

Н. Б. КАЛАСОВ¹, Д. ДЖОНОВА², Р. К.* МАНАТБАЕВ¹

¹ *Казахский национальный университет им. аль-Фараби, Алматы, Казахстан*

² *Институт инженерной химии, Болгарская Академия Наук, София, Болгария*

ГИДРОДИНАМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПОПЕРЕЧНОГО ПОТОКА ПРОЦЕССОВ МЕМБРАННОЙ СЕПАРАЦИИ

Дано описание разработки базового набора строгих гидродинамических моделей процесса мембранной сепарации газов H_2/CO_2 . Модели тестируются и проверяются на основании экспериментальных и вычислительных данных из литературы, а также обсуждаются стратегии и методы моделирования, характерные для проблемы мембранной сепарации.

Самая базовая гидродинамическая модель процесса мембранной сепарации состоит из двумерного (2D) прямоугольного мембранного канала, в котором одна или обе стенки считаются проницаемыми. Эта конфигурация является достаточно общей, чтобы локально представлять диапазон геометрий мембран с целью исследования эффектов концентрационной поляризации. Упрощение до 2D оправдано, учитывая низкое соотношение сторон большинства мембран каналов подачи, и значительно дешевле в вычислительном отношении. Пакет программного обеспечения FLUENT 13.0 (Ansys, Inc., США) используется для всех симуляций гидродинамики мембранного канала. FLUENT – это пакет вычислительной гидродинамики общего назначения, в котором используется метод конечных объемов на основе элементов с совмещенным расположением сетки, так что контрольные объемы одинаковы для всех транспортных уравнений. Используется связанный решатель, где уравнения для непрерывности и импульса решаются одновременно как единая система.

Таким образом, цель этого моделирования состоит в том, чтобы установить полезность CFD в качестве основного инструмента моделирования для мембранной сепарации, для обеспечения полностью прогнозируемой модели процесса мембранной сепарации газов.

Ключевые слова: CFD, мембранная сепарация, поперечный поток, 2D моделирование, концентрационная поляризация, пограничный слой.

Бұл жұмыста H_2/CO_2 мембраналық газды бөлу процесінің қатаң гидродинамикалық модельдерінің негізгі сипатталды. Әдебиеттерден алынған тәжірибелік және есептеу деректері негізінде модельдер сыналады және тексерілді, мембрананы бөлу мәселесіне тән модельдеу стратегиясы мен әдістері талқыланады.

Мембрананы бөлу процесінің ең негізгі гидродинамикалық моделі екі өлшемді (2D) тікбұрышты мембрана каналынан тұрады, онда бір немесе екі қабырға өткізгіш болып саналады. Бұл конфигурация концентрациялық поляризацияның әсерін зерттеу үшін мембраналық геометриялардың бірқатарын жергілікті түрде көрсетуге жеткілікті. FLUENT 13.0 бағдарламалық пакеті (Ansys, Inc., АҚШ) мембраналық канал гидродинамикасының барлық үлгілері үшін қолданылады. FLUENT - бұл жалпы көлемдегі есептеу сұйықтығының динамикасы, ол басқару көлемдері барлық тасымалдау теңдеулері үшін бірдей болатындай, біріктірілген торлы элементтері бар элементтер негізінде шектеулі көлем әдісін қолданады. Біріктірілген шешуші қолданылады, мұнда үздіксіздік пен импульс теңдеулері бір уақытта жалғыз жүйе ретінде шешіледі.

Осылайша, бұл модельдеудің мақсаты мембрананы бөлудің негізгі моделі ретінде CFD-ң пайдалылығын орнату, мембраналық газды бөлу процесінің толық болжамды моделін ұсыну болып табылады.

Түйін сөздер: CFD, мембраналық бөлу, көлденең ағын, 2 D модельдеу, концентрация поляризациясы, шекара қабаты.

This paper describes the development of a basic set of rigorous hydrodynamic models of the process of membrane gas separation H_2/CO_2 . Models are tested and verified on the basis of experimental and

computational data from the literature, and strategies and modeling methods specific to the membrane separation problem are discussed.

