

行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

平板型薄膜透析系統併合超過濾效應之解析解與實驗之研究

計畫類別：個別型計畫

計畫編號：NSC93-2214-E-032-004-

執行期間：93年08月01日至94年07月31日

執行單位：淡江大學化學工程與材料工程學系

計畫主持人：何啟東

計畫參與人員：涂志偉、郭家展

報告類型：精簡報告

報告附件：出席國際會議研究心得報告及發表論文

處理方式：本計畫可公開查詢

中 華 民 國 94 年 9 月 29 日

# 平板型薄膜透析系統併合超過濾效應之解析解與實驗之研究

## The Analytical and Experimental Studies of the Parallel-Plate Dialysis Membrane Systems Coupled with Ultrafiltration

何啟東 涂志偉 郭家展

淡江大學化學工程與材料工程學系

國科會研究計畫編號：NSC 93-2214-E-032-004

### 摘要

本研究主要是建立加入超過濾效應之順流式平板型薄膜透析系統的數學模型與理論方程式，且利用 Frobenius 法求出理論出口濃度與質傳效率。文中並探討透餘側流率、透析側流率與超過濾通量對於平板型薄膜透析系統的影響，其分析結果將與傳統之平板型透析系統作一比較以求得最佳操作條件，並利用實驗數據驗證理論之正確性。結果顯示，當透餘側流量減小或透析側流量增大時皆有較佳之質傳效果，而相較於傳統之透析系統，加入超過濾操作確能有效地提升分離效率。最後，由實驗數據可知本研究之理論模型具有相當的準確性。

**關鍵詞：**薄膜透析；超過濾；質量傳送；分離效率

### Abstract

A parallel-plate concurrent membrane dialysis system coupled with ultrafiltration operation has been investigated theoretically in this study. The mathematical formulation for this dialysis-and-ultrafiltration system was developed theoretically to estimate the outlet concentration and the separation efficiency. The analytical solutions were obtained by using Frobenius series method. The mass-transfer efficiency improvements with varied operating conditions are presented graphically and compared with those in the device of dialysis without ultrafiltration. The results show that the ultrafiltration operation can readily improve the separation efficiency of the membrane dialyser. The urea was selected in the experiment which can free pass through the membrane. Comparing to the experimental data, the theoretical results show the good agreement.

*Key Words* : Dialysis; Ultrafiltration; Mass transfer; Separation efficiency

### 一、前言

薄膜分離技術由於具有低能源需求、操作條件(溫度或壓力)易控制、可連續式操作與設備簡單等優點，近年來已逐漸取代傳統的分離技術。而薄膜透析則屬於薄膜分離技術的一種，主要是利用透析相與透餘相中的

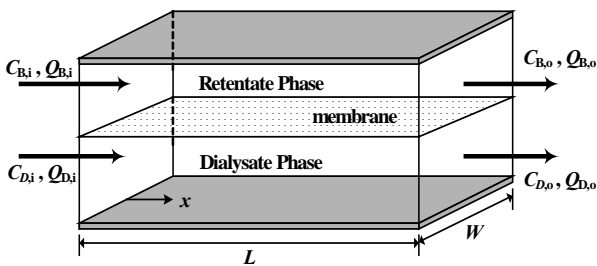
溶質濃度差為驅動力，進行物質的分離與純化。薄膜透析目前主要是應用於血液透析[1]、酒精去除[2]及鹽分脫除[3]等分離純化程序，其中血液透析乃是用於移除人體中多餘的毒素[4]，早期對於血液透析器的理論分析多只考慮血液側的濃度分佈變化，並假設

透析側之濃度為定值[5, 6]。之後, Cooney 等人[7]則針對平板型與圓管型血液透析器作解析, 並同時探討透析側與血液側的濃度分佈。相較於傳統只以濃度差為驅動力之透析方式, 學者[8, 9]發現若於透析時加入超過濾操作可有效地增加質傳效率。Popovich 等人[10]即探討固定超過濾流率對於平板式透析模組質傳效率的影響, 而Jagannathan 及Shettigar[11]則針對中空纖維血液透析模組作研究, 並指出超過濾效應確能增進質傳效率。

