

研究简报

基于 CFD 的恒通量陶瓷膜厚度设计

邹琳玲, 漆 虹, 邢卫红

(南京工业大学化学化工学院, 材料化学工程国家重点实验室, 江苏 南京 210009)

关键词: 恒通量膜; 计算流体力学; 膜厚度

中图分类号: TQ 028.8

文献标识码: A

文章编号: 0438-1157 (2010) 10-2615-05

Membrane thickness gradient of isoflux ceramic membrane based on CFD

ZOU Linling, QI Hong, XING Weihong

(College of Chemistry and Chemical Engineering, Nanjing University of Technology,
State Key Laboratory of Materials-Oriented Chemical Engineering, Nanjing 210009, Jiangsu, China)

Abstract: Membrane thickness has significant effect on permeability of membrane. In this work the membrane thickness gradient of isoflux ceramic membrane was calculated with the Navier-Stokes and Darcy equations, which governed the bulk flow and the flow through the membrane, respectively. The specific resistance of porous medium was calculated by Konzey-Carmen equation. The results showed that the membrane thickness was approximately linear to the distance in axial direction. The cross-flow velocity had a significant influence on the membrane thickness gradient along the axial direction, so it is necessary to choose different membrane thickness gradient along the axial direction to obtain uniform trans-membrane pressure at different cross-flow velocity. The effects of pressure and temperature were relatively insignificant. The result of this study may provide guidance on membrane preparation and application.

Key words: isoflux membrane; computational fluid dynamics; membrane thickness

引 言

错流过滤可以有效减轻膜污染, 提高分离效率, 是膜分离过程中常用的操作方式, 但是该方式会导致沿程压力降的产生, 使得跨膜压差沿截留液的流动方向逐渐降低。跨膜压差的沿程降低首先会导致膜渗透通量沿程逐渐降低, 膜管沿程方向上操

作条件不一致, 从而降低膜组件的生产效率, 增大了设备投资及生产成本; 其次会导致膜污染的沿程不均匀性, 缩短膜的再生周期, 提高膜再生阶段的清洗难度和清洗费用, 从而进一步提高了生产成本^[1-2]。为降低错流过程的沿程压力降导致膜操作性能的差异, 研究者们对错流过滤过程进行了改进, 提出了均匀跨膜压差 (uniform trans-

2009-09-04 收到初稿, 2010-06-23 收到修改稿。

联系人: 邢卫红。第一作者: 邹琳玲 (1979—), 男, 博士研究生。

基金项目: 教育部新世纪优秀人才支持计划项目 (NCET-06-0506); 江苏省高校科研成果产业化推进项目 (JH07-014); 江苏省“六大”人才高峰项目 (06-A-048)。

Received date: 2009-09-04.

Corresponding author: Prof. XING Weihong, xingwh@njut.edu.cn

Foundation item: supported by the Program for New Century Excellent Talents in University (NCET-06-0506), the Industrialization of Scientific Research Promotion Projects of Colleges and Universities in Jiangsu Province (JH07-014) and the Jiangsu Planned Projects for Fostering Talents in Six Scientific Fields (06-A-048).

membrane pressure, UTP) 过程, 使得膜沿程的跨膜压差及渗透通量沿轴向保持为一定值 (该值处于较佳的操作参数下), 从而提高膜的分离效率, 有效控制膜污染, 增长再生周期, 降低再生难度和生产成本, 拓展膜的应用领域。其实现形式主要分两类: (1) 通过在渗透侧的压力补偿来达到均匀跨膜压差, 以 TPFS 开发的 UTP^[3-4] 过程最具代表性; (2) 通过改变膜或支撑体的阻力, 使其沿轴向变化, 以此来进行压力补偿, 从而使得沿程的渗透速率为一恒定值。代表性的有 SCT 公司的 GP (孔密度梯度) 膜^[5] 和 TAMI 公司的 ISOFLUX 膜^[6]。这些方法目前已应用于工业化过程, 并取得了较好的效果^[1-2,7-8]。其中, 以改变膜厚度的沿程变化来达到恒通量操作的方法最为简单易行, 且工业化应用成本较低。但是由于该方法的膜厚设计中所需的压力分布难以获得, 在工业设计中一般假定压力沿程线性变化, 以此来进行近似设计, 难以获得精确的膜厚度轴向变化。而 CFD 对于膜过程中的压力、速度、浓度分布的模拟有着其独特的优势, 近年来在膜领域也有着越来越广泛的应用, 通过 CFD 模拟得到实验难以获得的流场分布, 可以帮助理解膜管内的传递过程、膜污染和浓差极化过程的形成机理并建立更精确的模型。关于这方面的研究工作已有相关报道^[9-18], 并取得了较好的结果。本文采用流体动力学模型结合 Darcy 定律对恒通量膜的沿程膜厚度进行设计, 同时考察操作条件与膜厚度的关系。

