

난류촉진물을 이용한 한외여과의 투과효율 향상

박함용 · 오준택 · 임교빈* · 김우식

연세대학교 공과대학 화학공학과

*수원대학교 공과대학 화학공학과

(1992년 6월 9일 접수, 1993년 1월 25일 채택)

Permeate Flux Improvement Using Turbulence Promoter in Ultrafiltration

Ham Yong Park, Joon Taek Oh, Gio-Bin Lim* and Woo Sik Kim

Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Yonsei University

**Dept. of Chem. Eng., College of Eng., The University of Suwon*

(Received 9 June 1992; accepted 25 January 1993)

요 약

한외여과에서 난류발생에 의해 농도분극을 감소시켜 막투과 flux를 증가시키고 분리효율을 높이기 위하여 난류촉진물로서 현재 나린형 모듈에서 쓰이는 유로 형성체(feed spacer)를 평판형 한외여과 cell에 적용하였다. 난류촉진물을 사용하여 dextran 500,000 용액의 한외여과 실험결과 막투과 flux는 막의 종류와 압력차, 순환유속, 도입용액 농도 등의 조작조건에 따라 13.8-114.4%의 증가율을 보였다. 한편 농도분극층 내에서의 용질의 물성변화를 고려하여 기존의 Sherwood수 상관관계식을 보정하고, 그 타당성을 검토하였는데, 보정된 Sherwood수 상관관계식은 기존의 관계식에 비하여 향상된 결과를 보였으며, 그 관계식은 아래와 같다.

$$N_{Sh} = 0.306(N_{Re})^{0.285}(N_{Sc})^{0.330}(N_{Scm})^{0.113}$$

Abstract—A channel spacer of spiral-wound membrane module was applied to a flat plate ultrafiltration cell as a turbulence promoter in order to reduce concentration polarization in ultrafiltration of dextran(M.W. 500,000) solution. As a result of using turbulence promoter the permeate flux was improved by 13.8-114.4% depending on membranes and operational conditions. Mass transfer correlation was modified by considering variation of physical properties(viscosity, density and diffusivity) in concentration polarization layer. The modified mass transfer correlation showed better agreement with experimental results than the conventional one. The modified mass transfer correlation is as follow :

$$N_{Sh} = 0.306(N_{Re})^{0.285}(N_{Sc})^{0.330}(N_{Scm})^{0.113}$$

1. 서 론

한외여과는 압력차를 추진력으로 하는 분리조작으로

단백질, 효소, 혈장 단백질 등의 고분자 물질을 주분리 대상으로 하여 생물공학, 의용공학 분야 등에 다양한 응용가능성이 있으나[1], 분리대상인 고분자 용액의 확

산계수가 작아서 막표면에 용질이 쌓이게 되는 농도분극(concentration polarization) 현상이 일어나 실용화가 어려운 실정이다. 농도분극은 막투과 flux를 감소시켜 분리효율을 저하시키며, 일정 압력차 이상에서는 압력차를 증가시켜도 농도분극의 증가로 인해 막투과 flux의 증가율이 작아지고, 결국 압력차에 관계없이 막투과 flux가 일정하게 되는 한계투과 flux에 도달하게 된다[2]. 이에 따라 농도분극 현상을 효과적으로 감소시키기 위해 많은 연구가 이루어져 왔으며, 현재까지의 대표적인 방법으로는 유속을 증가시키는 방법, pulse를 주며 용액을 공급하는 방법 및 유로 내에 난류를 일으키는 구조물의 설치 등을 들 수 있다[3]. 이 중 본 연구에서는 현재 나린형 모듈(spiral-wound module)에서 쓰이는 유로형 성물(feed spacer) 두 가지를 평관형 모듈에 적용하여 각각의 막투과 flux 증가 효과를 규명하였으며, 농도분극 감소로 인한 물질전달계수의 증가를 정량적으로 나타내기 위하여 기존의 Sherwood수 상관 관계식을 보정하였다. 기존의 상관 관계식은 한외여과 농도분극층 내에서의 용질의 농도가 높아짐으로 인한 용질의 물성(점도, 확산계수, 밀도)이 심각하게 변화되는 특수한 상황을 적절히 고려해 주지 못하였으므로[4], 이를 고려해 주기 위해 막표면 농도에서의 점도, 확산계수 및 밀도를 포함한 무차원군인 막표면 Schmidt수를 계산하여 도입함으로써 새로 보정된 물질전달 상관관계식을 도출하여 그 타당성을 검토하였다.

2. 이 론

2-1. 농도분극 현상의 해석

한외여과에서 농도분극 현상은 막표면에서의 용질농도 변화를 이용하여 정량적으로 나타낼 수 있으나, 아직까지는 막 표면에서의 용질농도를 직접 측정할 수 있는 방법이 개발되어 있지 않다. 현재는 농도분극으로 인한 막투과 flux의 감소효과를 설명하고 막표면에서의 용질의 농도를 예측하기 위한 대표적인 방법으로 삼투압 모델과 경계층 저항 모델을 들 수 있다. 이 중 삼투압 모델은 막표면의 농도분극층에서 용질이 쌓이게 되어 용질의 농도가 높아짐으로 인해서 농도가 매우 낮은 투과액과 농도분극층간의 삼투압이 증가되며 추진력인 압력차와 반대되는 방향으로 작용하여, 한외여과의 추진력인 압력차가 감소되는 것으로 해석하는 경우이며, 이 때 막투과 flux를 역삼투압 이론식에 근거하여 다음과 같이 나타낼 수 있다[5-7].

