

Българска академия на науките
Институт по инженерна химия

Инж. Стела Пламенова Паньовска

**CFD МОДЕЛИРАНЕ НА МЕМБРАННО
РАЗДЕЛЯНЕ ЧРЕЗ НАНОФИЛТРУВАНЕ**

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т

Научни консултанти: проф. д-р Даниела Джонова – Атанасова
проф. д-р Ирен Цибранска

София, 2025 г.

Българска академия на науките
Институт по инженерна химия

Инж. Стела Пламенова Паньовска

CFD МОДЕЛИРАНЕ НА МЕМБРАННО РАЗДЕЛЯНЕ ЧРЕЗ НАНОФИЛТРУВАНЕ

АВТОРЕФЕРАТ

на дисертационен труд за присъждане на образователна и
научна степен „доктор“

Област на висше образование: 4. Природни науки,
математика и информатика

Професионално направление: 4.2. Химически науки

Докторска програма: Процеси и апарати в химичната и
биохимичната технология

Научни консултанти: проф. д-р Даниела Джонова – Атанасова
проф. д-р Ирен Цибранска

Научно жури:

1. Проф. д-р Татяна Стефанова Петрова
2. Доц. д-р Петя Георгиева Попова-Крумова
3. Доц. д-р Стела Иванова Минковска
4. Проф. д-р Илия Кръстев Илиев
5. Проф. д-р Нина Янкова Пенкова

Дисертационният труд съдържа: 151 страници, 62 фигури и 2 таблици. В библиографията са включени 169 литературни източника.

Численото моделиране е извършено в Институт по Инженерна Химия - БАН

Защитата на дисертационният труд ще се проведе на: от часа в Институт по Инженерна Химия – БАН, София, ул. “Акад. Георги Бончев“, блок 103

Тема: CFD МОДЕЛИРАНЕ НА МЕМБРАННО РАЗДЕЛЯНЕ ЧРЕЗ НАНОФИЛТРУВАНЕ

Автор: инж. Стела Пламенова Паньовска

Материалите по защитата са на разположение, в канцеларията на Институт по Инженерна Химия – БАН.

Съдържание:

I. ВЪВЕДЕНИЕ	7
II. ЦЕЛ И ЗАДАЧИ	11
1. Цел.....	11
2. Задачи.....	12
III. МОДЕЛ ЗА ИЗСЛЕДВАНЕ НА НАНОФИЛТРУВАНЕ ЧРЕЗ ИЗЧИСЛИТЕЛНА ДИНАМИКА НА ФЛИУДИТЕ	13
IV. ИЗСЛЕДВАНЕ ЧРЕЗ CFD НА ФИЛТРАЦИОННИ КЛЕТКИ.....	14
1. Изследване чрез CFD на изнесена мембрана с поток на пермеата, перпендикулярен на мембранната повърхност.....	14
2. Изследване чрез CFD на изнесена цилиндрична клетка с поток на пермеата, тангенциален на мембранната повърхност (CF)	32
3. Изследване чрез CFD в правоъгълна филтрационна клетка	44
4. Сравнителен анализ на резултатите от симулиране чрез CFD на нанофилтруване в режими DE и CF филтруване	51
V. ПРИНОСИ	61
ЛИТЕРАТУРА.....	64

ИЗПОЛЗВАНИ ОЗНАЧЕНИЯ		
ОЗНАЧЕНИЕ	ФИЗИЧЕН СМИСЪЛ	SI
ρ	Плътност	kg/m^3
t	Време	s
d	Диаметър	m
h	Височина	m
d_e	Диаметър на сензора	m
d_h	Хидравличен диаметър	m
v_f	Скорост на подаване	m/s
k_L	Локален коефициент на масопредаване	m/s
k_m	Среден коефициент на масопредаване	m/s
A	Площ	m^2
V	Обем	L
J	Поток	$\text{L/m}^2\text{h}$
N	Обороти	rpm
μ	Динамичен вискозитет	$\text{Pa}\cdot\text{s}$
τ	Напрежение на срязване на стената	Pa
ν	Кинематичен вискозитет	m^2/s
D	Коефициент на дифузия	m^2/s
k_m	Локалната стойност на коефициента на масопредаване	m/s
k_{\max}	Максимална стойност на коефициента на масопредаване	m/s
E_{ff}	Коефициент на ефективност	
D_{cell}	Диаметър на клетката	m
$d_{\text{in/out}}$	Диаметър на вход и изход	m
Q_f	Дебит	l/min

v_f	Скорост на входящия поток	m/s
CFR	Скорост на напречен поток (осреднен по площта дебит)	L/h
ИЗПОЛЗВАНИ СЪКРАЩЕНИЯ		
NF	Nanofiltration/Нанопилтруване	
RO	Reverse Osmosis/Обратна осмоза	
UF	Ultrafiltration/Ултрафилтруване	
MBR	Membrane Bioreactor/ Мембранен биореактор	
CFD	Computational Fluid Dynamic/ Изчислителна динамика на флуидите	
DE	Dead-End Filtration/Филтруване в задънена клетка (посоката на движение на флуида и на пермеата съвпадат)	
CF	Cross-Flow Filtration/ Филтруване с кръстосан поток	
Sh	Sherwood number/ Число на Шервуд	
Re	Reynolds number/ Число на Рейнолдс	
Sc	Schmidt number /Число на Шмидт	
RANS	Reynolds-averaged Navier– Stokes equations/ Осреднени по Рейнолдс уравнения на Навие- Стокс	
k-ε	Realizable k-ε model/ Подобрен k-ε модел	