The most basic hydrodynamic model of the membrane separation process consists of a two-dimensional (2D) rectangular membrane channel in which one or both walls are considered permeable. This configuration is general enough to locally represent a range of membrane geometries to study the effects of concentration polarization. Simplification to 2D is justified, given the low aspect ratio of most feed channel membranes, and much less computationally. The FLUENT 13.0 software package (Ansys, Inc., USA) is used for all simulations of membrane channel hydrodynamics. FLUENT is a general-purpose computational fluid dynamics package that uses a finite volume method based on elements with a co-located grid arrangement, so that the control volumes are the same for all transport equations. A coupled solver is used, where the equations for continuity and momentum are solved simultaneously as a single system.

Thus, the purpose of this simulation is to establish the utility of CFD as the primary modeling tool for membrane separation, to provide a fully predictable model of the membrane gas separation process.

Key words: CFD, membrane separation, cross flow, 2 d modeling, concentration polarization, boundary layer.

Введение. Биологические процессы производства водорода предлагают метод, с помощью которого возобновляемые источники энергии, такие как биомасса могут быть использованы для генерации самого чистого энергоносителя для использования человечеством [1].

Процессы производства горючих газов (водорода и метана) являются перспективными для эффективной переработки биомассы, очистки сточных вод в сельском хозяйстве, коммунальном хозяйстве и производстве продуктов питания без выброса углекислого газа в атмосферу при условии, что аэробные и анаэробные биореакторы объединены в непрерывную биотехнологическую схему [2].

Извлечение энергии из образующихся газовых смесей низкого давления довольно проблематично, но может быть осуществлено с помощью технологий разделения газов, специально подобранных таким образом, чтобы обеспечить не только низкоэнергетическое извлечение компонентов, но и полную рециркуляцию CO_2 в процесс [3-4].

Смеси биогенного происхождения содержат макрокомпоненты (метан, водород и диоксид углерода) и другие примеси. Выделение энергии из таких смесей предполагает их очистку. Несмотря на высокий уровень развития технологий газоразделения, разделение продуктов биологического синтеза стандартными методами химической технологии экономически невыгодно из-за низких технических параметров получаемых жидких и газовых смесей. Мембранная сепарация газа может быть отнесена к наиболее перспективным процессам разделения газовых смесей биогенного происхождения. Мембранные биореакторы – это высокоточные, селективные и эффективные процессы. Они могут внести свой вклад в решение проблем, связанных с необходимостью использования зеленых и интенсивных технологий [5].

Биоводород, образующийся при темной ферментации, генерирует газообразную смесь, состоящую в основном из H_2 и CO_2 и жидких сточных вод со значительными количествами летучих жирных кислот [6]. Следовательно, последующие методы после стадии производства должны иметь, по меньшей мере, две цели: (1) газообразный водород должен быть очищен, чтобы стать эффективным исходным материалом в топливных элементах и (2) стоки нуждаются в дальнейшей обработке/использовании из-за его остаточного и пригодного для использования органического вещества [7-8].

Фактически, в целях повышения качества биоводорода, CO_2 должен быть удален и преобразован в другие биопродукты с использованием электрохимической платформы для микробов или микроводорослей для захвата CO_2 и последующего производства биомассы [9-10].

По этой причине в данной работе описывается разработка базового набора строгих гидродинамических моделей процесса мембранной сепарации газов H_2/CO_2 .

Модели тестируются и проверяются на основании экспериментальных и вычислительных данных из литературы, а также обсуждаются стратегии и методы моделирования, характерные для проблемы мембранной сепарации. Исследуется двухмерная геометрическая модель в стационарном условии потока. Моделирование в данной работе касается, прежде всего, описания гидродинамики мембранного канала и явлений загрязнения вследствие концентрационной поляризации.

Пакет программного обеспечения FLUENT 13.0 (Ansys, Inc., США) используется для всех симуляций гидродинамики мембранного канала. FLUENT – это пакет вычислительной гидродинамики общего назначения, в котором используется метод конечных объемов на основе элементов с совмещенным расположением сетки, так что контрольные объемы одинаковы для всех транспортных уравнений. Используется связанный решатель, где уравнения для непрерывности и импульса решаются одновременно как единая система [11].

FLUENT в строгом смысле способен только к трехмерному (3D) моделированию; однако двумерные модели могут быть построены с использованием периодического спаривания, которое создает граничные условия симметрии на боковых гранях модели, толщина которых составляет всего один элемент. Это эффективно создает 2D-модель и делает тривиальным расширение модели позже до трех измерений по мере необходимости.

