 용질 특성의 파괴나 손상이 없이 물질을 분리할 수 있는 장점이 있어, 식품공업, 균체 및 효소분리, 인공신장기 등 여러분야에 응용이 기대되고있다[1, 2].

한외여과에 있어서 추진력인 압력차가 증가함에 따라 막 표면에 용질층이 형성되는 농도분극(concentration

polarization)현상 때문에 막 투과 flux의 증가율이 감소되며, 이와같은 현상은 한외여과의 공업적 이용에 저해적 문제점으로 지적[3, 4, 5]되고 있다. 따라서 한외여과에서의 막 투과 flux는 농도분극현상을 정량적 수식으로 표현하므로써 예측이 가능하다. 막 투과 flux를 예측하기 위한 모델에는 경막이론(film theory)에 근거하여 Blatt 등[3]이 제시한 겔층 모델(gel layer model), Goldsmith[6] 및 Kozinski와 Lightfoot[7]에 의해 제시된 삼투압 모델(osmotic pressure model), 농도분극층에서의 운동량 수지에 근거하여

Wijmans 등[8]이 제시한 경계층 저항 모델(boundary layer resistance model) 등이 있다.

그러나 기존의 이 모델식들은 막에 의해 용질이 완전히 배제되는 경우 (100% rejection)의 막 투과 flux 예측에만 사용되어왔다. 그러나 실제로 분리막은 제조 공정상 균일한 막 세공크기 조절이 어려워 막 세공크기가 불균일하여 용질의 완전분리가 불가능하므로[9], 기존의 모델식들을 용질배제계수(solute rejection coefficient)가 포함된 식으로 수정하여야만 막 투과 flux 예측이 가능하며, 이를 위해서는 용질농도, 압력차, 순환유속 등 제인자 변화에 따른 용질배제계수의 변화에 대한 자료가 요구된다[10, 11].

본 연구에서는 세공크기가 다른 2종류의 cellulose acetate 한외여과막으로 Dextran (M. Wt. : 15,000-20,000) 용질의 분리실험을 행하여 용질농도, 압력차, 순환유속이 용질배제계수 및 막 투과 flux에 미치는 영향을 검토하였으며, 기존의 이론식인 삼투압 모델과 경계층 저항 모델을 용질배제계수가 포함된 식으로 수정하여 이를 실험결과와 비교하여 막 투과 flux 예측에의 이용가능성을 검토하였다.

2. 이 론

2-1. 삼투압 모델

순수의 한외여과에 있어서 막 투과 flux, J_v 는 추진력인 압력차 ΔP 와 다음의 관계로 표현된다.

$$J_v = \frac{1}{\eta_o} \frac{\Delta P}{R_m} \quad (1)$$

그러나 고분자용액의 한외여과에 있어서 막을 통해 용매가 투과되면 막 표면에 용질의 농도 경계층이 형성되는 이른바 농도분극현상이 생기게 되어[3, 6] 막 표면의 용질농도 C_m 은 도입 용질농도 C_b 보다 상당히 커지게 된다. 따라서 막 표면의 용질농도 증가는 삼투압차 $\Delta \pi_{mf}$ 를 증가시키게 되며, 이 경우의 막 투과 flux는 다음의 삼투압 모델로 나타낼 수 있다[6, 7].

$$J_v = \frac{1}{\eta_o} \frac{\Delta P - \Delta \pi_{mf}}{R_m} \quad (2)$$

여기서 $\Delta \pi_{mf}$ 는 막 표면과 투과액 간의 삼투압차이다.

일반적으로 고분자 용액의 삼투압은 아래의 3차 Virial 식

$$\Delta \pi = A_1 C + A_2 C^2 + A_3 C^3 = \sum_{i=1}^3 A_i C^i \quad (3)$$

으로 표현[13]되므로, 따라서 막에 의해 용질이 완전히

배제되지 않는 경우의 삼투압차 $\Delta \pi_{mf}$ 는 다음과 같이 된다.

$$\Delta \pi_{mf} = \sum_{i=1}^3 A_i (C_m^i - C_f^i) = \sum_{i=1}^3 A_i C_b^i [M^i - (1 - R_o)^i] \quad (4)$$

이 때 식 (4)에서의 막 표면농도 C_m 은 경막이론(film theory)에 근거하여 농도 경계층에서의 물질수지[3]로부터 유도된 다음의 식으로 부터 구할 수 있다.

