

한외여과 Flux 향상을 위한 주기적 압력구배 이용의 타당성 연구

서창우, 이은규
한양대학교 화학공학과

A Feasibility Study to Enhance Ultrafiltration Permeate Flux by Applying Pressure Gradient Oscillation

C. W. Suh and E. K. Lee

Department of Chemical Engineering Hanyang Univ.

서론

생물분리공정에서 한외여과공정은 세포 및 발효제품의 회수 및 농축에 많이 사용되고 있다. 여과 flux는 보통 온도, 압력, 용질의 농도, 유체의 속도, 용질의 크기 및 모양 등 여러 인자에 의해 영향을 받으며 이중 압력에 의한 영향이 큰 것으로 알려져 있다¹⁾. 일반적으로 높은 압력에서는 용질의 농축에 의한 gel polarization의 영향이 심화되어 flux의 감소를 초래할 수 있고, 낮은 압력에서는 flux가 감소하나 gel polarization 현상은 완화된다고 볼 수 있다. 따라서 압력구배를 주기적으로 높고 낮게 해줌으로써 gel layer의 이완을 유도함으로써 여과 flux의 총괄적 향상을 기도할 수 있다는 타당성을 제시할 수 있다.

본 실험에서는 난여과성 물질인 corn gluten meal 가수분해액에 대하여 각각의 압력에 대한 flux 경향성 조사, 압력구배의 oscillation에 의한 flux 변화와 초기 flux로부터 최대 여과액의 양을 예측하는 방법에 대해 연구하였다.

재료 및 방법

사용된 용액은 corn gluten 가수분해 용액이며, 건조된 corn gluten meal ((주)두산종합식품에서 제공)을 단백질 분해효소인 alkaline protease(APL 440™, Solvay Enzymes, Inc, Elkhart, IN, USA)를 사용하여 가수분해시켰다²⁾. 본 실험에서는 압력에 의한 flux 변화만을 연구하기 위하여 온도, 용질의 농도, 유체의 속도, 용질의 입자를 일정하게 유지하기 위해 다음과 같은 조건을 만들었다. 용액의 온도는 항상 10℃로 일정하게 유지하였으며, 여과용액을 계속 재순환시킴으로써 전체 공정에서의 고체입자 농도를 일정하게 유지하였으며, 용액의 입자는 동일 용액으로 모든 실험이 수행되어 같다고 볼 수 있다.

유체의 속도 및 transmembrane 압력차, ΔP_{TM} 은 가해진 압력에 의해 결정된다.

$$\Delta P_{TM} = \frac{P_i + P_o}{2} - P_p$$

이때 P_i 는 inlet pressure, P_o 는 outlet pressure, P_p 는 permeate pressure이다. 본 실험장치에서 P_o 와 P_p 를 대기압과 같은 0이 되도록 하여 ΔP_{TM} 는 $P_i/2$ 가 되도록 하였다¹⁾.

사용된 장치는 (주)청록산업에서 구입하였으며 미국의 Downstream Technologies, Inc.에서 제작한 것이며, filter membrane은 polyethersulfone재질로서 친수성이며 MWCO는 100K dalton이다.

결과 및 고찰

압력에 따른 여과 flux의 변화경향

ΔP_{TM} 이 2.5, 6.5, 7.5, 9, 12.5 psi에서 180분 동안의 평균 flux를 Fig. 1에 나타내었다. 이 결과로부터 ΔP_{TM} 를 증가시키에 따라 평균 flux가 선형적으로 증가하는 경향을 얻을 수 있었다. Fig. 2에서는 시간에 따른 flux 변화를 나타내었으며, 이 결과로부터 각 압력에서의 flux는 초기에는 큰 차이를 보이나 준 정상상태에 도달하면 비슷한 값을 나타냄을 알 수 있다.

각 압력에서 flux 변화의 수학적 모사

Flux 변화를 Hermia식에 의해 모사해 보았다. Hermia의 식은 아래와 같다³⁾.

$$\frac{J}{J_0} = \frac{\Delta P_{TM}}{(1 + a * t)^n}$$

J는 permeate flux, J_0 는 initial permeate flux이며 이때 n값은 다음과 같이 fouling mechanism에 따라 결정된다⁴⁾; n=0.5 for cake formation, n=1 for surface plugging, n=2 for depth plugging. 본 실험에서는 n=0.5로 하여 모사하였으며, 이때 평균 96%이상의 높은 적용결과를 보였으며, 상수 a는 압력 증가에 따라 Fig. 3에서 보는 것과 같이 선형적으로 증가함을 알 수 있었다.

초기 flux로써 전체 여과액의 부피(V_{MAX}) 예측방법

V_{MAX} 예측은 다음의 미분방정식으로부터 유도하였다⁵⁾.

$$\frac{d^2t}{dV^2} = k \left(\frac{dt}{dV} \right)^n$$

이때 t는 시간, V는 축적된 여과액 부피, k는 상수이며, n값은 다음과 같이 fouling mechanism에 따라 결정된다; n=0 for cake formation, n=1 for intermediate fouling, n=1.5 for standard(or gradual) fouling, n=2 for complete fouling.