1 数学模型

本文计算的对象为管式陶瓷膜, 其外径 12 mm, 内径 8 mm, 长度 200 mm, 平均孔径 0.2 μm。其几何结构如图 1 所示。

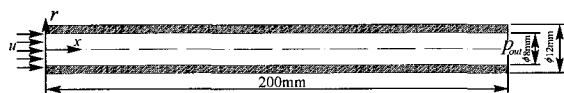


图 1 管式膜的几何结构

Fig. 1 Geometric structure of tubular membrane

为简化计算提出以下几点假设:

- (1) 该流动过程为稳态、等温流动;
- (2) 忽略重力对流动过程的影响;
- (3) 流体为不可压缩流体, 密度恒定;
- (4) 多孔介质区域为各向同性。

由于该流动区域为轴对称, 采用柱坐标系对其

几何模型进行描述, 可将其简化为二维模型。

在通道内流体为自由流动, 其流动方程可以用 Navier-Stocks 公式描述, 根据以上假设可简化为:

连续性方程

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(rv) + \frac{\partial u}{\partial x} = 0 \quad (1)$$

动量守恒方程

$$\rho \left(v \frac{\partial u}{\partial r} + u \frac{\partial u}{\partial x} \right) = - \frac{\partial p}{\partial x} + \mu \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(ru) \right] + \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right\} \quad (2)$$

$$\rho \left(v \frac{\partial v}{\partial r} + u \frac{\partial v}{\partial x} \right) = - \frac{\partial p}{\partial r} + \mu \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(rv) \right] + \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} - \frac{v}{r^2} \right\} \quad (3)$$

边界条件

$$x=200 \text{ mm 时, } p=p_{\text{out}}$$

$$r=4 \text{ mm 时, } 0 < x < 200 \text{ mm, } u=0$$

$$r=6 \text{ mm 处, } p=p_0=0$$

$$x=0 \text{ 时, } 0 < r < 4 \text{ mm, } u=u_0$$

其中, p_{out} 为膜管出口静压力, p_0 为膜管渗透侧静压力, u_0 为膜管进口平均速率。

对于恒通量膜而言 $r=4 \text{ mm}$ 时 $0 < x < 200 \text{ mm}$, $v(x)=v_0=\text{const}$, v_0 为渗透速率。

多孔介质内的流体流动采用 Darcy 定律进行描述

$$v(x) = v_0 = \frac{k_m}{\mu} \frac{p(x) - p_2(x)}{\delta_m(x)} = \frac{k_s}{\mu} \frac{p_2(x) - p_0}{\delta_s} \quad (4)$$

变换得到

$$v(x) = v_0 = \frac{1}{\mu} \frac{p(x) - p_0}{\frac{\delta_m(x)}{k_m} + \frac{\delta_s}{k_s}} \quad (5)$$

由于 $p_0=0$, 支撑体比阻和厚度沿轴向不变, $\frac{\delta_s}{k_s}$ 为常数。则式(5)可变为

$$\delta_m(x) = k_m \left(\frac{p(x)}{\mu v_0} - \frac{\delta_s}{k_s} \right) \quad (6)$$