Геометрия модели. Модель состоит из прямоугольного канала, как показано на рисунке 1. Поток через канал ориентирован вдоль оси x и поступает в точке $x = 0$ через входную поверхность. Поток выходит из канала в точке $x = L$ через поверхность концентрата, и проникновение происходит через одну или обе из нижней поверхности канала и верхней поверхности канала, которая представляет поверхность мембраны. Следует отметить, что на рисунке 13 это проникновение показано только через нижнюю поверхность канала. Левая и правая «стенки» канала связаны в предположении осесимметричного потока. Ширина канала (то есть толщина элемента с одной шириной) обычно должна быть того же порядка, что и наименьшая ячейка в сетке. Простые прямоугольные призматические элементы использовались для этой простой геометрии, модель может быть обобщена на любую произвольную 2D или 3D геометрию.



Рисунок 1 – Геометрия модели для базовой 2D-модели ламинарного потока через канал пористой мембраны

Граничные и начальные условия. Граничные условия задаются на входе канала в форме профиля осевой скорости и на выходе канала – в виде среднего статического давления. Предполагается, что на входе в канал существует равномерный профиль ламинарного потока.

Объемный состав раствора также указывается на входе в канал в виде массовой доли растворенного вещества [12] для каждого растворенного вещества i , и исходное условие для раствора автоматически генерируется решателем FLUENT с использованием этой указанной массовой доли по всему объему мембранного канала.

Учитывая, что канал имеет длину l и высоты h , граничные условия определяются как

$$x = 0, \forall y, u = u_0, v = 0, \omega_A = \omega_{A0} \quad (1)$$

$$x = l, \forall y, \frac{\partial u}{\partial x} = 0, \frac{\partial v}{\partial x} = 0, \frac{\partial \omega_A}{\partial x} = 0 \quad (2)$$

где u_0 – равномерная скорость на входе, ω_0 – равномерная массовая доля на входе.

Условие симметрии используется для внешних «стенок» мембранного канала (тех, которые параллельны плоскости X-Y), чтобы позволить 2D-моделирование. Оставшиеся верхняя и нижняя стенки мембранного канала представлены с использованием стандартных граничных условий без проскальзывания в направлении x . Скорость в направлении y автоматически определяется решателем FLUENT на основе локальных транспортных свойств. Входные параметры модели для моделирования представлены в таблице 1.

Таблица 1 – Входные параметры модели для моделирования

Параметр	Значение	Источник
Длина мембранного канала L	200 мм	[13]
Мембранный канал высоты h	2 мм	[13]
Ширина мембранного канала w	Переменная в зависимости от плотности сетки равна размеру самого маленького элемента сетки	[13]
Мембранная проницаемость L_p	$1,4 \cdot 10^{-11}$ м Па ⁻¹ с ⁻¹	[13]
Входное число Рейнольдса Re	200, 600	
Входная массовая доля CO_2	0,1	[12]
Плотность газовой смеси $H_2/CO_2, \rho$	0,126 кг/м ³	[12]
Динамическая вязкость газовой смеси при 300 К	$8,9 \cdot 10^{-6}$ Па с	[12]
Коэффициент диффузии D	$7,266 \cdot 10^{-6}$ м ² /с	[12]
Число Шмидта, Sc	1.5	

Включение эффектов концентрационной поляризации. Концентрационная поляризация возникает, когда отбракованный раствор накапливается рядом с поверх-

ностью мембраны, образуя пограничный слой. Такое накопление растворенного вещества вызывает диффузионный поток обратно к исходному материалу, который в конечном итоге достигает стационарного состояния, при котором поток растворенного вещества к поверхности мембраны равен потоку растворенного вещества через мембрану плюс диффузионный поток с поверхности мембраны обратно к исходному материалу. Установление этого пограничного слоя обеспечивает последующее загрязнение мембранного слоя; таким образом, минимизация или удаление слоя концентрационной поляризации, является основной целью исследования мембран.

Для моделирования эффектов поляризации концентрации на базовом уровне в мембранном канале используется опция многокомпонентного потока в FLUENT. Это предполагает, что компоненты газа смешиваются на микроскопическом уровне, так что они имеют идентичные поля давления, скорости и температурных полей, и предполагает, что массообмен происходит только посредством конвекции и диффузии. Эти предположения являются разумными для большинства применений мембранной фильтрации.

