

접선류 막분리 시스템에 의한 이눌린 수용액의 분리 동특성

허 병 기 · 배 천 순 · *이 기 정 · *목 영 일
인하대학교 공과대학 생물공학과
*아주대학교 공과대학 화학공학과

Dynamic Characteristics for the Separation of Inulin Solution in Membrane Filtration System of Tangential Flow

Byung Ki Hur · Cheon Sun Bae · Kee Jeung Lee* · Young Il Mok*
Department of Biotechnology and Bioengineering, Inha University
*Department of Chemical Engineering, Ajou University

ABSTRACT

Dynamic characteristics of separation in membrane filtration system of tangential flow was investigated to find the functional relationship among the filtrate flux, transmembrane pressure, inulin concentration and recirculation rate. In case that NMWL is 1000, trans-membrane pressure 0.4kgf/cm² to 3.2kgf/cm², inulin concentration 1wt% to 5wt%, and recirculation rate 4ml/sec, mathematical model for the function among filtrate flux, transmembrane pressure, and inulin concentration was deduced and expressed as follows. $J_v = (0.0022p + 0.0003) \ln \frac{3p + 2.1}{C_b}$

The values calculated by the above equation and those measured were compared to find to be nicely in accord with each other. Especially the agreement was enhanced in the region of higher concentration of inulin.

서 론

생물공정의 생성물은 화학공정의 생성물에 비하여 환경인자인, 온도, 압력, pH, 용매 등의 영향에 따라 그 특성변화가 심한 것이 보통이다. 생물공정 생성물은 일반적으로 수용액 상태로 생성되며 그 농도가 대단히 낮다. 따라서 생물공정 생성물의 분리에는 화학공정 생성물의 분리에 널리 사용되는 침전, 원심분리, 증발, 분류, 추출 등의 공정이 경제적인 측면은 물론 생성물의 화학적, 물리적, 약학적 측면에서 적합하지 않은 경우가 많다. 더욱이 생성물의 생산성을 향상시키기 위한 균체 재순환 연속반효 시스템에 대한 생성물 및 균체의 분리 공정에는 균체의 생형상 때문에 온도, 압력, 분리시스템을 통과하는 유체의 유동특성 등이 엄격한 제한을 받기 마련이다. 위와 같은 제약조건을 만족하기 위하여 여과막을 이용한 분리시스템이 생물학적 제품 및 균체의 분리에 응용되고 있다.

여과막 분리시스템은 단백질, 고분자물질의 분리농축, 바이러스 균 등의 정제 및 배양공정 중의 균체분리·농축 등에 널리 이용되고 있다(1-3). 분리막 시스템을 흐르는 유체는 수직방향과 접선방향으로 분류되며, 접선류 또는 십자류 여과공정은 수직흐름 여과공정에 비하여 여과시간 경과에 따라 막 위에 퇴적되는 불용물 또는 용질에 의한 여과속도의 감소현상을 개선할 수 있는 이점이 있다(4-6).

분리하고자 하는 물질의 화학적 특성 및 분자량에 따라 분리막의 재질, 세공경이 달라지게 된다. 생물공정의 제품분리에 주로 사용되는 분리막은 주로 한외여과막이며 세공경이 대략 0.0005 내지 0.05 μ 범위이며 원하는 물질의 농축 또는 큰 분자와 작은 분자를 분리하는 목적에 이용된다(7).

한외여과막의 투과 특성에 관한 수학적 모델은 막양측 용액의 삼투압 차이, 압력 차이 등의 함수를 주요 인자로 한 투과현상에 근거를 둔 모델(8), 막표면상의 농도분극 현상에 기초를 둔 모델(9, 10), 비가역 과정의

열역학에 근거를 둔 모델(8, 11-13) 등이 있다.

본 연구에서는 돼지감자 연속발효 시 미 반응 당으로 배출되는 이눌린을 알콜 및 물로 부터 분리 재순환시키기 위하여, (i)접선류 방식의 막분리시스템에 대한 분리 동특성을 실험을 통하여 구명하고, (ii)그 결과로 부터 연관 변수 간의 함수관계를 도출 수식화함으로써, (iii) 분리시스템의 성능을 예측 또는 설계하는데 필요한 기초 자료를 수립하고자 하였다.