其中, $\delta_m(x)$ 为 x 处膜厚, δ_s 为支撑层 (含过渡层) 厚度, k_s 、 k_m 分别为支撑层 (含过渡层)、膜层的渗透率。

对于陶瓷膜而言, 其支撑层和膜层均由颗粒堆积而成, 其渗透系数可用 Konzey-Carmen 方程描述, 则式(6)中的参数 k_s 与 k_m 可由式(7)计算得到

$$k = \frac{d_p^2 \epsilon^3}{180(1-\epsilon)^2} \quad (7)$$

其中, d_p 为多孔介质的堆积颗粒直径, ϵ 为多孔介质的孔隙率。对于孔径为 0.2 μm 的陶瓷膜, 可以

认为其膜层 ϵ 为 0.3, d_p 为 $0.8 \mu\text{m}$; 过渡层 ϵ 为 0.3, d_p 为 $2 \mu\text{m}$, 厚度为 $20 \mu\text{m}$; 支撑层 ϵ 为 0.3, d_p 为 $16 \mu\text{m}$, 厚度为 2mm 。

本文采用纯水作为流体介质, 采用有限体积法对式(1)~式(3) 进行离散化并采用 SIMPLE 进行求解, 得到压力的沿程分布 $p(x)$, 与式(7) 计算得到的 k_s 与 k_m 代入式(6), 得到膜厚度的沿程变化, 模拟采用 CFX4.4 软件进行。

2 结果与讨论

2.1 恒通量膜的厚度沿程变化

假定渗透通量为 $1500 \text{ L} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$, 即渗透速率 $v_0 = 4.167 \times 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 出口压力 $p_{\text{out}} = 101325 \text{ Pa}$, 错流速率 $u = 3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 通过 CFD 模拟计算得到膜厚度与操作压力的沿程变化关系, 如图 2 所示。由图 2 可知, 对于恒通量膜而言, 为了使渗透速率沿程基本无变化, 其膜厚度需要随着流体流动方向逐渐减薄, 以抵消压力沿程降低所导致的跨膜压差和渗透通量的沿程变化。在入口端膜厚度变化幅度较大, 主要是由于受到入口流体发展的影响。随后膜厚随轴向长度的变化关系基本呈线性。膜厚度的沿程变化曲线与压力的沿程变化曲线较为相似, 主要是由于微滤过程作为压力为驱动力的过程, 其渗透通量与压力呈正比, 与膜和支撑层的总阻力呈反比, 而膜的总阻力与膜厚度呈正比, 如式(6) 所示。由于支撑层阻力为恒定值, 使得两者之间有着略微的区别。对于 200 mm 长的膜管而言, 膜管进出口的膜层厚度相差约 $0.8 \mu\text{m}$ 。

2.2 错流速率的影响

渗透通量为 $1500 \text{ L} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ 、出口压力为 0.1 MPa 下计算得到不同错流速率下恒通量膜的

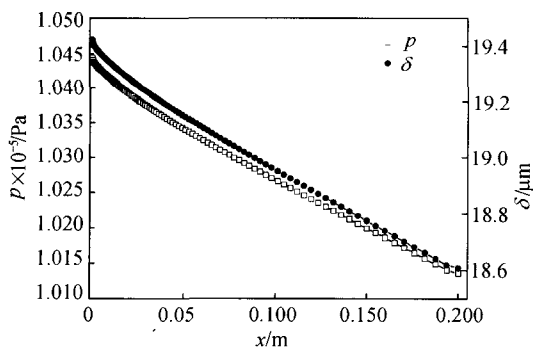


图 2 恒通量膜的沿程压力和膜厚度变化

Fig. 2 Variation of trans-membrane pressure and membrane thickness along axial direction

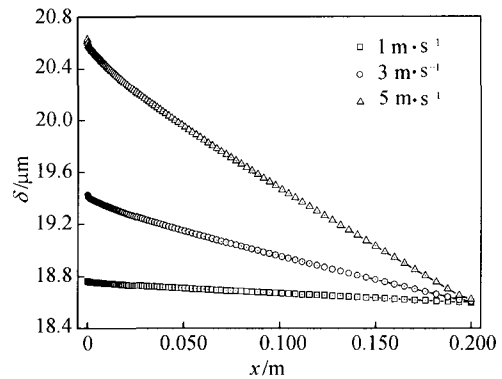


图 3 不同错流速率下恒通量膜的沿程膜厚度变化

Fig. 3 Variation of membrane thickness along axial direction at different crossflow velocity

