輸送方程式によるチーズホエー逆浸透濃縮の解析

——操作条件の影響——[†]

福渡康夫・田村吉隆・溝田輝彦

富田 守・小此木成夫

森永乳業(株) 中央研究所^{††}

松本耕一・中島 篤・佐藤幾郎・稲垣孝二

森永乳業(株) 工務部^{†††}

PBIL膜を装着した平面膜型モジュールを用いて、操作圧、温度、循環流量、食塩阻止率および膜面下へのドレインネットの挿入などの諸条件を変化させて、チーズホエーの逆浸透濃縮を行った。その結果を、全溶質モル濃度、平均溶質透過係数および平均物質移動係数を用いた多成分系の輸送方程式および濃度分極式を用いて解析した。

体積透過流束および溶質透過流束は、濃縮諸条件を変化させても、これらの式で表現された。水透過係数および平均溶質透過係数は温度および膜の食塩阻止率の関数として、平均物質移動係数は循環流量、温度および相当径の関数として表現された。膜面下へのドレインネットの挿入効果は、水透過係数と平均物質移動係数の上昇として表現された。

緒 言

牛乳・乳製品から水分を除去する省エネルギー法として、逆浸透法が普及しつつある。チーズホエーの逆浸透濃縮に関して、膜材質、食塩阻止率、モジュールなどの膜および装置条件、ならびに溶質濃度、操作圧、循環流量、操作温度、pHなどの濃縮操作条件が透過流束に及ぼす影響を検討した報告^{1,4,6,8-10)}は多いが、輸送方程式を用いて解析した報告は見られない。これらの諸因子が逆浸透に及ぼす影響を定量的に把握することは、装置の設計および操作条件の設定に不可欠である。

前報²⁾において著者らは、多成分系高濃度溶液であるチーズホエーの逆浸透濃縮を解析する目的で、多成分系の輸送方程式と濃度分極式から全溶質モル濃度、平均溶質透過係数および平均物質移動係数を用いた新しい式を誘導し、これらの式が10°Cにおけるホエーの濃縮をよく表現できることを検証した。

本報では、食塩阻止率、操作圧、操作温度および循環流量の変化、ならびにドレインネットの挿入がホエーの透過流束に及ぼす影響について、前報で提案した式を用

いて解析した。その結果、それらの式がより広い操作条件下で汎用性を有することを検証できたので、考察を加えて報告する。

1. 材料および方法

1.1 チーズホエー

1) pH6.4のホエー チェダーチーズ製造時に副生する原ホエーを、75°C 15秒間加熱殺菌後冷却して実験に供した。

2) pH5.8のホエー ファウリングを防止する目的^{4,9)}で、殺菌ホエーに塩酸を添加してpHを調整した。

1.2 逆浸透膜

帝人エンジニアリング(株)が試作した食塩阻止率 R_{NaCl} 0.97, 0.90および0.70の平膜型ポリベンツイミダゾロン(PBIL)膜³⁾、ならびにKalle社製の R_{NaCl} 0.90の平膜型酢酸セルロース(CA)膜を使用した。これらの膜の特性値をTable 1に示した。PBIL膜の使用に先立ち、膜をモジュールに装着後約50°Cの脱塩素水を操作圧5.4MPaで5時間循環する安定化処理を行った。

1.3 実験装置

1) 逆浸透装置²⁾ 前報と同様に、Arla社製の平面膜型Arlamo-26モジュール(総有効膜面積1.98m²)にバランスタンク、熱交換器および三連式プランジャーポン

[†] 1986年6月5日受理

^{††} 〒153 目黒区目黒4-4-22

^{†††} 〒108 港区芝5-33-1

Table 1 Characteristics of membranes

Manufacturer Membrane	Teijin Engineering			Kalle
	FL-198	FL-190	FL-170	TR-AF-2027-011
Material	PBIL	PBIL	PBIL	CA
Water flux* [$\times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$]	0.86	1.08	1.75	1.06
Rejection** [-]	0.97	0.90	0.70	0.09
Thickness of membrane[mm]	0.20	0.21	0.21	0.28