本研究的目的是主要是探討透析併合超過濾效應於平板型順流式薄膜透析系統的影響, 建立其數學理論模型並以實驗驗證理論結果的準確性。文中利用 Frobenius 的方法求解出口濃度以及分離效率, 並討論改變不同的透餘側流率、透析側流率與超過濾通量對於平板型薄膜透析系統質傳效率的影響。

## 二、數學理論模式

考慮一長度為 $L$ 與寬度為 $W$ 的平板型順流式薄膜透析器, 如圖(一)所示, 並於薄膜兩側加入一透膜壓差產生超過濾之效應, 故溶質以擴散及對流的方式穿過薄膜達到分離的效果。為簡化問題, 故作了以下之假設: (1)流體於透餘側及透析側以層流方式流過且互相平行; (2)流體為牛頓流體且物理性質為定值; (3)溶質之總括質傳係數為一定值; (4)忽略溶質的軸向擴散; (5)薄膜篩選係數為定值。基於以上之假設, 透餘側及透析側的質量平衡式如下:



圖(一) 平板型順流式薄膜透析系統

$$-\frac{dQ_B}{Wdx} = \frac{dQ_D}{Wdx} = V_m \quad (1)$$

$$-\frac{d(Q_B C_B)}{Wdx} = \frac{d(Q_D C_D)}{Wdx} = K(C_B - C_D) + V_m \theta C_B \quad (2)$$

其中  $Q$  為溶液之流率;  $C$  為溶質濃度;  $V_m$  為超過濾通量;  $K$  為溶質總括質傳係數;  $\theta$  為薄膜篩選係數, 當  $\theta = 1$  表示溶質可以自由地通過薄膜, 而當  $\theta < 1$  表示溶質會部分滯留於薄膜表面; 下標  $B$  和  $D$  則分別代表透餘側和透析側。利用初始條件: 在  $x = 0$  處  $Q_B = Q_{B,i}$  及  $Q_D = Q_{D,i}$ , 兩通道間的體積流率可由式(1)積分而得:

$$Q_B = Q_{B,i} - \int_0^x W V_m dx \quad (3)$$

$$Q_D = Q_{D,i} + \int_0^x W V_m dx \quad (4)$$

將式(3)及式(4)代入式(2)並且將  $\theta$  和  $V_m$  取平均值, 則式(2)可以重寫為無因次的形式:

$$-\frac{d\zeta_B}{d\xi} = \frac{a}{1 - a\bar{\psi}\xi} \{ [1 + \bar{\psi}(\bar{\theta} - 1)]\zeta_B - \zeta_D \} \quad (5)$$

$$\frac{d\zeta_D}{d\xi} = \frac{b}{1 + b\bar{\psi}\xi} [(1 + \bar{\psi}\bar{\theta})\zeta_B - (1 + \bar{\psi})\zeta_D] \quad (6)$$

其中的無因次群定義為:

$$\begin{aligned} \xi &= x/L, \quad \zeta_B = C_B/C_{B,i}, \quad \zeta_D = C_D/C_{B,i}, \\ a &= LWK/Q_{B,i}, \quad b = LWK/Q_{D,i}, \quad \bar{\psi} = \bar{V}_m/K, \\ \varepsilon &= C_{D,i}/C_{B,i} \end{aligned} \quad (7)$$

$\bar{V}_m$  和  $\bar{\theta}$  為平均超過濾通量與平均薄膜篩選係數。而所相對應的無因次邊界條件為

$$\xi = 0, \quad \zeta_B = 1 \quad \text{和} \quad \zeta_D = \varepsilon \quad (8)$$

將式(6)重寫可得

$$\zeta_D = \left( \frac{1 - \bar{\psi}\xi}{a} \right) \frac{d\zeta_B}{d\xi} + [1 + \bar{\psi}(\bar{\theta} - 1)]\zeta_B \quad (9)$$