沿程膜厚度变化曲线如图 3 所示。

由图 3 可知, 错流速率对膜厚度沿程变化影响很大, 3 种错流速率下, 入口端均呈现非线性变化, 错流速率越大, 其非线性越明显。由图 3 还可看出, 错流速率的变化会引起膜厚度沿程变化曲线斜率的较大变化。当错流速率为 $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 两端膜厚度仅差 $0.16 \mu\text{m}$, 即其膜厚度沿程变化不大, 膜厚度基本趋于均匀。但是当错流速率提高到 $5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 其入口端膜厚度比出口端厚约 $2 \mu\text{m}$, 增加了约 10.8% 。由此可见随着错流速率的增加, 膜厚度的不均匀性迅速增大, 所以恒通量膜在应用过程中需要对错流速率有较为严格的限定。也就是说对同一种膜来说, 必然有一合适的错流速率。当错流速率小于 $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时膜厚度沿程变化非常小, 基本呈均匀膜厚, 也就是说在低错流速率下, 可选用均匀膜厚的膜替代恒通量膜实现均匀跨膜压差, 达到恒通量的目的。采用平均孔径 $0.2 \mu\text{m}$ 的均匀厚度的陶瓷膜在出口压力为 0.1 MPa 、错流速率为 $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 的条件下实验测得膜两端的压力差小于 1 kPa , 压力降低幅度小于 1% , 也就是说该过程近似等同 UTP 过程。通过 CFD 模拟计算得到的压力差为 0.6 kPa , 与实验值基本一致。所以, 当错流速率小于 $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 采用均匀厚度的膜来实现 UTP 过程是可行的。

2.3 出口压力的影响

在出口压力分别为 0.1 、 0.15 、 0.2 MPa 下, 由 Darcy 定律计算得到对应的渗透通量分别为 1500 、 2250 、 $3000 \text{ L} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ 。在错流速率为 $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 下, 分别对这 3 种过程进行了模拟计算, 得到不同出口压力下恒通量膜的沿程膜厚度变化曲

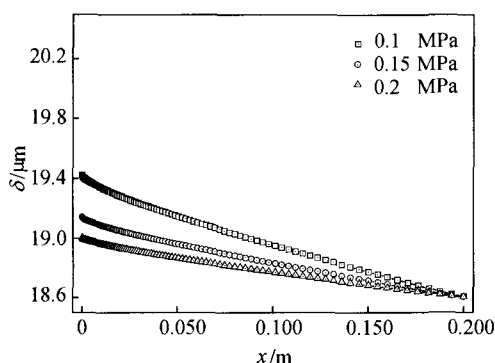


图 4 不同出口压力下恒通量膜的沿程膜厚度变化
Fig. 4 Variation of membrane thickness along axial direction at different operation pressure

线如图 4 所示。

由图 4 可以看出, 不同出口压力下恒通量膜的沿程膜厚度基本呈线性关系, 当出口压力从 0.1 MPa 增加到 0.2 MPa 时, 进口端与出口端膜厚差别不大, 随着出口压力的增大, 对厚度补偿的要求减小。

2.4 温度的影响

错流速率为 $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、出口压力为 0.1 MPa 下分别对 $T=20、40、60^\circ\text{C}$ 下 (由 Darcy 定律计算得到渗透通量分别为 $1500、2306、3206 \text{ L} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$) 3 种过程进行模拟计算, 得到不同渗透速率下恒通量膜的沿程膜厚度变化曲线如图 5 所示。

由图 5 可以看出不同渗透速率下膜厚度沿程变化关系基本一致, 并呈现近似的线性关系, 且三者的斜率相差较小。当温度由 20°C 增加到 60°C 时, 进口端与出口端膜厚差值仅由 $0.82 \mu\text{m}$ 降低到