* City water at 10°C and 3.9 MPa

** CA membrane : 0.5% NaCl sln. at 20°C and 4.0 MPa

PBIL membrane: 0.5% NaCl sln. at 25°C and 4.1 MPa

プを組み合わせた回分式装置を使用した。

2) ドレインネットの装着 ドレインネットの挿入効果を検討する目的で、実験5において、逆浸透膜裏面と支持板の間に線径0.1mm, 90メッシュ, 厚さ0.15mmの合繊製平織りのネットを挿入した。

1.4 逆浸透実験

1) 回分濃縮法 チーズホエー 300kgをバランスタンクに投入して低圧で循環し、装置内の残留水(5kg)と均一に混合したものを供試ホエーとした。供試ホエーを循環流量 $Q 0.9 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ (モジュールの入口と出口の平均流量)、操作圧 $\Delta P 3.9 \text{ MPa}$ (モジュールの入口と出口の平均圧)の条件で、操作温度を10, 25および40°Cにそれぞれ設定して回分濃縮した。濃縮倍率 CF 1, 2, 3あるいは4倍において体積流束 J_v を測定すると同時に、モジュール入口の濃縮液および透過液を採取して測定に供した。

実験終了後、PBIL膜を装着した場合はセスキ炭酸ナトリウムおよび硝酸を用いて、CA膜の場合は P_3 ultrasil 50(ヘンケル白水㈱製)、クエン酸および P_3 oxonia aktiv(ヘンケル白水㈱製)を用いて、装置の定置洗浄を行った。 P_3 ultrasil 50は蛋白質分解酵素、キレート剤および乳化剤を含む洗剤であり、 P_3 oxonia aktivは過酢酸および過酸化水素を含む殺菌剤である。

2) 体積流束に及ぼす循環流量の影響の測定 回分濃縮実験途上の CF 1, 2, 3倍あるいは4倍の各時点において、透過液をバランスタンクに戻して一定の溶質濃度で膜分離を行う全循環法にフローを切り換え、 Q のみを $0.28 \sim 1.8 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ の範囲で変化させて J_v を測定した。

3) 体積流束に及ぼす操作圧の影響の測定 回分濃縮実験途上の CF 1, 2, 3倍あるいは4倍の各時点において全循環法に切り換え、 ΔP のみを1~5MPaの範囲で変化させて J_v を測定した。

1.5 モジュールの圧力損失の測定

水および CF 1~4倍のホエーを、10~40°C, $Q 0.45 \sim 1.8 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, ΔP 1MPa以下で通液し、モジュールの圧力損失を測定した。

1.6 測定方法

溶質の重量モル濃度 m は凝固点降下法の原理に基づく浸透圧計、全固形物 s は直接乾燥法および粘度 μ はB型粘度計により測定した。

1.7 解析方法²⁾

1) 基礎式 全溶質モル濃度 c を用いた輸送方程式 Eqs. (1)および(2)ならびに濃度分極式 Eq. (3) を使用して、チーズホエーの逆浸透濃縮を解析した。

$$J_v = A(\Delta P - \Delta \pi) \quad (1)$$

$$J_s = (D_{AM}/K\delta)_m (c_2 - c_3) \quad (2)$$

$$(c_2 - c_3)/(c_1 - c_3) = \exp(J_v/k_m) \quad (3)$$

ここで、 J_v は体積流束、 A は水透過係数、 J_s は溶質透過流束、 $(D_{AM}/K\delta)_m$ は平均溶質透過係数、 k_m は平均物質移動係数である。 k_m は、各溶質の平均拡散係数 D_m を用いて、二成分系の平行平板間の流れにおける物質移動係数 k と同様の取り扱いができるものとする。すなわち多成分系の流れにおいて、次式が成立するものとする。