$$J_v = k \ln \left(\frac{C_m - C_f}{C_b - C_f} \right) \quad (5)$$

여기서 R_o 와 M 은 각각 측정 용질배제계수(observed rejection coefficient) 및 농도분극율(concentration polarization modulus)로서 다음 식으로 정의[11, 12]된다.

$$R_o = 1 - \frac{C_f}{C_b} \quad (6)$$

$$M = \frac{C_m}{C_b} = R_o (\exp (J_v/k) - 1) + 1 \quad (7)$$

2-2. 경계층 저항 모델

막 표면에 형성된 농도 경계층에서 용매는 고농도의 Dextran 용질내를 통해 이동되며, 이 때의 용매투과도(permeability)는 Mijneff와 Jaspers[14]가 제시한 다음의 식으로 표현된다.

$$p = \frac{\eta_o S}{C(1 - v_1/v_o)} \times 10^{-3} \quad (8)$$

Dextran의 침강계수 S 는

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{S_o} + \frac{B_2 C}{S_o} \quad (9)$$

이므로[15] 따라서 농도 경계층에서의 용매투과도 p 는

$$p = \frac{B_1}{C + B_2 C^2} \quad \text{단, } B_1 = \frac{\eta_o S_o}{1 - v_1/v_o} \quad (10)$$

Wales[18]에 의하면 농도 경계층내에서 압력구배는 존재하지 않으며, 단지 삼투압 구배만이 존재하므로 Fig. 1의 한외여과계에서 막 투과 flux J_v 는 다음과 같이 된다.

$$J_v = \frac{p}{\eta_o} \frac{d\pi}{dx} \quad (11)$$

식 (11)을 농도 경계층 영역 (0- δ)에 대해 적분하면

$$J_v = \frac{\Delta \pi_{m_b}}{\eta_o \int_0^\delta p^{-1}(x) dx} \quad (12)$$

이 때 $\Delta \pi_{m_b}$ 는 막 표면과 도입 용액간의 삼투압차

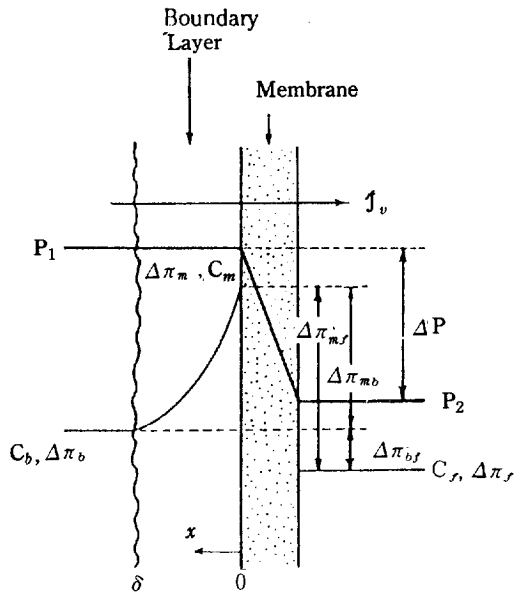


Fig. 1. Profiles of concentration, osmotic pressure and pressure in and near the ultrafiltration membrane.

이며, 여기서 농도 경계층의 저항 R_{bl} 을 다음으로 정의하면[8]

$$R_{bl} = \int_0^\delta P^{-1}(x) dx \quad (13)$$

막 투과 flux J_v 는 다음과 같이 된다.

$$J_v = \frac{1}{\eta_0} \frac{\Delta \pi_{mb}}{R_{bl}} = \frac{1}{\eta_0} \frac{\Delta P - \Delta \pi_b}{R_m + R_{bl}} \approx \frac{1}{\eta_0} \frac{\Delta P}{R_m + R_{bl}} \quad (14)$$

여기서, 막에 의해 용질이 완전히 배제되지 않는 경우의 경계층 저항 R_{bl} 은 식 (5), 식 (8) 및 식 (13)으로부터 다음과 같이 된다.