$$J_r = \frac{\Delta P - \Delta \Pi_{mp}}{R_m} \quad (1)$$

한편 경계층 저항 모델의 경우는 막 표면의 농도 분극층을 막투과 flux에 대한 또하나의 저항으로 해석하는 것으로 막투과 flux를 다음과 같이 나타내며[5],

$$J_r = \frac{\Delta P}{R_m + R_{bl}} \quad (2)$$

이 때 실험을 통해 막투과 flux 및 막 저항 R_m 을 구하며, 이 값을 식 (1)과 (2)에 대입, 투과액과 막 표면과의 삼투압차 $\Delta \Pi_{mp}$ 및 경계층 저항 R_{bl} 을 구할 수 있다. 이들은 모두 다음의 식 (3), (4)와 같이 막 표면 농도 C_m 의 함수로 표시되므로, 막 표면에서의 농도 C_m 을 계산할 수 있다[8-10].

$$\Delta \Pi_{mp} = A_1(C_m - C_p) + A_2(C_m^2 - C_p^2) + A_3(C_m^3 - C_p^3) \quad (3)$$

$$R_{bl} = \frac{D(1 - v_1/v_2)}{J_r S_b} \left[(C_p + K_1 C_p^2 + K_2 C_p^3) \ln \left(\frac{C_m - C_p}{C_b - C_p} \right) + (1 + 2K_1 C_p + 3K_2 C_p^2)(C_m - C_p) + \frac{1}{2}(K_1 + 3K_2 C_p)[(C_m - C_p)^2 - (C_b - C_p)^2] + \frac{1}{3}K_2[(C_m - C_p)^3 - (C_b - C_p)^3] \right] \quad (4)$$

2-2. 막투과 flux에 영향을 미치는 인자들

막투과 flux에 영향을 미치는 주요 인자들로는 압력차, 도입용액농도, 온도, 유속 및 유로 내에서의 난류도(turbulence)를 들 수 있다.

2-2-1. 압력차(transmembrane pressure)

일정한 크기의 세공이 균일하게 분포되어 있는 막에서 오염 및 농도분극을 무시할 수 있는 등의 이상적인 경우에 막투과 flux는 Hagen-Poiseuille법칙으로 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$J_r = \frac{\epsilon r^2 P}{8\eta \Delta x} \quad (5)$$

여기서, J_r 는 막을 통한 유속 즉, 막투과 flux이며, r 은 유로 즉, 세공의 반경을, 그 외에 ϵ , η 과 Δx 는 각각 막의 세공율, 유체의 점도 및 유로의 길이, 즉 막두께를 나타낸다.

한외여과가 압력차를 추진력으로 하는 분리공정이므로, 식 (5)에 의하면 이론적으로 막투과 flux는 압력차에 비례하여 증가하지만, 실제 용액의 한외여과 조작에서는 낮은 압력차, 낮은 도입용액농도, 빠른 유속의 조건하에서만 압력차에 비례하여 flux가 증가하며, 앞의 세 가지 조건 중 하나만 충족되지 못해도 분리조작을 행함에 따라 농도분극현상으로 인해 flux가 점점 압력차에 무관해지는 영역(pressure independent region)에 도달하게 된다

[2].

2-2-2. 도입용액농도(feed concentration)

압력차에 영향을 받지 않는 물질전달 지배계(mass transfer-controlled system)의 한외여과에서 경막이론(film theory)에 의하면, 막투과 flux는 다음의 식 (6)과 같이 나타낼 수 있다[3].

$$J_v = \frac{D}{\delta} \ln \frac{C_m}{C_b} = k \ln \frac{C_m}{C_b} \quad (6)$$

여기서 k 는 물질전달계수, δ 는 농도경계층의 두께이며, C_m 은 막표면에서의 용질 농도이다. 따라서 막투과 flux는 도입용액농도 C_b 가 증가함에 따라 감소하게 된다.

2-2-3. 온도

일반적으로 막투과 flux는 온도에 비례해서 증가한다. 막투과 flux가 압력차에 지배되는 영역에서는 온도의 영향은 주로 유체의 점도변화에 기인한다. 대부분의 액체의 경우 점도는 온도에 반비례하므로 식 (5)에 의하면 온도와 막투과 flux는 비례하여 증가하게 된다.

한편, 물질전달 지배영역에서는 물질전달계수 k 가 온도에 비례하여 증가하므로 식 (6)에 의해 역시 막투과 flux가 온도에 비례하여 증가하게 된다.

2-2-4. 난류(turbulence)

난류는 막표면 부근에서 유체를 교반시켜 침적되어 있는 용질들을 씻어내려 주어서 농도경계층의 두께를 줄여준다. 따라서 난류는 가장 간단하면서도 효과적인 막투과 flux증가의 수단으로서, 교반, 유속증가 및 난류 발생물에 의하여 발생시킬 수 있으며, 농도분극 현상이 심한 조건, 즉 높은 도입용액농도 및 고압에서 막투과 flux에 대한 유속, 즉 난류의 영향이 크게 나타난다.

2-3. 물질전달계수의 예측

차원해석에 의한 매끄러운 관에서의 물질전달계수의 상관관계식은 일반적으로 다음과 같이 나타낼 수 있다 [11, 12].

$$N_{Sk} = a(N_{Re})^x (N_{Sc})^y \quad (7)$$

그러나 이 상관관계식을 한외여과에 적용할 경우, 농도분극층에서 농도가 매우 높아져 이로 인한 용질의 점도, 확산계수, 밀도가 변화하게 되며, 이러한 변화가 물질전달계수에 미치는 영향을 제대로 고려하여 주고 있지 못하기 때문에 상당한 편차를 보이게 된다고 보고된 바 있다[13]. 이러한 상황은 관을 통해 난류로 흐르는 유체와 관사이의 열전달에서, 가열된 관벽에서의 점도 및 열확산계수의 변화상과 유사하게 볼 수 있다. 열전달의 경우 보정인자로서 $(N_{Pr}/N_{Prw})^y$, 즉 Prandtl 보정인자를 사용한다[5]. 열전달과 물질전달간의 직접적인 유사성

으로부터 Schmidt 보정인자로서 상관관계식에 막상에서의 농도조건에서 계산한 Schmidt 수를 도입할 수 있으며[5], 이 때의 상관관계식은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$N_{Sk} = a(N_{Re})^x (N_{Sc})^y (N_{Scm})^y \quad (8)$$

(단, $N_{Scm} = \frac{\eta_m}{\rho_m D_m}$)

이 때 막상에서의 Schmidt 수는 경계층 저항모델을 이용하여 계산한 막표면 농도 C_m 의 조건에서 점도, 밀도 및 확산계수를 구하여 계산하였다.