MRF	Moving reference frame/ Подвижна референтна рамка	
CFR	Cross-flow rate/ Скорост на напречен поток	

I. ВЪВЕДЕНИЕ

Нанофилтруването (Nanofiltration - NF) е мембранен процес, който запълва празнината между обратната осмоза (Reverse Osmosis - RO) и ултрафилтруването (Ultrafiltration - UF), по отношение на големината на задържаните частици, селективността и работното налягане. Нанофилтруването е въведено за първи път в края на 80-те години на миналия век, като неговото приложение непрекъснато нараства. Технологията за NF все още се развива, намира все повече нови приложения, например в производството на питейна вода, пречистването на отпадъчни води, хранително-вкусовата промишленост, химическата и фармацевтичната промишленост, както и в много други индустрии. Въпреки всички обещаващи перспективи на нанофилтруването, все още има някои нерешени проблеми, които забавят широкомащабните му приложения. Запушването на мембраната, което намалява мембранный поток, както и продължителността на живота и ефективността ѝ, остава нерешено предизвикателство пред научната общност.

Мембранните биореакторни технологии (Membrane Bioreactor - MBR) са тези, които осигуряват биологично третиране с мембранно разделяне. Днес MBR има многобройни битови и промишлени приложения и е популярен в сравнение с конвенционалните методи. Основният недостатък при работата на MBR е запушването на мембраната, което води до намаляване на потока пермеат, следователно е необходима техника за почистване на мембраната. Въпреки че през последното десетилетие е постигнат значителен напредък при подобряването на техниките за намаляване на запушването, все още са необходими различни физични и механични методи за усъвършенстването им, които да ограничат проблемите със замърсяването на мембраната.

За подобряване на приложимостта на нанофилтруването са проведени различни видове изследвания. Проучванията показват, че изчислителната динамика на флуидите (Computational Fluid Dynamics - CFD) е полезен инструмент, който може да осигури цялостно изследване на процеса на мембранно филтруване.

Изчислителната динамика на флуидите се използва ефективно за моделиране на процесите на мембранно разделяне и подпомага проектирането и оптимизирането на мембранни биореактори и мембранни модули. Във фокуса на изследванията са както разпределението на скоростите във флуида и около мембранната повърхност, така и масопредаването през мембраната и условията на запушване на нейната повърхност [1, 14]. Развиват се и модели с повишена сложност, отчитащи взаимовръзката между кинетиката на реакцията (в биореактора) и процеса на филтруване с хидродинамичната картина в интегриран MBR [1]. В случаите на изнесени мембранни модули обект на моделиране е концентрационният поляризационен слой при различни условия: в стационарен и нестационарен режим [2]; с или без механично разбъркване в Dead-End (DE) режим на филтруване (когато посоката на движение на флуида и на пермеата съвпадат) [3]; в Cross-Flow (CF) режим на филтруване (когато посоката на движение на флуида е тангенциална на повърхността на мембраната) [2, 4]. Разглеждани са случаи само за граничния слой или в комбинация с активния слой на мембраната [5], както и случаи, когато е взето предвид и развитието на допълнителен слой замърсители върху мембранната повърхност [6].

Хидродинамичните изследвания са насочени предимно към намаляване и контролиране на запушването на мембраната (т.нар. fouling); това може да се постигне чрез създаване на благоприятни хидродинамични условия в

близост до повърхността на мембраната. По-големите напрежения на срязване и изразената турбулентност (респ. усилване на конвективния поток далеч от мембраната) оказват съществено въздействие върху намаляването на замърсяването на мембранната повърхност. Последното е обект на моделиране (включително 3D [1]) при различна геометрия на повърхността на мембраната (плоска, тръбна или тип кухи влакна) [4, 5, 7, 8, 9] в присъствие на газови мехурчета [10, 11, 12] при разбъркване [1] или при въвеждане на допълнителна енергия (вибрации, движение на мембраната) [13].

CFD се прилага широко при подобни изследвания [14], като се набляга на разпределението на напреженията на срязване по повърхността на мембраната. Последното се влияе основно от следните фактори: разбъркването (структурата на потока при съответния тип бъркачка), вискозитетът на флуида (особено в случаите на сложна реология), размерът на мехурчетата и дебитът на газа (при аерирани биореактори с потопени мембрани или при използване на газовата фаза за контрол на запушването на мембраната).

Приложението на CFD за описание на масопреноса през мембраната е свързано с различни подходи за включване на мембраната в модела и все още представлява предизвикателство пред изследователите. Публикуваните досега изследвания доказват потенциала на CFD моделирането предимно при предсказване на хидродинамичните условия в мембранен реактор или мембранен модул с дадена геометрия, а в по-малка степен при изследване на преноса през мембраната.