$$dk_m/D_m = \alpha (du/\nu)^\beta (\nu/D_m)^{1/3} (d/L)^{1/3} \quad (4)$$

二成分系における α および β は、層流では2.36および1/3、乱流では0.44および7/12とされている⁵⁾。

2) 浸透圧 浸透圧は次式により求めた。

$$\pi = RTm' \quad (5)$$

ここで、 m' は水 1 m^3 当たりの溶質モル濃度で、本報では重量モル濃度 m と同値とした。

3) 全溶質モル濃度 全溶質モル濃度 c は次式により求めた。

$$c = m'(\rho_{sln}/\rho_w)\{(100-s)/100\} \quad (6)$$

ここで、 s は全固形物、 ρ_{sln} , ρ_w はそれぞれ溶液²⁾ および水の密度である。

4) A , $(D_{AM}/K\delta)_m$ および k_m の求め方 A は水の J_v よりEq. (1)を用いて、 $(D_{AM}/K\delta)_m$ および k_m は回分濃縮実験により前報²⁾ 記載の方法に従って求めた。すなわち、

$$R \equiv 1 - c_3/c_2 \quad (7)$$

$$R_0 \equiv 1 - c_3/c_1 \quad (8)$$

と定義して、Eqs. (2),(3),(7),(8)よりEq. (9)をおよび

Eq. (4)よりEq. (10)を誘導した.

$$\ln\left\{J_v\left(\frac{1-R_o}{R_o}\right)\right\}=\ln\left(\frac{D_{AM}}{K\delta}\right)_m+\frac{J_v}{k_m} \quad (9)$$

$$k_m=\alpha'\nu^{1/3-\beta} \quad (10)$$

測定値を用いて, Eq. (9)の左辺と, 右辺第2項にEq. (10)を代入した $J_v/\nu^{1/3-\beta}$ をプロットし, 切片より $(D_{AM}/K\delta)_m$ を, 傾きより k_m を求めた.

2. 結果および考察

2.1 無次元相関式Eq. (4)の指数 β の取り扱いについて

濃縮倍率1~4倍のホエーおよび水の, 粘度 μ と温度の関係をFig.1に示した. これらのホエーと水をモジュールに通液した時の, Reynolds数 N_{Re} *と摩擦係数の関係をFig.2に示した. その結果モジュール内の流れは, N_{Re} 約600までは層流域, それ以上では遷移域と考えられた. β は層流では1/3, 乱流では7/12とされているので, N_{Re} の範囲が90~2040に亘る本逆浸透濃縮実験の J_v と循環流量 Q をプロットすると, N_{Re} 600以上で β が変化して屈折点の生じることが予想される.

FL-190を用いてホエーを25°Cで逆浸透濃縮した時の J_v と Q の関係を, N_{Re} 600未満を○印および600以上を●印で, Fig.3に示した. しかしながら, 屈折点は認められなかった. 10°Cおよび40°Cの逆浸透濃縮においても同様の結果が得られた.

N_{Re} と摩擦係数の関係より得られた結果と, J_v と Q の関係より得られた結果が N_{Re} 600以上で異なったが, 本報では透過流束に関して解析するので, 逆浸透実験による J_v と Q の関係から得られた結果を採用するものとした. したがってEq.(4)における β を層流仮定の1/3として, 以後の解析を行った.

