2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Membrane Distillation을 이용한 PTFE 소수성 막의 $H_2{}^{18}O$ 분리연구

Separation of $H^{18}O$ using Membrane Distillation of PTFE Hydrophobic Membrane

김재우, 박상언*, 김택수, 정도영, 고광훈, 박경배
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150
*한국표준과학연구원, 대전광역시 유성구 도룡동 1

요 약

본 연구에서는 소수성 PTFE(Polytetrafluoroethylene) 막의 $H_2{}^{18}O$ 투과 및 분리특성을 Air Gap Membrane Distillation(AGMD)과 Vacuum Enhanced Membrane Distillation(VEMD) 방법을 이용하여 각각 측정하였다. 막 투과된 수증기는 트랩에서 수거하여 투과플럭스(permeation flux)를 측정하였고$H_2{}^{18}O$의 성분비는 다이오드 레이저 흡수분광법으로 측정하여 동위원소 성분비의 변화를 관찰하였다. AGMD와 VEMD 방법의 수증기 투과플럭스는 투과셀 상단부 물의 온도를 50^oC로 고정하고 하단부 heat exchange funnel의 온도조건에 따라 각각 0.5 ~ 4.0 L/hr/m^2와 1.2 ~ 9.3 L/hr/m^2으로 측정되었다. 또한 AGMD와 VEMD 방법의 ^{18}O 산소동위원소의 분리계수는 각 동위원소의 측정된 흡수신호의 peak-to-peak 비를 이용하여 각각 1.0074 ~ 1.013와 1.01 ~ 1.014로 측정되었다. 결과적으로 VEMD 방법이 산소동위원소 분리도와 생산비(production rate)를 향상시키는데 있어서 AGMD 방법보다 우월함을 관찰하였다.

Abstract

In this research, the permeation and separation characteristics of the $H_2{}^{18}O$ isotopic water with the hydrophobic PTFE membrane using Air Gap Membrane Distillation(AGMD) and Vacuum Enhanced Membrane Distillation(VEMD) were investigated. Permetation fluxes were measured by weighing the membrane-permeated water and the isotopic concentrations of $H_2{}^{18}O$ in the permeated water were analyzed by Diode Laser Absorption Spectroscopy. Permeation fluxes of 50^oC water for the hydrophobic PTFE membranes were 1.5 ~ 4.0 L/hr/m^2 for AGMD and 1.2 ~ 9.3 L/hr/m^2 for VEMD under the various heat exchange funnel temperatures in the permeation cell. Also, isotope separation coefficients for the hydrophobic PTFE membranes were 1.007 ~ 1.013 for AGMD and 1.01 ~ 1.014 for VEMD under the certain conditions. Based on these results, VEMD is assumed to be more efficient for increasing the degree of oxygen isotope separation and the production rate than AGMD.

1. 서 론

현대 사회에 있어서 안정동위원소는 의료, 산업, 및 과학의 각 분야의 발전을 위해 없어서는 않될 중요한 물질임은 주지의 사실이다. 특별히 분리공정을 거쳐 농축된 안정동위원소들은 특성에 따라 원자로나 가속기에서 생산되는 방사성 동위원소의 원료로 사용되고 있으며 또한 안정동위원소 자체로도 사용되고 있다. 이러한 안정동위원소의 농축기술은 국가간 기술이전이 매우 민감하며 국내의 경우 기술 축적이 전무한 상태이다. 특별히 의료용으로 중요한 안정동위원소인 ^{18}O은 산화질소(NO)를 이용한 저온 증류법 또는 물을 이용한 분별 증류법으로 소수의 선진국에서 독점적으로 생산하고 있다. 자연계에 0.2% 분포되어 있는 ^{18}O이 95% 이상 농축된 물은 양성자가속기에서 양전자방출 단층촬영기(PET: Positron Emission Tomography) 촬영시 환자에게 투여되는 진단시약인 ^{18}F-FDG의 재료인 방사성 동위원소 ^{18}F의 생산 표적으로 사용된다. 이러한 이유로 국내외 의료 및 산업계에서는 경제적으로 좀더 효율적인 ^{18}O 생산기술의 개발을 수 년전부터 요구해 왔다.

