

고정격자를 이용한 동결건조 해석프로그램의 개발

남진현, 송치성^{*}, 김찬중^{**}

(주)일신랩, *한국기계연구원, **서울대학교 기계항공공학부

Development of Freeze Drying Analysis Program using Fixed Grid

Jin Hyun Nam, Chi Sung Song^{*}, Charn-Jung Kim^{**}

Ilshin Lab Co., Kyongki-do 482-872, Korea

*Korea Institute of Machinery and Materials, Taejon 305-343, Korea

^{**}School of Mechanical and Aerospace Engineering, Seoul National University, Seoul 151-744, Korea

(Received May 18, 2004; revision received August 16, 2004)

ABSTRACT: A multi-dimensional freeze drying analysis program, which took simultaneous heat and mass transfer, sublimation of ice and motion of sublimation front into full account, was developed using finite volume method with fixed grid. The effect due to the motion of sublimation interface was modeled by an enthalpy formulation streamlined for the freeze drying problems. The efficiency and accuracy of the program was validated by solving one- and two-dimensional freeze drying problems frequently encountered in industrial processes. Finally, the freeze drying processes of cylinder and slab objects with permeable side surfaces were simulated, which demonstrated the capability of the present analysis program in solving multi-dimensional freeze drying problems with complex sublimation interface configurations.

Key words: Freeze drying(동결건조), Finite volume method(유한체적법), Fixed grid(고정격자)

기호설명

C_{01}	: 유동 투과율 [m^2]
C_2	: 유효 확산계수 계산을 위한 상수
C_p	: 비열 [J/kg]
C_{sw}	: 결합수량 [$\text{kg water}/\text{kg dried product}$]
$D_{w,in}$: 이성분 확산계수 [m^2/s]
$D_{w,in}^0$: $D_{w,in} p_t$ [N/s]
F	: 복사 형상계수
$f_{eq}(T)$: 열음의 평형 수증기압 [N/m^2]
k	: 열전도도 [$\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$]

k_1	: 수증기의 벌크 확산계수 [m^2/s] $k_1 = C_2 D_{w,in}^0 K_w / (C_2 D_{w,in}^0 + K_{mx} p_t)$
k_2, k_4	: 자기 확산계수 [$\text{m}^4/\text{N}\cdot\text{s}$] $k_2 = k_4 = K_w K_{in} / (C_2 D_{w,in}^0 + K_{mx} p_t) + (C_{01} / \mu_{mx})$
k_3	: 비활성 기체의 벌크 확산계수 [m^2/s] $k_3 = C_2 D_{w,in}^0 K_{in} / (C_2 D_{w,in}^0 + K_{mx} p_t)$
k_d	: 결합수의 틸착/증발률 [$1/\text{s}$]
K_{in}	: 비활성 기체의 누센 확산계수 [m^2/s] $K_{in} = C_1 (R_g T / M_{in})^{0.5}$
K_{mx}	: 혼합 기체의 누센 확산계수 [m^2/s] $K_{mx} = y_w K_w + y_{in} K_{in}$
K_w	: 수증기의 누센 확산계수 [m^2/s] $K_w = C_1 (R_g T / M_w)^{0.5}$

^{*} Corresponding author

Tel.: +82-42-868-7372; fax: +82-42-868-7355

E-mail address: scs1675@kimm.re.kr

L	: 건조물의 두께 [m]
M	: 분자량 [kg/mol]
\vec{N}	: 기체의 질량유속 [kg/m ² -s]
p	: 건조층 내의 압력 [N/m ²]
\vec{q}	: 열유속 [W/m ²]
R	: 건조물의 반경 혹은 길이 [m]
R_g	: 기체상수 [J/mol-K]
r, x, z	: 좌표 [m]
s	: 열음의 체적분율
T	: 온도 [K]
t	: 시간 [s]
y	: 물분율

그리스 문자

ε	: 공극률
Δh_s	: 승화잠열 [J/kg]
Δh_v	: 증발잠열 [J/kg]
μ_{mx}	: 점도 [kg/m-s]
ρ	: 밀도 [kg/m ³]
σ	: 스텔판-볼츠만 상수 [W/m ² -K ⁴]

상첨자

0	: 초기값
-----	-------

하첨자

0	: 건조실
e	: 유효값
HP	: 가열선반
I	: 건조영역
II	: 동결영역
in	: 비활성 기체
w	: 수증기

1. 서 론

동결건조는 건조물을 동결한 후 건조물에 포함된 수분을 열음의 직접 승화의 방식을 통하여 제거하는 건조공정이다. 동결건조는 영하의 온도조

건과 진공의 압력조건 하에서 수행되므로, 이렇게 얻어진 건조물은 열적으로 혹은 화학적으로 변성될 위험이 거의 없다. 따라서 동결건조는 커피, 향신료 등의 고급 식품류, 항생제, 주사제 등의 약품류, 건조혈장 등의 생체 제품류와 같이 열에 민감하거나 고품질이 요구되는 제품을 건조하기 위한 최적의 방법이다.⁽¹⁻³⁾