3. 실험

3-1. 실험장치 및 방법

본 연구의 실험장치는 Fig. 1과 같다. 조작 압력차는 한외여과 cell양단에 설치된 밸브를 이용하여 조절하였고, 이의 측정을 위해 역시 양단에 압력계를 설치하였다. 스테인레스 관으로 배관하였고, 예비 여과기로 cell 내에 불순물 및 오염물질 도입을 막았다. 여과액이나, 배제액은 모두 저장조로 환류시켜 용액의 농도를 일정하게 유지시켰고, 저장조는 항온조를 이용하여 일정온도($25 \pm 1^\circ\text{C}$)를 유지하였다.

한외여과 cell은 높이, 너비 및 길이가 각각 0.29 cm, 2.2 cm 및 34 cm가 되도록 평판형으로 제작하였다.

사용한 막은 덴마크 DDS사의 상용막인 FS61PP와 GR

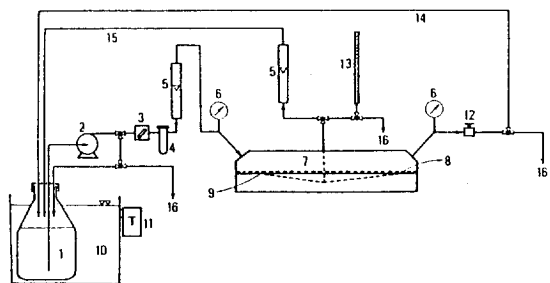


Fig. 1. Schematic diagram of ultrafiltration experimental system.

- | | |
|-------------------------------|---------------------------------|
| 1. Solution reservoir | 11. Temperature controller |
| 2. Solution pump | 12. Back pressure control valve |
| 3. Pressure regulator | 13. Volumetric capillary |
| 4. Prefilter | 14. Solution recycle |
| 5. Rotameter | 15. Permeate recycle |
| 6. Pressure gauge | 16. Sampling tap |
| 7. Ultrafiltration cell | |
| 8. Membrane | |
| 9. Porous support | |
| 10. Constant temperature bath | |

Table 1. Characteristics of the GR51PP, FS61PP ultrafiltration membrane by manufacturer(DDS Inc., Denmark)

| | Material | Water flux(m ³ /m ² h) | Approx. cut-off value(Mw.) | Max. operating pressure(Pa) |
|--------|---------------|--|----------------------------|-----------------------------|
| GR51PP | Polysulfone | 0.25-0.40 | 50,000 | 10.0×10 ⁵ |
| FS61PP | Fluoropolymer | 0.30-0.60 | 20,000 | 15.0×10 ⁵ |

Table 2. Properties of dextran(M.W.: 500,000) solution at 25°C[14-16]

| | |
|--------------------------------|---|
| Osmotic pressure(Pa) | $8.82 \times (C + 3.47 \times 10^{-2} \cdot C^2 + 1.036 \times 10^{-3} \cdot C^3)$ |
| Diffusivity(m ² /s) | $1.121 \times 10^{-11} + 2.672 \times 10^{-13} \cdot C - 4.227 \times 10^{-16} \cdot C^2 + 2.163 \times 10^{-19} \cdot C^3$ |
| Viscosity(Pa·s) | $0.00104 \cdot \exp(0.01682 \cdot C)$ |
| Density(kg/m ³) | $995.8 + 0.3125 \cdot C$ |

Table 3. Characteristics of turbulence promoters

| | Material | Thickness (mm) | Mesh (strands/cm) |
|------------------------|---------------|----------------|-------------------|
| Turbulence promoter I | polypropylene | 0.80 | 5×5 |
| Turbulence promoter II | polypropylene | 0.45 | 7×6 |

51PP로서 이들의 특성치를 Table 1에 나타내었다.

실험에 사용된 막의 막저항을 구하기 위하여 한외여과 cell에 막을 장치하여 3.92×10⁵ Pa(4 kg/cm²)에서 24시간 이상 압밀화시킨 후, 순수의 투과실험을 행하였다. 한외여과 실험은 유속 0.13-0.65 m/s, 도입용액농도 0.5-1.5 kg/m³, 압력차 0.49×10⁵-2.45×10⁵ Pa(0.5-2.5 Kg/cm²)의 범위에서 행하였고, N_{Re}와 N_S의 범위는 각각 620-3157과 9.22×10⁴-9.28×10⁴이었다.

막투과 flux는 투과액 일정부피가 투과될 때 소요되는 시간을 volumetry capillary를 이용하여 측정하였다. 또한 도입용액의 농도 및 투과용액의 dextran의 농도는 전 유기탄소측정기(T.O.C., O.I. Corporation, Model 525, 미국)를 이용하여 측정하였다.

본 실험에 사용된 dextran 500,000 용액의 농도에 따른 삼투압, 확산계수, 점도 및 밀도의 특성값을 Table 2에 나타내었다.

3-2. 난류촉진물

본 실험에서 사용한 난류촉진물로는 polypropylene 재질의 기존 나관형 모듈의 유로 형성물(feed spacer)로서 두께 및 메쉬가 다른 두 가지 타입을 사용하였으며, 이들의 특성을 Table 3에 나타내었다.