본 연구는 분리막(Membrane)을 이용하여 산소동위원소를 농축하기 위한 $H_2{}^{18}O$ 막투과 분리현상을 고찰하고 있다. 분리막과 물을 이용한 Membrane Distillation 산소동위원소 분리는 90년대 초반 폴란드의 A. G. Chmielewski와 미국의 W. Alexander van Hook[1-4]에 의해서 관찰되었고 이는 물분자를 구성하는 각 동위원소의 질량 차이로 인한 평형 증기압과 막의 기공을 통과하는 질량이 다른 수증기의 기체확산특성에 따라 차별된 투과정도를 이용하는 것이다. 분리막 윗면에 높은 온도의 물이 흐르면 막의 표면에 물의 평형증기압에 따라 수증기가 형성되고 막의 기공을 통하여 수증기가 투과하게 된다. 막을 투과하는 수증기에는 기체확산 특성에 따라 가벼운 산소동위원소(^{16}O)의 성분비가 투과하지 않고 막의 윗면을 지나가는 물에서의 성분비보다 높아지게 되어 산소동위원소의 분리가 가능하게 된다. A. G. Chmielewski *et. al.*은 Pervaporation, DCMD(Direct Contact Membrane Distillation)와 AGMD(Air Gap Membrane Distillation) 방법을 이용하였으며 기존의 산소 동위원소 분리공정 중 하나인 물의 분별증류법 분리계수 $\alpha = 1.003$보다 큰 $\alpha = 1.01 \sim 1.03$을 보여주고 있다. 이들 실험은 막 상하단부의 temperature polarization을 증가시키고 또한 효과적인 투과수증기의 수거를 위해 막 하단부에 차가운($15^oC \sim 20^oC$) 물을 순환하였다. 그러나 Kim *et. al.*[5]은 막 하단부에 차가운 물의 순환을 배제한 상태에서 수증기의 투과 및 동위원소 분리특성을 측정하였고 투과플럭스는 A. G. Chmielewski *et. al.*의 경우와 동일하거나 오히려 증가하였지만 산소동위원소 분리도는 감소함을 관찰하였다. 또한 진공펌프를 이용하여 분리막 기공에 처음부터 존재하고 있는 공기가 산소동위원소의 분리에 영향이 있음을 관찰하였다. 본 연구에서는 AGMD와 VEMD를 이용하여 투과셀의 막 상하단부의 온도변화에 따른 수증기의 투과플럭스 및 산소동위원소 분리도를 측정하여 비교하였다.

2. 실 험

2.1. 실험의 배경

Figure 1은 본 연구에서 사용한 AGMD와 VEMD 방법의 기본적인 차이를 보여주고 있다. AGMD의 경우 공기가 온도 전달의 매개가 되고 투과되는 수증기는 막의 기공에 존재하고 있는 공기속을 확산한 후 heat exchange surface에 수거된다. 그러나 VEMD의 경우는 진공펌프를 사용하

여 투과셀의 공기를 제거하기 때문에 이상적인 경우에 물 속에 처음부터 존재해 있는 공기를 제외하고, 일반적으로 상온의 물속에는 ~ 10 ppm의 공기가 존재하는 것으로 알려져 있고 본 연구에서는 무시해도 좋을 양이며, 투과셀의 내부에 공기가 존재하지 않는 것으로 간주하여 수증기의 확산만을 고려할 수 있다.

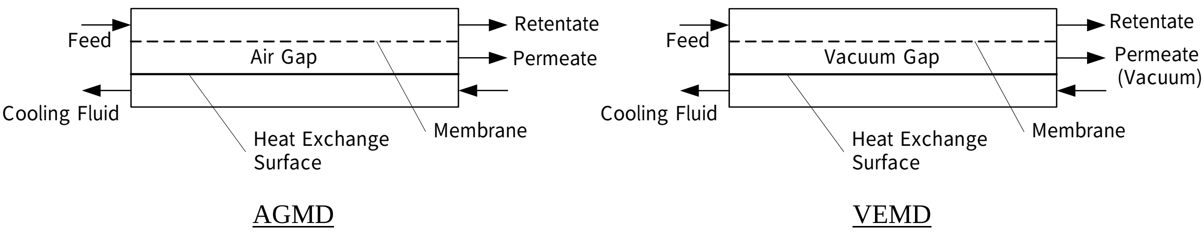


Figure 1. Configurations of AGMD and VEMD

따라서 본 실험의 온도조건(막의 상단부 물의 온도 = 50^{o}C, 막의 평균기공 = 0.2 μm)에서 VEMD의 수증기의 막 투과는 입자간의 충돌보다는 입자와 기공벽의 충돌에 의해 결정되는 Knudsen diffusion로 간주할 수 있고 막 기공에 공기가 존재하고 있는 AGMD 경우는 수증기 입자의 mean free path λ가 공기의 영향으로 기공의 지름보다 작으므로 수증기의 막 투과는 대기압의 공기필름을 투과하는 모델을 이용하여 molecular diffusion으로 간주할 수 있다. 입자의 막 투과가 molecular diffusion과 Knudsen diffusion의 영향을 받는경우 수증기의 투과플럭스는 각각 다음과 같이 표현할 수 있다[6].