併合式(9)與式(5)為

$$\begin{aligned} (A_2\xi^2 + A_1\xi - A_0) \frac{d^2\zeta_B}{d\xi^2} \\ + (B_1\xi + B_0) \frac{d\zeta_B}{d\xi} + C_0\zeta_B = 0 \end{aligned} \quad (10)$$

其中

$$A_2 = \bar{\psi}^2, \quad A_1 = -\left(\frac{1}{a} + \frac{1}{b}\right)\bar{\psi}, \quad A_0 = -\frac{1}{ab},$$

$$B_1 = (3-\theta)\bar{\psi}^2, \quad B_0 = \frac{-[1+\bar{\psi}(\bar{\theta}-2)]}{b} - \frac{(1+\bar{\psi})}{a},$$

$$C_0 = (1-\theta)\bar{\psi}^2 \quad (11)$$

利用級數法，濃度  $\zeta_B$  可表示為

$$\zeta_B = \sum_{k=0}^{\infty} d_k \xi^{k+\lambda} \quad (12)$$

將式(12)代回式(10)可得

$$\sum_{k=0}^{\infty} [A_2(k+\lambda)(k+\lambda-1) + B_1(k+\lambda) + C_0] d_k \xi^{k+\lambda}$$

$$+ \sum_{k=0}^{\infty} [A_1(k+\lambda)(k+\lambda-1) + B_0(k+\lambda)] d_k \xi^{k+\lambda-1}$$

$$+ \sum_{k=0}^{\infty} [A_0(k+\lambda)(k+\lambda-1)] d_k \xi^{k+\lambda-2} = 0 \quad (13)$$

或可重寫為

$$[A_1\lambda(\lambda-1) + B_0\lambda] d_0 \xi^{\lambda-1}$$

$$+ A_0\lambda(\lambda-1) d_0 \xi^{\lambda-2} + A_0\lambda(\lambda+1) d_1 \xi^{\lambda-1}$$

$$+ \sum_{k=0}^{\infty} \{ [A_2(k+\lambda)(k+\lambda-1) + B_1(k+\lambda) + C_0] d_k$$

$$+ [A_1(k+\lambda+1)(k+\lambda) + B_0(k+\lambda+1)] d_{k+1}$$

$$+ [A_0(k+\lambda+2)(k+\lambda+1)] d_{k+2} \} \xi^{k+\lambda} = 0 \quad (14)$$

利用Frobenius法以及邊界條件(8)，解式(14)可得透餘側之無因次濃度為

$$\zeta_B = \sum_{k=0}^{\infty} d_{ak} \xi^{k+1} + \sum_{k=0}^{\infty} d_{bk} \xi^k \quad (15)$$

式中

$$d_{a0} = a\varepsilon + \left(\frac{B_0 - A_1}{A_0}\right) - a[1 + \bar{\psi}(\bar{\theta} - 1)],$$

$$d_{a1} = \frac{-B_0}{2A_0} d_{a0}$$

$$d_{ak} = -\{ [A_2(k-1)(k-2) + B_1(k-1) + C_0] d_{a,k-2}$$

$$+ [A_1k(k-1) + B_0k] d_{a,k-1} \} / A_0(k+1)k,$$

$$k \geq 2 \quad (16)$$

及

$$d_{b0} = 1, \quad d_{b1} = -\frac{[B_0 - A_1]}{A_0} d_{b0}$$

$$d_{bk} = -\{ [A_1(k-1)(k-2) + B_0(k-1)] d_{b,k-1}$$

$$+ [A_2(k-2)(k-3) + B_1(k-2) + C_0] d_{b,k-2} \} / A_0k(k-1)$$

$$k \geq 2 \quad (17)$$

因此，透餘側於出口， $\xi = 1$ ，之無因次濃度可以表示為

$$\zeta_{B_o} = \zeta_{B_1} + \zeta_{B_2} = \sum_{k=0}^{\infty} d_{ak} + \sum_{k=0}^{\infty} d_{bk} \quad (18)$$