난류촉진물의 효과를 알아보기 위하여 한외여과 막 위에 막면적과 같은 크기의 난류촉진물을 덮은 후 같은

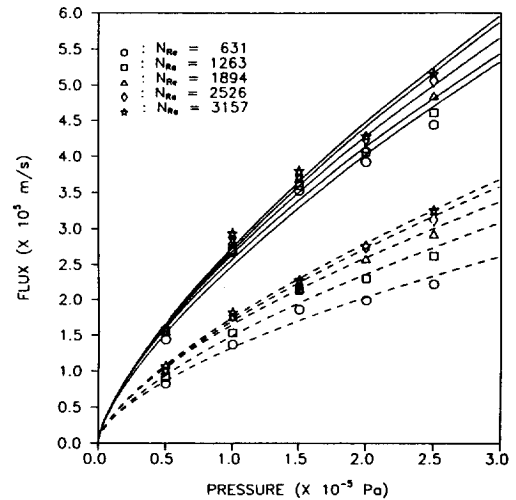


Fig. 2. Permeate flux as a function of transmembrane pressure for FS61PP membrane. with(—), and without(---) turbulence promoter I.

조건하에서 막투과 flux 및 투과 용액 농도를 측정하였다. 난류촉진물을 사용한 경우, 이 물질에 의한 용액흐름 유로단면적은 0.462 cm²로 총 유로면적의 27.6%가 감소하여, 유속이 38.8% 증가하였으나, 이 때의 상당 직경이 0.512 cm에서 0.383 cm로 25%가 감소하여 결국 Reynolds 수는 약 4% 정도만이 변화하여, 난류촉진물을 사용한 경우와 큰 차이를 나타내지 않았다.

4. 실험결과 및 고찰

4-1. 막투과 flux에 대한 난류촉진물의 영향

난류촉진물 I을 한외여과 cell 내의 유로에 장치하고 투과 실험을 행하여 막투과 flux와 압력차와의 관계를 Fig. 2에 나타내었다. FS61PP막을 사용, 도입용액 농도가 0.5 kg/cm³인 경우의 한외여과 실험결과, 난류촉진물을 사용한 경우 압력차 증가에 대한 막투과 flux의 증가율이 훨씬 더 컸으며, 가장 낮은 순환 유속(N_{Re}≅625)에서의 막투과 flux가 난류촉진물을 사용하지 않은 경우의 가장 높은 순환 유속(N_{Re}≅3100)에서의 막투과 flux보다 큰 것으로 미루어(Table 4) N_{Re}≅625 정도의 낮은 순환 유속에서도 난류촉진물에 의해 N_{Re}≅3100 이상의 유속에

Table 4. Experimental data of FS61PP membrane($C_b=0.5 \text{ kg/cm}^3$)

| ΔP [$\times 10^{-5} \text{ Pa}$] | N_{Re} [-] | without turbulent promoter | | | with turbulent promoter I | | |
|---|-----------------|--|-----------------------------------|-----------------|---|-----------------------------------|-----------------|
| | | J_p [$\times 10^5 \text{ m/s}$] | $C_{m, b}$ [kg/m^3] | N_{Sh} [-] | J_{ps} [$\times 10^5 \text{ m/s}$] | $C_{m, b}$ [kg/m^3] | N_{Sh} [-] |
| 0.49 | 631 | 0.83 | 160 | 315 | 1.44 | 106 | 744 |
| | 1263 | 0.91 | 150 | 367 | 1.54 | 83 | 910 |
| | 1894 | 1.01 | 136 | 436 | 1.56 | 78 | 919 |
| | 2526 | 1.04 | 131 | 465 | 1.57 | 74 | 945 |
| | 3157 | 1.07 | 126 | 491 | 1.60 | 62 | 1041 |
| 0.98 | 631 | 1.37 | 222 | 396 | 2.68 | 161 | 998 |
| | 1263 | 1.53 | 214 | 445 | 2.70 | 160 | 1014 |
| | 1894 | 1.76 | 198 | 558 | 2.83 | 147 | 1129 |
| | 2526 | 1.78 | 196 | 576 | 2.88 | 140 | 1219 |
| | 3157 | 1.82 | 192 | 604 | 2.94 | 133 | 1290 |
| 1.47 | 631 | 1.86 | 263 | 449 | 3.53 | 214 | 1056 |
| | 1263 | 2.13 | 253 | 531 | 3.60 | 211 | 1084 |
| | 1894 | 2.16 | 251 | 548 | 3.70 | 206 | 1113 |
| | 2526 | 2.21 | 249 | 561 | 3.74 | 203 | 1163 |
| | 3157 | 2.28 | 244 | 604 | 3.80 | 198 | 1242 |
| 1.96 | 631 | 1.99 | 312 | 365 | 3.92 | 263 | 964 |
| | 1263 | 2.30 | 302 | 437 | 4.06 | 259 | 1009 |
| | 1894 | 2.58 | 292 | 513 | 4.11 | 257 | 1029 |
| | 2526 | 2.75 | 281 | 606 | 4.24 | 252 | 1092 |
| | 3157 | 2.77 | 284 | 588 | 4.28 | 250 | 1124 |
| 2.45 | 631 | 2.22 | 341 | 365 | 4.44 | 293 | 978 |
| | 1263 | 2.62 | 323 | 496 | 4.61 | 291 | 1005 |
| | 1894 | 2.93 | 318 | 577 | 4.85 | 284 | 1095 |
| | 2526 | 3.13 | 309 | 629 | 5.06 | 277 | 1185 |
| | 3157 | 3.26 | 305 | 675 | 5.16 | 274 | 1226 |

상당하는 많은 난류현상이 일어나는 것으로 사료된다. 특히 도입용액 농도가 0.5 kg/m^3 로 비교적 낮은 경우는 압력차 증가에 대해 막투과 flux가 거의 직선에 가깝게 증가하여 압력차의 영향을 받는 영역이 크게 늘어남을 알 수 있었다. 난류촉진물의 영향은 도입용액 농도가 증가함에 따라 두드러지게 나타나 1.0 kg/cm^3 의 경우 최고 114%의 막투과 flux 증가율을 나타내었으며, 1.5 kg/cm^3 의 경우에도 114.4% 정도의 증가율을 보였다. 또한 이와 같은 막투과 flux의 증가에 따라 Table 4에 나타난 바와 같이 경계층 저항 모델로 예측한 막표면 농도의 값은 도입용액 농도가 0.5 kg/cm^3 일 경우 약 10-50% 정도 감소하였음을 보여주고 있다. 경계층 저항 모델로 예측한 막표면 농도를 압력차에 대해서 Fig. 3에 나타내었다. FS61PP 막보다 분획분자량이 높은(M.W. cut off: 50,000) GR51PP막의 경우에도 막투과 flux의 향상도는 17.3-100%로 비슷하게 나타났다. 따라서 난류촉진물의 효과는 막의 종류보다는 압력, 유속 및 도입용액 농도 등의 조작조건에 따라 크게 변화하는 것을 알 수 있었다.