В непосредственной близости от поверхности мембраны требуется значительное измельчение сетки для адекватного разрешения тонкого пограничного слоя концентрационной поляризации. Предыдущие гидродинамические модели указывали, что соотношение клеток примерно 30 – 60 давали приемлемые результаты. Это использовалось в качестве отправной точки для исследования независимости сетки с использованием геометрии Жералдес и др. [13]. Иллюстративная часть вычислительной сетки показана на рисунке 2.

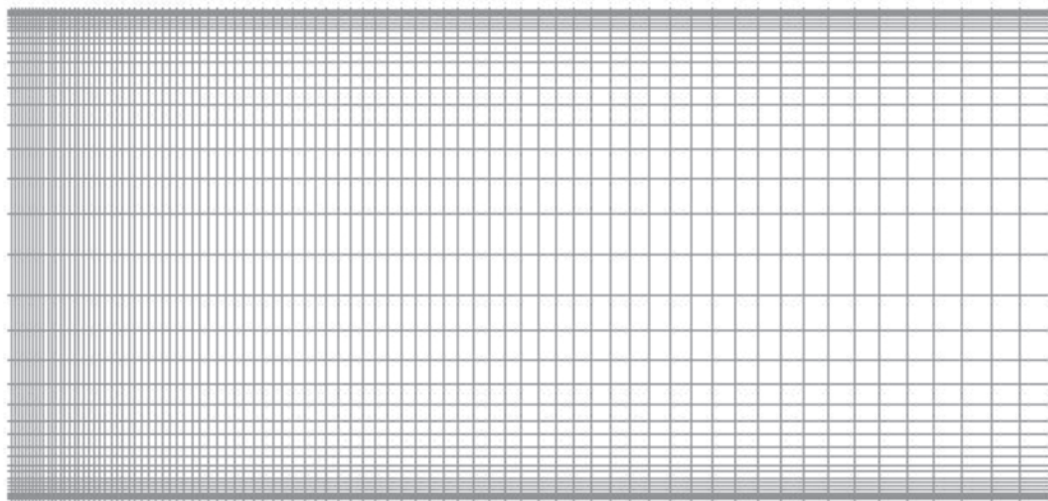


Рисунок 2 – Вычислительная сетка для 2D канала с уточнением для пограничного слоя концентрационной поляризации

Результаты и обсуждение. Мембрана, используемая в этой модели, представляла собой тонкопленочную композитную мембрану NF CDNF50I (Италия) с заявленной гидродинамической проницаемостью $1,4 \times 10^{-11} \text{ м}^2 \text{ скг}^{-1}$. Исследования проводились при нескольких различных скоростях поперечного потока; данные, использованные для этого исследования, относятся к экстремальным значениям, которые эквивалентны входным числам Рейнольдса 200 и 600 соответственно. Они эквивалентны заявленным числам Рейнольдса 250 и 1000, приведенным Жералдес и др. [13].

На рисунке 3 показано изменение массовой доли CO_2 в мембранном канале, иллюстрируя накопление концентрационного поляризационного пограничного слоя, прилегающего к поверхности мембраны в нижней части канала для чисел Рейнольдса $\text{Re}=200, 600$.

а)



б)



Рисунок 3 – Изменение массовой доли CO_2 в 2D мембранном канале, включая концентрационный поляризационный пограничный слой: а) для $\text{Re} = 200$, б) для $\text{Re} = 600$

Поле скоростей в мембранном канале также можно увидеть на рисунке 4 рядом с входом канала и на рисунке 5 для всего канала. Классический профиль ламинарной скорости наблюдается внутри канала, хотя и слегка сплюснен к нижней половине канала из-за проникновения через нижнюю стенку канала.

Способность модели прогнозировать формирование пограничного слоя концентрационной поляризации была оценена путем сравнения предсказанных профилей