### 三、分離效率與質傳改善率

平板型順流式薄膜透析器中溶質的總括質傳速率  $M$ ，可以用下式表示：

$$M = Q_{B,i} C_{B,i} - Q_{B,o} C_{B,o}$$

$$= Q_{D,o} C_{D,o} - Q_{D,i} C_{D,i} \quad (19)$$

分離效率則可分為兩種，第一種分離效率  $\eta$  定義為總括質傳速率除以僅以擴散為驅動力下的最大質傳速率：

$$\eta = \frac{M}{LWK(C_{B_i} - C_{D_i})} = \frac{1 - (1 - a\bar{\psi})\zeta_{B,o}}{a(1 - \varepsilon)} \quad (20)$$

而第二種分離效率  $\chi$  則定義為總括質傳速率除以溶質的最大濃度差，其公式如下：

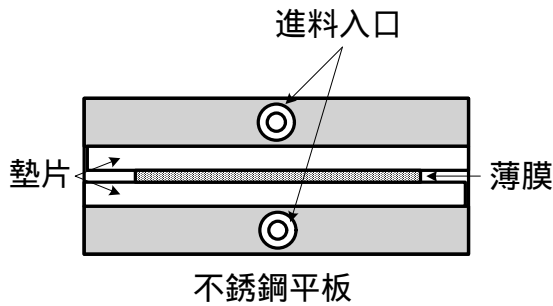
$$\chi = \frac{M}{Q_{B_i}(C_{B_i} - C_{D_i})} = \frac{1 - (1 - a\bar{\psi})\zeta_{B,o}}{(1 - \varepsilon)} \quad (21)$$

相對於純透析操作，增加超過濾效應可使得薄膜透析器之質傳速率增加，而其質傳改善率  $E\%$  定義如下：

$$E\% = \frac{\eta - \eta_{\psi=0}}{\eta_{\psi=0}} \times 100\% = \frac{\chi - \chi_{\psi=0}}{\chi_{\psi=0}} \times 100\% \quad (22)$$

### 四、實驗裝置

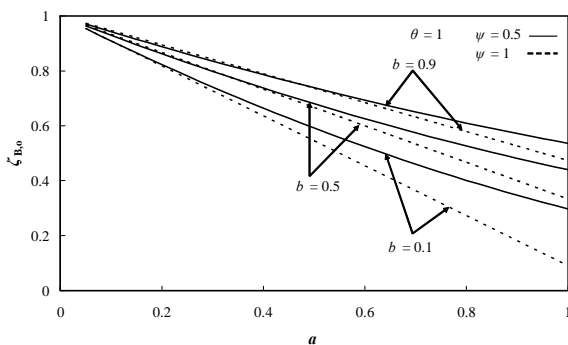
本研究中所使用之平板型順流式薄膜透析器實驗裝置如圖(二)所示，其整個模組之規格為長 24 公分及寬 15 公分，並於兩不銹鋼平行板間置入兩個厚度為 0.2 公分之墊片，並於中央鑲入薄膜，使其形成兩個長為 18 公分，寬為 8.5 公分、高為 0.2 公分之流體通道。本實驗中所使用之親水性薄膜為纖維酯膜(Spectrum)，其 MWCO = 10,000，溶質為尿素(Kokusam Chemical Works, MW = 60.06)，而溶劑為蒸餾水，並以紫外光分光光譜儀(Unicam UV 300)檢測溶質濃度。