재료 및 방법

실험재료

본 연구에서는 Table 1의 순수 이눌린 수용액을 사용하여 이눌린 수용액의 막 분리 특성을 규명하였다.

Table 1. Composition of inulin solution

Component	Content(wt%)
Inulin	1,2,3,5
EtOH	5
Sodium Azid	0.1
Water	93.9, 92.9, 91.9, 89.9

- | | |
|---------------------|---------------------------|
| 1. Water Bath | 7. U.F. filter Unit |
| 2. Feed Solution | 8. Pressure Control Valve |
| 3. Air Filter | 9. Three-Way Valve |
| 4. Peristaltic Pump | 10. Retentate |
| 5. Flow Meter | 11. Filtrate |
| 6. Pressure Gauge | 12. Cook |

실험장치

여과장치는 Millipore사의 랩 카세트시스템(Lab, Cassette System)을 사용하였다. 사용된 여과막 패킹은 여과막 2개와 그 사이에 Filtrate Separator 1개로 구성되어 있으며 패킹을 2개 이상 사용한 경우에는 패킹 사이에 Retentate Separator 1개를 첨가하였다. 패타 내의 두 여과막 사이의 간격은 0.8mm, 1.6mm 두 종류이고, 여과막 면적은 패킹 당 460cm²이며, 공칭분획 분자량(NMWL)은 1000NMWL인 한외여과막이다. 막의 화학적 내성은 PH 2 근방에서도 사용 가능한 정도이며, 사용 최고 온도는 50℃, 최대 압력은 100 psig이다. Fig. 1은 본 연구에서 사용한 막분리시스템의 개략도를 나타내고 있다.

실험방법

Fig. 1의 여과시스템에 대한 이눌린 수용액의 막분리 동특성을 구명하기 위하여 수용액의 재순환 속도, 이눌린 농도, 막투과 압력(Transmembrane Pressure)을 변화시켜 가면서 이에 따른 Retentate량과 Filtrate량을 비교 분석하였다. Table 2는 본 연구의 한외여과장치에 사용한 패킹의 종류를 나타내고 있다.

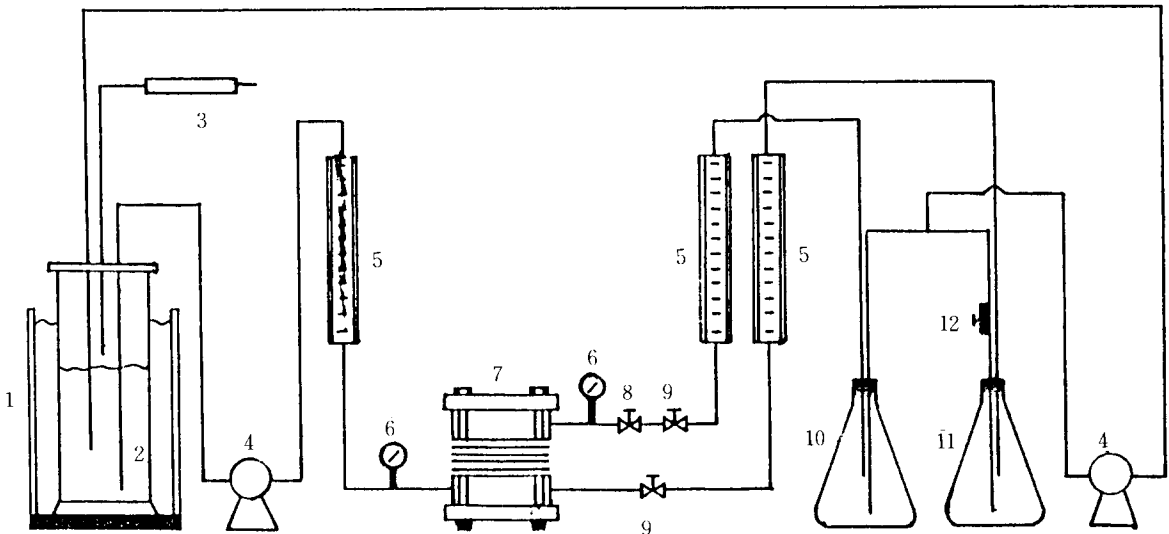


Fig. 1. Schematic representation of membrane separation recycle system with ultrafiltration unit.