2.2 解析結果

1) 膜の食塩阻止率の影響 食塩阻止率 R_{NaCl} の異なるPBIL製のFL-198(実験1), FL-190(実験2), FL-170(実験3)およびCA膜(実験4)を用いて, 10°Cで回分濃縮を行った. 各実験における J_v および透過液溶質濃度 m_3 の濃縮に伴う変化をFig.4に示した. さらに各膜の水透過実験から求めた A , ホエーの実験結果を解析して得られた $(D_{AM}/K\delta)_m$ および k_m を, 実験条件とともにTable 2

Fig.1 Ternary correlation among viscosity, temperature and concentration in whey

Fig.2 Relationship between friction factor and Reynolds number through the RO module

Fig.3 Flux versus recirculation flow rate for various concentration factors in RO of whey at 25°C by FL-190 membrane

* 本モジュールは半径方向で流路間隙が狭まる非平行円板間流路を形成しているため, 相当径および流速 u が変化する. そのため膜面積が半径方向で二分される中心より80 mmの位置における N_{Re} と摩擦係数を算出した. この点の流路間隙は1.1 mmで, 例えば10°Cで濃縮倍率1倍のホエーを $Q=0.9 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ($u=0.45 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$)で通液した場合の N_{Re} は, 580となる.

に示した. Fig.4の実線は, 求めた各係数を用いて算出した J_v および m_3 の計算値で, いずれも測定値(図中の記号)と極めてよく一致した.

Table 2に示した10°Cにおける各膜の A および $(D_{AM}/K\delta)_m$ をそれぞれ A_{10} および B_{10} として, これらの係数と R_{NaCl} との関係を整理すると, それぞれEqs. (11)および

Table 2 Effect of membrane on A , $(D_{AM}/K\delta)_m$ and k_m

Experimental No.	1	2	3	4
Experimental conditions*				
Membrane	FL-198	FL-190	FL-170	Kalle
Material	PBIL	PBIL	PBIL	CA
Rejection[-]	0.97	0.90	0.70	0.90
Initial conditions of whey				
pH	6.4	6.4	6.4	6.4
s [%]	6.06	6.10	6.09	6.06
m_1' [kmol·m ⁻³ ·water]	0.276	0.276	0.278	0.273
M_1 [×10 ⁻³ kg·mol ⁻¹]	234	235	233	236
Permeate				
M_3^{**} [×10 ⁻³ kg·mol ⁻¹]	20	54	84	37
Analytical results				
A [pm·Pa ⁻¹ ·s ⁻¹]	2.21	2.78	4.48	2.71
$(D_{AM}/K\delta)_m$ [×10 ⁻⁸ m·s ⁻¹]	2.1	12	31	6.9
k_m [×10 ⁻⁶ m·s ⁻¹]	5.4	5.5	5.6	6.4

* Other conditions: temperature, 10°C; operating pressure, 3.9 MPa; recirculation flow rate, 0.9 m³·h⁻¹; without drain net

** Average molar mass

(12)が得られた。

$$A_{10} = 2.15 / R_{NaCl}^{2.1} \quad (11)$$

$$B_{10} = 3.1 \times 10^{-8} / R_{NaCl}^{7.5} \quad (12)$$

ただし, $0.70 \leq R_{NaCl} \leq 0.97$

PBIL膜を用いた時の k_m は, 平均 5.5×10^{-6} m·s⁻¹であった。CA膜を用いた時の k_m がPBIL膜の場合に比べて大きいのは, PBIL膜より0.1mm厚いCA膜が流路間隙を狭めたためと推定される。すなわち循環流量が一定の条件で, 相当径の d から d' への変化が k_m に及ぼす影響は, Eq. (4)を変形したEq. (13)で表現される。

$$k_m \propto (d'/d)^{-2/3} \quad (13)$$

モジュールの中心より半径方向に80mmの位置における流路間隙は, PBIL膜装着時で1.1mm ($d = 2.2 \times 10^{-3}$ m), CA膜装着時では1.0mm ($d' = 2.0 \times 10^{-3}$ m)であった。その結果, Eq. (13)よりCA膜における k_m は, PBIL膜の場合の1.1倍と計算された。

なお, 実験1~4において, 操作圧の変化に伴う J_v の変化も合わせて測定した。測定値とTable2の3つの係数を用いて算出した J_v の計算値はいずれの膜においてもよく一致したので, R_{NaCl} および膜材質の変化にかかわらず, 操作圧の J_v に及ぼす影響はEqs. (1), (2)および(3)で表現されることが確認された。

