研究简报 19 通道多孔陶瓷膜渗透过程的 CFD 模拟

彭文博,漆 虹,陈纲领,邹琳玲,邢卫红,徐南平 (南京工业大学膜科学技术研究所,江苏南京 210009)

关键词:多孔陶瓷膜;纯水通量;CFD模拟;构型 中图分类号:TQ 028.8 **文献标识码**:A

文章编号: 0438 - 1157 (2007) 08 - 2021 - 06

CFD modeling of permeate process in 19-channel porous ceramic membranes

PENG Wenbo, QI Hong, CHEN Gangling, ZOU Linling, XING Weihong, XU Nanping

(Membrane Science and Technology Research Center, Nanjing University of Technology, Nanjing 210009, Jiangsu, China)

Abstract: Based on Darcy 's law, a CFD model of permeate process in 19-channel ceramic membrane was established. The pure water flux (PWF) of ceramic membranes was predicted by the CFD model with the finite volume method. By using this method, the simulated PWF of 19-channel ceramic membrane was in good agreement with experimental results. The contributions of each channel to the total PWF of 19-channel ceramic membranes depended on the mean pore size of membrane as well as on the distance of the channel from the membrane outer surface. CFD modeling is an essential tool in designing the configuration of ceramic membrane.

Key words: porous ceramic membrane; pure water flux (PWF); CFD modeling; configuration

引 言

多孔陶瓷膜作为无机膜的一种,由于具有耐高 温、耐酸碱、强度高等有机膜所无法比拟的优点, 近年来在液体分离领域得到了广泛的应用^[1]。但 是,陶瓷膜的不足之处之一在于成本高^[2],这就限 制了其在更广泛领域的应用。造成陶瓷膜成本高的 因素主要有:制备工艺过程复杂,加工难度大;

2006 - 10 - 31 收到初稿, 2007 - 04 - 08 收到修改稿。

制备大面积无缺陷的膜及载体,过程控制要求严格; 陶瓷膜的脆性导致装填密度小、设备庞大、 设备运行成本高。为了降低陶瓷膜的制备及使用成 本,许多研究者从不同角度进行了研究,如采用共 烧结法来降低陶瓷膜的制备成本,或者进行膜元 件、组件的优化设计,通过提高陶瓷膜的装填密度 来降低运行成本^[3]。Belfort等^[4]最先考虑了不同 的膜构型对渗透过程的影响,但是只对管状构型进

联系人:徐南平。第一作者:彭文博(1981→),男,博士研 究生。

基金项目: 国家重点基础研究发展计划项目 (2003CB615700);国家自然科学基金项目(20436030);江苏省高校自然科学研究计划项目(04KJB530043);博士后科研基金项目。

Received date: 2006 - 10 - 31.

Corresponding author: Prof. XU Nanping. E - mail: npxu @ njut. edu. cn

Foundation item: supported by the National Basic Research Program of China (2003CB615700), the National Natural Science Foundation of China (20436030), the Natural Science Foundation of Jiangsu Province University (04 KJB530043) and the Foundation of Postdoctoral Research.

行了研究。Dolecek 等^[5] 用有限元的方法研究计算 了蜂窝状多孔陶瓷膜构型中,几何参数的变化对纯 水通量的影响,但是研究中缺少实验数据来验证其 计算模型。Darcovich 等^[6] 根据有限差分的方法计 算并设计了恒通量的陶瓷膜错流过滤元件。 Dolecek 等^[7] 又对 19 通道六边形陶瓷膜进行了研 究,认为增大过滤面积可提高陶瓷膜通量,但对于 膜层阻力较小的陶瓷膜,内部通道对通量的贡献可 以忽略不计。Tarabara 等^[8] 用商用 CFD 软件中的 Fluent 软件研究了平板有机膜的错流过滤。杨德 武等^[9]利用 Fluent 软件模拟了 19 通道陶瓷膜的 渗透流动,但在边界条件中自由出口的定义不够 科学。