동결건조는 자유표면 유동이나 상변화 문제와 같이 건조물을 동결영역과 건조영역으로 구분하는 경계의 이동을 수반하는 대표적인 이동경계 문제이다. 수치적으로 이동경계 문제를 해석하는 방법에는 이동격자와 고정격자를 이용하는 두 가지가 있다. 이동격자를 이용하는 해석의 경우, 각각의 영역에 대해 서로 다른 지배방정식을 사용하며 또한 영역을 구분하는 경계의 위치를 명시적으로 해의 일부로 구하게 된다. 따라서 이동격자를 이용한 해석은 경계의 형상이 단순한 경우에만 제한적으로 사용되고 있다.

고정격자를 이용한 해석의 경우, 각 상의 조성비율을 가늠하는 새로운 변수를 도입하여 전체영역에 적용 가능한 단일한 지배방정식을 유도하고 이를 이용하여 문제를 해석한다. 이때, 경계의 이동에서 기인하는 다양한 효과는 각 상의 조성비율 및 그 변화에 따라 물성을 변화시키거나 생성항을 추가하는 등의 모델링을 통하여 구현한다. 따라서 이동하는 경계의 위치는 각 상의 조성비율의 공간적 분포로부터 암시적으로 얻어진다. 동결건조의 경우, 공극체적에서 열음의 체적분율 혹은 열음분율(s)이 영역을 정의하는 변수가 된다.

다공성 매질에서의 열음의 승화문제는 여러 연구자들에 의해 다양한 해석해가 얻어져 있다.⁽⁴⁻⁶⁾ 그러나, 산업적인 동결건조 공정의 해석에는 비교적 복잡한 건조물 형상과 다양한 운전조건을 고려할 수 있는 수치적 접근이 필수적이다. 동결건조에 대한 수치연구는 흡착-승화(sorption-sublimation) 모델에 기초하거나⁽⁷⁻¹⁰⁾ 혹은 더 간단한 모델⁽¹¹⁻¹⁴⁾을 이용하고 있다. 동결건조 지배방정식의 차분화는 주로 이동격자를 사용한 유한체적법^(15,16)이나 유한차분법^(1,7-10)에 기초하고 있다. 고정격자를 이용한 동결건조의 유한체적 해석은 드문데, 단지 1차원 동결건조 해석에만 국한되어 적용되었다.^(13,14)

본 연구에서는 다차원 흡착-승화 모델에 기초

하여, 유한체적법과 고정격자를 이용하여 2차원 동결건조 해석프로그램을 개발하였다. 고정격자를 이용한 해석은 복잡한 좌표변환이 불필요하다는 점에서 이동격자를 이용한 해석에 비해 차분화가 쉽고 계산이 더 효율적이다. 본 연구에서는 고정격자와 이동격자를 이용한 해석결과를 상호 비교하여 고정격자를 이용한 해석의 정확도를 검증한다. 또한 승화경계의 형상이 복잡한 다차원 동결건조 문제의 해석을 통하여 본 해석프로그램의 장점을 살펴본다.

2. 해석모델

동결건조의 일차건조 단계에 대한 도식이 Fig. 1에 제시되어 있다. 예비동결 단계에서 동결된 건조물 내부의 수분은 일차건조 단계를 통해 제거되는데, 이때 승화를 위하여 건조실 내부 압력은 진공펌프를 이용해 삼중점 이하의 진공상태로 유지시키며 동시에 승화잠열을 공급하기 위하여 가열선반은 삼중점 이하의 적절한 온도로 유지된다. Fig. 1에서 건조물은 승화경계에 의해 물리적 특성이 다른 건조영역(I)과 동결영역(II)으로 구분된다. 승화경계에서 얼음의 승화에 의해 발생된 수증기는 건조물에 존재하는 공극을 통하여 확산되어 건조물 밖으로 배출된다. 동결건조가 진행됨에 따라 동결영역의 크기는 승화경계의 이동과 더불어 줄어든다. 일차건조가 종료되면 건조물 내

에 남아 있는 액상의 결합수를 탈착/증발시키는 이차건조 단계가 가열선반의 온도를 증가시킴으로써 시작된다.

Fig. 1에 q_I , q_{II} , q_{III} 로 표시된 항들은 건조물의 윗면, 아랫면, 옆면을 통한 열전달량을 의미한다. 바이얼(vial)에서의 동결건조의 경우 상당한 열이 바이얼의 옆면을 통해 전달되고, 그 결과 위치에 따른 승화율의 불균형을 초래해 승화경계가 곡면의 형상이 된다. Fig. 1에 보여진 N_w 와 N_{in} 는 건조영역을 통해 확산되는 수증기와 비활성 기체의 질량유속을 나타낸다. 여기서 비활성 기체의 질량유속은 대부분의 동결건조에서 무시될 수 있는데, 이것은 건조실 내에 존재하는 비활성 기체의 양이 매우 적어 그 영향이 작기 때문이다.