2) ドレインネットの影響 FL-170の裏面にネットを装着した場合(実験5)の濃縮に伴う J_v の変化を, 無装着の場合(実験2)と比較して, Fig.5に示した。さらに, これらの実験結果から求めた各係数の値を, 実験条件お

Fig. 4 Flux and permeate molality versus retentate molality in RO of whey at 10°C and 0.9 m³·h⁻¹ of recirculation flow rate for various types of membrane

および m_3' の測定値とともにTable3に示した。Fig.5の実線は, 求めた3つの係数を用いて算出した J_v の計算値で, 測定値(図中の○および□印)とよく一致した。

ネットの挿入が J_v の大きな領域で効果的であったのは, 透過液流路の圧力損失が低減されて実質上の操作圧 ΔP

Table 3 Effect of drain net on A , $(D_{AM}/K\delta)_m$ and k_m

Experimental No.	3	5
Experimental conditions*		
Net	without	with
Initial conditions of whey		
pH	6.4	6.4
s [%]	6.09	6.12
m_1' [kmol·m ⁻³ -water]	0.278	0.281
M_1 [$\times 10^{-3}$ kg·mol ⁻¹]	233	232
Permeate		
m_3' [kmol·m ⁻³ -water]		
CF** 1	0.040	0.026
CF 2	0.077	0.053
CF 3	0.110	0.093
CF 4	0.164	0.159
M_3 *** [$\times 10^{-3}$ kg·mol ⁻¹]	84	67
Analytical results		
A [pm·Pa ⁻¹ ·s ⁻¹]	4.48	5.92
$(D_{AM}/K\delta)_m$ [$\times 10^{-8}$ m·s ⁻¹]	31	29
k_m [$\times 10^{-6}$ m·s ⁻¹]	5.6	6.7

* Other conditions: membrane, FL-170; temperature, 10°C; operating pressure, 3.9 MPa; recirculation flow rate, 0.9 m³·h⁻¹

** Concentration factor

*** Average molar mass

が上昇したためと考えられる。しかしながら本モジュールの透過液流路の圧力損失の測定は困難なので、 ΔP の上昇効果を A の変化として取り扱ったところ、 A は1.32倍に上昇した。Fig.5に示したように、ネットの有無によりそれぞれの A を用いると、Eqs. (1), (2)および(3)は、測定値をよく表現した。

k_m はネットの挿入により1.2倍に上昇した。ネットの厚みにより流路間隙が0.15mm減少したのとしてEq. (13)により計算すると、 k_m は1.1倍となった。すなわち、CA膜あるいはネットの挿入による k_m の変化は、PBIL膜のみを装着した場合の相当径を $d=2.2 \times 10^{-3}$ mとして、10°C、循環流量0.9 m³·h⁻¹、相当径 d' の時の k_m を k_{10} とすると、Eq. (14)で表現される。

$$k_{10} = 5.5 \times 10^{-6} (d'/d)^{-2/3} \quad (14)$$

ただし、 $1.9 \times 10^{-3} \leq d' \leq 2.2 \times 10^{-3}$ m

3) 温度の影響 FL-190を用いて、操作温度10°C(実験2)、25°C(実験6)および40°C(実験7)においてホエーを濃縮した時の J_v の測定値をそれぞれ○、●および●印でFig.6に示した。解析して得られた各係数の値を、実験条件および m_1' の測定値とともにTable 4に示した。さらに、それらの係数と温度の関係を○印でFig.7に示した。

A は、1°C当たり約3%上昇し、Fig.7の10°Cにおける

Fig. 5 Effect of netting beneath FL-170 membrane on flux to retentate molality in RO of whey at 10°C and 0.9 m³·h⁻¹ of recirculation flow rate Fig. 6 Effect of temperature on flux to retentate molality in RO of whey at 0.9 m³·h⁻¹ of recirculation flow rate by FL-190 membrane