위의 미분방정식에서 n에 1.5를 대입하여 적분하면 $t/V = t/V_{MAX} + 1/Q_i$ 의 식을 얻는다⁵⁾. Fig. 4에 t/V 를 t의 함수로 나타내었다. 이때 기울기($1/V_{MAX}$)로부터 V_{MAX} 값을 예측할 수 있으며, 그 결과를 아래에 나타내었다.

ΔP_{TM} (psi)	V_{EXP} (ml) until 180min	V_{REAL} (ml) $V_{EXP} * 1.5$	V_{MAX} (ml)	Testing 구간(min)	오차 (%)
2.5	1246	1869	1926	4 ~ 22	3.00
6.5	1456	2184	2151	10 ~ 30	1.51
7.5	1468	2202	2156	20 ~ 40	2.09
9.0	1517	2276	2167	20 ~ 40	4.79
12.5	1698	2547	2734	18 ~ 38	7.34

V_{EXP} 는 180분 동안 축적된 여과액의 부피이다. 전체 공정의 총여과액의 부피 (V_{REAL})는 실험에 의해 측정된 V_{EXP} 의 1.5배를 한 값으로 가정하였다. V_{MAX} 의 예측에 사용된 testing 구간이 조금씩 다른 것은 초기 flux가 선형에서 많이 벗어나는 경우에 비교적 선형에 가까운 구간을 선택하기 때문이다⁵⁾(Fig. 4).

이러한 V_{MAX} 의 예측은 장치의 한외여과 성능을 측정할 때 이용할 수 있으며, 이때 많은 시간과 경비를 절약할 수 있다고 보며 장치의 scale up에도 이용할 수 있어 실제 공정에 있어 매우 중요한 자료로 사용될 것으로 기대되어진다.

압력구배의 주기적 변화에 따른 flux 변화

압력을 oscillation 시켜올 때 나타나는 flux 변화를 Fig. 5, 6에 나타내었고, 이 결과를 분석하여 아래에 나타내었다.

No	Plot	Interval time (min)	Start & End point J/J ₀ (%)	Avg. Flux without oscillation (L/m ² /hr)	Avg. Flux with oscillation (L/m ² /hr)	% 대비
1	Fig. 5	5	79.52~69.88	20.48	19.31	94.29
2	Fig. 5	5	66.87~62.65	17.84	17.72	99.33
3	Fig. 6	10	64.04~55.28	17.40	16.87	96.95
4	Fig. 6	5	49.89~47.70	14.36	14.71	102.44

이 결과로부터 J/J₀ 값이 작은 곳에서부터 oscillation 시키는 것(위 표에서 1, 2, 4 비교결과)과 interval time은 10분 보다는 5분간격이 flux향상에 더 좋은 결과(위 표의 2, 3 비교결과)를 가져왔다.

결론 및 향후연구방향

한외여과 공정에서 여과 flux향상을 목적으로 압력구배를 변화시켜 보았다. Gel polarization을 감소시키는 방법으로 압력구배(ΔP_{TM})를 oscillation시켰으며 이때 interval 시간과 시작점이 flux변화에 커다란 영향을 준다는 것을 알 수 있었다. Interval 시간은 작게 하였을 경우가 flux 향상에 기여하며, 시작점은 처음보다는 나중에 flux향상에 더 좋은 결과를 얻을 수 있었다. 전체적으로 flux는 크게 향상시키지 못하였지만, 한외여과공정에서 flux 향상을 위한 연구에 많은 가능성을 보여 주었다. 추후 연구는 압력변화에 있어서 최적 interval 시간과 시작점을 찾고 또한 압력 이외에 flux에 영향을 주는 인자에 대한 연구를 병행한다면 flux향상에 좋은 결과를 얻을 수 있으리라 기대된다.

참고문헌

1. D.E. Brown and P.R. Kavanagh, "Cross-Flow Separation of Cells," *Process Biochemistry*, pp. 96~100, August, 1987.
2. S.E. Kim, Y.J. Cheong and E.K. Lee, "Flux Improvement of Biomass Filtration by Altering Cake Compressibility," *Theories and Applications of Chemical Engineering*, pp. 451~454, 1995.
3. Hermia J., "Constant pressure blocking filtration law : Application to power law non-newtonian fluids," *Trans.I. Chem. Eng.*, 60, pp. 183~187, 1982.
4. Richard D. Noble and S. Alexander Stern, *Membrane Separations Technology Principle and applications*, pp. 45~84.
5. Forrest Badmington, Randy Wilkins, Michael Payne, and Ephraim S. Honig, "Vmax Testing for Practical Microfiltration Train Scale-up in Biopharmaceutical Processing," *BioPharm*, pp. 46~52, September, 1995.