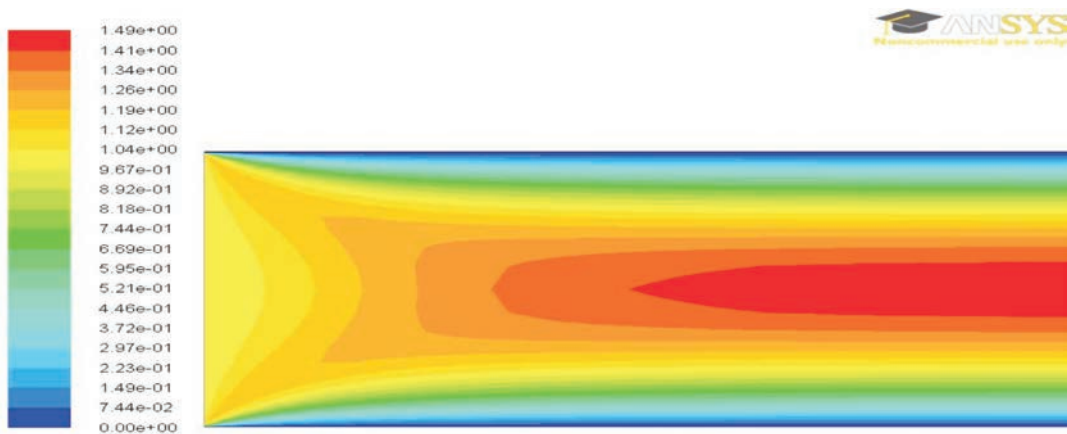


Рисунок 4 – Изменение скорости на входе 2D мембранного канала, включая концентрационный поляризационный пограничный слой для $Re = 200$

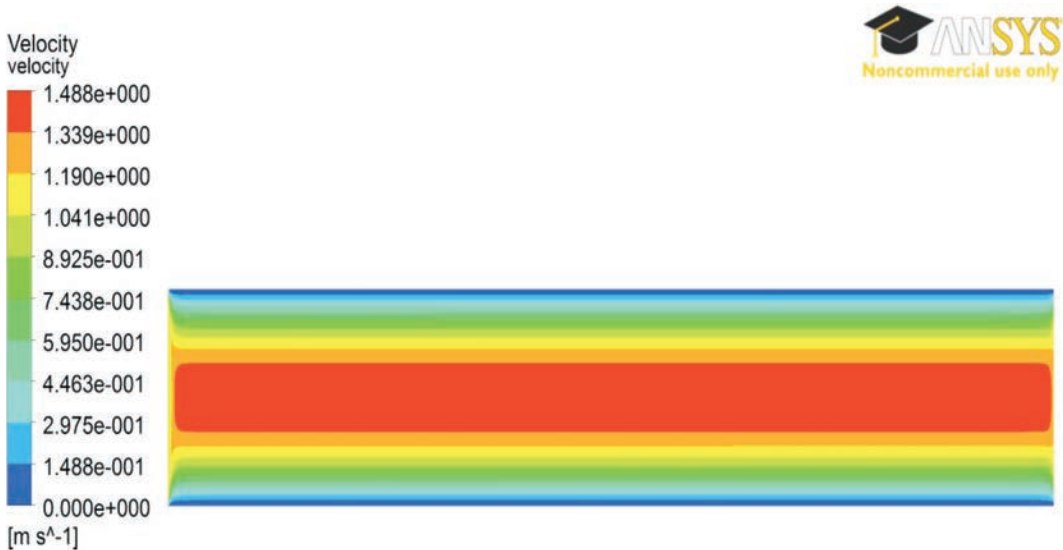


Рисунок 5 – Изменение скорости для всего 2D мембранного канала, включая концентрационный поляризационный пограничный слой для $Re = 200$

безразмерного пограничного слоя концентрационной поляризации, представленными Жералдес и др. [94]. Безразмерная высота пограничного слоя концентрационной поляризации δ_w/h показана как функция безразмерной осевой длины x/h на рисунке 6. Пограничный слой концентрационной поляризации у модели Жералдес и др. оказался больше, чем данная модель по той причине, что физические свойства жидкости, такие как коэффициент диффузии, вязкость и плотность отличаются от газов. Как и ожидалось, более высокое число Рейнольдса на входе соответствует более тонкому пограничному слою концентрационной поляризации вследствие увеличения сдвига, нарушающего пограничный слой концентрационной поляризации.

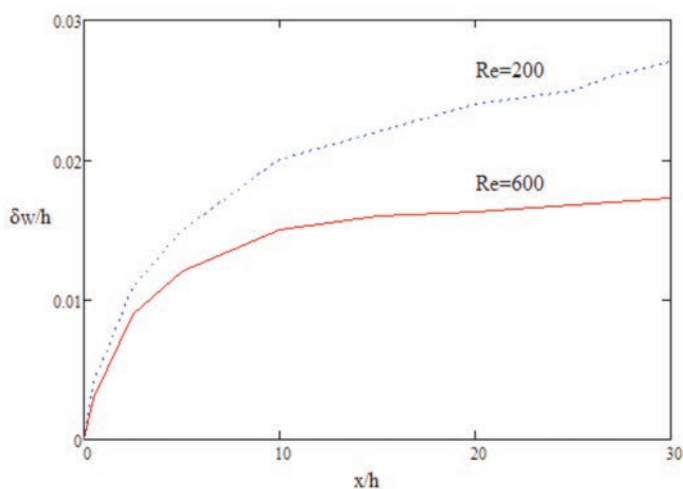


Рисунок 6 – Безразмерный профиль пограничного концентрационно-поляризационного слоя