圖(二) 實驗裝置示意圖

## 五、結果與討論

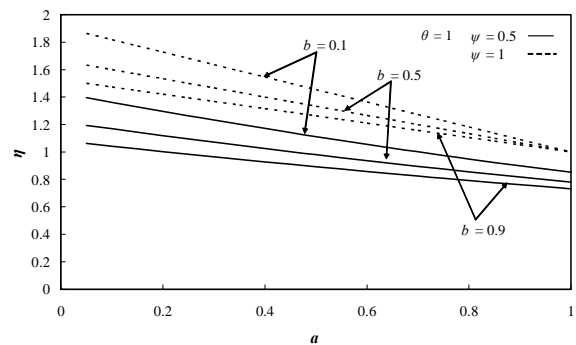
平板型順流式薄膜透析器之透餘側無因次出口濃度可由式(18)算出，其理論計算結果如圖(三)所示，當透餘側之無因次出口濃度越低，代表越多溶質傳送到透析側，亦即質傳效果越好，所以由圖(三)中可以發現，當透析側流率越大(即  $b$  越小)時，可以得到較低的透餘側濃度；相反地，當透餘側的流率越小(即  $a$  越大)時，則有較佳的質傳效率。此外，無因次超過濾通量  $\psi$  對於系統之影響亦可由圖(三)觀察得知，當  $\psi$  越大時，則透餘側無因次出口濃度明顯下降。圖(四)與圖(五)則分別為兩種不同之分離效率與透餘側無因次流率  $a$  之關係圖。圖(四)與圖(五)中可發現兩種分離效率皆會隨著透析側流率及無因次超過濾通量增加而提高。但對於透餘側流率的影響則恰好相反，分離效率  $\eta$  會隨著透餘側的流率降低而降低，而分離效率  $\chi$  則隨著透餘側的流率降低而提高，造成此種差異的原因在於兩種分離效率的



圖(三) 固定  $\theta = 1$  下，無因次出口濃度  $C_{B,0}$  與透餘側無因次流率  $a$  之關係。

定義不同，由於當透餘側之流率降低時，流體於通道中的滯留時間增加，使得透餘側與透析側的濃度差變小，因此若以最大擴散質傳速率為基準下，其分離效率會下降；但當滯留時間增加，模組中的總質量傳遞量(質量擴散加超過濾效應)會增加，故分離效率  $\chi$  會隨著透餘側流率降低而提高。表(一)為固定  $\theta = 1$  及  $\psi = 1$  時之質傳改善率  $E\%$ ，由此表中可以發現超過濾操作卻能有效地提升薄膜透析器的質傳效率，尤其是透析側流率減少時，其主要是因為當透析側流率減少時，薄膜兩側之濃度差變小，質傳擴散速率降低，因此超過濾所造成之質量傳送之比例即明顯增加。

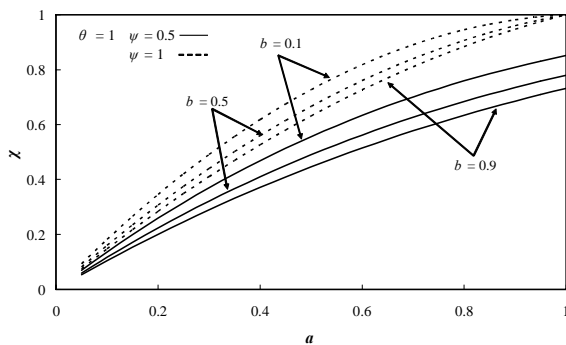
圖(六)乃是於固定  $\theta = 1$  下，實驗數據與理論值之比較，由於實驗中所採用之尿素的分子量(MW = 60.06)遠小於薄膜之分子量阻隔率(MWCO = 10,000)，因此薄膜阻隔率  $\theta$  可視為 1，而尿素之總括質傳係數  $K$  為 0.0261[9]。實驗中固定透析側流量為 300 ml/min ( $b = 0.0133$ )，透餘側流量之範圍為 20 ~ 40 ml/min，而超過濾量各別為 0 ml/min、5 ml/min 及 10 ml/min ( $\psi = 0, \psi = 1.25$  及  $\psi = 2.5$ )，由圖(六)中可以發現實驗值與理論值的驅勢非常相近，因理論值為一理想狀況下之估算結果，故理論透餘側無因次濃度皆較實驗值低，但於圖(六)中理論值與實驗值之最大差距為 9.27%，因此，可以證明此理論模型具有一定的準確性。