$$\begin{aligned} R_{bl} &= \int_0^\delta P^{-1}(x) dx \\ &= \frac{1}{B_1} \{ C_b (1 - R_o) \left(\frac{D}{k} \right) \{ 1 + B_2 C_b (1 - R_o) \} \\ &\quad + C_b (M - 1) \left(\frac{D}{J_v} \right) \{ 1 + B_2 C_b (1 - R_o) \} \\ &\quad + B_2 \left(\frac{D}{2J_v} \right) C_b^2 \{ M^2 + (1 - 2R_o) - 2M (1 - R_o) \} \} \end{aligned} \quad (15)$$

3. 실험

3-1. 실험장치

한외여과 cell은 Fig. 2와 같이 평판형으로서 유효막

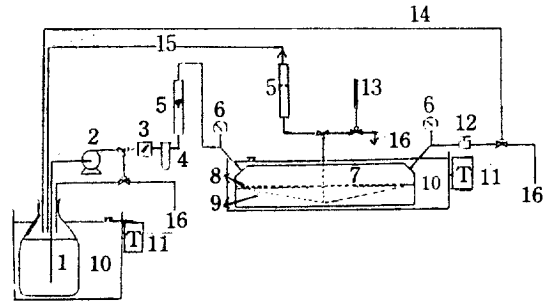


Fig. 2. Schematic flow diagram of ultrafiltration experimental apparatus of the Dextran solution.

- | | |
|-------------------------------|-------------------------|
| 1. Feed tank | 2. Feed pump |
| 3. Pressure regulator | 4. Prefilter |
| 5. Flowmeter | 6. Pressure gauge |
| 7. Ultrafiltration cell | 8. Membrane |
| 9. Porous supporter | 10. Thermostat |
| 11. Temperature controller | 12. Back pressure valve |
| 13. Permeate flux measurement | 14. Feed recycle |
| 15. Permeate recycle | 16. Sampling tap |

면적을 35 cm^2 (너비 $2.4 \text{ cm} \times$ 길이 14.58 cm), 용액이 통과하는 유로의 높이를 0.35 cm 되게 아크릴로 제작하였다. 이때 유효막 면적은 용액 도입구로부터 15 cm , 용액 배출구로부터 5 cm 되는 부분의 막 면적으로서 용액의 흐름이 완전발달 흐름의 상태가 되도록 하였다.

본 실험에 사용된 고분자 용질인 Dextran (Fluka, $(C_6H_{10}O_5)_n$, M. Wt. : $15,000-20,000$)을 함유한 용액은 일정압력 및 유량으로 한외여과 cell에 도입된다. 이때 cell의 압력은 압력조절기 (Watts Model, MI, 미국)와 back pressure 밸브에 의해 조절하였으며, cell 양단에 압력계를 설치하였다. 모든 배관은 SUS 316 tube로 하였으며, cell의 도입구에 예비여과기를 설치하여 막의 오염을 방지하였다. 막의 지지체로서는 다공성의 유리판을 사용하였으며, 막 투과 flux는 모세관법으로 측정하였고, 여과된 액 및 cell을 통과한 액은 다시 feed 용기에 환류시켜 항상 일정한 Dextran의 농도가 유지되도록 하였다. 용액의 온도는 feed 용기와 cell을 항온조 내에 설치하여 조절하였다.

본 실험에 사용된 한외여과막은 미국 Osmonics사의 SEPA CA(0), CA(20K)의 두 종류로서 막의 특성은 Table 1과 같다.

3-2. 실험방법

Table 1. Characteristics of the SEPA ultrafiltration membranes by manufacturer (Osmotics Inc, USA).

Item \ Type	SEPA CA(0)	SEPA CA(20K)
Material	Cellulose Acetate	Cellulose Acetate
Structure	Anisotropic	Anisotropic
Mol. Wt. Cut-off	1,000	20,000
Nominal Pore Size	15 Å	35 Å
Flux(gpd) at 77 F	178.2 (at 100psi)	357.3 (at 50psi)
NaCl pass	97.7%	100%
Max. Operating Press. (psi)	200	50

Table 2. Experimental conditions in the ultrafiltration of Dextran solution.

Temperature (°C)	35 ± 1
Transmembrane Pressure (10 ⁵ Pa)	0.49, 0.98, 1.47, 1.96, 2.45, 2.94, 3.92
Dextran Concentration(10 ⁻³ g/ml)	3, 6, 8, 10, 13
Recirculation Velocity(m/sec)	0.1587, 0.2579, 0.3571, 0.4564
Reynolds No., N_{Re}	1390, 2260, 3120, 3990
Schmidt No., N_{Sc}	6360

한외여과막에 의한 Dextran 용액의 분리 및 막 투과 flux의 실험조건은 Table 2와 같다.