本文根据陶瓷膜渗透流动的特点,利用 CFD 软件中的 Fluent 软件建立了纯水在 19 通道陶瓷膜 内渗流流动的计算模型,对目前商品化的平均孔径 分别为 3 µm、0.8 µm、0.2 µm 和 50 nm 的 19 通 道陶瓷膜的纯水通量 (PWF)及不同通道对陶瓷 膜渗透通量的贡献进行了定量计算,并与实验值进 行了对比。为优化多通道陶瓷膜的结构提供理论 依据。

1 19 通道陶瓷膜内渗透过程数学模型的建立

图 1 为本文所研究的 19 通道陶瓷膜的结构及 过滤过程示意图。由于该陶瓷膜的构型中通道排布 具有对称性,因此,为了便于描述,在图 1 中分别 采用 1-1,2-1~2-6,3-1~3-12 来表示这 19 个通 道,以 ₄表示 19 个通道的内表面, ₅表示流体渗 透流出 19 通道陶瓷膜元件的外表面。



为了简化计算,本文在建立纯水在 19 通道陶 瓷膜内渗透过程模型中提出以下几点假设: (1) 忽略纯水在陶瓷膜多孔介质区域内 z 轴方向上的渗透流动,计算中只考虑流体在 x 轴方向和 y 轴方向上的渗透流动,且渗透流动符合 Darcy 定律;

(2) 不考虑纯水温度变化对渗透过程的影响;

(3) 陶瓷膜为各向同性的多孔介质, x 轴与 y轴两个渗透流动方向的渗透系数 k 相同;

(4) 纯水渗流过程中忽略重力的影响。

根据以上假设, 纯水在 19 通道陶瓷膜内的渗 透流动满足式 (1)

$$\frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} = 0 \tag{1}$$

根据 Darcy 定律,式(1)中, *ux*、*uy*由式 (2)、式(3)确定。

$$u_x = -\frac{k}{\mu} \frac{\partial p}{\partial x}$$
(2)

$$u_y = -\frac{k}{\mu} \frac{\partial p}{\partial y}$$
(3)

式(2)、式(3) 中渗透率 k 根据 Kozeny-Carman 方程计算

$$k = \frac{d_{\rm p}^{2-3}}{180(1-)^2} \tag{4}$$

将式 (2) 和式 (3) 代入式 (1),得到

$$\frac{\partial^2 p}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial y^2} = 0$$
 (5)

根据压力边界条件: $_{A}$ 边界处, $p = p_{1}$, $_{B}$ 边界处, $p = p_{0}$ 。

采用有限体积法,可以求得多孔陶瓷膜沿着渗 流方向上压力分布的数值解,将此结果结合式 (2) 和式 (3),可求得多孔陶瓷膜沿着渗流方向上速度 分布的数值解。将此结果结合式 (6),可计算出多 孔陶瓷膜的纯水通量。

$$q = \frac{\int u_x^2 + u_y^2 \, \mathrm{d}x \, \mathrm{d}y}{A - p} \tag{6}$$

计算过程中需要的参数如表1所示。

0.8 μm 膜是在支撑体上涂上一层颗粒尺寸 为 2 μm 的粒子层,这层粒子层由膜层 1 表示; 0.2 μm 膜是在膜层 1 的基础上再涂上一层颗粒 尺寸为 0.5 μm 的粒子层,这层粒子层由膜层 2 表 示;50 nm 膜是在膜层 2 的基础上再涂上一层颗粒 尺寸为 0.15 μm 的粒子层,这层粒子层由膜层 3 表示。

Table 1 Parameters used in simulation								
Diameter of 19-channel / mm	Inner diameter of channel/ mm	Porosity /%	Particle size of support/µm	Particle size of membrane 1 /µm	Particle size of membrane 2 /µm	Particle size of membrane 3 /µm		
32	2	35	25	2	0. 5	0. 15		