3. 수학적 공식화

Fig. 1에는 해석에 사용되는 고정격자가 함께 제시되어 있는데, 격자를 구성하는 각각의 체적셀들은 얼음분율에 따라서 건조셀, 동결셀, 승화셀로 구분되어 있다. 고정격자를 이용한 동결건조의 해석에는, 다음과 같이 동결층과 건조층 모두에 적용이 가능한 하나의 에너지 방정식이 사용된다.

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot (\vec{N}_w C_{pv} T - k \nabla T) = \Delta h_v \rho_I \frac{\partial C_{sw}}{\partial t} + \Delta h_s (\rho_{II} - \rho_{le}) \frac{\partial s}{\partial t} \quad (1a)$$

식(1a)의 에너지 방정식은 우변의 생성항을 빼면 표준적인 전도/대류 방정식의 형태가 된다. 여기서 생성항들은 순서대로 결합수의 증발과 얼음의 승화에 의한 잠열을 나타내며, ρ_I 은 완전 건조된(수분함량이 0) 건조물의 밀도이다. 또 ρ_{le} 는 건조물 내에 포함된 결합수 함량을 고려한 유효 건조물 밀도로, $\rho_{le} = \rho_I(1 + C_{sw})$ 로 정의된다. 고정격자에 대하여 식(1a)를 체적셀(ΔV)에 대해 적분하면 다음과 같다.

$$(\rho C_p)^o \frac{T - T^o}{\Delta t} \Delta V + \sum_j (-k \nabla T)_j \cdot \vec{A}_j = \Delta h_v \rho_I \frac{C_{sw} - C_{sw}^o}{\Delta t} \Delta V + \Delta h_s (\rho_{II} - \rho_{le}) \frac{s - s^o}{\Delta t} \Delta V \quad (1b)$$

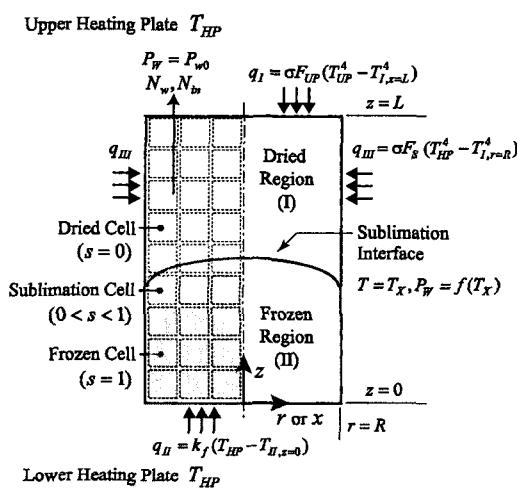


Fig. 1 A schematic diagram of freeze drying in the primary drying stage.

식(1b)에서 위첨자 o 는 이전 시간간격에서의 값을 나타내며, j 는 셀을 구성하는 동서남북의 검사표면을, \vec{A}_j 는 그 표면의 바깥방향 법선벡터를 의미한다. 승화셀에서의 혼열 엔탈피 변화는 $(\rho C_p)T - (\rho C_p)^o T^o$ 로 표현되지만 승화셀을 빠져나가는 수증기의 엔탈피를 고려하고 또 대류에 의한 열전달을 무시하면 식(1a)의 체적적분은 식(1b)가 된다. 위에서 사용된 열용량과 열전도도는 고정격자계를 이용한 해석의 경우 체적셀의 열음분율의 함수이다.

$$\rho C_p = s \rho_{II} C_{pII} + (1-s) \rho_{Ie} C_{pIe} \quad (2)$$

$$k = sk_{II} + (1-s) k_{Ie} \quad (3)$$

즉, 열용량 및 열전도도는, 건조셀($s=0$) 및 동결셀($s=1$)의 경우 건조영역과 동결영역에서의 물성과 동일하며, 승화셀($0 < s < 1$)의 경우 열음분율이 가중평균된 물성이 된다.

결합수의 증발량에 대한 지배방정식은 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{\partial C_{sw}}{\partial t} = -k_d(1-s)C_{sw} \quad (4)$$

여기서 k_d 는 실험을 통해 얻어진 탈착/증발률⁽⁹⁾로서, 식(4)에서처럼 $(1-s)$ 로 보정되면 건조셀, 동결셀, 승화셀의 전 영역에 사용될 수 있다.