$$N_D = \frac{1}{Y_{\ln}} \frac{D\varepsilon}{\chi\delta} \frac{M}{RT} \left(P_1 - P_0\right): \text{molecular flow} \quad (1)$$

$$N_K = 1.064 \frac{r\varepsilon}{\chi\delta} \left(\frac{M}{RT}\right)^{0.5} \left(P_1 - P_0\right): \text{Knudsen flow} \quad (2)$$

여기서, Y_{ln}은 공기의 log-mean mole fraction을 의미하며, 공기의 압력이 낮은 경우(deaerated membrane)에는 $Y_{ln} \rightarrow 0$이 되어 투과플럭스는 정의될 수 없고 따라서 Knudsen flow N_K로 표현될 수 있다. D는 기체확산계수, ε는 porosity로 막의 표면에서 기공이 차지하는 비율을 나타내고, χ는 tortuosity factor, δ는 membrane thickness를 나타낸다. M은 입자의 질량, R은 기체상수, T는 입자의 온도, r는 기공의 평균지름, P_1와 P_0은 각각 막의 윗면과 아래 면의 유체압력을 나타낸다. 따라서 막을 통과하는 수증기의 투과플럭스는 막기공의 특성(크기와 수), 입자의 특성에 의존하는 기체확산계수, 막 상하단부의 pressure gradient 등에 따라 변화함을 알 수 있다. 따라서 평균 0.2 μm 막기공을 통과하는 50^{o}C의 수증기의 경우 기공에 공기가 없는 VEMD 경우에 수증기 투과는 Knudsen diffusion으로 AGMD는 molecular diffusion으로 이해할 수 있다. 일반적인 distillation process의 동위원소 분리계수는 온도에 따른 각 동위원소의 평형증기압 차이에 의해서 결정되지만 membrane distillation에서는 식(1)와 (2)에서 알 수 있듯이 각 동위원소 성분의 평형증기압 차이뿐 아니라 기체확산계수의 차이로 인한 차별된 투과플럭스에 의해 결정되어 동위원소 분리도의 증가를 가진다.

2.2 실험장치 및 방법

실험에서 사용된 막은 소수성 PTFE (Millipore FGLP)로 제조사의 규격에 의하면 평균 기공의 지름은 0.2 μm, 막의 두께는 150 μm, 그리고 porosity는 70%이며 Figure 2의 SEM (Scanning Electron Microscope) 사진에서 볼 수 있듯이 기공은 불규칙한 거미줄 형태이다.

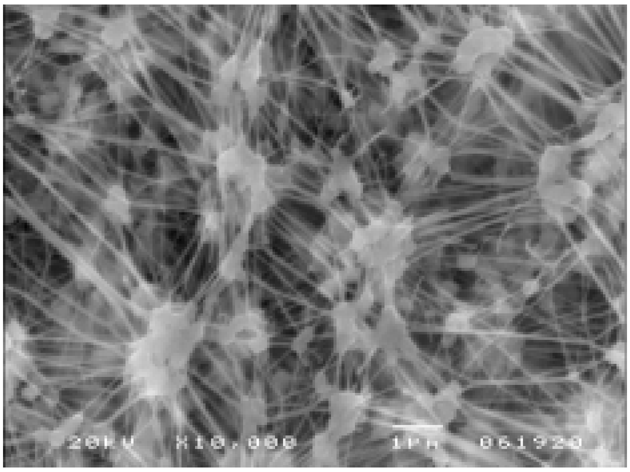


Figure 2. SEM(Scanning Electron Microscope) photograph of hydrophobic PTFE membrane with 0.2 μm pores on average

실험의 기본적인 장치(Kim *et. al.*[5] 참조)는 막투과셀(permeation cell), 항온(저온 및 고온)물 순환장치, 및 투과수증기 수거장치로 구성되어 있다. 실험에 사용된 물은 deionizer에서 처리한 후 사용하였다. 투과셀은 47 mm 지름의 막(투과 유효면적은 12.56 cm^2), 막을 수압 또는 진공으로부터 지탱할 수 있도록 같은 지름의 스테인리스 그물격자(5 mm x 5 mm mesh), 진공을 유지하기 위한 고무 O-링으로 구성되었다.