Table 2. Type of packet used in this work

Type	Number of Packet	Channel Height	NMWL
4PK-1	4	0.8mm	1000
4PK-2	4	1.6mm	1000
2PK-2	2	1.6mm	1000

분석방법

Filtrate와 Retentate 내의 이눌린 농도는 분광광도계 (Shimadzu UV-120-2)을 사용하여 Anthrone 법(14)으로 분석하였다.

결과 및 고찰

투과속도에 영향을 미치는 인자

이눌린 수용액의 막분리 특성과 분리 시스템의 기하학적 구조 및 유체역학적 특성사이의 함수관계를 구명하기 위하여 재순환속도, Channel 높이, 막투과압력 및 패킷 수 등을 변화시켜 가면서 이들 인자가 분리특성에 미치는 영향을 정량적으로 비교분석하여 보았다.

Fig. 2는 이눌린 농도가 1 wt%이고 재순환속도가 4ml/sec인 경우, 막투과압력에 따른 Table 2의 패킷에 대한 막분리특성을 나타내고 있다. 이 결과에 의하면 막투과압력 증가에 따라 패킷의 종류에 관계없이 투과되는 물과 알코올의 양이 증가하며 분리능력 또한 증대되나 그 경향은 패킷의 구조에 따라 크게 변한다는 것을 알 수 있다. 4PK-2와 2PK-2인 경우 막투과압력 증가에 따라 투과 속도가 대단히 완만하게 증가하나 4PK-1인 경우에는 대단히 급격하게 증가되는 현상을 나타내었

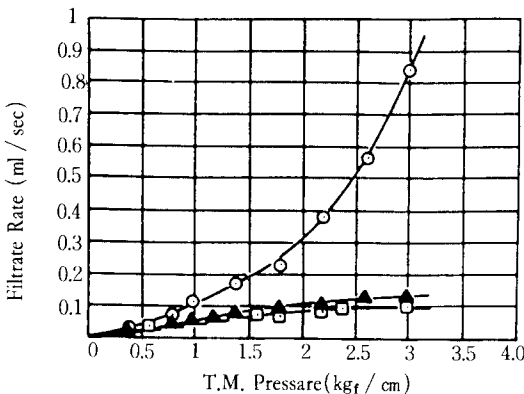


Fig. 2. Transmembrane pressure vs. filtrate rate.

Inulin Conc. = 1 wt%, R.R. = 4ml/sec
 ○=4PK-1, ▲=4PK-2, □=2PK-2

다. 재순환 속도가 2, 6, 8, 및 10ml/sec인 경우에도 위와 동일한 현상을 나타내었다.

Fig. 3은 막투과압력을 매개변수로 했을 경우에 대한 재순환속도와 투과속도 사이의 함수관계를 나타내고 있다. 이 결과는 이눌린 농도가 5wt%이고 4PK-1 타입의 패킷을 사용한 경우에 관한 것이다. 일정한 압력에서 재순환속도가 증가하면 미세하나 투과속도 역시 증가하

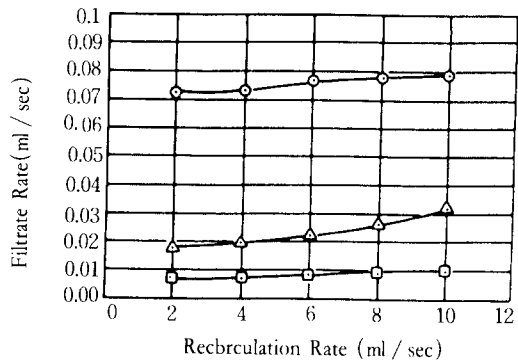


Fig. 3. Recirculation rate vs. filtrate rate.