Работната хипотеза при изследване на масопредаването е, че може да се достигне достатъчна точност на модела. Това би позволило симулиране на условията в концентрационния поляризационен слой и получаване на

надеждни оценки на коефициентите на масопредаване в зоната около мембраната.

За да се оцени ефективността на интегрирания процес, е необходимо подробно проучване на поведението на потоците в MBR и преноса на отделните компоненти. И двата въпроса се свеждат до оценка на скоростта на масопредаване през мембранната повърхност. Има множество проучвания и публикации, посветени на масопредаването. Параметърът за представяне на ефективността на масопредаване на MBR, който служи за сравнение на различните конфигурации MBR, почти не е посочен или подчертан. Ако се приеме, че ефективността E_{ff} се определя като степента на постигане на целевата стойност, то тя трябва да бъде формулирана в относителни единици, т.е. като съотношение на стойностите на k_m . Правилният начин е да се вземе съотношението на локалната стойност k_m , съответстваща на локалния градиент на скоростта, към максималната стойност k_{max} , която е определена като максималната желана целева стойност, постижима при най-благоприятните работни условия.

$$E_{ff} = \frac{k_m}{k_{max}} \quad (1)$$

По този начин стойността на E_{ff} може да бъде определена в различните зони на мембрания модул и, нещо повече, ако се основава на широко приет стандарт, може да се сравни ефективността E_{ff} на различни мембранни съдове.

II. ЦЕЛ И ЗАДАЧИ

1. Цел

Основната цел на дисертационния труд е математично моделиране на хидродинамиката и масопредаването при нанопилтруване с цел определяне на оптимални условия на процеса в следните конфигурации:

- 1) Dead-End филтрационна клетка с бъркачка и плоска дънна мембрана;
- 2) Cross-Flow филтрационна клетка - кръгла с тангенциално подаване на флуида;
- 3) Cross-Flow правоъгълна филтрационна клетка.

Работната хипотеза при хидродинамичните изследвания е, че могат да бъдат определени оптимални условия по отношение на нивата на скоростите, сръзващите напрежения и хомогенността на полето до повърхността на мембраната. Тези условия са в пряка връзка с контрола на запушването на мембраната и осигуряването на стабилен пермеатен поток.

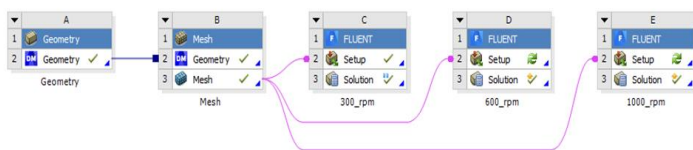
Работната хипотеза при изследване на масопредаването е, че може да се достигне достатъчна предиктивност на модела. Това би позволило симулирането на условията в концентрационния поляризационен слой и получаването на надеждни оценки на коефициентите на масопредаване в зоната около мембраната. Разработването на модели на масопредаване в мембранен модул ще бъде принос към настоящото състояние на науката в тази област. Значението му за формулиране на иновативни инженерни решения произлиза от възможността да се оптимизират работните условия на филтрационния процес с цел по-добра производителност и качество на получените продукти. Информация за това се получава от разпределението на концентрациите във времето и пространството на системата, получено въз основа на решението на модела.

2. Задачи

- 1) Моделиране на хидродинамиката на филтрационни клетки с мембранни модули, чрез прилагане на компютъризирана методология на изчислителната динамика (CFD);
- 2) Определяне на срязващите напрежения, динамичното налягане и хидродинамичните режими на смесване, в зависимост от спецификата на конкретната система;
- 3) Анализ на наличните корелации за коефициентите на масопредаване в близост до полупропускливата мембрана, както и на тези, прогнозирани от CFD симулациите;
- 4) Изследване на масопредаването в различни конструкции на клетки за нанопилтруване:
 - в граничния слой до мембранната повърхност;
 - за клетката като цяло;
 - определяне на коефициентите на масопредаване от флуида към мембраната;
- 5) Ще бъде предложен метод за оценка на ефективността на филтрационния процес чрез ключови параметри, които свързват хидродинамиката с разделителния процес с цел определяне на оптималните условия на процеса.
- 6) Сравнение на CFD симулациите с експериментални данни.

III. МОДЕЛ ЗА ИЗСЛЕДВАНЕ НА НАНОФИЛТРУВАНЕ ЧРЕЗ ИЗЧИСЛИТЕЛНА ДИНАМИКА НА ФЛИУДИТЕ

Поставените задачи са решени чрез числен експеримент с помощта на софтуерния пакет ANSYS FLUENT R13.0. Продуктът представлява съчетание от инструменти с графичен интерфейс, осигуряващи задаване и решаване на задачи, свързани с хидродинамиката на реални флуиди. Централният модул (Solver) на FLUENT решава уравненията на Навие–Стокс (Navier-Stokes) по зададени гранични условия и генерира информация за хидродинамичното поле, като задава стойности на широк диапазон хидродинамични променливи за всяка точка от анализирания обем. С негова помощ са проведени числените симулации, свързани със задачите, поставени в дисертацията. За тази цел работната постановка е разделена на няколко етапа, включващи: /1/ изготвяне на точен геометричен модел, /2/ дискретизация на обема посредством изчислителната мрежа от клетки, /3/ провеждане на изчислителна итерационна процедура за числено решаване на уравненията на преноса, /4/ обработка и анализ на полученото хидродинамично решение (фигура 1), [15].