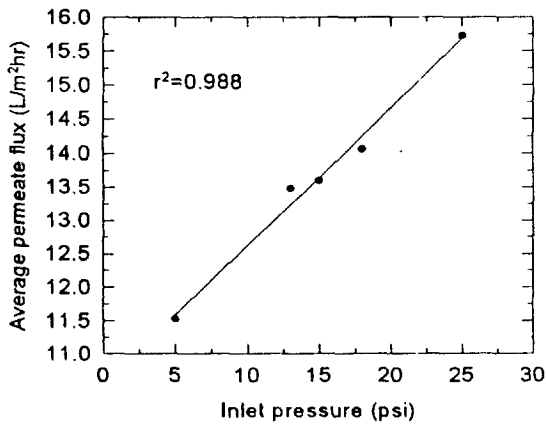


Fig. 1 Average permeate flux at each pressure

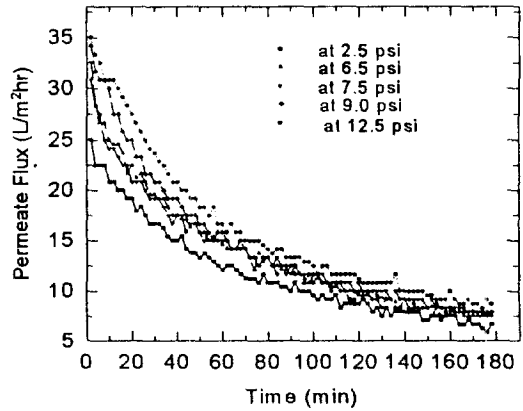


Fig. 2 Time profile of flux decay

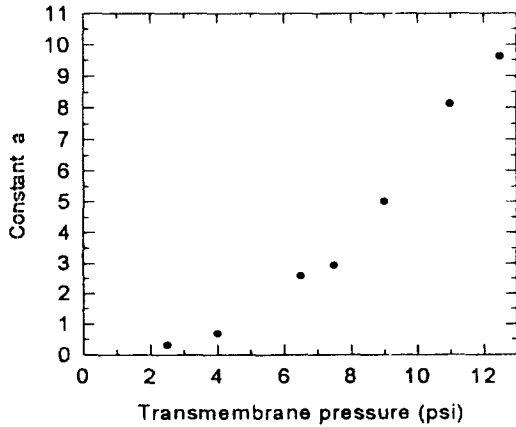


Fig. 3 Effect of ΔP_{TM} on constant a

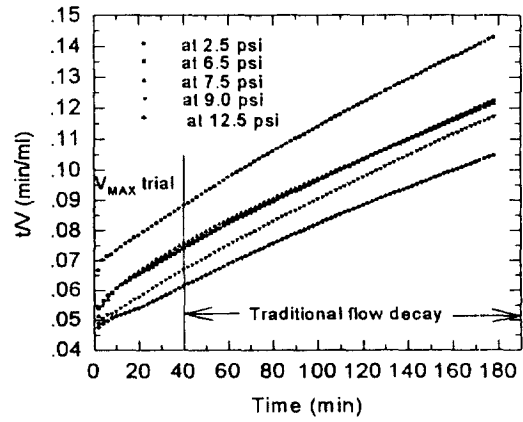


Fig. 4 Plot of V_{MAX} testing

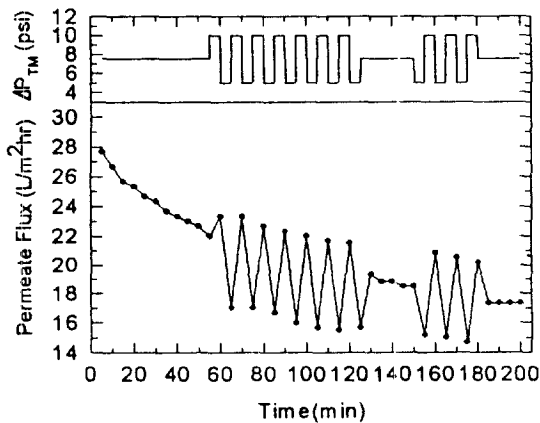


Fig. 5 Effect of pressure oscillation on flux with 5 min interval time

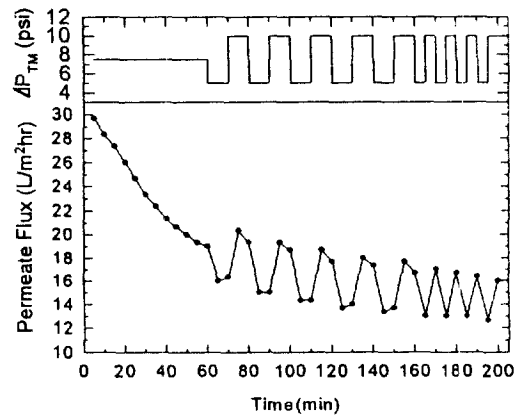


Fig. 6 Effect of pressure oscillation on flux with 10 min interval time