□=1.0kgf/cm², △=1.4kgf/cm², ○=2.0kgf/cm²

는 경향을 나타내었으며 일정한 재순환 속도에서는 막투과압력 증가에 따라 투과속도가 증가하였다.

Fig. 4는 일정한 압력 하에서 이눌린 농도, 재순환속도와 투과속도 사이의 함수관계를 알아보기 위한 실험 결과로, 막투과압력 2.0kgf/cm², 이눌린농도 1내지 5wt%, 재순환속도 2내지 10ml/sec인 경우에 관한 결과이다. 동일한 재순환 속도에서 이눌린 농도가 증가할수록 투과속도는 감소하였다. 이런 경향은 재순환 속도가 낮을 경우가 높은 경우 보다 뚜렷하였다. 동일한 이눌린농도에 대한 재순환속도와 투과속도의 함수관계는 재순환속도 4ml/sec까지는 투과속도가 뚜렷한 증가현상을 나타내는 관계이나 그 이상에서는 증가경향이 미세한 함수관계를 보였다.

본 연구의 실험결과에 의하면 한외여과속도에 영향을 미치는 인자는 막의 세공경, 재순환속도, 막투과압력, 이눌린 농도등의 변수임을 알 수 있으며, 막투과속도

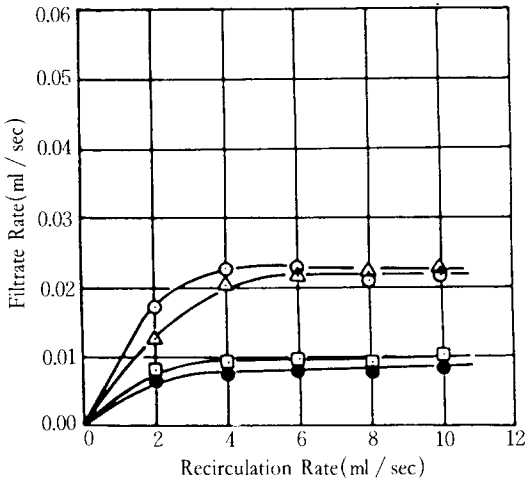


Fig. 4. Recirculation rate vs. filtrate rate according to inulin concentration.
 ○=1wt%, △=2wt%, □=3wt%, ●=5wt%

증가 경향이 급속히 완만해지는 순환속도 4ml/sec에서 막투과 압력, 이눌린농도와 투과속도(플럭스) 사이의 함수관계를 수식화하여 보았다.

투과플럭스와 투과압력 및 이눌린농도 사이의 함수관계

Fig. 5는 막투과압력을 매개변수로 한 이눌린농도 변화와 투과플럭스 사이의 함수관계를 나타내고 있다. 이 결과에 의하면 투과플럭스는 농도의 대수함수로 표현되며, 투과압력 1kgf/cm² 내지 2.4kgf/cm² 사이의 범위에서는 본 연구의 결과를 다음 식(1)로 표현되는 켈분극모델(15)로 기술할 수 있음을 알 수 있다.

$$J_v = K \ln \frac{C_v - C_p}{C_b - C_p} \dots\dots\dots (1)$$

윗 식에서,

- J_v=Filtrate Flux, ml/min cm²
- C_v=막표면에서의 용질의 농도, wt%
- C_p=생성물 내의 용질의 농도, wt%
- C_b=Bulk에서의 용질의 농도, wt%
- K=용매의 막투과 계수, ml/min. cm²

용질에 따라서는 농도분극으로 인하여 상승된 막면 농도가 어느 일정한 농도에 도달하게 되면 막면에 켈층이라고 불리는 비유동층이 형성된다. 이 켈층은 막투과 속도에 큰 영향을 가지고 있기 때문에 투과유속은 현저히 감소하게 된다. 식(1)의 농도분극 모델에서 막면의 농도를 켈층 농도로 치환하면 다음식과 같이 된다.