승화셀에서의 열음분율에 대한 지배방정식은 다음과 같다.

$$(\rho_{II} - \rho_{Ie}) \frac{\partial s}{\partial t} = -\nabla \cdot \vec{N}_w \quad (5a)$$

위의 식(5a)는 각각의 승화셀에서의 수증기 생성량 또는 질량유속의 발산(검사표면을 통한 수증기 질량유량의 합)이 승화셀 내의 열음분율의 감소량과 같다라는 것을 말한다. 식(5a)를 승화셀 ΔV 에 대해 체적적분하면 다음과 같다.

$$(\rho_{II} - \rho_{Ie}) \Delta V \frac{s - s^o}{\Delta t} = - \sum_{j=e, w, n, s} (\vec{N}_w)_j \cdot \vec{A}_j \quad (5b)$$

시간에 따른 열음분율의 변화는 승화셀에만 국한되므로 에너지 방정식에서의 승화 잠열항은 동결셀 및 건조셀에서는 0이다. 이어서 건조물 표면에서의 열전달 경계조건은 다음과 같다.

$$q_I = \sigma F_{UP} (T_{HP}^4 - T_{z=L}^4) \quad (6)$$

$$q_{II} = k_f (T_{HP} - T_{z=0}) \quad (7)$$

$$q_{III} = \sigma F_S (T_{HP}^4 - T_{r=R}^4) \quad (8)$$

여기서 F 는 복사형상계수, k_f 는 막열전달계수이고, T_{HP} 는 가열선반의 온도이다. 중심면(r 또는 $z=0$)에서의 경계조건으로는 대칭조건이 적절하다.

건조영역에서의 물질전달에 대한 지배방정식은 다음과 같다.

$$\epsilon \frac{M_w}{R_g} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{p_w}{T} \right) + \nabla \cdot \vec{N}_w = -\rho_I \frac{\partial C_{sw}}{\partial t} \quad (9)$$

$$\epsilon \frac{M_{in}}{R_g} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{p_{in}}{T} \right) + \nabla \cdot \vec{N}_{in} = 0 \quad (10)$$

위의 식(9) 및 식(10)은 각각 건조영역에서의 수증기 및 비활성 기체의 질량보존식이다. 식(9)의 마지막 항은 식(4)에 제시된 결합수의 증발에 의한 질량 생성항이다. 동결영역에서의 물질전달은 불가능하므로 위의 물질전달 지배방정식은 건조셀 및 승화셀에만 적용된다. 특히 승화셀에서는 국소적 열역학적 평형을 가정할 수 있어 승화셀에서의 수증기압은 승화온도에 대응되는 평형수증기압이 된다.

$$P_w = f_{eq}(T) \text{ for all sublimation cells} \quad (11)$$

결국 승화셀은 수증기압의 계산에 있어서 주어진 압력경계로 작용한다. 승화경계에서의 비활성 기체의 압력조건은 승화셀과 동결셀이 공유하는 제어 표면에서 질량유속이 0이라는 조건을 사용하면 된다.

식(9)와 식(10)의 질량보존식을 완성하려면 수증기 및 비활성 기체의 질량유속에 대한 구성방정식이 필요한데, 본 연구는 분진-가스 모델(dusty-gas model)로부터 유도된 다음의 식을 사용한다.

$$\vec{N}_w = -\frac{M_w}{R_g T} [k_1 \nabla p_w + k_2 p_w (\nabla p_w + \nabla p_{in})] \quad (12)$$

$$\vec{N}_{in} = -\frac{M_{in}}{R_g T} [k_3 \nabla p_{in} + k_4 p_{in} (\nabla p_w + \nabla p_{in})] \quad (13)$$

분진-가스 모델은 다공성 매질을 통한 누센확산(Knudsen diffusion), 이성분확산 및 점성유동을 모두 고려하므로 다공성 매질에서의 확산/유동 현상을 해석하는 최적의 모델로 알려져 있다.^(1,17) 압력계산에서, 건조실로 노출된 건조물의 표면의 경우 건조실 압력과 같게 건조물이 용기의 벽면과 접촉하는 경우 질량유속을 0으로 경계 조건을 정의한다.

$$p_w = p_{w0}, p_{in} = p_{in0}, \text{ for open surfaces} \quad (14)$$

$$\vec{N}_w = \vec{N}_{in} = 0, \text{ for walls} \quad (15)$$

본 연구에서는 비활성 기체분압이 전체영역에서 일정하게 유지된다고 가정하였다. 이것은 실제 계산을 통하여 비활성 기체에 대한 해석이 결과에 거의 영향을 주지 않는 것으로 밝혀졌기 때문이다. 마지막으로 해석의 초기조건으로는 $t=0$ 에서 모든 변수가 전체 영역을 통틀어 균일하다고 가정하였다.

$$T = T^0, p_w = p_w^0, p_{in} = p_{in}^0, C_{sw} = C_{sw}^0, s = 1 \quad (16)$$

4. 수치해석

전체 수치해석 절차가 Fig. 2에 제시되어 있다. 고정격자를 이용한 동결건조 해석에서 가장 큰 문제는 각각의 시간간격에 대한 반복계산 중에 얼음분율이 변화함에 따라 체적셀에 대한 영역정의가 달라진다는 점이다. 반복계산 중의 이러한 영역의 변화는 문제의 비선형성을 증가시켜 해의 수렴률을 어렵게 만드는 경향이 있다. 그러나 앞서 제시된 식(1b)의 차분식을 이용하게 되면, 한 시간간격에서의 계산을 시작할 때 체적셀들을 얼음분율에 따라 건조셀, 동결셀, 승화셀로 한번만 정의하면 반복계산 중에 영역을 재정의 할 필요가 없어 안정된 방식으로 해를 얻을 수 있다.