막의 아래면으로 투과되어지는 수증기는 투과셀의 heat exchange funnel을 통과하여 트랩에 수거되었다. 고온 물을 순환시키기 위하여 에틸렌 글리콜을 이용한 heat bath에 물 플라스크를 담가 온도를 유지하였고 연동(peristaltic)펌프를 이용하여 주어진 유속으로 물을 순환시켰다. 투과셀의 heat exchange funnel의 온도를 조절하기 위하여 저온 물 순환장치인 chiller를 이용하였고 heat exchange funnel 하단부로 물을 순환하였다. 순환하는 물의 온도는 50°C로 유지하였고 투과된 수증기는 AGMD는 상온트랩, VEMD는 저온트랩에서 각각 수집하였다. VEMD는 AGMD 장치에 진공펌프를 설치하여 시행하였다. 막 하단부 heat exchange funnel 온도는 각각 15°C, 20°C, 25°C, 및 45°C(저온 유지용 chiller를 사용하지 않은 경우)로 변화를 주어 실험하였다. 각각의 경우 실험 도중 노즐에 묻어 있는 물의 양은 무시하였고 수집된 물은 마이크로 저울을 이용하여 소수점 둘째자리까지 측정되었다. 물의 온도는 반응기의 주입구와 출입구의 온도센서를 이용하여 0.1°C의 분해도로 측정되었다.

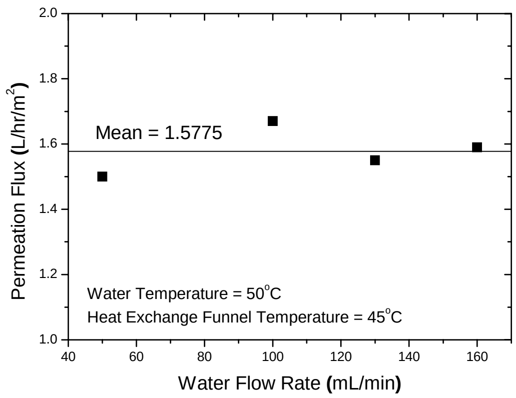
투과되지 않고 막의 상단부를 흐른 retentate(표준시료)과 수증기로 투과되어 수거된 permeate (측정시료)의 $H_2{}^{18}O/H_2{}^{16}O$ 산소동위원소 성분비는 다이오드 레이저 흡수분광 장치([5, 7] 참조)로 분석하여 각기 실험 조건에 따른 산소동위원소의 분리도를 측정하였다. 물의 경우, ν_1(symmetric vibrational stretching mode), ν_2(anti-symmetric vibrational stretching mode), ν_3(vibrational vending mode) 3개의 기본진동이 있으며 1.39 μm (~ 7190 cm^{-1}) 영역의 혼합진동 모드인 $\nu_1 + \nu_3$의 각 동위원소에 의한 회전-진동 (rovibrational) 흡수 peak의 높이를 비교하였다. $H_2{}^{18}O$와 $H_2{}^{16}O$의 회전-진동에너지는 각각 7183.5864 cm^{-1}와 7183.6856 cm^{-1}이다[8]. $H_2{}^{17}O/H_2{}^{16}O$의 경우는 peak 높이의 변화비가 측정오차 범위 밖에 있어 데이터의 신뢰도가 낮아 본 연구에서는 제외하였다. 흡수분광용 광원인 다이오드 레이저(Sacher, Model TEC 500-1380)는 출력이 ~ 3 mW인 Littman 외부공진형을 사용하였다. 수증기의 흡수신호 세기를 증가시키기 위하여 총 흡수길이가 36 m인 다중경로 흡수셀(Newfocus, Model 5611)을 사용하였다. 또한 신호의 S/N비를 향상시키기 위하여 lock-in-amplifier(Stanford Research Systems, Model SR850)를 사용하였고 생성된 1^{st} harmonic 신호의 peak-to-peak ratio를 이용하여 산소 동위원소 성분비를 측정하였다. 표준시료와 측정시료는 교대로 시료셀에 주입되어 수증기 7 torr의 일정한 압력에서 레이저 주파수를 스캔하여 각각의 신호를 측정하였다. 각 시료를 40번씩 스캔하여 평균값을 구하였고 측정의 정밀도를 높이기 위하여 이러한 과정을 여러 번 거쳐 다시 평균값을 구하였다. 측정된 신호의 획득과 처리는 Agilent Vee 프로그램을 이용하였고 Beer-Lambert 법칙에 의하여 분리계수를 계산하였다. ^{18}O 산소동위원소의 분리계수는 일반적으로 식(3)의 첫번째 term과 같이 정의되고 여기서 x는 물에서의 ^{18}O의 성분비를 의미한다. 레이저 흡수 측정신호를 이용하는 경우는 $H_2{}^{18}O$ (또는 $H_2{}^{17}O$)과 $H_2{}^{16}O$의 line intensity $I(\nu) = I_o \exp[-S(T)g(\nu - \nu_o)nl]$로 정의할 수 있다. 여기서 I_o와 $I(\nu)$는 레이저광의 시료흡수 전후의 세기이며 $S(T)$는 line strength, $g(\nu - \nu_o)$는 ν가 중심인 line-shape function, n은 number density이고 l은 optical path length를 의미한다. 여기서 온도가 일정할 경우 $S(T)$와 $g(\nu - \nu)$는 상쇄되기 때문에 $H_2{}^{18}O$ (또는 $H_2{}^{17}O$)과 $H_2{}^{16}O$의 분리계수는 측정된 line intensity ratio $a = \ln[I(\nu)/I_o]$의 함수로 식(3)의 두번째 term과 같이 정의 할 수 있고 i는 산소동위원소 ^{18}O(또는 ^{17}O)을 의미한다.