値を $A_{10}=2.64$ pm·Pa⁻¹·s⁻¹としてEq. (15)で表現された。

$$A = A_{10} \cdot \exp\{0.030(T-283)\} \quad (15)$$

ただし、 $283 \leq T \leq 313$ K

また A に及ぼす温度の影響は、 R_{NaCl} の変化およびネットの有無にかかわらずEq. (15)で表現された。

$(D_{AM}/K\delta)_m$ は、昇温に伴って上昇し、Fig.7の10°Cにおける値を $B_{10}=12 \times 10^{-8}$ m·s⁻¹としてEq. (16)で表現された。

$$(D_{AM}/K\delta)_m = B_{10} \cdot \exp\{0.018(T-283)\} \quad (16)$$

ただし、 $283 \leq T \leq 313$ K

k_m も昇温に伴って上昇した。 k_m の温度依存性は、Eq. (4)から導くことができる。 $\beta=1/3$ としてEq. (4)を k_m に関して整理すると、温度により変化する因子は D_m のみ

Table 4 Effect of temperature on A , $(D_{AM}/K\delta)_m$ and k_m

Experimental No.	2	6	7
Experimental conditions*			
Temperature [°C]	10	25	40
Initial conditions of whey			
pH	6.4	5.8	5.8
s [%]	6.10	6.08	6.08
m_1' [kmol·m ⁻³ ·water]	0.276	0.279	0.278
M_1 [×10 ⁻³ kg·mol ⁻¹]	235	232	233
Permeate			
m_3' [kmol·m ⁻³ ·water]			
CF** 1	0.018	0.019	0.015
CF 2	0.030	0.029	0.030
CF 3	0.059	0.061	0.069
CF 4	0.110	0.143	0.149
M_3 *** [×10 ⁻³ kg·mol ⁻¹]	54	58	53
Analytical results			
A [pm·Pa ⁻¹ ·s ⁻¹]	2.78	3.97	6.55
$(D_{AM}/K\delta)_m$ [×10 ⁻⁸ m·s ⁻¹]	12	17	23
k_m [×10 ⁻⁶ m·s ⁻¹]	5.5	7.2	9.0
* Other conditions: membrane, FL-190; operating pressure, 3.9 MPa; recirculation flow rate, 0.9 m ³ ·h ⁻¹ ; without drain net			
** Concentration factor			
*** Average molar mass			

となり、 k_m の温度による変化はEq. (17)で表現される。

$$k_m \propto D_m^{2/3} \quad (17)$$

ここで、 D に関する $D\mu/T=\text{constant}$ の関係⁷⁾が D_m においても成立すると仮定すれば、Eq. (18)が成立する。

$$D_m \mu / T = \text{constant} \quad (18)$$

μ は溶媒すなわち水の粘度で、10～40°Cの水の粘度と温度の関係はEq. (19)で表現される。

$$\mu \propto \exp\{(2.05 \times 10^3)/T\} \quad (19)$$

Eq. (19)をEq. (18)に代入して整理するとEq. (20)が得られる。

$$D_m \propto T / \exp\{(2.05 \times 10^3)/T\} \quad (20)$$

Eq. (20)をEq. (17)に代入し、 k_{10} を用いて整理すると、 k_m と T の関係はEq. (21)で表現される。

$$k_m = 2.91 \cdot k_{10} \cdot [T / \exp\{(2.05 \times 10^3)/T\}]^{2/3} \quad (21)$$

ただし、283 ≤ T ≤ 313K

Fig. 7の k_m の実線は、Eq. (21)によるもので、解析して求めた値(○印)とよく一致した。

Fig. 6の実線は、Eqs. (15), (16)および(21)により得られた各温度における A , $(D_{AM}/K\delta)_m$ および k_m を用いて算出した J_v の計算値である。計算値と測定値はよく一致したので、温度が3つの係数に及ぼす影響は、これらの式で十分に表現されるものと考えられる。