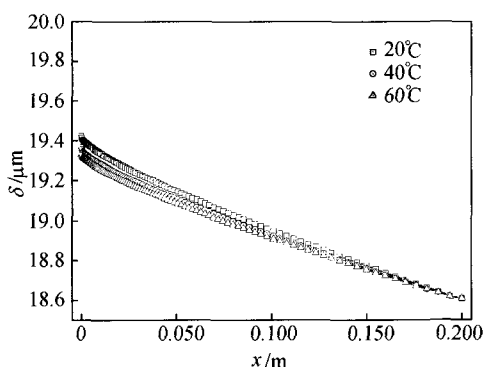


图 5 不同温度下恒通量膜的沿程膜厚度变化
Fig. 5 Variation of membrane thickness along axial direction at different temperature

$0.76 \mu\text{m}$ 。由此可见在出口压力和错流速率一定时, 温度对恒通量膜厚度的沿程变化影响很小, 也就是说恒通量膜对于温度的适应范围较广。

2.5 1 m 长膜管膜厚度设计

由前面的模拟结果可以看出, 错流速率对于恒通量膜的应用限制最严格, 在不同错流速率下需使用不同沿程厚度变化的膜才能实现 UTP 过程, 达到恒通量。工业上常用的膜管长度为 1 m, 为此对 1 m 长膜管进行了膜厚度设计。在渗透通量为 $1500 \text{ L} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ 、出口压力为 0.1 MPa 时, 对错流速率分别为 $1、3、5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 下所需恒通量膜的膜厚度变化进行了模拟计算, 结果如图 6 所示。由图 6 可以看出, 在错流速率为 $1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 对于 1 m 长的膜管, 其出入口两端的膜厚度差值小于 $0.5 \mu\text{m}$, 其膜厚度沿轴向方向基本为均匀的, 在错流速率为 $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 膜管两端的膜厚度差约为 $3 \mu\text{m}$, 变化幅度约为 16%, 而当错流速率达到 $5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 膜管两端的膜厚度差约为 $9 \mu\text{m}$, 变化幅度迅速增加到 47%。随着膜管长度的增加, 沿程厚度不均匀性增强。

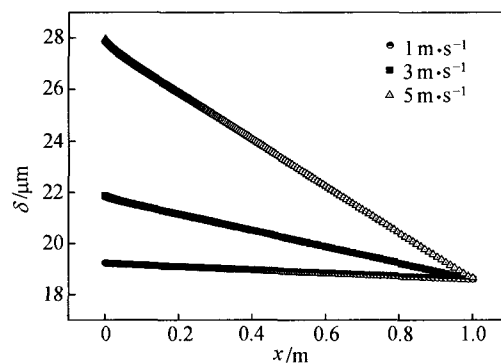


图 6 不同错流速率对 1 m 长膜管膜厚度要求
Fig. 6 Variation of membrane thickness along axial direction with different crossflow velocity

通过 CFD 模拟计算可以得到操作条件与膜沿程的膜厚度变化关系, 从而获得不同操作参数下的恒通量膜的膜厚度。膜厚度的控制在制膜过程是较容易实现的, 可以通过制膜液接触时间来控制^[6]。

3 结 论

- (1) 恒通量膜的膜厚度沿程变化曲线与压力的沿程变化曲线较为相似, 均近似于线性。
- (2) 所需恒通量膜的厚度沿程变化受错流速率的影响较大, 在应用过程中需要对错流速率有较为

严格的限定。在低错流速率下, 可选用均匀膜厚的膜达到恒通量的目的, 错流速率增大对膜厚度沿程不均匀性的要求增强。

(3) 出口压力的变化对膜厚的影响不大, 随着出口压力的增大, 膜厚沿程变化减小。

(4) 操作温度对膜厚的影响不大, 有较宽的适用范围。

(5) 随着膜管长度的增加, 沿程厚度不均匀性显著增强。

符 号 说 明

d_m	膜平均孔径, m
d_p	颗粒平均直径, m
k	多孔介质的渗透率, m^2
k_m	膜的渗透率, m^2
k_s	支撑层渗透率, m^2
p	静压力, Pa
p_{out}	膜管出口静压力, Pa
p_0	膜管渗透侧静压力, Pa
R	膜管半径, m
r	径向坐标, m
u	轴向速率, $m \cdot s^{-1}$
u_0	膜管进口平均速率, $m \cdot s^{-1}$
v	径向速率, $m \cdot s^{-1}$
v_0	渗透速率, $m \cdot s^{-1}$
x	轴向坐标, m
δ_m	膜层厚度, μm
δ_s	支撑层厚度, μm
ϵ	孔隙率
μ	流体黏度, $Pa \cdot s$
ρ	流体密度, $kg \cdot m^{-3}$