$$\alpha = \frac{\left(\frac{x}{1-x}\right)_{retentate}}{\left(\frac{x}{1-x}\right)_{permeate}} \approx \frac{\left(\frac{a_i}{a_{16}}\right)_{retentate}}{\left(\frac{a_i}{a_{16}}\right)_{permeate}} \tag{3}$$

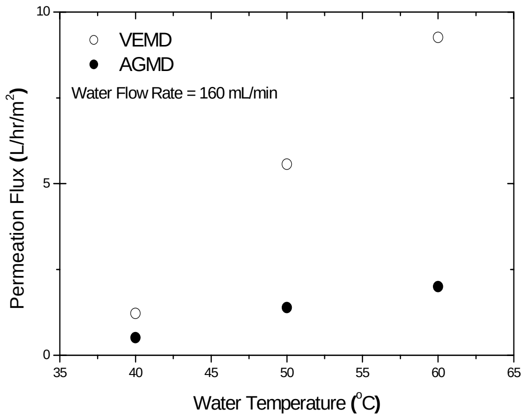
3. 실험결과 및 고찰

AGMD의 경우 더운물의 온도를 50°C, heat exchange funnel을 45°C로 유지(chiller를 사용하지 않은 경우의 funnel 온도)하고 물의 순환 유속을 50 mL/min, 100 mL/mlm, 130 mL/min, 및 160 mL/min로 변화시켰을때 Figure 3(a)에서 알 수 있듯이 소수성 막의 수증기 투과플럭스는 막 상단부에 흐르는 물의 주어진 유속에 따라 변하지 않음을 알 수 있다. 이는 Chmielewski *et. al.*[4]과 R. W. Schofield *et. al.*[9]의 결과와 일치하는데 막 분리공정의 모듈디자인에 중요한 요인으로 공정에너지의 효율을 증대시킬 수 있는 막 분리공정의 장점으로 작용한다고 할 수 있다. Figure 3(b)는 AGMD와 VEMD 방법으로 일정한 유속(160 mL/min)에서 막 상단부에 흐르는 물의 온도가 증가함에 따라 수증기의 투과플럭스가 증가함을 보여주고 있는데 이는 막 표면의 수증기 증기압이 온도가 상승함에 따라 증

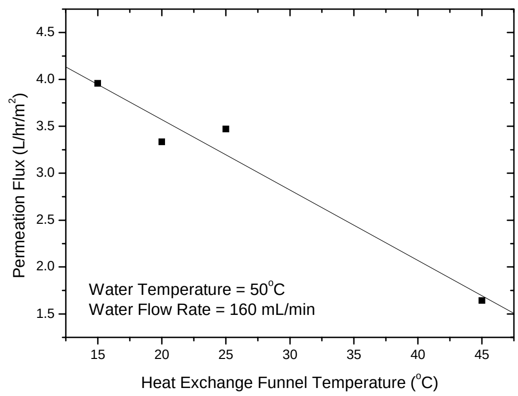
가하는 수증기의 평형증기압과 막의 interfatial 온도차이에 기인한 pressure gradient로 driving force가 증가한 결과로 예상된다. 특히 VEMD의 투과플럭스는 각각의 온도에서 AGMD와 비교하여 최고 4배 이상 증가하였음을 관찰하였다. 이는 막의 상단부와 하단부에 걸린 pressure gradient로 인한 driving force가 AGMD보다 크게 작용되어 수증기의 투과 확산속도가 증가하였고 결과적으로 투과플럭스가 증가였음을 알 수 있다. 또한 기공내에 처음부터 존재하는 공기는 stationary film의 역할을 하여 binary diffusion으로 인한 수증기의 확산속도 감소 요인으로 작용한다. 또한 기공내 공기는 시간이 지나도 제거되지 않아 결과적으로 수증기의 투과를 방해하는 요인으로 작용하기 때문이다. 결과적으로 수증기의 투과플럭스를 결정하는 주요 요인은 수증기의 막 상하단부의 온도(압력)차이와 이로 인한 수증기의 투과 확산속도와 막의 deaeration임을 실험적으로 확인할 수 있었다. Figure 3(c)는 50^{o}C 물을 160 mL/min 유속으로 순환하고 heat exchange funnel의 온도를 변화시켰을 때 수증기 투과플럭스가 변화함를 보여준다. 식(1)에서 예상할 수 있듯이 온도 차이에 의한 $\Delta P = P_1 - P_0$의 증가에 따라 투과플럭스는 선형적으로 증가함을 알 수 있다. 이러한 물의 온도차이에 따른 투과플럭스의 증가와 VEMD 방법을 이용한 투과플럭스의 증가는 동위원소 분리계수와 직접적으로 관계하기 때문에 실험적으로 적정한 실험조건을 찾는 것은 매우 중요하다