圖(四) 固定  $\theta = 1$  下，分離效率  $\eta$  與透餘側無因次流率  $a$  之關係。

## 六、結論

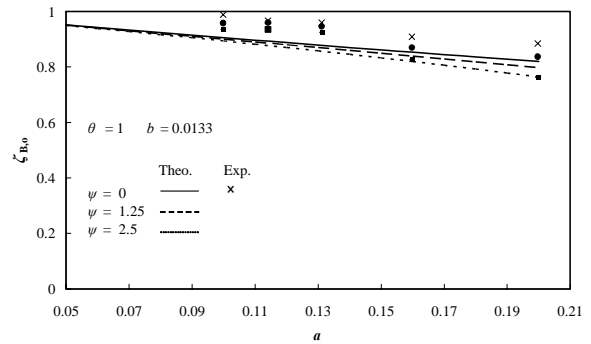
本研究乃是探討超過濾效應對於順流式平板型薄膜透析系統質傳數率的影響，並建立其理論分析數學模型，且利用 Frobenius 法求得無因次出口濃度及分離效率。研究中主要討論的參數有透析側流率、透餘側流率及超過濾通量，結果顯示，當超過濾通量與透析側流率越高，以及透餘側流率越低時，透餘側無因次出口濃度越低，即質傳量越高。而對於分離效率而言，兩種分離效率  $\eta$  與  $\chi$  皆隨著透析側流率及超過濾通量增加而增加，但由於定義之不同，分離效率  $\chi$  隨著透餘側流率增加而減小，而分離效率  $\eta$  卻隨著透餘側流率增加而提高。此外，與純透析之系統比較，併合超過濾之順流式平板型薄膜透析系統的質傳改善率於各操作條件下，皆有明顯地提高。此外，由實驗數據與理論分析結果比較，發現透餘側出口濃度之理論值皆高於實驗值，但其最高之誤差值僅為 9.27%，因此可證明此數學理論分析模型具有相當的準確性。



圖(五) 固定  $\theta = 1$  下，分離效率  $\chi$  與透餘側無因次流率  $a$  之關係。

表(一) 於固定  $\theta = 1$  及  $\psi = 1$  時之質傳改善率  $E\%$

$E\%$	$b = 0.1$	$b = 0.5$	$b = 0.9$
$a = 0.2$	99.93	113.21	134.31
$a = 0.4$	96.39	112.32	135.13
$a = 0.6$	89.61	108.86	133.73
$a = 0.8$	79.24	102.53	129.89



圖(六) 固定  $\theta = 1$  下，實驗數據與理論值之比較

## 七、參考文獻

- [1] R. P. Popovich, T. G. Christopher and A. L. Babb, "The Effects of Membrane Diffusion and Ultrafiltration Properties on Hemodialyzer Design and Performance," *Chem. Eng. Prog. Symp. Ser.*, **67**, 105(1971).
- [2] H. Moonen and N. J. Niefind, "Alcohol Reduction in Beer by Means of Dialysis," *Desalination*, **41**, 327(1982).
- [3] B. Dutre and G. Tragardh, "Purification of Gelatin by Ultrafiltration with a Forced Solvent Stream along the Membrane Permeate Side: An Experimental Approach," *J. Food Engr.*, **25**, 233(1995).
- [4] Ho, W.S.W. and K.K. Sirkar, (Eds.), *Membrane Handbook*, Van Nostrand Reinhold, New York, 1992
- [5] C. K. Colton, K. A. Smith, P. Stroeve and E. W. Merrill, "Laminar Flow Mass Transfer in a Flat Duct with Permeable Walls" *Amer. Inst. Chem. Eng.*, **17**, 773 (1971).
- [6] G. Walker, and T. Davis, "Mass Transfer in Laminar Flow between Parallel Permeable Plates," *Amer. Inst. Chem. Eng.*, **20**, 881 (1974).
- [7] D. O. Cooney, S. S. Kim, and E. J. Davis,