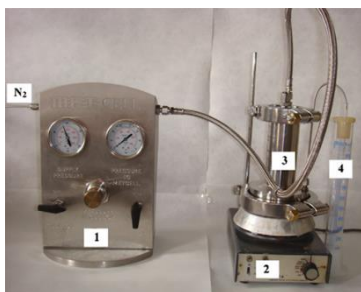
Фигура 1. Работна постановка на поставените задачи

IV. ИЗСЛЕДВАНЕ ЧРЕЗ CFD НА ФИЛТРАЦИОННИ КЛЕТКИ

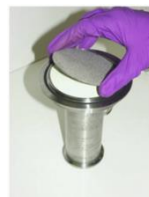
1. Изследване чрез CFD на изнесена мембрана с поток на пермеата, перпендикулярен на мембранната повърхност

Изнесена мембранна клетка с бъркачка и плоска дънна мембрана, тип Dead-End, т.е. посоките на движение на флуида и на пермеата съвпадат (перпендикулярно на мембранната повърхност).

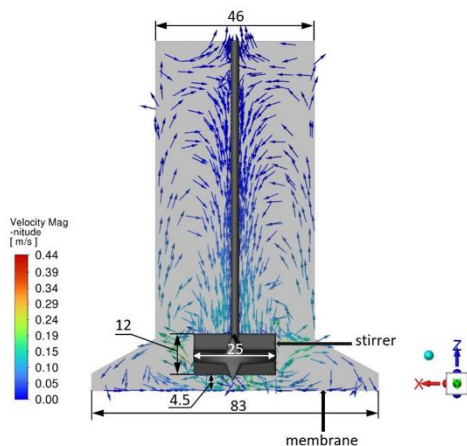
Предложеният числен модел се основава на лабораторна мембранна клетка за нанофилтруване METcell, произведена от Evonic MET LTD, UK [16]. Лабораторната клетка има цилиндрична горна част и конична основна част с обща височина 100 mm, диаметър на горната част 46 mm, и диаметър на мембраната 83 mm. Разбърква се с бъркачка с височина 12 mm, разположена на 4,5 mm от повърхността на мембраната. Основата на клетката е поставена върху плочата на магнитно устройство. В експерименталния модул бъркачката е магнит с полимерно покритие, който се върти в магнитно поле. Лабораторният модел на клетката се намира в Химикотехнологичен и металургичен университет, Катедра „Инженерна химия” (фигура 2). Геометрията на клетката за разбъркване е показана на фигура 3.



- (1) Регулатор на налягането;
- (2) Магнитна бъркалка;
- (3) Филтрационна клетка;
- (4) Измерващ цилиндър (Пермеат).



Фигура 2. Лабораторен модел на филтрационна клетка с плоска мембрана



Фигура 3. Филтрационна клетка с разбъркване: размери и модел на потока по вектори на скоростта (оцветени по величината на скоростта) при 300 rpm

1.1. Предварителна информация от физични експерименти за определяне на условията на симулацията

Лабораторната клетка е с ефективна повърхност $A=54 \text{ cm}^2$, трансмембранно налягане от 20 bar и работен обем до 200 ml.

Нанфилтрационната клетка предвижда еднократно зареждане с флуид и филтруване до определено съотношение пермеат/ретентат, след което презареждане. Тази конструкция е подходяща за лабораторни изследвания и се използва широко с цел първоначално проучване на поведението на потока и задържането за определена система. Това периодично действие предполага по-голяма вероятност за замърсяване и респ. запушване на мембраната.

Потокът на пермеат $J \text{ (L/m}^2 \text{ h)}$ се получава от обема на събрания пермеат $V \text{ (ml)}$ за времето на филтруване $t \text{ (s)}$ - среден поток, или за определен времеви интервал - моментен поток:

$$J = \frac{V_p}{A \cdot t} \quad (2)$$

Еволюцията на потока и задържането по време на нанофилтруване се измерва на всеки 20 ml пермеат. Използвани са мембрани, устойчиви на органични разтворители: Duramem TM (MWCO 300 и 500 Da) и Starmem TM 240 (MWCO 400 Da). Направени са изследвания с цел да се прогнозира потокът и задържането по време на концентрация на полифеноли и флавоноиди от етанолови (96%) екстракти на растителни суровини: Мурсалски чай (надземни части от култивиран хибрид (*Sideritis scardica* × *Sideritis syriaca*), Тютюневи листа (*Nicotiana tabacum* L.), Жълт кантарион (*Hypericum perforatum* L. - венчелистчета, листа, пъпки). Растенията съдържат различни видове ниско- и средномолекулни

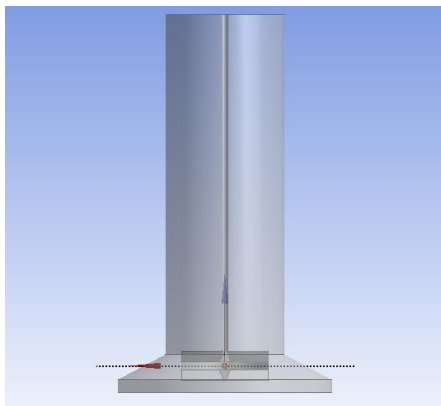
съединения, молекулната им маса варира от 300 до над 700 Da [17].