사용된 2종류 막은 실험 최대압력(4 kg/cm²)에서 최소 24시간 이상 compaction시켜 순수의 투과 flux를 측정하여 식 (1)로 부터 막 저항을 구한 후 실험에 사용하였다. 실험은 농도분극이 적게 생기는 조건으로 부터 즉, 낮은 압력에서 높은 압력으로, 높은 유속에서 낮은 유속으로, 낮은 농도에서 높은 농도의 순서로 행하였으며, 막 투과 flux와 용질배제계수는 각 실험 조건하에서 약 30분 경과후의 정상상태 값을 측정하여 구하였다.

도입, 배출 및 여과액중의 Dextran 농도는 전유기 탄소 측정기(TOC, OI Co., Model 525, 미국)로 측정하였으며, 모든 실험은 35°C의 일정한 온도에서 행하였다.

4. 실험결과 및 고찰

4-1. 막 투과 flux 및 용질배제계수

CA (0) 및 CA (20 K)막을 compaction시킨 후 순수의 막 투과 flux를 측정하여 구한 막 저항 R_m 은 각각 $1.57 \times 10^{13} \text{ m}^{-1}$, $7.16 \times 10^{12} \text{ m}^{-1}$ 이었다.

압력차, 순환유속 및 Dextran의 농도변화에 따른 CA (0) 및 CA (20 K)막에 대한 막 투과 flux의 변화를 도입농도 $6 \times 10^{-3} \text{ g/ml}$, 압력차 $1.96 \times 10^5 \text{ Pa}$ 의 경우에 대해 Fig. 3 및 Fig. 4에 나타내었으며, 순환유속 및 압력차 변화에 따른 측정 용질배제계수 R_o 의 변화를 Fig. 5에 나타내었다.

이 결과 2종류 한외여과막 모두에 대해 막 표면에서

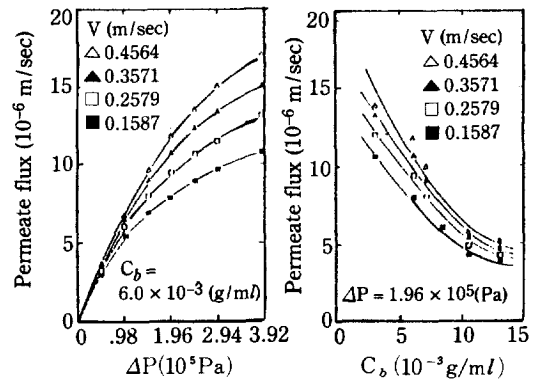


Fig. 3. Ultrafiltration permeate flux as a function of transmembrane pressure, bulk concentration and recirculation velocity for SEPA CA(0).

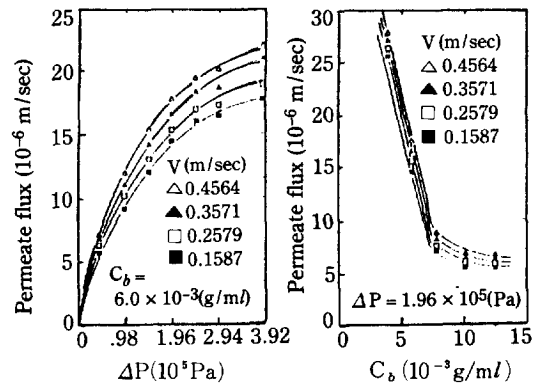


Fig. 4. Ultrafiltration permeate flux as a function of transmembrane pressure, bulk concentration and recirculation velocity for SEPA CA(20K).

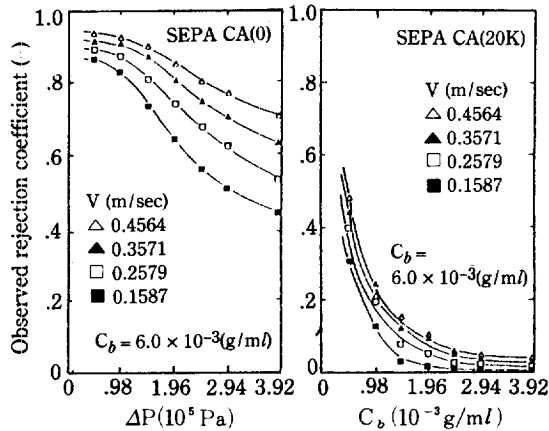


Fig. 5. Observed rejection coefficient as a function of transmembrane pressure and recirculation velocity.