计管田的参数

实验部分 2

为了验证上述所建立的多孔陶瓷膜纯水通量计 算方法的准确性,本文采用纯水(电导率 < 4 µ S· cm⁻¹)为介质,对长度为 1000 mm, 平均孔径分 别为3µm、0.8µm、0.2µm、50 nm的19通道陶 瓷膜(南京九思高科技有限公司提供)进行了纯水 通量的测定。操作条件为温度 20 ,操作压力 0.1 MPa, 膜面流速 3 m s⁻¹。实验装置如图 2 所示。



Fig. 2 Schematic diagram of cross-flow filtration equipment

1-feed tank; 2-centrifugal pump; 3-rotameter;

4 --membrane module; P1, P2 --pressure gauges; V1 --V6 --valves

结果与讨论 3

3.1 19 通道陶瓷膜纯水通量的模拟计算结果及其 与实验值的比较

本文根据以上建立的 19 通道陶瓷膜内渗透过 程数学模型,计算出 19 通道多孔陶瓷膜元件沿渗 透方向上的压力分布和速度分布,进而计算出不同 平均孔径陶瓷膜的纯水通量、模拟计算值与实验测 定值进行了比较。

图 3 是 4 种平均孔径陶瓷膜截面上的压力分布 图,可以看出每一平均孔径陶瓷膜截面上的压力分 布和压力梯度、以及不同平均孔径陶瓷膜的压力分 布及压力梯度变化的规律。本文计算出的压力分布 图与 Dolecek 等^[7]报道的研究结果基本一致。对于 平均孔径为 3 µm 的陶瓷膜即支撑体来说 [如图 3 (a) 所示], 通道 1-1、通道 2-1~2-6 之间的多孔 介质区域,压力梯度很小,而通道 3-1~3-12 到支



(c) 0.2 µm

3.57×10⁻¹⁸

报



图 3 4 种平均孔径陶瓷膜截面上的压力分布 Fig. 3 Pressure distribution of ceramic membranes with varied mean pore size

撑体外表面之间的多孔区域内,压力梯度很大。随 着陶瓷膜的平均孔径从 3 μm 减小到 0.8 μm、0.2 μm和 50 nm,通道 1-1、通道 2-1~2-6之间多孔介 质区域内,压力梯度逐渐增大;同时,通道 3-1~ 3-12 到陶瓷膜外表面之间的压力梯度逐渐减小。 对于以压力驱动的陶瓷膜分离过程,压力梯度越 大,意味着纯水渗透通量越高。因此,从图 3 中的 模拟计算结果中可以看出,对于平均孔径为 3 μm 的多孔支撑体来说,其纯水通量主要由 3-1~3-12 这 12 个通道贡献;随着陶瓷膜层的引入以及陶瓷 膜层平均孔径的减小,1-1 通道、2-1~2-6 通道对 多孔陶瓷膜纯水通量的贡献逐渐增大。

图 4 为 4 种平均孔径陶瓷膜截面上的速度矢量 图,可以看出 19 通道陶瓷膜内渗流方向上每一位 置上的速度方向与速度大小。从图 4 (a)中可以 看出,对于平均孔径为 3 µm 的多孔支撑体来说, 1-1 通道、2-1~2-6 通道的渗流速度很小,几乎没 有向陶瓷膜的外表面渗透,这说明支撑体的纯水通



(a) 3 μm (support)



(b) 0.8 µm



(c) 0.2 μm





量主要由 3-1 ~ 3-12 这 12 个通道贡献;随着陶瓷 膜层的引入及平均孔径的减小 [图 4 (b) ~ (d)],19 通道陶瓷膜内 1-1、2-1~2-6 这 7 个通道 开始有向陶瓷膜外表面的渗透速度,说明这 7 个通 道对陶瓷膜纯水通量的贡献不能忽略。这种变化趋 势与图 3 所得到的结论基本一致。 表 2 是平均孔径分别为 3 µm、0.8 µm、0.2 µm 和 50 nm 的 19 通道陶瓷膜纯水通量的实验值 与计算值的比较,从表 2 中可以看出,采用本文模 型,计算值与实验值吻合较好,证明本文所建立的 计算方法能够较好地预测不同平均孔径多孔陶瓷膜 的纯水通量。

表 2 4 种平均孔径的陶瓷膜纯水通量实验值与 计算值的比较

 Table 2
 Comparison of PWF between experimental

and simulated data								
Mean pore size of 19-channel /µm	PWF of experiment /L ·m ⁻² ·h ⁻¹	PWF of simulation /L ·m ⁻² ·h ⁻¹	Error / %					
3	4450	4636	4.18					
0.8	2410	2630	9.13					
0. 2	985	1028	4. 37					
0. 05	532	488	8.27					

Note: operating pressure is 101. 325 kPa.