1.2. Особенности на модела и граничните условия

За създаването на точен 3D геометричен модел е възприета следната последователност за изграждане на виртуален прототип на филтрационна клетка с мембрана:

- Построяване на точната геометрия на разбъркващото устройство. В този случай е приложен способ за изграждане на лопатките на бъркачката и функцията „Pattern“ за последващо ротационно копиране.
- Построяване на диска към лопатките и вала. Изградени са прости цилиндрични тела със зададен диаметър и височина.
- Създаване на тяло, очертаващо обема на съда. В конкретния случай това са 2 цилиндъра и пресечен конус между тях, със съответните височини и диаметри.

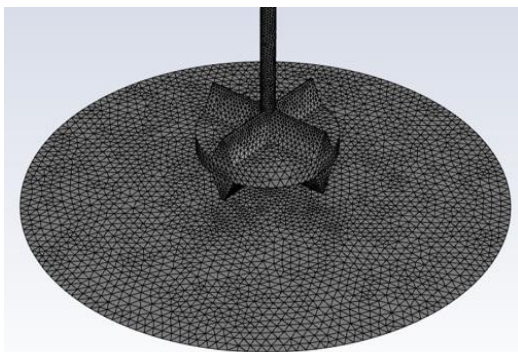
В резултат на горната последователност е построен точен геометричен модел на филтрационна клетка с плоска мембрана (фигура 4).



Фигура 4. Филтрационна клетка с плоска мембрана

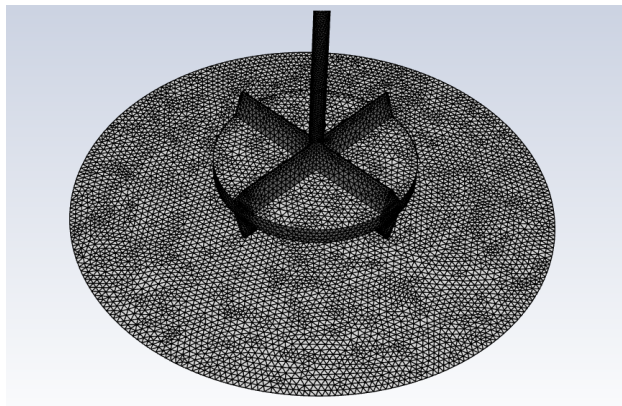
След оформянето на геометричния модел, са определени повърхностите, необходими за задаване на граничните условия. Това е от изключително значение, защото указва на изчислителния модул как да третира отделните геометрични фигури. За нуждите на процеса в настоящето изследване класификацията е следната: разбъркващо устройство, вал и мембрана. Като завършващ етап на тази процедура, е изградена самата мрежа, която е тетраедрична с нарастващ брой елементи до повърхността на мембраната.

Симулациите са проведени с два диаметъра на бъркачката 25 mm и 34 mm. За илюстрация, мрежата при диаметър на бъркачката 25 mm е представена на фигура 5.



Фигура 5. Изчислителна мрежа на филтрационна клетка с плоска мембрана с диаметър на бъркачката 25mm, съдържаща 959 128 елемента

На фигура 6 е представена същата конфигурация с диаметър на бъркачката 34 mm.



Фигура 6. Изчислителна мрежа на филтрационна клетка с плоска мембрана с диаметър на бъркачката 34mm, съдържаща 1 382 526 елемента

Изчислителният процес бе настроен на няколко етапа чрез панела „Solver“. В него са зададени основните параметри, които имат отношение към методиката на изчисленията:

- Въвеждането на турбулентността в уравненията на преноса е проведено чрез модели за намиране на турбулентната кинетична енергия k и скоростта на нейната дисипация ϵ . В настоящото изследване е използван “Realizable k - ϵ model”
- Изчисленията са проведени с физичните свойства на водата при 20°C, която се приема за несвиваема и изотермична с постоянна плътност и вискозитет.
- Скоростта на въртене на разбъркващото устройство по време на експеримента е съответно 300, 600 и 1000 rpm.