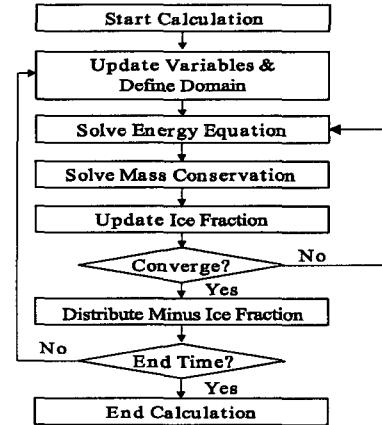


Fig. 2 Flowchart for overall numerical procedure of the present analysis.

전체적인 계산은 우선 모든 셀에서의 온도장과 결합수 농도장을 결정하고 다음으로 건조셀과 승화셀에서의 수증기압을 결정하는 순서로 진행된다. 마지막으로 승화셀의 얼음분율을 식(5b)의 질량보존식을 이용하여 생성하면 1번의 반복계산이 완료된다. 반복계산을 통해 얻어진 온도, 압력, 결합수 농도, 얼음분율의 변화량이 10^{-7} 의 수렴조건이 하가 되면 반복계산을 완료하고 다음 시간간격에서의 계산을 위해 시간과 모든 변수를 생성한다. 이때, 계산 중에 얻어진 음수의 얼음분율은 생성과정에서 인접한 승화셀 및 동결셀에 적절하게 재분포된다.

지배방정식은 내재적 방법을 이용하여 시간차분 되었으며, 제어표면에서의 변수들은 중심차분을 이용하여 결정되었다. 비정상 해석의 시간간격은 해의 정확성을 담보하기 위하여 각각의 승화셀에서의 얼음분율의 변화가 전후 시간간격에서 0.01을 넘지 않도록 해석프로그램 내에서 자동적으로 결정되었다. 대수방정식의 풀이는 bi-conjugate gradient solver를 이용하였으며, 반복치환법과 under-relaxation을 이용하여 열전달 및 물질전달, 얼음의 승화 및 승화경계의 이동에 의한 커플링 효과를 처리하였다.

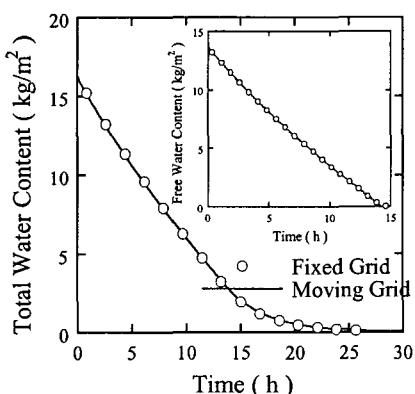
5. 해석결과

5.1 트레이에서의 1차원 동결건조

고정격자를 이용한 본 해석프로그램의 정확성

Table 1 Parameter values and expressions for analysis of the freeze drying of skim milk in a tray.⁽⁸⁾

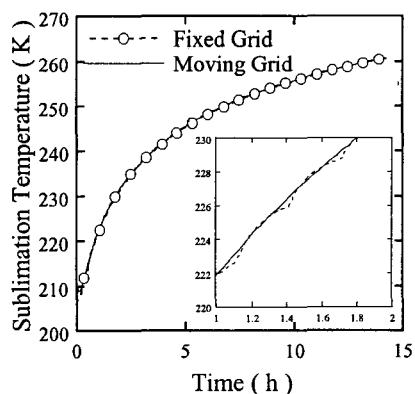
C_{01}	$7.219 \times 10^{-15} \text{ m}^2$
C_1	$3.85583 \times 10^{-4} \text{ m}$
C_2	0.921
C_{pIe}	2590.0 J/kg-K
C_{pII}	1930.0 J/kg-K
C_{sw}^0	0.6415 kg water/kg dried product
$D_{w,in}^0$	$1.4931 \times 10^{-4} (T^3 (1/M_w + 1/M_{in}))^{0.5} \text{ kgm/s}^3$
k_d	$6.48 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$
k_{le}	$1.412 \times 10^{-3} p_t + 0.2165 \text{ W/m-K}$
k_{II}	$488.19/T + 0.4685 \text{ W/m-K}$
k_f	$1.5358 p_t \text{ W/m-K}$
L	0.02 m
p_w^0, p_{w0}	1.07 Pa
p_{in}^0, p_{in0}	4.00 Pa
T^0	233.15 K
T_{HP}	313.15 K
$f_{eq}(T)$	$133.3224 \text{ Exp}(-2445.5646/T + 8.23121 \log_{10}(T) - 0.0167T + 1.20514 \times 10^{-5} T^2 - 6.757169) \text{ Pa}$
Δh_s	2840000 J/kg
Δh_v	2687400 J/kg
ϵ	0.785
μ_{mx}	$18.4858(T^{1.5}(T+650)) \text{ kg/m-s}$
ρ_I	215.0 kg/m ³
ρ_{le}^0	$328.0 \text{ kg/m}^3 = \rho_I(1 + C_{sw}^0)$
ρ_{II}	1030.0 kg/m ³