(a)



(b)



(c)

Fig. 3. Water vapor permeation properties of hydrophobic PTFE membrane. (a) Water flow rate dependent permeation flux for AGMD at water temperature = 50°C and heat exchange funnel temperature = 45°C (b) Water temperature dependent permeation flux for AGMD and VEMD at water flow rate = 160 mL/min and heat exchange funnel temperature = 45°C (c) Heat exchange funnel temperature dependent permeation flux for AGMD at water temperature = 50°C)

Figure 4는 투과된 수증기의 산소 동위원소 성분비 분석을 위한 다이오드 레이저 흡수분광신호로 각각 산소동위원소에 따른 물의 흡수스펙트럼 신호, lock-in-amplifier에서 증폭되어 S/N비를 향상시킨 1st harmonic 신호 및 자유분광범위(free spectral range)가 750 MHz인 공촛점공진기(confocal Fabry-Perot cavity)의 투과신호를 각각 보여주고 있다. 본 연구에서는 S/N비가 향상된 각 동위원소의 1st harmonic 신호의 peak-to-peak 높이를 비교하여 식(4)에 근거한 산소동위원소 분리계수를 얻었고 분리도는 $\delta^{18}O$(‰)로 나타내었다. 여기서 ‰은 동위원소 성분비 1/1000의 변화를 의미하며 동위원소 분리계수는 $\alpha = 1 - \delta^{18}O(‰)/1000$과 같다.

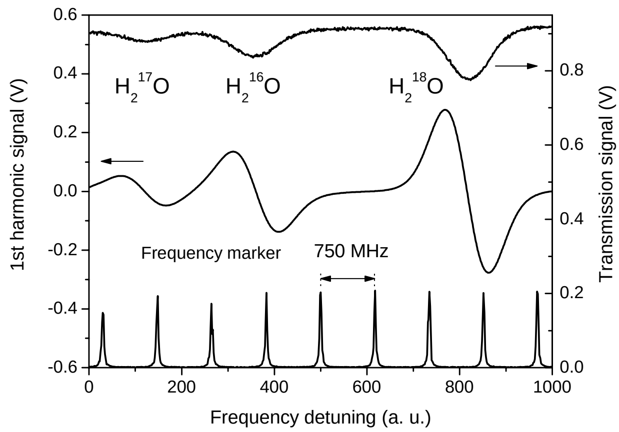
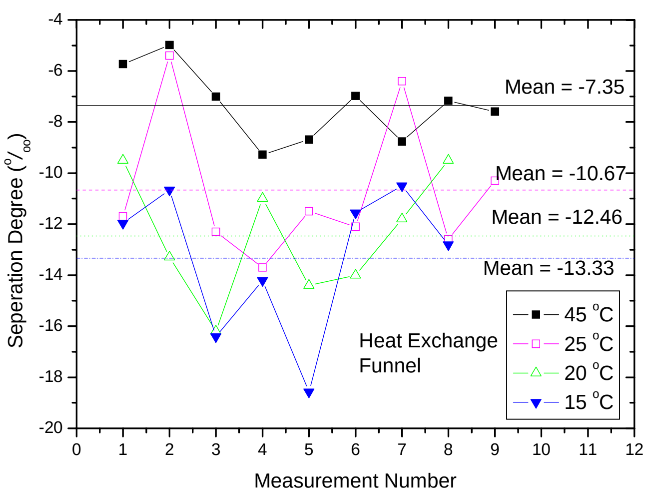