난류촉진물에 의한 막투과 flux의 향상을 정량적으로 나타내기 위하여 막투과 flux의 향상도를 백분율 $[(J_{ps}-J_e)/J_e \times 100]$ 로 계산하여, 압력차에 대해 Fig. 4에 나타내었다. 이 결과 막투과 flux의 증가율은 12.6-114.4% 범위를 나타내었으며, 막투과 flux의 향상도는 압력차와 도입용액 농도가 증가할수록, 순환유속이 감소할수록 증가하는 경향을 나타내었는 바, 농도분극 현상이 심한 영역일수록 난류촉진물의 효과가 증가함을 알 수 있었다.

난류촉진물 I에 비해 메쉬 크기(mesh size)가 크고, 두께가 얇은 난류촉진물 II를 사용한 GR51PP 막의 막투과 flux를 난류촉진물을 사용하지 않은 경우 및 난류촉진물 I을 사용한 경우의 막투과 flux와 비교하여 Fig. 5와 6에 각각 나타내었는 바, 난류촉진물 II를 사용한 결과 막투과 flux는 모든 조작조건 범위에서 난류촉진물을 사용하지 않은 경우에 비해 증가하였으나(Fig. 5), 난류촉진물 I을 사용한 경우의 증가율에는 미치지 못하였다(Fig. 6). 이는 난류촉진물 II의 메쉬가 난류촉진물 I의 메쉬보다 커 난류촉진물을 막표면에 설치하였을 때, 난류촉진물에 의해 가려지는 막투과 면적이 커져서 이로

Table 5. Experimental data of FS61PP membrane($C_b=1.0 \text{ kg/cm}^3$)

| ΔP [$\times 10^{-5} \text{ Pa}$] | N_{Re} [-] | without turbulent promoter | | | with turbulent promoter I | | |
|---|-----------------|--|-----------------------------------|-----------------|---|-----------------------------------|-----------------|
| | | J_v [$\times 10^5 \text{ m/s}$] | $C_{m,bl}$ [kg/m^3] | N_{Sh} [-] | J_{vs} [$\times 10^5 \text{ m/s}$] | $C_{m,bl}$ [kg/m^3] | N_{Sh} [-] |
| 0.49 | 625 | 0.79 | 160 | 337 | 1.07 | 151 | 477 |
| | 1251 | 0.86 | 152 | 383 | 1.22 | 136 | 591 |
| | 1876 | 0.93 | 144 | 431 | 1.26 | 131 | 632 |
| | 2502 | 0.97 | 138 | 467 | 1.27 | 130 | 641 |
| | 3127 | 1.01 | 133 | 499 | 1.30 | 126 | 670 |
| 0.98 | 625 | 0.94 | 238 | 278 | 1.72 | 214 | 571 |
| | 1251 | 1.12 | 229 | 343 | 2.08 | 196 | 749 |
| | 1876 | 1.30 | 220 | 415 | 2.18 | 191 | 807 |
| | 2502 | 1.51 | 209 | 505 | 2.23 | 188 | 829 |
| | 3127 | 1.58 | 204 | 545 | 2.30 | 184 | 872 |
| 1.47 | 627 | 1.08 | 283 | 262 | 2.21 | 257 | 606 |
| | 1251 | 1.36 | 273 | 344 | 2.58 | 247 | 724 |
| | 1876 | 1.56 | 267 | 406 | 2.83 | 237 | 847 |
| | 2502 | 1.78 | 259 | 475 | 2.90 | 234 | 878 |
| | 3127 | 1.90 | 253 | 527 | 2.99 | 131 | 916 |
| 1.96 | 625 | 1.18 | 315 | 255 | 2.45 | 295 | 570 |
| | 1251 | 1.43 | 310 | 310 | 3.06 | 280 | 764 |
| | 1876 | 1.71 | 303 | 383 | 3.34 | 272 | 865 |
| | 2502 | 1.96 | 295 | 455 | 3.46 | 268 | 914 |
| | 3127 | 2.08 | 291 | 494 | 3.52 | 268 | 921 |
| 2.45 | 625 | 1.27 | 342 | 245 | 2.70 | 322 | 568 |
| | 1251 | 1.64 | 336 | 322 | 3.33 | 310 | 733 |
| | 1876 | 1.80 | 333 | 357 | 3.68 | 303 | 837 |
| | 2502 | 2.13 | 325 | 437 | 3.95 | 297 | 920 |
| | 3127 | 2.34 | 320 | 491 | 4.25 | 292 | 1004 |