图 5 表示不同位置通道对 4 种不同平均孔径 19 通道陶瓷膜纯水通量的贡献,可以看出,对于 平均孔径为 3 µm 的支撑体来说,通道 1-1、通道 2-1~2-6 对支撑体的纯水通量贡献很小,可以忽略 不计,支撑体的纯水通量主要由通道 3-1~3-12 贡 献,这与 Dolecek 等^[7]报道的研究结果基本一致。 随着陶瓷膜平均孔径从 3 µm 逐步减小到 50 nm, 通道 1-1 对纯水通量贡献从 0 逐步增大到 3.45%, 通道 2-1~2-6 对纯水通量贡献从 0.054%逐步增大 到 4.1%,而通道 3-1~3-12 对纯水通量的贡献从 8.3%逐步减小到 6.0%。这是因为随着陶瓷膜平 均孔径的减小,膜层阻力与支撑层阻力的比值逐渐 增大,当平均孔径减小到 50 nm 时,膜层阻力远 大于支撑层阻力。因此,对于平均孔径为 0.2 µm



Fig. 5 Contribution of single channel at different site to total PWF of ceramic membranes

和 50 nm 的陶瓷膜而言,不同通道对纯水通量的 贡献主要由膜层阻力决定。

3.2 多通道陶瓷膜构型优化初探

根据上述对 19 通道不同平均孔径陶瓷膜渗透 通量的 CFD 模拟计算结果,本文认为,对于不同 孔径陶瓷膜的应用来说,如果以节省材料,降低加 工难度,从而降低生产成本,而渗透性能不变为判 定标准,则应采用不同构型的陶瓷膜。从图 5 中看 出,对于平均孔径为 3 μm 和 0.8 μm 的陶瓷膜, 通道 1-1、通道 2-1~2-6 对纯水通量贡献很小。因 此实际应用中可以对这 7 个通道进行优化,根据图 3 中的压力分布结果,考虑其中等压线的变化,本 文对平均孔径为 3 μm 的支撑体和 0.8 μm 的陶瓷 膜提出构型 (a) 向构型 (b) 过渡,最后演变成构 型 (c) 的构型设计思想,如图 6 所示。



(d)

图 6 不同构型的陶瓷截面图 Fig. 6 Section of ceramic membranes with different configurations 根据上述设计思路,采用 CFD 软件,对构型 (a)和构型(c)的平均孔径分别为 3 µm 和 0.8 µm 的两种陶瓷膜纯水通量进行了计算,结果如表 3 所示。从表 3 可以看出,图 6 中构型(c)的两 种陶瓷膜的膜面积从 0.24 m² 减小到 0.2 m²,陶 瓷膜的纯水通量均有所提高。因此在实际生产中, 可以把中间的 7 个通道改为一个通道,如图 6 (d) 所示,这样,可以节省原料,降低加工难度,从而 降低生产成本,而对实际应用而言,单位体积陶瓷 膜的处理量变化不大。并且,由于中间通道的直径 显著增大,在陶瓷膜的实际分离中还可以减轻膜污 染,提高体系过滤时的稳定通量。

表 3 两种构型陶瓷膜渗透性能的比较

Table 3 Comparison of PWF between ceramic

membranes with different configurations

Configuration of Fig 6 / mean pore size	Area of membrane / m ²	PWF of experiment $/L \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$	$\begin{array}{c} PWF \ of \\ simulation \\ / L \ \cdot m^{-2} \ \cdot h^{-1} \end{array}$	Error / %
(a)/3 µm	0.24	4450	4636	4.18
(c)/3 µm	0.2	5243	5367	2.37
(a) / 0. 8 µm	0.24	2410	2630	9.13
(c) / 0. 8 µm	0.2	2697	2883	6.90

Note: operating pressure is 101. 325 kPa.