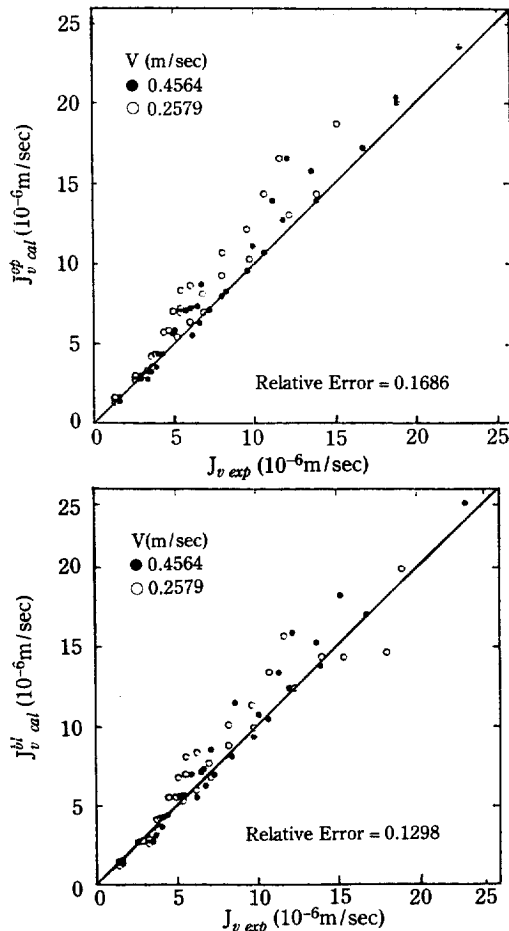


Fig. 6. Comparison of the calculated permeate flux with experimented permeate flux for SEPA CA(0).

의 농도분극 현상으로 막 투과 flux는 순수의 막 투과 flux보다 감소하였으며, 감소정도는 Dextran의 도입 농도가 클수록, 순환유속이 작을수록 크게 나타났다. 또한 압력차가 증가함에 따라 막 투과 flux의 증가율이 감소하였으며, 동일 압력차에서 Dextran의 농도가 클수록 증가율은 더 감소하였다. 측정 용질배제계수 R_o 는 순환유속이 작을수록, 압력차가 클수록 감소하며, 이는 순환유속이 작고 압력차가 클수록 막 표면에서의 Dextran의 농도 C_m 이 증가되어 투과액중의 Dextran의 농도 C_p 가 증가되기 때문으로 사료된다[16].

식 (7)로부터 농도분극을 M 을 구한 후, R_o 로 수정된 삼투압 모델 식 (2) 및 경제층 저항 모델 식 (14)에 의해 계산된 막 투과 flux $J_{v, cal}$ 와 실험값 $J_{v, exp}$ 을 비교하여 Fig. 6 및 Fig. 7에 나타내었다. 본 계산과정에

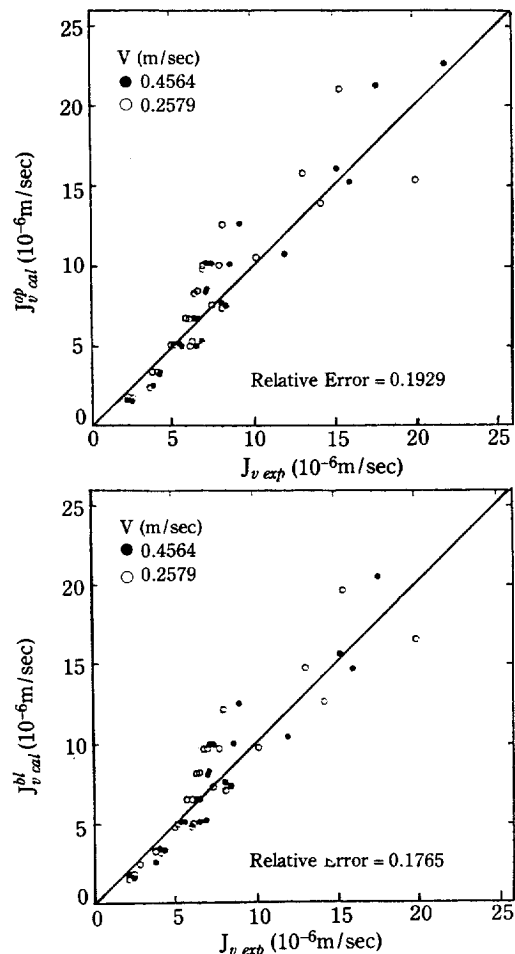


Fig. 7. Comparison of the calculated permeate flux with experimented permeate flux for SEPA CA(20K).