Заключение. Из сравнения с аналитическими, экспериментальными и вычислительными данными видно, что современный подход к моделированию CFD способен описывать условия потока для 2D мембранных каналов. Хорошее согласие наблюдается с точки зрения формирования концентрационного поляризационного пограничного слоя. Это дает уверенность в том, что базовая гидродинамическая модель процесса мембранной фильтрации является удовлетворительной. В дальнейшем мы можем обратить наше внимание на более сложные геометрические и гидродинамические конфигурации.

ЛИТЕРАТУРА

- 1 Akinbomi, J., Wikandari, R., Taherzadeh, M.J., 2015. Enhanced fermentative hydrogen and methane production from an inhibitory fruit-flavored medium with membrane-encapsulated cells. *Membranes* 5 (4).– P.616–631.
- 2 Adekunle, K.F., Okolie, J.A., 2015. A review of biochemical process of anaerobic digestion. *Adv. Biosci. Biotechnol.* 6 (03).– P. 205.
- 3 Bakonyi, P., Kumar, G., Nemestóthy, N., Lin, C., Bélafi-Bakó, K., 2013a. Biohydrogen purification using a commercial polyimide membrane module: studying the effects of some process variables. *Int. J. Hydrogen Energy* 38 (35).– P.15092-15099.
- 4 Bakonyi, P., Nemestóthy, N., Bélafi-Bakó, K., 2013b. Biohydrogen purification by membranes: an overview on the operational conditions affecting the performance of nonporous, polymeric and ionic liquid based gas separation membranes. *Int. J. Hydrogen Energy* 38 (23).– P.9673-9687.
- 5 Lidietta Giorno, Rosalinda Mazzei, Loredana De Bartolo, Enrico Drioli. 2.27 - Membrane Bioreactors for Production and Separation. *Comprehensive Biotechnology (Third Edition) Volume 2*, 2019.– P. 374-393.
- 6 Ghimire, A., Kumar, G., Sivagurunathan, P., Shobana, S., Saratale, G.D., Kim, H.W., et al., 2017. Bio-hydrogen production from microalgae biomass: key challenges and potential opportunities for algal bio-refineries. *Bioresour. Technol.* -241.– P.525-536.

7 Ghimire, A., Frunzo, L., Pirozzi, F., Trably, E., Escudie, R., Lens, P.N.L., et al., 2015. A review on dark fermentative biohydrogen production from organic biomass: process parameters and use of by-products. *Appl. Energy* 144.– P.73-95.

8 Yun, Y.M., Lee, M.K., Im, S.W., Marone, A., Trably, E., Shin, S.R., et al., 2018. Biohydrogen production from food waste: current status, limitations, and future perspectives. *Bioresour. Technol.* 248.– P.79-87.

9 Franco-Morgado, M., Alcántara, C., Noyola, A., Munoz, R., González-Sánchez, A., 2017. A study of photosynthetic biogas upgrading based on a high rate algal pond under alkaline conditions: influence of the illumination regime. *Sci. Total Environ.* 592. – P.419-425.

10 Quijano, G., Arcila, J.S., Buitrón, G., 2017. Microalgal-bacterial aggregates: applications and perspectives for wastewater treatment. *Biotechnol. Adv.* 35. – P. 772-781.

11 ANSYS FLUENT Theory Guide, ANSYS, Inc., Canonsburg, PA, 2010.

12 J.E. Ramírez-Morales, E. Tapia-Venegas, N. Nemestóthy, P. Bakonyi, K. Be'afi-Bako', G. Ruiz-Filippi. Evaluation of two gas membrane modules for fermentative hydrogen separation. *International Journal of Hydrogen Energy*, Volume 38, Issue 32, 25 October 2013.– P. 14042-14052

13 V. Geraldés, V. Semião, M.N. de Pinho, Flow and mass transfer modelling of nanofiltration, *J. Membrane Sci.*, 191 (2001). – P. 109-128.