References

- [1] Vadi P K, Rizvi S S H. Experimental evaluation of a uniform transmembrane pressure crossflow microfiltration unit for the concentration of micellar casein from skim milk. *Journal of Membrane Science*, 2001, **189** (1): 69-82
- [2] Grangeon A, Lescoche P, Millares M, Yan Yong (闫勇). ISOFLEX membrane—the microfiltration mastering. *Membrane Science and Technology* (膜科学与技术), 2002, **22** (3): 67-70
- [3] Sandblom R M. Filtering process; US, 4105547. 1978-08-08
- [4] Holm S, Malmberg R, Svensson K. Method and plant for producing milk with a low bacterial content; EP, 0194286. 1986-09-17
- [5] Daniel G, Edouard T. Graded permeability macroporous support for crossflow filtration; US, 6375014. 2002-04-23
- [6] André G, Philippe L, Thomas F, Bernd R. Cross-flow filter membrane and method of manufacturing it; US, 6499606. 2002-12-31
- [7] Saboya L V, Maubois J L. Current developments of microfiltration technology in the dairy industry. *Lait*, 2000, **80**: 541-553
- [8] Baruah G L, Nayak A, Belfort G. Scale-up from laboratory microfiltration to a ceramic pilot plant; design and performance. *Journal of Membrane Science*, 2006, **274** (1/2): 56-63
- [9] Karode S K. Laminar flow in channels with porous walls, revisited. *Journal of Membrane Science*, 2001, **191** (1/2): 237-241
- [10] Nassehi V. Modelling of combined Navier-Stokes and Darcy flows in crossflow membrane filtration. *Chemical Engineering Science*, 1998, **53** (6): 1253-1265
- [11] Das D B, Nassehi V, Wakeman R J. A finite volume model for the hydrodynamics of combined free and porous flow in sub-surface regions. *Advances in Environmental Research*, 2002, **7** (1): 35-58
- [12] Damak K, Ayadi A, Zeghamati B, Schmitz P. A new Navier-Stokes and Darcy's law combined model for fluid flow in crossflow filtration tubular membranes. *Desalination*, 2004, **161** (1): 67-77
- [13] Peng Wenbo (彭文博), Qi Hong (漆虹), Chen Gangling (陈纲领), Zou Linling (邹琳玲), Xing Weihong (邢卫红), Xu Nanping (徐南平). CFD modeling of permeate process in 19-channel porous ceramic membranes. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)* (化工学报), 2007, **58** (8): 2021-2026
- [14] Peng Wenbo (彭文博), Qi Hong (漆虹), Li Weixing (李卫星), Xing Weihong (邢卫红), Xu Nanping (徐南平). Experimental investigation of effects of ceramic membrane channels on flux and optimization with CFD. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)* (化工学报), 2008, **59** (3): 602-606
- [15] Pak A, Mohammadi T, Hosseinalipour S M, Allahdini V. CFD modeling of porous membranes. *Desalination*, 2008, **222** (1/2/3): 482-488
- [16] Shakaib M, Hasani S M F, Mahmood M. CFD modeling for flow and mass transfer in spacer-obstructed membrane feed channels. *Journal of Membrane Science*, 2009, **326** (2): 270-284
- [17] Gu T, Chew Y M J, Paterson W R, Wilson D I. Experimental and CFD studies of fluid dynamic gauging in duct flows. *Chemical Engineering Science*, 2009, **64** (2): 219-227
- [18] Wiley D E, Fletcher D F. Techniques for computational fluid dynamics modelling of flow in membrane channels. *Journal of Membrane Science*, 2003, **211** (1): 127-137