Fig. 7 Effect of temperature to water permeability, average solute permeability and average mass transfer coefficient in RO of whey by FL-190 membrane

4) 循環流量の影響 操作圧3.9MPa, 操作温度25°C, 循環流量 Q を0.27～1.8m³·h⁻¹の範囲で変化させて測定した各濃縮倍率のホエーの J_v (実験6)を、○印および●印で、Fig. 3に示した。

層流仮定における Q と k_m の関係は、Eq. (4)より、 $k_m \propto Q^{1/3}$ と表現される。この関係を検証する目的で、 $Q=0.9$ m³·h⁻¹の時に得られた実験6の3つの係数(Table 4)を用いて、 Q の変化に伴う J_v を算出して実線でFig. 3に示した。計算値と測定値はよく一致し、 Q の k_m に及ぼす影響は、 k_{10} を用いてEq. (22)で表現された。

$$k_m = 3.01 \cdot k_{10} \cdot Q^{1/3} \cdot [T / \exp\{(2.05 \times 10^3)/T\}]^{2/3} \quad (22)$$

ただし、283 ≤ T ≤ 313K

$$0.27 \leq Q \leq 1.8 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$$

2.3 解析結果の利用について

溶質濃度変化法に基づく本解析方法を用いることにより、ホエー等の多成分系高濃度溶液の逆浸透濃縮を化学工学的に取り扱うことができ、その結果逆浸透装置の設計および操作条件の設定が可能となった。

しかしながら、ホエーを逆浸透濃縮するとファウリングにより J_v が顕著に減少し、 A を定数として表現できなくなる濃縮条件のあることが観察された。本報で報告した解析方法を適用できる範囲については、別の機会に検討を加える予定である。

結 言

1) 平面膜型モジュールを用いて、操作圧、温度、循環流量、食塩阻止率および膜面下へのドレインネットの挿入などの濃縮諸条件を変化させて、チーズホエーの逆浸透濃縮を行った。実験結果を、全溶質モル濃度、平均溶質透過係数および平均物質移動係数を用いて誘導した多成分系の輸送方程式および濃度分極式を使用して解析

した。

2) 体積流束および溶質透過流束は、濃縮条件を変化させても、これらの式で表現されることが確認された。

3) 濃縮諸条件を変数として、膜およびモジュールの特性を表現することができた。

4) 本実験条件範囲において溶質濃度変化法に基づく本解析方法の汎用性を検証できたので、従来困難であったチーズホエー等の多成分系高濃度溶液の逆浸透濃縮を化学工学的に取り扱うことが可能となった。

[付 記] 本研究は、農林水産省の食品産業膜利用技術研究組合の研究事業の一環として実施されたものである。

Nomenclature

A	= water permeability	$[\text{pm} \cdot \text{Pa}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}]$
A_{10}	= A at 10°C	$[\text{pm} \cdot \text{Pa}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}]$
B_{10}	= $(D_{AM}/K\delta)_m$ at 10°C	$[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$
c	= molar concentration	$[\text{kmol} \cdot \text{m}^{-3}]$
CF	= concentration factor	$[-]$
d, d'	= equivalent diameter	$[\text{m}]$
D	= diffusivity	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$
$(D_{AM}/K\delta)$	= solute permeability	$[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$
J_s	= solute flux	$[\text{kmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}]$
J_v	= volume flux	$[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$
k	= mass transfer coefficient	$[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$
k_{10}	= k_m at 10°C , $Q=0.9\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ and $d=2.2 \times 10^{-3}\text{m}$	$[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$
L	= length of channel	$[\text{m}]$
M	= molar mass	$[\text{kg} \cdot \text{mol}^{-1}]$
m'	= volume molality	$[\text{kmol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{water}]$
Re	= Reynolds number (du/ν)	$[-]$
P	= pressure	$[\text{MPa}]$
Q	= recirculation flow rate	$[\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}]$
R	= solute rejection	$[-]$
R_{NaCl}	= salt rejection	$[-]$
R_o	= observed solute rejection	$[-]$
R	= gas constant	$[\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}]$
s	= total solids	$[\%]$