(a) Water content

을 검증하기 위하여 Liapis and Bruttini⁽⁸⁾에 의해 연구된 트레이(tray)에서의 탈지분유 수용액의 1 차원 동결건조 문제가 우선적으로 해석되었다. 비교를 위하여 이전에 본 저자들에 의해 개발되었던 해석프로그램⁽¹⁸⁾을 가지고 이동격자 해석을 함께 수행하였다. 탈지분유 수용액의 물성 및 동결건조의 공정조건은 Table 1에 제시되어 있다. 이동격자를 이용한 해석은 건조 및 동결영역에 배치된 각각 10개씩의 체적셀을 가지고 수행되었으며, 고정격자를 이용한 해석은 균일한 간격의 40개의 체적셀을 가지고 수행되었다.

Fig. 3에서 고정격자와 이동격자⁽¹⁸⁾를 이용한 해석결과를 비교하였다. 해석결과, 고정격자를 이용한 본 해석프로그램이 해의 정확도에 있어서 이동격자를 이용한 해석에 거의 균접함을 확인하였다. 이것은 동결건조의 정확한 해석을 위해 이동격자에 기초한 해석이 필수적이라는 일반적인 믿음이 틀렸음을 말해 준다. 동결건조 중의 느린 승화경계의 이동속도 덕분에, 승화경계의 이동에 대한 적절한 모델링이 고려되면 고정격자를 이용한 해석으로도 충분히 정확한 예측이 가능함을 확인하였다. Fig. 3(b)의 승화온도 이력에서 고정격자를 이용한 해석에서 나타나는 특징을 살필 수 있다. 시간에 따라 계산영역이 순간적으로 변화(동결건조가 진행됨에 따라 동결셀이 승화셀로, 다시 건조셀로 변하는)하게 되면 그 영향으로 인해 승화온도 이력에 작은 온도점프가 나타나게 된다. 그러나 승화온도에서의 점프는 Fig. 3(a)의 건조곡선에서는 관찰되지 않으며, 계산에 사용되는 격자수를 증가시키면 줄일 수 있다.



(b) Sublimation temperature

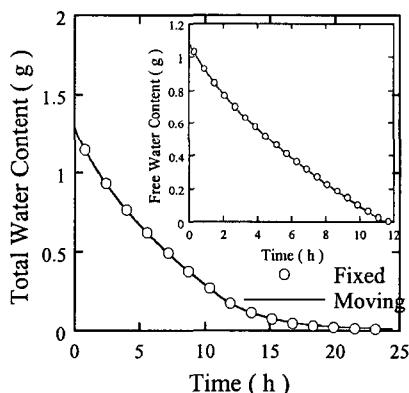
Fig. 3 Comparison of fixed grid and moving grid results for one-dimensional freeze drying in a tray.

5.2 바이얼에서의 2차원 동결건조

다차원 동결건조 문제에서 고정격자를 이용한 본 해석프로그램의 정확도를 검증하기 위하여 Sheehan and Liapis⁽¹⁰⁾가 발표한 바이얼에서의 탈지분유 수용액의 2차원 동결건조 문제를 해석였다. 해

Table 2 Complementary boundary conditions for analysis of the freeze drying of skim milk in a vial.⁽¹⁰⁾

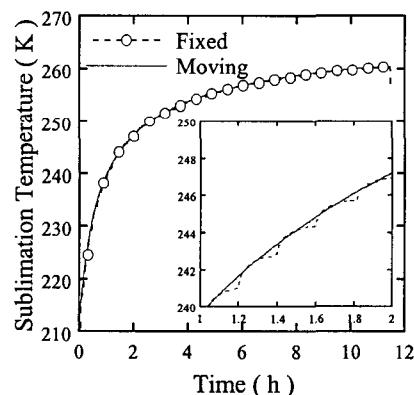
R	0.005 m
k_f	29.13 W/m-K
F_S	0.75
F_{UP}	0.795
T_{HP}	273 K



(a) Water content

석에 사용된 건조물의 물성과 공정조건은 Table 2에 주어진 것들을 제외하고는 Table 1과 동일하다. 바이얼에 담겨진 건조물은 동결건조 중에 옆면을 통한 열전달은 가능하지만 물질전달은 불가능하다. 그 결과 옆면을 통한 열전달에도 불구하고 승화경계는 평면의 형상을 유지하게 된다. 해석에 사용된 이동격자는 건조영역 및 동결영역에 각각 배치된 10×10개, 전체 200개의 체적셀로 구성되었으며, 고정격자는 균일한 간격의 10×40개, 전체 400개의 체적셀로 구성되었다.