Table 3. Properties of Dextran (M. Wt.; 15,000-20,000) solution (at 35°C).

$\Delta\pi = 0.41415C + 8.3051C^2 + 84.376C^3 [10^5 \text{Pa}]$	Ref. [8]
$S = \frac{2.178}{1 + 13.7C} \times 10^{-13} [\text{sec}]$	Ref. [15]
$D = 1.099 \times 10^{-10} [\text{m}^2/\text{sec}]$	Ref. [17]
$p = \frac{4.8}{C + 13.7C^2} \times 10^{-19} [\text{m}^2]$	Ref. [15]

서 물질전달계수 k 는 Deissler[8]가 제시한 다음식을 사용하였으며,

$$k = 0.023 \left(\frac{d_h V \rho_0}{\eta_0} \right)^{0.875} \left(\frac{\eta_0}{\rho_0 D} \right)^{0.25} \left(\frac{D}{d_h} \right) \quad (16)$$

Dextran 용액의 삼투압, 침강계수, 투과도 및 확산계수는 Table 3의 자료들을 사용하였다.

이 결과 R_0 로 수정된 삼투압 모델 및 경계층 저항 모델에 의한 막 투과 flux의 계산값과 실험값과는 상대오차 0.2 이내에서 잘 일치하고 있는 바, 한외여과막에 의해 용질이 완전히 배제되지 않는 경우의 막 투과 flux는 R_0 로 기존의 모델식을 수정하여야만 예측이 가능함을 확인하였다.

CA(0) 및 CA(20K)막에 의한 Dextran 용질의 실질배제계수(true rejection coefficient) R_T 를 다음 식으로 부터 구하여 그 결과를 Fig. 8에 나타내었다.

$$R_T = 1 - \frac{C_f}{C_m} \quad (17)$$

이 결과 도입농도, 도입유속 및 압력차 변화에 따른 실질배제계수 R_T 의 변화정도는 측정 배제계수 R_0 의 변

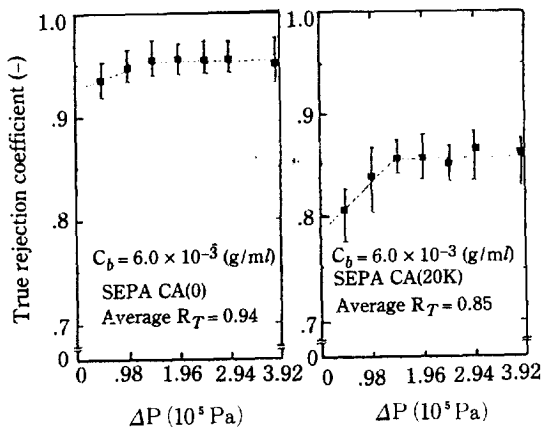


Fig. 8. True rejection coefficient as a function of transmembrane pressure.

화정도 보다 적음을 알 수 있다. 본 실험 조건하에서 막의 세공크기가 변화되지 않는다면 용질배제계수는 실험조건의 변화에 관계없이 일정한 값이 되어야만 막의 특성을 나타내는 인자로서 사용될 수 있다. 따라서 막