Table 6. Experimental data of FS61PP membrane($C_b=1.5 \text{ kg/cm}^3$)

| ΔP [$\times 10^{-5} \text{ Pa}$] | N_{Re} [-] | without turbulent promoter | | | with turbulent promoter I | | |
|---|-----------------|--|-----------------------------------|-----------------|---|-----------------------------------|-----------------|
| | | J_v [$\times 10^5 \text{ m/s}$] | $C_{m,bl}$ [kg/m^3] | N_{Sh} [-] | J_{vs} [$\times 10^5 \text{ m/s}$] | $C_{m,bl}$ [kg/m^3] | N_{Sh} [-] |
| 0.49 | 620 | 0.59 | 175 | 246 | 1.00 | 155 | 467 |
| | 1240 | 0.71 | 165 | 313 | 1.13 | 143 | 563 |
| | 1859 | 0.79 | 157 | 363 | 1.14 | 142 | 571 |
| | 2479 | 0.85 | 151 | 406 | 1.17 | 139 | 593 |
| | 3099 | 0.89 | 146 | 436 | 1.18 | 138 | 603 |
| 0.98 | 620 | 0.79 | 239 | 246 | 1.44 | 223 | 483 |
| | 1240 | 0.79 | 232 | 312 | 1.77 | 209 | 632 |
| | 1859 | 1.11 | 220 | 367 | 1.97 | 199 | 733 |
| | 2479 | 1.22 | 226 | 414 | 2.07 | 194 | 789 |
| | 3099 | 1.26 | 218 | 432 | 2.14 | 191 | 830 |
| 1.47 | 620 | 0.84 | 283 | 217 | 1.76 | 266 | 488 |
| | 1240 | 1.07 | 278 | 280 | 2.19 | 254 | 642 |
| | 1859 | 1.29 | 271 | 349 | 2.47 | 245 | 751 |
| | 2479 | 1.44 | 265 | 400 | 2.61 | 241 | 808 |
| | 3099 | 1.57 | 261 | 447 | 2.79 | 235 | 883 |

Table 6. Continued

| ΔP [$\times 10^{-5}$ Pa] | N_{Re} [-] | without turbulent promoter | | | with turbulent promoter I | | |
|--------------------------------------|-----------------|-------------------------------|------------------------------------|-----------------|----------------------------------|-------------------------------------|-----------------|
| | | J_p [$\times 10^5$ m/s] | $C_{m, I}$ [kg/m ³] | N_{Sh} [-] | J_{ps} [$\times 10^5$ m/s] | $C_{m, II}$ [kg/m ³] | N_{Sh} [-] |
| 1.96 | 620 | 0.93 | 316 | 209 | 1.83 | 302 | 437 |
| | 1240 | 1.17 | 310 | 268 | 2.35 | 291 | 586 |
| | 1859 | 1.43 | 304 | 338 | 2.71 | 283 | 699 |
| | 2479 | 1.62 | 299 | 392 | 2.97 | 277 | 787 |
| | 3099 | 1.77 | 295 | 435 | 3.07 | 275 | 822 |
| 2.45 | 620 | 0.97 | 341 | 197 | 2.08 | 328 | 447 |
| | 1240 | 1.25 | 337 | 258 | 2.59 | 319 | 579 |
| | 1859 | 1.57 | 330 | 333 | 2.95 | 312 | 676 |
| | 2479 | 1.78 | 326 | 385 | 3.08 | 310 | 712 |
| | 3099 | 1.94 | 323 | 426 | 3.38 | 305 | 796 |

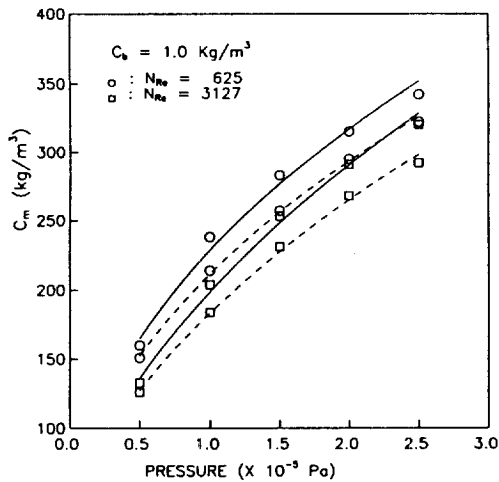


Fig. 3. Concentration at the membrane surface estimated by boundary layer resistance model as a function of transmembrane pressure for FS61PP membrane. with(—), and without(---) turbulence promoter I.

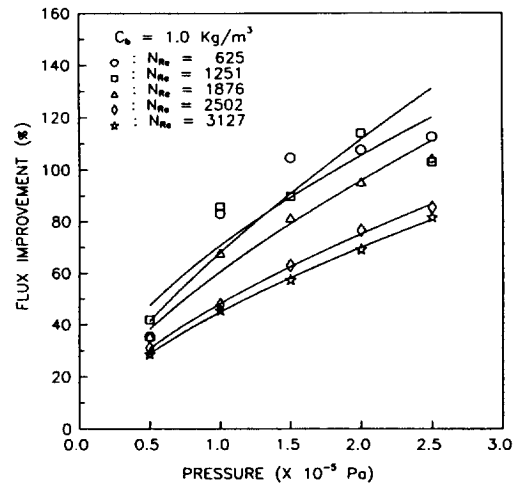


Fig. 4. Permeate flux improvement as a function of transmembrane pressure for FS61PP membrane.

인해 난류발생으로 인한 막투과 flux 증진 효과가 줄어들었으며, 또한 난류촉진물 II의 두께가 난류촉진물 I의 그것보다 작아 효과적인 난류흐름을 형성하지 못했기 때문으로 사료된다. 이와 같은 결과로 사용된 난류촉진물의 물성, 즉 매쉬 크기와 두께 등이 많은 영향을 미치는 중요한 인자임을 알 수 있었다.

4-2. Sherwood 수 상관관계식

경계층 저항 모델을 이용하여 계산한 막표면 농도를 이용하여 식 (7)과 (8)의 상관관계식의 지수항 α , γ 및 상수 a 를 본 실험자료에 근거하여 Levenberg-Marqu-

rdt의 비선형 회귀 분석법으로 결정하였는 바, 식 (7)에서 α 및 a 값이 각각 0.362, 0.289이었으며, 식 (8)에서는 α , γ 및 a 값이 각각 0.306, 0.285 및 0.1129였다. 이 때 Schmidt 수의 지수항 β 값은 지금까지 연구된 바에 의하면 Schmidt 수가 1000 이상일 경우 0.33이므로 본 실험 범위인 92200-92800에서는 0.33으로 고정하였다.