- Възприетият модел на единичната подвижна отправна система (Moving reference frame - MRF) [18] дава възможност за стационарно решение. За стабилно въртяща се рамка (т.е., скоростта на въртене е постоянна) е възможно да се трансформират уравненията на движението на флуида към въртящата се рамка, така че да са възможни решения в стационарно състояние. По подразбиране, ANSYS FLUENT позволява активирането на движеща се референтна рамка с постоянна скорост на въртене. Ако скоростта на въртене не е постоянна, трансформиранията уравнения ще съдържат допълнителни параметри, които не са включени във формулировката на FLUENT.
- За елементите, класифицирани като стени, скоростта е нулева;
- На изход е зададено налягане 0 Pa. Това противоречи на физичния процес на филтруване, но стойността на налягането не влияе на решението на приетите уравнения. В модела на турбулентност k-epsilon, се приема за обратен поток през граничната повърхност турбулентна кинетична енергия $1 \text{ m}^2/\text{s}^2$ и скорост на дисипация на турбулентната кинетична енергия $1 \text{ m}^2/\text{s}^3$.
- Изчислителната процедура е инициализирана чрез задаване на конкретни стойности на следните променливи, характерни за хидродинамичния модел, като изходни стойности за първата итерация. На скоростните компоненти в обема x, y, и z е зададена нулева стойност. За началната турбулентна кинетична енергия е зададена стойност $1 \text{ m}^2/\text{s}^2$, а за скоростта на дисипация на турбулентната кинетична енергия – $1 \text{ m}^2/\text{s}^3$.
- След тестове за независимост на резултатите от мрежата, е намерен добър компромис между

изчислителното време и отклоненията на параметрите. Критериите за сходимост се следят по време на изчислителната процедура. Тя се прекъсва автоматично при изпълнение на всички зададени критерии. В конкретните изследвания е приет критерий за сходимост $1e-05$ за всички уравнения в решаваната система.

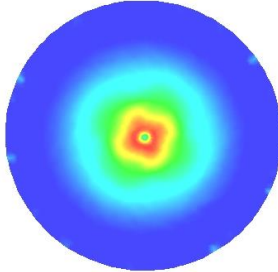
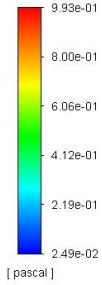
1.3. Резултати - разпределение на скорост, напрежение на срязване, коефициент на масопредаване при DE филтруване

Настоящото изследване симулира поведението на потока в DE филтрационна клетка, и разкрива ефекта от скоростта на разбъркване върху скоростта и разпределението на напрежението на срязване по повърхността на мембраната. Въртенето на бъркачката създава ротационен поток, тангенциален на повърхността на мембраната, който има за цел да намали концентрационния поляризационен слой на повърхността на мембраната и да предотврати запушването ѝ. Експериментално наблюдаваното увеличаване на потока на пермеата с повишаване на скоростта на разбъркване е свързано с увеличаването на срязващите сили по повърхността на мембраната, което позволява контрол на нейната работа.

На фигура 7 са представени напреженията на срязване по повърхността на мембраната при скорости на въртене 300, 600 и 1000 rpm и диаметър на бъркачката 25 mm. Същите са представени на фигура 8 при диаметър на бъркачката 34 mm.

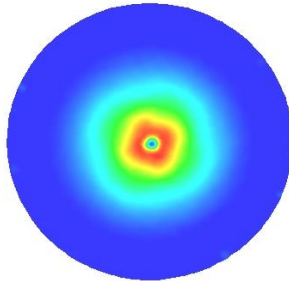
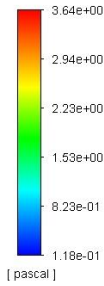
d = 25 mm

contour-1
Wall Shear Stress



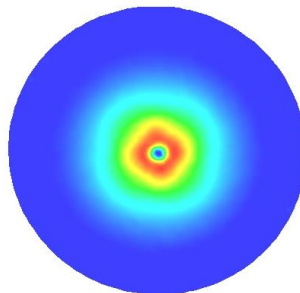
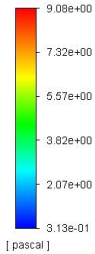
300 rpm

contour-1
Wall Shear Stress



600 rpm

contour-1
Wall Shear Stress

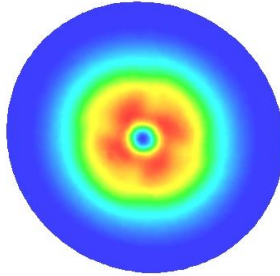
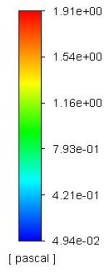


1000 rpm.

Фигура 7. Напрежения на срязване по повърхността на мембраната при диаметър на бъркачката 25 mm

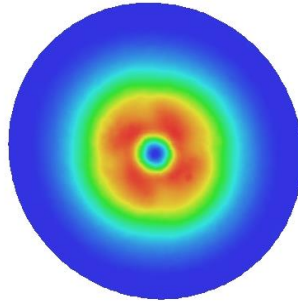
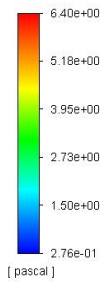
d = 34mm

contour-1
Wall Shear Stress



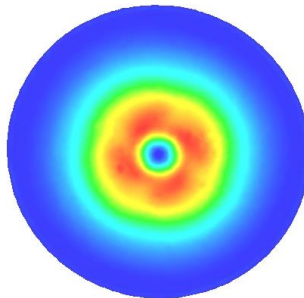
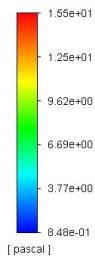
300 rpm