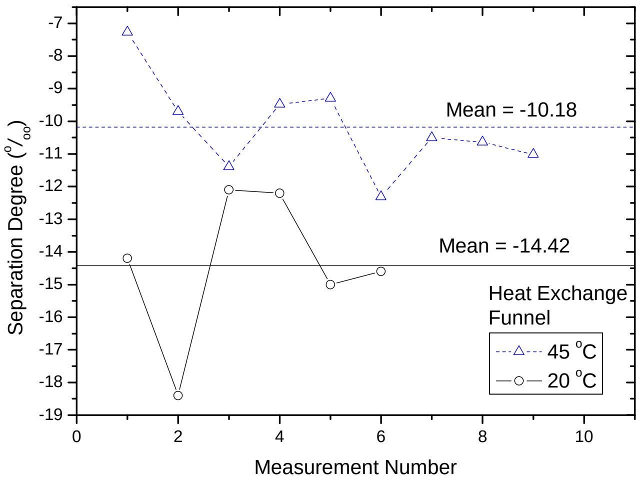
Fig. 4. Absorption spectrum of $H_2{}^{16}O$, $H_2{}^{17}O$, and $H_2{}^{18}O$.

Figure 5(a)는 투과셀 막 상하단부 온도차이에 따른 AGMD의 산소동위원소 분리도를 $\delta^{18}O$(‰)로 보여주고 있다. 투과셀 상단부를 순환하는 물이 50°C이며 heat exchange funnel의 온도가 각각 45°C, 25°C, 20°C, 및 15°C일 때 막 상하단부 온도차이는 ΔT = 5°C, 25°C, 30°C, 및 35°C이다. 순환하는 물의 온도는 투과셀의 inlet과 outlet의 온도를 측정하여 평균한 값이다. 이러한 조건에서 ^{18}O 동위원소 분리도는 각각 $\delta^{18}O$(‰) = -7.35‰, $\delta^{18}O$(‰) = -10.67‰, $\delta^{18}O$(‰) = -12.46‰, 및 $\delta^{18}O$(‰) = -13.33 ‰이고 ^{18}O 동위원소 분리계수는 각각 α = 1.0074, 1.0107, 1.0125 및 1.0133이다. 막기공이 deaeration 되어 수증기만 확산하는 VEMD의 경우, 막 상단부의 물이 50°C이고 heat eachange funnel의 온도가 각각 45°C, 20°C으로 시행되었고 온도차이는 ΔT = 5°C, 30°C이다. Figure 5(b)에서 알 수 있듯이 ^{18}O의 동위원소 분리도는 각각 $\delta^{18}O$(‰) = -10.18‰, $\delta^{18}O$(‰) = -14.42‰이고 ^{18}O 동위원소 분리계수는 각각 α = 1.0102, 1.0144이다. 일반적인 물증류법의 분리계수[10]와 비교하기 위하여 Table 2는 VPIE(Vapor Pressure Isotope Effects), AGMD, 및 VEMD의 동위원소 분리계수를 비교하여 보여주고 있다. AGMD의 분리계수 측정치는 VPIE의 분리계수와 비슷한 ΔT = 5°C 경우를 제외하고 모든 경우에 높은 값을 보여주고 있으며 VEMD의 분리계수 측정치는 VPIE의 분리계수보다 2배의 높은 값을 보여주고 있다. 이는 일반적인 증류법과 비교했을 때 동위원소 분리도 측면에서 Membrane Distillation 방법의 우월성을 보여준다고 할 수 있다.

한편, 본 연구에서 막반응기의 하단부에 차가운 물을 순환시키지 않고 측정한 AGMD(ΔT = 5°C)의 산소동위원소 분리계수는 Chmielewski *et. al.*[4]의 분리계수보다 30% 정도 낮은 값을 보여주고 있다. 이는 본 실험의 경우 막의 TPC(Temperature Polarization coefficient) = $(T_{so} - T_{sL})/(T_o - T_L)$가 0.2 이상으로 예상되고 Chmielewski *et. al.*의 실험 조건인 0.1~0.2보다 크기 때문으로 예상되지만 막의 TPC 증가와 동위원소 분리도 감소에 대한 고찰은 앞으로 공정의 효율성 제고에 필요하다. 여기서 T_{so}와 T_{sL}는 각각 막의 interfacial temperatures, T_o와 T_L은 각각 막 상하단부의 온도를 나타낸다. 또한 본 연구의 AGMD에 대한 VEMD의 분리계수 증가는 기체확산의 특성으로 이해할 수 있으며 막기공에 존재하는 공기가 동위원소 분리에 영향이 있음을 실험적으로 증명하고 있다고 할 수 있다.