T = temperature $[\text{K}]$

u = velocity of solution parallel to membrane $[\text{m} \cdot \text{s}^{-1}]$

α, β = constant $[-]$

Δ = difference

μ = viscosity $[\text{mPa} \cdot \text{s}]$

ν = kinematic viscosity $[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$

π = osmotic pressure $[\text{MPa}]$

ρ_{stn} = density of solution $[\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$

ρ_w = density of water $[\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$

< Subscripts >

1 = bulk solution

2 = membrane interfacial solution

3 = permeate

i = inlet of module

m = average

o = outlet of module

Literature cited

- 1) Fenton-May, R. I., C. G. Hill, Jr., C. H. Amundson and P. D. Auclair: *AIChE Symp. Ser.*, **68** (120), 31 (1972)
- 2) Fukuwatari, Y., Y. Tamura, T. Mizota, M. Tomita, S. Okonogi, K. Matsumoto, N. Satoh and H. Endoh: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **12**, 179 (1986)
- 3) Hara, S., K. Mori, Y. Taketani, T. Noma and M. Seno: *Desalination*, **21**, 183 (1977)
- 4) Hiddink, J., R. de Boer and P. F. C. Nooy: *J. Dairy Sci.*, **63**, 204 (1980)
- 5) Kimura, S. and S. Sourirajan: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **7**, 539 (1968)
- 6) McDonough, F. E. and W. A. Mattingly: *Food Tech.*, **24**, 194 (1970)
- 7) Sato, K.: "Bussei teisu suisanho", p.301, Maruzen, Tokyo (1965)
- 8) Short, J. L. and R. K. Doughty: *New Zealand Dairy Sci. Tech.*, **11**, 237 (1976)
- 9) Smith, B. R. and R. D. MacBean: *Aust. J. Dairy Tech.*, **33**, 57 (1978)
- 10) Spanglar, P. L. and C. H. Amundson: *J. Dairy Sci.*, **68** (Suppl. 1), 56 (1985)

Analysis of Reverse Osmosis Concentration of Cheese Whey by Membrane Transport Equations

—Effects of Operating Conditions—

Yasuo Fukuwatari, Yoshitaka Tamura, Teruhiko Mizota,
Mamoru Tomita and Shigeo Okonogi

Central Research Lab.,
Morinaga Milk Industry Co., Ltd., Tokyo 153

Kohichi Matsumoto, Atsushi Nakajima, Norio Satoh
and Kohji Inagaki

Engineering Div., Morinaga Milk Industry Co., Ltd., Tokyo 108

Key Words : Membrane Separation, Food Chemical Engineering, Reverse Osmosis, Whey, Transport Equation

Reverse osmosis concentrations of cheese whey were carried out by using PBIL reverse osmosis (RO) membranes installed in a plate-and-frame module in order to investigate the influence on RO concentration of the following factors : operating pressure, temperature, recirculation flow rate, salt rejection rate of membrane, and netting beneath the membrane. The experimental data were analyzed by new equations of membrane transport and concentration polarization for multi-component systems, employing total solute molarity, average solute permeability, and mass transfer coefficient.

The volume flux and total solute flux were expressed with these equations under all experimental conditions. Water permeability and average solute permeability were represented as functions of temperature and salt rejection rate. The average mass transfer coefficient was formulated as a function of recirculation flow rate, temperature, and equivalent diameter. Also, the effect of netting beneath the membrane was expressed as increases in the water permeability and average mass transfer coefficient.

~~~~~