contour-1
Wall Shear Stress



600 rpm

contour-1
Wall Shear Stress



1000 rpm

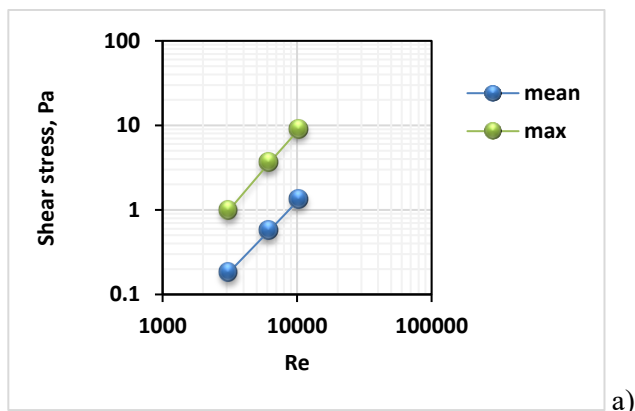
Фигура 8. Напрежения на срязване по повърхността на мембраната при диаметър на бъркачката 34 mm

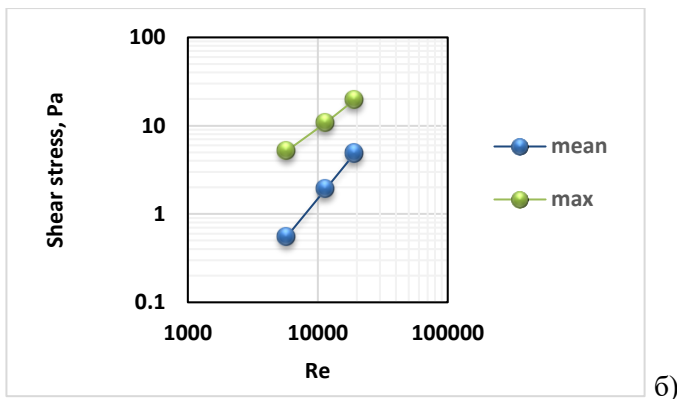
Повишаването на скоростта на бъркачката от 300 до 1000 rpm води до 7-кратно увеличаване на изчисленото средно напрежение на срязване на стената, показано на фигури 9а) и 9б). Изменението на осредненото по повърхността на мембраната и максималното напрежение на срязване е представено като функция на числото на Рейнолдс на бъркачката:

$$Re = \left(\frac{\rho N d^2}{\mu} \right), \quad (3)$$

където N са обороти (s), d е диаметър на бъркачката (m), ρ е плътност на флуида (kg.m^3) и μ динамичен вискозитет (Pa.s).

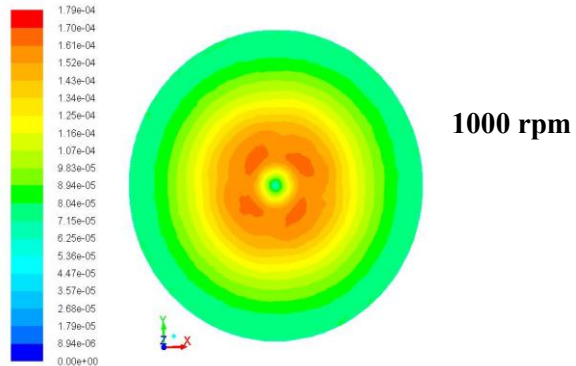
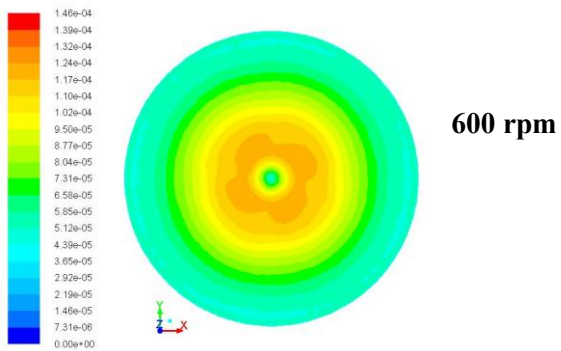
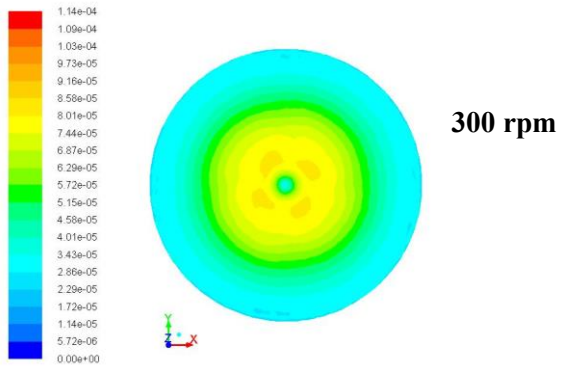
Данните от фигури 9а) и 9б) съответстват добре на измерванията, получени чрез електрохимичен способ в DE филтрационна клетка, Коутцу и Карабелас (Koutsou and Karabelas) [19], с бъркачка със същия дизайн и подобни размери. Отчетеното средно напрежение на срязване при мембраната е в диапазон 0,8-9 Pa при 150-900 rpm.