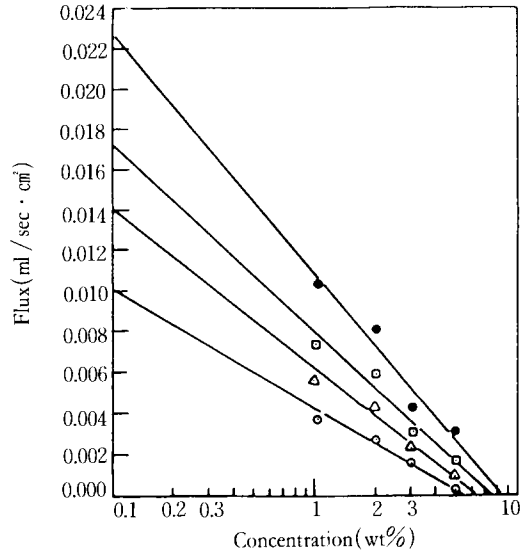


Fig. 5. Flux vs. concentration with recirculation rate (4ml/sec).
 ○=1.0kgf/cm², △=1.4kgf/cm²
 □=1.8kgf/cm², ●=2.2kgf/cm²

$$J_v = K \ln \frac{C_g - C_p}{C_b - C_p} \dots\dots\dots (2)$$

일반적으로 켈층의 용질에 대한 배제율은 대단히 크기 때문에 막을 통과한 용액내의 용질농도는 거의 무시될 수 있다. 본 연구의 실험결과에 의하면 막의 NMWL이 1000인 경우 이눌린에 대한 배제율이 100%에 이르러 막을 통과한 용액 내의 용질농도는 영에 가까운 것을 알 수 있었다. 따라서 식(2)에서 C_p값을 영으로 놓으면 다음식의 켈분극 모델을 얻을 수 있다.

$$J_v = K \ln \frac{C_g}{C_b} \dots\dots\dots (3)$$

본 연구의 결과인 Fig. 5의 기울기 및 절편과 식(3)으로 부터 K 및 C_g와 막투과압력 사이의 함수관계를 구하면 Fig. 6과 같이 된다. 이 결과에 의하면 K 및 C_g와 막투과압력 사이의 함수관계는 선형이며 다음 식(4)와 식(5)로 표현됨을 알 수 있다.

$$C_g = 3P + 2.1 \dots\dots\dots (4)$$

$$K = 0.0022P + 0.0003 \dots\dots\dots (5)$$

윗 식에서

$$P = \text{Transmembrane Pressure, kgf/cm}^2$$

식(3), (4), 및 (5)를 조합하면 막투과플럭스와 막투과압력 및 용질농도 사이의 함수관계식 (6)을 얻게 된다.

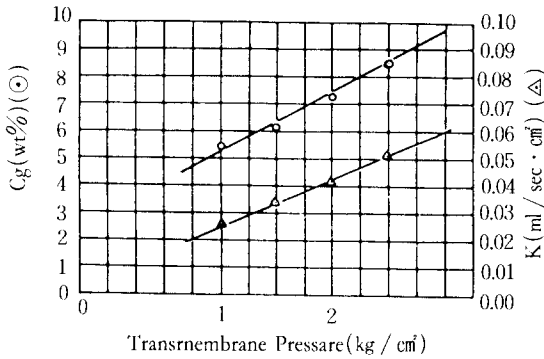


Fig. 6. Cg and k vs. transmembrane pressure.

$$J_v = (0.0022P + 0.0003) \ln \frac{3P + 2.1}{C_b} \dots\dots\dots (6)$$

물, 알콜 및 이눌린으로 구성된 용액으로 부터 물 및 알콜을 분리시키기 위한 본 연구의 실험결과와 유도된 겔분리 모델에 의한 계산치를 비교분석하여 보았다. 본 연구의 비교분석은 4PK-1카셀시스템을 사용하고 재순환 속도 4ml/sec, 막투과압력 0.4kgf/cm² 내지 3.4kgf/cm², 이눌린 농도 1wt% 내지 5wt%에 대한 실험치와 계산치 사이에서 수행되었다. Fig. 7은 막투과플럭스에 대한