Fig. 4에서 고정격자와 이동격자로 계산된 바이얼의 동결건조에서의 질량감소 및 승화온도의 이력을 나타내었다. 1차원 동결건조의 경우와 마찬가지로 고정격자를 이용한 해석은 2차원 동결건조 해석에서도 충분히 정확한 결과를 도출하였다.



(b) Sublimation temperature

Fig. 4 Comparison of fixed grid and moving grid results for two-dimensional freeze drying in a vial.

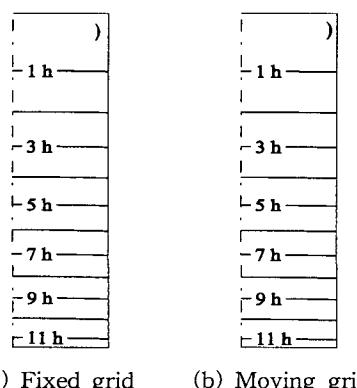


Fig. 5 Comparison of calculated sublimation interface positions.

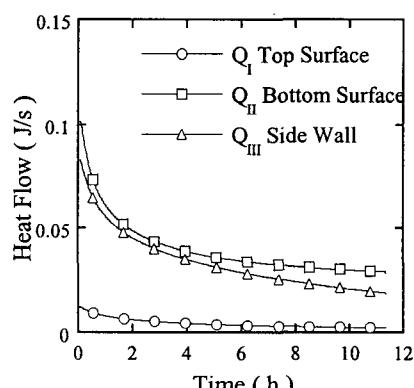


Fig. 6 Heat flow through the top, bottom, and side surfaces of a vial.

동결건조 중의 승화경계의 및 형상변화를 1시간 간격으로 Fig. 5에 나타내었다.

그림에서 고정격자를 이용한 해석과 이동격자를 이용한 해석 모두가 바이얼 동결건조에서 승화경계의 형상이 거의 평면을 유지함을 예측하고 있다. 비록 Fig. 6에서 주어진 바와 같이 바이얼의 옆면을 통한 열전달량(q_{III})이 가열선반과 직접 접촉하는 바이얼의 아래면에서의 열전달량(q_{II})에 상당하지만, 옆면을 통한 물질전달이 불가능하므로 승화경계의 형상은 평면에서 그다지 벗어나지 못한다.

5.3 사각 및 원통형상 건조물의 동결건조

본 해석프로그램이 복잡한 승화경계를 가진 동결건조의 계산에서 적절히 작동하는지 확인하기 위하여 용기에 담기지 않은 2차원 원통 및 사각 형상에서의 동결건조 문제를 해석하였다. 해석은 Table 1과 Table 2를 기본으로, 건조실 수증기압(p_{w0})을 100 Pa로 건조물의 두께(L) 및 반경 혹은 사각형상의 폭(R)을 0.01 m로 설정하여 수행하였다. 해석에는 균일하게 분포된 20×20개의 체적셀을 사용하였다.

Fig. 7에 고정격자를 이용하여 해석된, 사각 및 원통형상의 동결건조 중의 승화경계의 시간에 따른 형상 및 위치변화를 나타내었다. 건조물이 용기에 담겨져 있지 않는 경우, 건조물의 옆면은 건조실로 노출되어 있어 열전달은 물론 물질전달도 가능하게 된다. 따라서 승화는 건조물의 윗면과 옆면에서 동시에 일어나며 승화경계는 윗면과

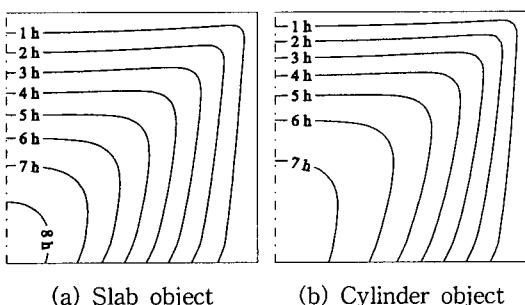


Fig. 7 Position and configuration of sublimation interface calculated by fixed grid method.

옆면에서 시작하여 Fig. 7의 해석결과와 같이 건조물의 내부로 진행하여 사라지게 된다. 이 경우 승화경계가 바이얼에서의 동결건조와 달리 곡면이 되어 이동격자를 이용한 해석은 불가능하지는 않더라도 매우 어렵다. Fig. 7의 결과는 고정격자를 이용한 해석의 장점을 잘 보여주고 있다.