(a) AGMD



(b) VEMD

Figure 5. Degree of oxygen isotope separation for hydrophobic PTFE membrane. (a) AGMD at water temperature = 50°C under various heat exchange funnel temperatures = 45°C, 25°C, 20°C, and 15°C (b) VEMD at water temperature = 50°C under various heat exchange funnel temperatures = 45°C and 20°C

Table 2. Comparison of O^{18} oxygen isotope separation coefficients for AGMD, VEMD, and Distillation(VPIE).

ΔT (°C) at T_o = 50°C	AGMD (α)	VEMD (α)	Distillation (α) at 50 °C
5	1.0074	1.0102	1.0071
25	1.0107	-	1.0071
30	1.0125	1.0144	1.0071
35	1.0133	-	1.0071

4. 결 론

본 연구는 AGMD와 VEMD를 이용하여 소수성 PTFE 막의 수증기 투과특성과 수증기 입자의 질량에 따른 차별된 투과플럭스를 이용한 산소동위원소의 분리특성을 측정하였다. 투과셀의 막 상하단부의 온도(압력)차이가 증가함에 따라 수증기의 막 투과플럭스가 증가하고 동위원소 분리도가 증가함을 관찰하였다. 그러나 본 연구의 AGMD(ΔT = 5°C) 투과실험의 경우 수증기 투과플럭스는 Chmielewski *et. al.*[4] 연구결과와 같거나 높은 값을 보여 주었지만 반대로 산소동위원소 분리계수는 감소함을 관찰하였다. VEMD의 deareation에 의한 산소동위원소의 분리도 증가와 pressure gradient의 증가로 인한 투과플럭스의 증가를 확인하여 분리막을 이용한 산소동위원소 분리공정의 가능성을 확인하였다. 그러나 이러한 실험 요인들은 산소동위원소 분리모듈 디자인에 매우 중요한 요인으로 좀 더 면밀한 동위원소의 membrane mass and heat transfer 연구가 필요한 것으로 사료된다.

감 사 의 글

본 연구는 과학기술부에서 시행하는 원자력 중장기 사업의 지원으로 수행되었고 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. W. Alexander van Hook, A. G. Chmielewski, G. Z-. Trznadel, and N. Miljevic, "Method of enrichment of oxygen-18 in natural water", US Patent 5,057,225, Oct. 15 (1991).
2. A. G. Chmielewski, G. Z-. Trznadel, N. Miljevic, and W. A. van Hook, "$^{16}O/^{18}O$ and H/D separation of liquid/vapor permeation of water through an hydrophobic membrane", *J. Membr. Sci.*, **60**, 319-329 (1991).
3. A. G. Chmielewski, G. Z-. Trznadel, N. Miljevic, and W. A. van Hook, "Membrane distillation employed for separation of water isotopic compounds", *Sep. Sci. Technol.*, **30**(7-9), 1653-1667 (1995).
4. A. G. Chmielewski, G. Z-. Trznadel, N. Miljevic, and W. A. van Hook, "Multistage process of deuterium and heavy oxygen enrichment by membrane distillation", *Sep. Sci. Technol.*, **32**(1-4), 527-539 (1997).
5. 김재우, 박상언, 정도영, 고광훈, 박경배, "소수성 막의 산소동위원소 분리특성연구", 원자력학회 춘계학술발표회논문집, May (2003).
6. R. W. Schofield, A. G. Fane, and C. J. D. Fell, "Heat and mass transfer in membrane distillation", *J. Membr. Sci.*, **33**, 299-313 (1987).
7. 정도영, 박상언, 김재우, 고광훈, 임권, 정의창, 김철중, "다이오드레이저 흡수분광법을 이용한 수증기의 산소 동위원소 성분비 측정", 한국광학회 동계학술발표회논문집, pp 202, Feb. (2003).
8. Robert A. Toth, "Extensive measurements of $H_2{}^{16}O$ line frequencies and strengths: 5750 to 7965 cm^{-1}", *App. Opt*., **33**(21), 4851-4867 (1994).
9. R. W. Schofield, A. G. Fane, and C. J. D. Fell, "Gas and vapour transportation through microporous membranes. II. Membrane ditaillation", *J. Membr. Sci.*, **53**, 173-185 (1990).
10. I. Kirshenbaum, "Physical Properties and Analysis of Heavy Water", McGraw-Hill Book Company, New York (1951).