- “Analyses of Mass Transfer in Hemodialyzers for Laminar Blood Flow and Homogeneous Dialysate,” *Chem. Eng. J. Sci.* **29**, 1731 (1974).
- [8] F.A. Gotch, “The Kidney” Chap. 41 “Hemodialysis: Technical and Kinetic Considerations,” 1<sup>st</sup> ed., W.B. Saunders Company, Philadelphia, U.S.A., 1976.
- [9] K. Sakai and M. Mineshima, “Performance Evaluation of a Module in Artificial Kidney System,” *J. Chem. Eng. Japan*, **17**, 198 (1984).
- [10] R. P. Popovich, T. G. Christopher and A. L. Babb, “The Effects of Membrane Diffusion and Ultrafiltration Properties on Hemodialyzer Design and Performance,” *Chem. Eng. Prog. Symp. Ser.*, **67**, 105(1971).
- [11] R. Jagannathan and U. R. Shettigar, “Analysis of a Tubular Hemodialyser-Effect of Ultrafiltration and Dialysate Concentration,” *Med. & Biol. & Comput.*, **15**, 134(1977).

# 可供推廣之研發成果資料表

可申請專利

可技術移轉

日期：94年9月28日

<p><b>國科會補助計畫</b></p>	<p>計畫名稱：平板型薄膜透析系統併合超過濾效應之解析解與實驗之研究 計畫主持人：何啟東 計畫編號：NSC 93-2214-E-032-004 學門領域：E3 化學工程</p>
<p><b>技術/創作名稱</b></p>	<p>平板型薄膜透析系統</p>
<p><b>發明人/創作人</b></p>	
<p><b>技術說明</b></p>	<p>中文： 本研究主要是針對順流式平板型薄膜透析系統探討超過濾效應對於其質傳效率改善率的影響，並討論不同透餘側流率、透析側流率與超過濾通量下的質傳現象，其分析結果並與傳統之平板型透析系統作一比較以求得最佳操作條件。結果顯示，當透餘側流量減小或透析側流量增大時皆有較佳之質傳效果，而相較於傳統之透析系統，加入超過濾操作確能有效地提升分離效率。最後，由實驗數據與理論分析結果比較，證明此理論模型具有相當的準確性。</p> <p>英文： The membrane dialysis system coupled with the ultrafiltration operation has been investigated analytically in this study as well as the theoretical model has been developed. Comparing to the experimental data, the calculated results show that the theoretical model is reliable. Hence, the theoretical model of the membrane dialysis system coupled with the ultrafiltration operation in this study can be applied to predict the separation efficiency of artificial kidney.</p>
<p><b>可利用之產業及可開發之產品</b></p>	<p>薄膜透析系統目前主要是應用於血液透析器，而本研究中所選用之溶質-尿素，乃是血液透析中所欲去除之人體毒素，而由實驗證明本研究之理論模型具有一定之準確性，可用於血液透析器之理論數值之預測。</p>
<p><b>技術特點</b></p>	<p>利用增加超過濾之操作增進傳統透析系統之分離效率，並建立一套數學理論分析模型，而由實驗證明，此數學理論分析模型於各種不同之操作條件下，皆具有相當的準確性，因此，此模型可以用於薄膜透析器分離效率之預測。實驗與理論分析結果皆顯示增加超過濾操作，確能有效提高分離效率。</p>
<p><b>推廣及運用的價值</b></p>	<p>本研究所建立之併合超過濾之平板式順流型薄膜透析器之數學理論模式，經實驗證明具有相當之準確性，可用於各種薄膜透析器之理論數值之預測。</p>

1. 每項研發成果請填寫一式二份，一份隨成果報告送繳本會，一份送 貴單位研發成果推廣單位（如技術移轉中心）。
2. 本項研發成果若尚未申請專利，請勿揭露可申請專利之主要內容。
3. 本表若不敷使用，請自行影印使用。