6. 결 론

본 연구에서는 유한체적법과 고정격자를 이용한 동결건조 해석프로그램을 개발하였다. 해석모델로는 건조물 내에 함유된 수분이 고상의 얼음의 승화와 액상의 결합수의 탈착/증발을 통해 제거되는 과정을 적절히 고려하는 다차원 흡착-승화모델이 사용되었다. 해석프로그램의 검증을 위하여 트레이에서의 1차원 동결건조 및 바이얼에서의 2차원 동결건조 과정을 해석하고 이동격자를 이용한 해석결과와 비교하였다. 그 결과, 고정격자를 이용한 해석이 해의 정확성의 측면에서 이동격자를 이용한 해석과 거의 동등함을 확인하였다. 또한, 고정격자를 이용한 해석이 지배방정식 차분의 편의성 및 계산시간의 측면에서 더 효율적임을 확인하였다. 마지막으로 옆면이 건조실에 노출된 원통형상 및 사각형상의 건조물의 동결건조를 해석하였으며, 고정격자를 이용한 본 해석프로그램이 복잡한 승화경계를 잘 처리함을 확인하였다.

참고문헌

- Millman, M. J., Liapis, A. I. and Marchello, J. M., 1985, An analysis of the lyophilization process using a sorption-sublimation model and various operation policies, *AIChE J.*, Vol. 31, pp. 1594-1604.
- Liapis, A. I., 1987, Freeze drying, in A. S. Mujumdar (Ed.) *Handbook of Industrial Drying*, Marcel Dekker, New York, pp. 295-326.
- Ratti, C., 2001, Hot air and freeze-drying of high-value foods: a review, *J. Food Eng.*, Vol. 49, pp. 311-319.
- Lin, S., 1981, An exact solution of the sublimation problem in a porous medium, *J. Heat Transfer*, Vol. 103, pp. 165-168.

5. Fey, Y. C. and Boles, M. A., 1988, Analytic study of vacuum-sublimation in an initially partially filled frozen porous medium with recondensation, *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 31, pp. 1645-1653.
6. Peng, S.-W. and Chen, G.-Q., 1994, Coupled heat and mass transfer with one discrete sublimation moving interface and one desorption mushy zone, *J. Heat Transfer*, Vol. 116, pp. 215-220.
7. Liapis, A. I. and Litchfield, R. J., 1979, Optimal control of a freeze dryer, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 34, pp. 975-981.
8. Liapis, A. I. and Bruttini, R., 1994, A theory for the primary and secondary drying stages of the freeze-drying of pharmaceutical crystalline and amorphous solutes: comparison between experimental data and theory, *Separ. Technol.*, Vol. 4, pp. 144-155.
9. Sadikoglu, H. and Liapis, A. I., 1997, Mathematical modeling of the primary and secondary drying stages of bulk solution freeze-drying in trays: parameter estimation and model discrimination by comparison of theoretical results with experimental data, *Drying Technol.*, Vol. 15, pp. 791-810.
10. Sheehan, P. and Liapis, A. I., 1998, Modeling of the primary and secondary drying stages of the freeze drying of pharmaceutical products in vials: numerical results obtained from the solution of a dynamic and spatially multi-dimensional lyophilization model for different operation policies, *Biotechnol. Bioeng.*, Vol. 60, pp. 712-728.
11. Ang, T. K., Ford, J. D. and Pei, D. C. T., 1977, Microwave freeze-drying of food: a theoretical investigation, *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 20, pp. 517-526.
12. Lombrana, J. I., Elvira, C. D. and Villaran, M. C., 1997, Analysis of operation strategies in the production of special foods in vials by freeze drying, *Int. J. Food Sci. Technol.*, Vol. 32, pp. 107-115.
13. Wang, Z. H. and Shi, M. H., 1998, Numerical study on sublimation-condensation phenomena during microwave freeze drying, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 53, pp. 3189-3197.
14. Wang, Z. H. and Shi, M. H., 1998, The effect of sublimation-condensation region on heat and mass transfer during microwave freeze drying, *J. Heat Transfer*, Vol. 120, pp. 654-660.
15. Ferguson, W. J. and Lewis, R. W., 1993, A finite element analysis of freeze-drying of a coffee sample, *Comp. Meth. Appl. Mech. Eng.*, Vol. 108, pp. 341-352.
16. Mascarenhas, W. J., Akay, H. U. and Pikal, M. J., 1998, A computational model for finite element analysis of the freeze-drying process, *Comp. Meth. Appl. Mech. Eng.*, Vol. 148, pp. 105-124.
17. Evans, R. B., Watson, G. M. and Mason, E. A., 1962, Gaseous diffusion in porous media, *J. Chem. Phys.*, Vol. 36, pp. 1894-1902.
18. Song, C. S., Nam, J. H., Kim, C.-J. and Ro, S. T., 2002, A finite volume analysis of vacuum freeze drying processes of skim milk solution in trays and vials, *Drying Technol.*, Vol. 20, pp. 283-305.