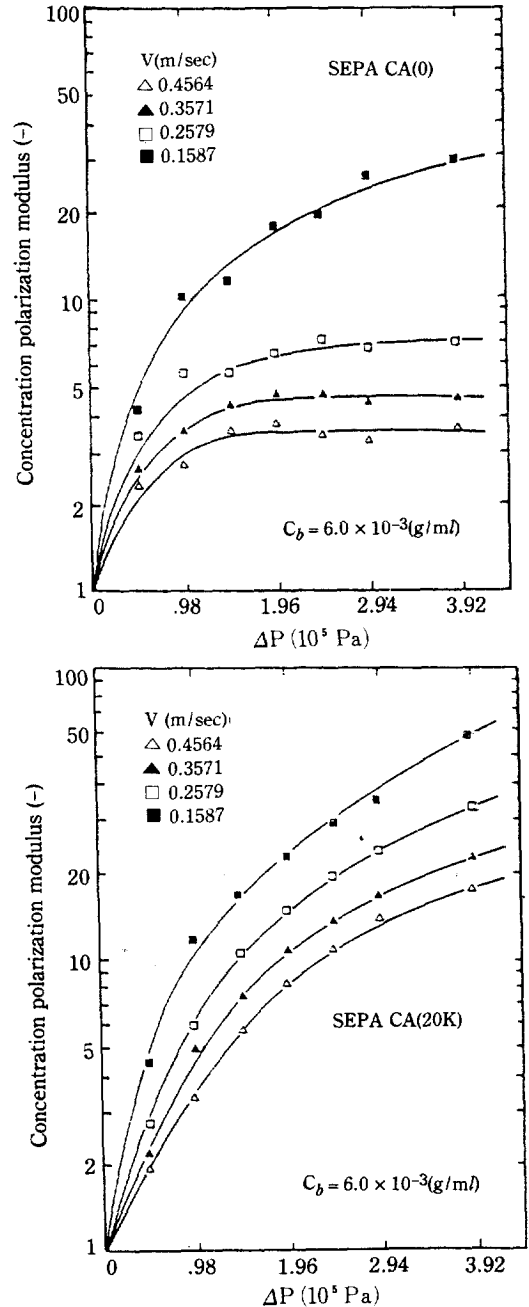


Fig. 9. Concentration polarization modulus as a function of transmembrane pressure and bulk velocity.

특성 인자로서의 용질배제계수는 도입농도 C_0 를 기준으로 계산된 측정 배제계수 R_0 보다는 막 표면의 농도 C_m 을 기준으로 계산된 실질배제계수 R_r 를 사용하는 것이 보다 타당함을 알 수 있다. 본 실험범위에서 CA(0) 및 CA(20 K)막에 의한 Dextran(M. Wt. : 15,000-20,000) 용질의 실질배제계수 R_r 는 각각 평균 0.94 및 0.85 이었다.

4-2. 농도분극을

식 (7)로 농도분극을 M 을 계산하여 이중 도입농도가 $6 \times 10^{-3} \text{ g/m}^3$ 인 경우 압력차 및 도입유속 변화에 따른 농도분극의 변화를 Fig. 9에 나타내었다.

이 결과 농도분극을 M 은 순환유속이 작을수록 압력차 및 도입농도가 클수록 증가하였으며, 또한 막 저항이 큰 CA(0)막이 CA(20 K)막보다 농도분극이 크게 나타났다. 본 실험범위에서 농도분극은 100 이하이었으며 이로 부터 계산된 막 표면의 Dextran 농도 C_m 은 최대 0.6 g/m^3 이었다. 이 값은 막 표면에 Dextran의 겔층이 형성되는 한계농도인 0.7 g/m^3 [8] 보다 작아 본 실험의 경우에는 겔층이 형성되지 않음을 알 수 있으므로 Blatt 등[3]이 제시한 겔층 모델은 적용이 불가능하였다.

5. 결 론

CA(0) 및 CA(20 K) 막에 의한 Dextran(M. Wt. : 15,000-20,000) 용액의 한외여과 실험결과 다음의 결론을 얻었다.

1. 막 투과 flux와 측정 용질배제계수는 Dextran의 농도가 높을수록 순환유속이 작을수록 감소하였으며, 압력차가 증가함에 따라 막 투과 flux의 증가율 및 측정 용질배제계수는 감소하였다.

2. 수정된 삼투압 모델 및 경계층 저항 모델에 의한 막 투과 flux의 예측치는 상대오차 0.2이내에서 실험값과 비교적 잘 일치하였다.

3. CA(0) 및 CA(20 K)막에 의한 Dextran의 실질 배제계수는 각각 평균 0.94 및 0.85이었으며, 농도분극은 순환유속이 작을수록 Dextran 도입농도 및 압력차가 클수록 증가하였으며, 본 실험범위에서는 100 이하의 값을 나타내었다.

감 사

본 연구는 한국과학재단의 지원으로 이루어진 것으로 이에 사의를 표합니다.