이들 α , γ 및 a 값을 도입하여 식 (7)과 (8)에서 Sherwood 수를 계산할 수 있었으며, 이의 타당성을 검토하기 위하여 실험자료를 이용하여 Sherwood 수를 결정하여 비교하였다. 실험적으로 Sherwood 수를 결정할 때 정상상태에서는 농도경계층을 통한 용질의 flux가 그대로 막을 통하여 이동하게 되어, 막투과 flux와 농도경계층의 용질 flux가 동일해지며, 막을 통과한 용질과 농도경계층을 통과한 용질의 물질수지식으로부터 농도경계층

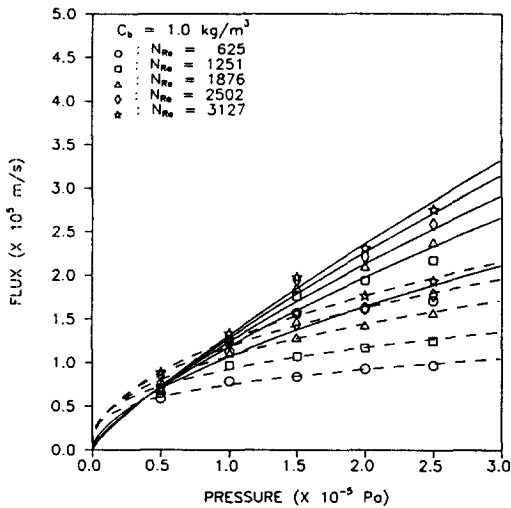


Fig. 5. Permeate flux as a function of transmembrane pressure for GR51PP membrane. with(—), and without(---) turbulence promoter II.

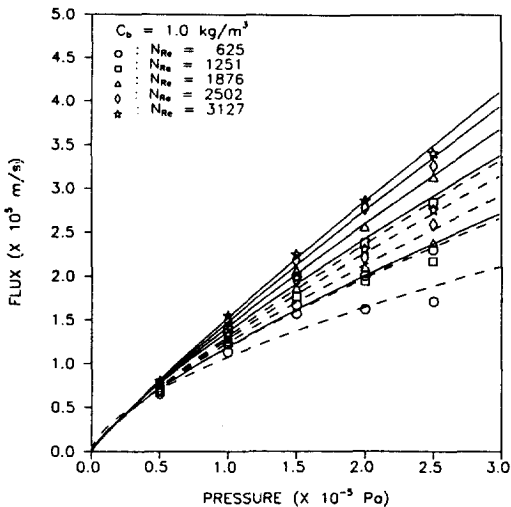


Fig. 6. Permeate flux as a function of transmembrane pressure for GR51PP membrane. with turbulence promoter I(—) and II(---).

에서의 물질전달계수를 계산하였다[16].

Sherwood 수의 계산값과 실험값을 도시하여 Fig. 7과 8에 나타내었는 바, Fig. 7에 나타낸 바와 같이 기존 Sherwood 수 상관관계식은 난류촉진물의 사용여부에 따라 data의 편재현상을 보이고 있고, 오차도 상당히 나타나, 농도 분극층 내에서의 용질의 점도, 밀도, 확산계수 변화를 고려하여 주지 못함을 알 수 있으며, 이를 막표면

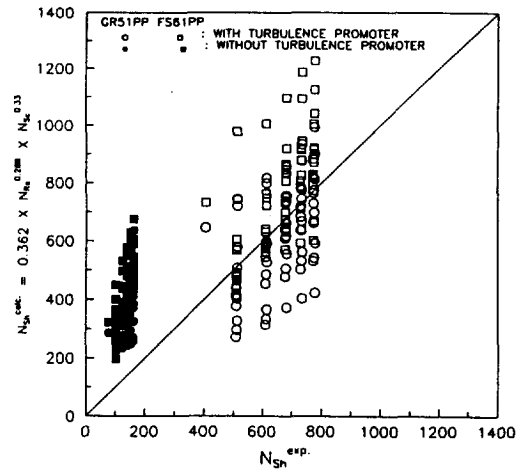


Fig. 7. $(0.362 \times N_{Re}^{0.289} \times N_{Sc}^{0.33})$ vs. N_{Sh}^{exp} plot.

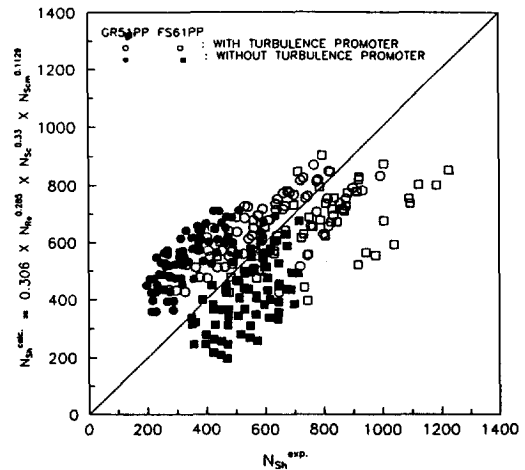


Fig. 8. $(0.362 \times N_{Re}^{0.289} \times N_{Sc}^{0.33} + N_{Scm}^{0.113})$ vs. N_{Sh}^{exp} plot.

에서의 Schmidt 수로서 보정한 Fig. 8은 편재현상을 보이고 있지 않고, Fig. 7에 비해 향상된 결과를 보여주고 있으나, 아직도 어느 정도의 오차를 보이고 있다. 이러한 오차는 실험시나 분석시에 나타날 수 있는 오차 뿐만 아니라, 막표면 농도를 정확히 측정할 수 없어, 경계층 저항 모델이나 삼투압 모델 등 이론식으로 막표면 농도를 예측하는데도 그 원인이 있는 것으로 사료된다.