4 结 论

(1) 根据 Darcy 定律,采用 CFD 软件中的 Fluent 软件可以定量计算出 19 通道多孔陶瓷膜元 件沿渗透方向上的压力分布、速度分布,进而计算 出不同平均孔径陶瓷膜的纯水通量。结果表明模拟 计算值与实验测定值吻合较好。

(2) 对于不同孔径的 19 通道陶瓷膜而言,不同位置通道对于陶瓷膜渗透通量的贡献不同,随着多孔陶瓷膜平均孔径从 3 µm 减小到 0.8 µm、0.2 µm 和 50 nm,通道 1-1 对纯水通量贡献从 0 逐步增大到 3.45%,通道 2-1~2-6 对纯水通量贡献从 0.054%逐步增大到 4.1%,通道 3-1~3-12 对纯水通量的贡献从 8.3%逐步减小到 6.0%。

(3) CFD 软件可以用于多通道陶瓷膜构型的 优化设计,从而设计出面向应用过程的不同陶瓷膜 的构型。

符号说明

 $A \longrightarrow$ 陶瓷膜的膜面积, m^2

- d_p ——构成陶瓷膜粒子的平均粒径, m
 k ——陶瓷膜渗透率, m²
 p ——陶瓷膜截面上某一位置处的压力值, Pa
 p ——陶瓷膜两侧操作压差, Pa
 q ——陶瓷膜的纯水通量, L ·m⁻² ·h⁻¹
 u_x, u_y ——分别为陶瓷膜中纯水在 x 轴与 y 轴方向的渗透
 速度, m ·s⁻¹
 A ——陶瓷膜内通道表面
 - B——纯水渗透出陶瓷膜的外表面

——陶瓷膜的孔隙率

µ——纯水黏度, Pa ·s

References

- Xu Nanping (徐南平), Xing Weihong (邢卫红), Zhao Yijiang (赵宜江). The Separation Technology and Application of Ceramic Membranes (无机膜分离技术与应 用). Beijing: Chemical Industry Press, 2003: 1-2
- [2] Xu Nanping (徐南平), Li Weixing (李卫星), Zhao Yijiang (赵宜江), Xing Weihong (邢卫红), Shi Jun (时钧). Theory and method of application-oriented ceramic membranes design (): Simulation of relation between membrane permeability and micro-structure. Journal of Chemical Industry and Engineering (China) (化工学报), 2003, 54 (9): 1284-1289
- [3] An Shulin (安树林). Practical Tutorial of Membrane Science Technology (膜科学技术实用教程). Beijing: Chemical Industry Press, 2005: 43-47
- [4] Belfort G Membrane modules: comparison of different configurations using fluid mechanics J. Membrane Sci., 1988, 35: 245-270
- [5] Dolecek P. Mathematical modeling of permeate flow in multichannel ceramic membrane. J. Membrane Sci., 1995, 100: 111-119
- [6] Darcovich K, Dal-cin M M, Ballevre S, Wavelet J P. CFDassisted thin channel membrane characterization module design. J. Membrane Sci., 1997, 124: 181-193
- [7] Dolecek P, Cakl J. Permeate flow in hexagonal 19-channel inorganic membrane under filtration and backflush operating modes. J. Membrane Sci., 1998, 149: 171-179
- [8] Tarabara V V, Wiesner M R. Computational fluid dynamics modeling of the flow in a laboratory membrane filtration cell operated at low recoveries Chemical Engineering Science, 2003, 58: 239-246
- [9] Yang Dewu (杨德武), Zhao Guoping (赵国平), Wang Yanhong (王艳红), Meng Lingyan (孟令岩). Numerical simulation study of seepage flow models. Journal of Filtration and Separation (过滤与分离), 2005, 15: 24-28