NOMENCLATURE

A_i	: coefficients in Eq. (3)
B_1	: coefficient in Eq. (10), $\eta_0 S_0 / (1 - \nu_1 / \nu_0)$
B_2	: coefficient in Eq. (9)
C	: solute concentration, g/ml
d_h	: hydraulic diameter, m
D	: diffusion coefficient of solute in water, m^2/sec
J_0	: permeate flux, m/sec
k	: mass transfer coefficient, m/sec
M	: concentration polarization modulus, —
p	: solvent permeability in solute, m^2
ΔP	: transmembrane pressure difference, Pa
R	: rejection coefficient, —
R_{bl}	: resistance of boundary layer, m^{-1}
R_m	: resistance of membrane, m^{-1}
S	: sedimentation coefficient of solute, sec
S_0	: S at infinite dilution, sec
V	: recirculation velocity, m/sec
ν_0	: partial specific volume of solvent, ml/g
ν_1	: partial specific volume of solute, ml/g
x	: coordinate perpendicular to membrane surface, m
δ	: thickness of boundary layer, m
$\Delta \pi$: osmotic pressure difference, Pa
η_0	: viscosity of solvent, Pa. sec
ρ_0	: density of solvent, g/ml

Subscripts

b	: bulk
f	: filtrate
m	: membrane surface
o	: observed
T	: true

Superscripts

op	: osmotic pressure model
bl	: boundary layer resistance model

REFERENCES

- Flashcel, E., Wandrey, C. and Kula, M.-R.: "Ultrafiltration for the Separation of Biocatalysts", in *Advances in a Biochemical Engineering and Biotechnology*, Fiechter, A., Ed., Springer-Verlag, Berlin, 73 (1983).
- Pompei, C., Resmini, P. and Peri, C.: *J. Food Sci.*, **38**, 867 (1973).
- Blatt, W.F., Dravid, A., Michaels, A.S. and Nelson, L.: "Solute Polarization and Cake Formation in Membrane Ultrafiltration: Causes, Conse-

- quences, and Control Techniques" in *Membrane Science and Technology*, Flinn, J.E., Ed., Plenum Press, New York, 47 (1970).
4. Poter, M.C.: *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev.*, **11**, 234 (1972).
 5. Wijmans, J.G., Nakao, S. and Smolders, C.A.: *J. Membrane Sci.*, **20**, 115 (1984).
 6. Goldsmith, R.L.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **10**, 113 (1971).
 7. Kozinski, A.A. and Lightfoot, E.N.: *AIChE J.*, **17**, 81 (1971).
 8. Wijmans, J.G., Nakao, S., Vandenberg, J.W.A., Troelstra, F.R. and Smolders, C.A.: *J. Membrane Sci.*, **22**, 117 (1985).
 9. Dorson, W.J. Jr. and Pizziconi, V.B.: "Ultrafiltration of Plasma and Blood" in *Advances in Biomedical Engineering Part II*, Cooney, D.O., Ed., Marcel Dekker, Inc., New York., 561 (1980).
 10. Baker, R.W. and Straffmann, H.: *J. Appl. Polym. Sci.*, **14**, 1197 (1970).
 11. Nakao, S.I. and Kimura, S.: *J. Chem. Eng. Japan*, **14**, 32 (1981).
 12. Colton, C.K., Sigmund Friedman., Wilson, D.E. and Lees, R.S.: *J. Clinical Investigation.*, **51**, 2472 (1972).
 13. Brandrup, J. and Immergut, E.H.: "Polymer Handbook", Inter. Sci., New York, (1967).
 14. Mijnieff, P.F. and Jaspers, W.J.M.: *Trans. Faraday Soc.*, **67**(6), 1837 (1971).
 15. Senti, F.R., Hellan, N.N., Ludwig, N.M., Babb-G.E., Tobin, R., Glass, C.A. and Lanberts, B.L.: *J. Polym. Sci.*, **117**, 527 (1955).
 16. Schweitzer, P.A.: "Handbook of Separation Techniques for Chemical Engineers", McGraw-Hill, New York, (1973).
 17. Frigon, B.P., Leyboldt, J.K., Uyejl, S. and Henderson, L.W.: *Annal. Chem.*, **55**, 1349 (1983).
 18. Wales, M.: *Amer. Chem. Soc., Symp. Ser.*, **154**, 373 (1981).