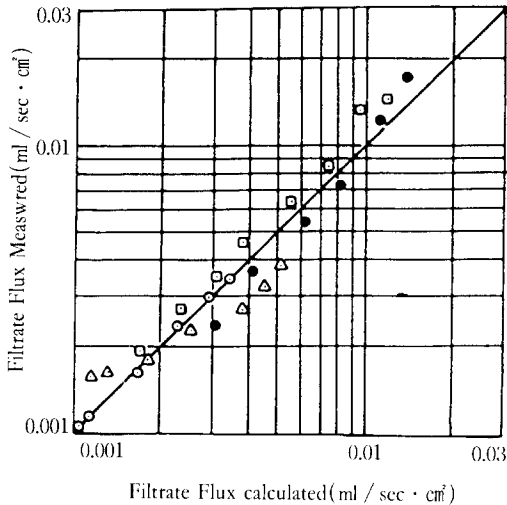


Fig. 7. Comparison of filtrate flux measured and filtrate flux calculated.

○=5wt% of Inulim, △=3wt%
□=2wt%, ●=1wt%

식(6)의 계산치와 측정치 사이의 함수관계를 나타내고 있다. 이 결과에 의하면 막투과플럭스의 계산치가 측정치를 잘 대변하고 있음을 알 수 있다. 더욱이 이눌린 농도가 증가할수록 실험치와 계산치 사이의 오차가 줄어드는 경향을 나타내었다.

요 약

이눌린, 물 및 알콜로 구성된 용액에서 물과 알콜의 투과플럭스와 막투과압력, 이눌린 농도, 재순환속도 사이의 함수관계를 Millipore사의 램카셀시스템을 사용하여 구명하여 보았다. 본 연구의 결과에 의하면 NMWL이 1000이고 이눌린 농도가 1wt% 내지 5wt%, 막투과압력이 0.4kgf/cm² 내지 3.2kgf/cm², 재순환 속도가 4ml/sec 인 경우에는 투과플럭스와 막투과 압력 및 이눌린농도 사이의 함수관계가 다음식으로 표현되는 겔분리모델로 잘 해석됨을 알 수 있었다.

$$J_v = (0.0022P + 0.0003) \ln \frac{3P + 2.1}{C_b}$$

감 사

본 연구는 동력자원부 대체에너지 기술개발 사업비 지원에 의하여 이루어진 것 입니다. 이에 대해 깊은 감사를 드립니다.

참 고 문 헌

1. 북영일, 김철, 최기런, 허병기(1989), 88년도 대체에너지 기술 개발사업연구 보고서, 동력자원 연구소
2. 강영권, 북영일(1987), 한국생물공학회지 2(2), 49
3. C. Pompei, P. Resmini and C. Pri(1973), J. Food Sci., 38, 867
4. Wang shu-Sen(1988), J. Membrane Sci., 39, 187
5. Cyde Orr(1977), Filtration, Marcel Dekker, Inc. New York & Basel, 475S
6. S. W. Weller and W. A. Steiner(1950), J. Appl. Phys., 21, 279
7. Thomas D. Brock(1986), Membrane Filtration, Warz ia Pub., U.S.
8. 고석분, 김오식, 박청길(1986), 막분리 기술, 동화기술
9. S. I. Nakao and S. Kimura(1981), J. Chem. Eng. Japan, 14, 32
10. Sun-Tak Hwang and K. Kammermeyer(1975), Membrane in Separations, John Wiley, N.Y.

11. Bogdan Tomicki(1988), *J. Membrane Sci.*, **39**, 11
12. B. Sedlacek and Jaroslov Kohovec Eds.(1987), *Synthetic Polymeric Membranes*, Walter de Grmyter, Berlin
13. Michael E. Starzak(1987), *The Physical Chemistry of membranes*, Academic Press, Inc., London
14. 허명기, 유진선, 양지원(1989), *한국생물공학회지*, **4**(1), 50
15. T. B. Choe, P. Masse and A. Verdier(1986), *J. Membrane Sci.*, **26**(1)

(Received March 6, 1990)