5. 결 론

평판형 십자흐름 한외여과 cell에서 난류촉진물을 유로내에 설치하여 FS61PP 및 GR51PP 막에 의한 유연성 고분자 dextran(Mw : 500,000)용액의 한외여과 실험결

과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 압력차 및 순환 유속의 변화에 따른 난류촉진물 I에 의한 막투과 flux의 증가는 압력차가 증가함에 따라, 순환유속이 감소함에 따라 증가하였는데, FS61PP 막과 GR51PP 막의 경우 각각 28.7-114%와 13.8-112%를 얻을 수 있었다.

(2) 난류촉진물 I보다 메쉬가 크고(7×6 cm) 두께가 작은(0.45 mm) 난류촉진물 II에 의한 실험결과 GR51PP 막의 막투과 flux의 증가는 12.6-63.5%로서 난류촉진물 I에 의한 효과보다 작게 나타나 난류촉진물의 메쉬 크기와 두께가 막투과 flux의 증가에 영향을 미칠 수 있는 중요한 인자임을 확인할 수 있었다.

(3) 농도 경계층 내에서의 유효 물질전달계수 예측을 위해 농도분극층 내에서의 용질의 물성 변화를 고려하여 보정된 Sherwood 수 상관관계식은 다음과 같았다.

$$N_{Sh} = 0.306(N_{Re})^{0.285}(N_{Sc})^{0.330}(N_{Scm})^{0.113}$$

$$\text{단, } 0.49 \times 10^5 \text{ Pa} < \Delta P < 2.45 \times 10^5 \text{ Pa}$$

$$620 < N_{Re} < 3157$$

$$92200 < N_{Sc} < 92800$$

참 사

본 연구는 (주)유공의 지원에 의하여 이루어진 것입니다.

사용기호

- A_i : virial coefficient, $i=1, 2, 3$ [$\text{Pa m}^3/\text{kg}^i$]
 a : coefficient in eq. (7), (8) [-]
 C_b : solute concentration in bulk solution [kg/m^3]
 C_m : solute concentration at membrane surface [kg/m^3]
 $C_{m,bl}$: solute concentration at membrane surface estimated by boundary layer resistance model [kg/m^3]
 C_p : solute concentration in permeate [kg/m^3]
 D : solute diffusion coefficient [m^2/s]
 D_m : solute diffusion coefficient at membrane surface [m^2/s]
 J_v : permeate volume flux without turbulence promoter [$\text{m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{s}$]
 J_{vs} : permeate volume flux with turbulence promoter [$\text{m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{s}$]
 k : mass transfer coefficient [m/s]
 K_i : coefficient in eq. (4), $i=1, 2$ [m^3/kg^i]
 N_{pr} : Prandtl number [-]

- N_{prw} : Prandtl number at wall [-]
 N_{Re} : Reynolds number [-]
 N_{Sc} : Schmidt number at membrane surface [-]
 N_{Sh} : Sherwood number [-]
 ΔP : operating pressure [Pa]
 R_m, R_{bl} : resistance of membrane and boundary layer [$\text{kg/m}^2 \cdot \text{s}$]
 S_0 : sedimentation coefficient of solvent [s]
 T : temperature [K]
 V : recirculation velocity of solution [m/s]
 v_0, v_1 : partial specific volume of solvent and solute [m^3/kg]
 x : coordinate perpendicular to membrane surface [m]

그리스 문자

- α, β : coefficient in eq. (7), (8) [-]
 δ : thickness of boundary layer [m]
 ϵ : porosity of membrane [-]
 γ : coefficient in eq. (8) [-]
 η : viscosity of solution [$\text{Pa} \cdot \text{s}$]
 η_m : viscosity of solute at membrane surface [$\text{Pa} \cdot \text{s}$]
 ρ_m : density of solution at membrane surface [kg/m^3]
 $\Delta \Pi_{mp}$: osmotic pressure of solute over membrane to permeate [Pa]

참고문헌

1. Flaschel, E., Wandrey, C. and Kula, M.R.: in *Advances in Biochemical Engineering and Biotechnology*, Fiecher, A., Ed., Springer Verlag, Berlin, 73(1983).
2. 이충수: 석사학위논문, 연세대학교 대학원, 서울(1986).
3. Cheryan, M.: "Ultrafiltration Handbook", Technomic Publishing Company, Inc., Lancaster(1986).
4. Vassilis, G. and Bengt, H.: *J. of Memb. Sci.*, **30**, 153 (1987).
5. Wijmans, J. G., Nakao, S. and Smolders, C. A.: *J. of Memb. 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. Blatt, W. T., Dravid, A., Michaels, A. S. and Nelson, L.: "Separation Polarization and Cake Formation in Membrane Ultrafiltration: Cause, Consequences and Control Techniques", in *Membrane Science*

- nce and Technology, 47, Plenum Press, New York (1970).
9. Minjinlieff, P. F. and Jaspers, W. J. M.: *Trans. Faraday Soc.*, **67**(6), 1837(1971).
10. Williams, J. W.: "Ultrafiltration of Macromolecules", Academic Press, New York(1972).
11. Sherwood, R. K., Pigford, R. L. and Wilke, C. R.: "Mass Transfer", McGraw-Hill, New York(1975).
12. Treybal, R. E.: "Mass Transfer Operations", New York(1980).
13. Josson, G.: *Desalination*, **51**, 61(1984).
14. Wijmans, J. G., Nakao, S., Vandenberg, J. W. A., Troelstra, F. R. and Smolder, C. A.: *J. of Memb. Sci.*, **22**, 117(1985).
15. Clifton, mM. J., Abidine, N., Aptwl, P. and Sanchez, V.: *J. of Memb. Sci.*, **21**, 233(1984).
16. 염경호 : 박사학위논문, 연세대학교 대학원, 서울 (1988).