Фигура 9. Напрежения на срязване (Pa) спрямо числото на Re, осреднени върху мембранната повърхност и максимални а) при диаметър на бъркачката 25mm; б) при диаметър на бъркачката 34 mm.

Фигура 10 представя резултатите от изчисленията за минималния, максималния и осреднения коефициент на масопредаване към повърхността на мембраната.



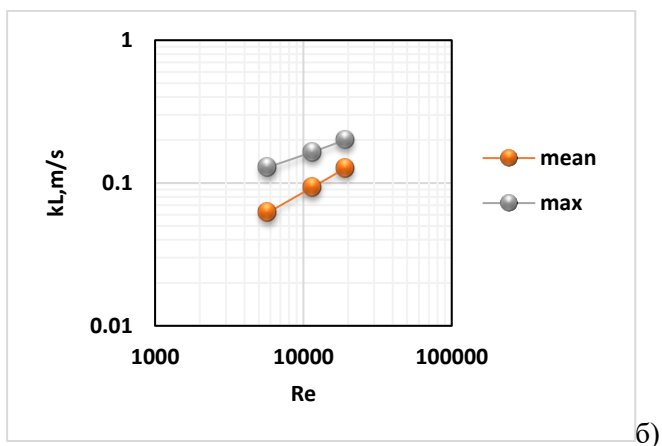
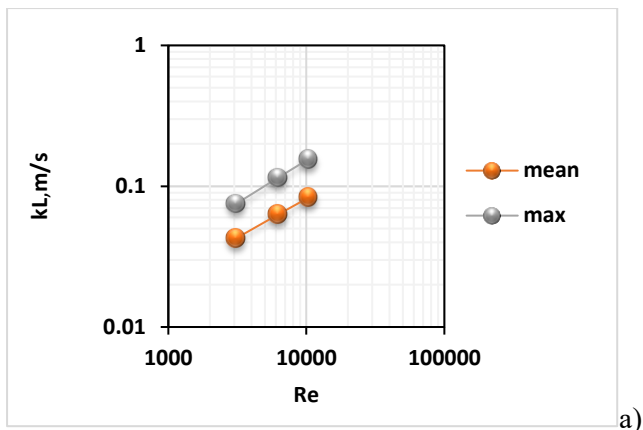
Фигура 10. Разпределение на коефициент на масопредаване (m/s) върху повърхността на мембраната

Това изследване представя симулация на потока на течността в DE филтруване, включително моделиране на масопредаването. Ефективната работа на мембраната се влияе от формирането на концентрационен поляризационен слой на повърхността на мембраната и запушването ѝ, което се контролира главно от разпределението на срязващите напрежения, коефициента на масопредаване и големината на мембранната повърхност.

Локалният коефициент на масопредаване k_L (m/s) се оценява от разпределението на напрежението на срязване на стената върху повърхността на мембраната, като се използва корелацията на Рейс и Ханрати [20] (урав. 4). Уравнението свързва скоростта на срязване и скоростта на дифузия в граничния слой.

$$k_L = 0.862 \left(\frac{\tau D^2}{\mu d_e} \right)^{1/3}, \quad (4)$$

където τ е напрежението на срязване на стената (Pa), D е коефициентът на дифузия $\sim 6,7 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ и d_e е диаметърът на сензора (0,001 m).



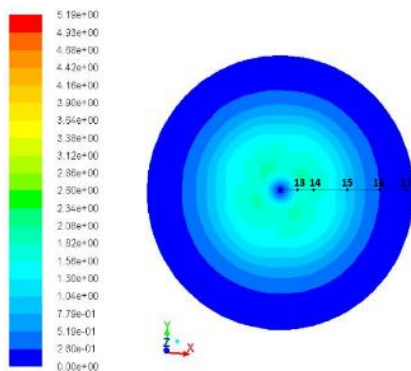
Фигура 11. Осреднен по повърхността и максимален коефициент на масопредаване (m/s) до мембранната повърхност, $m/s \times 10^{-4}$; а) при диаметър на бъркачката 25mm; б) при диаметър на бъркачката 34 mm

Изчисленията с диаметър на бъркачката 0,025 m показват, че по-малкият диаметър води до намаляване на средното напрежение на срязване на стената от 67–72% в мембраната. Това намаление води до 31–35% понижение

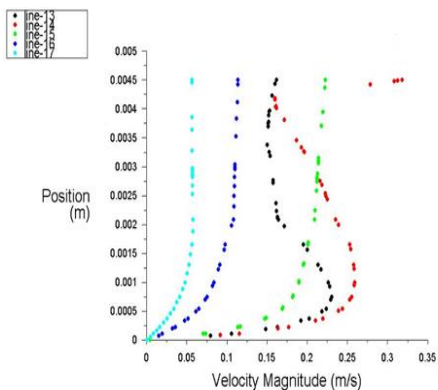
на средното k_L . Изчисленията са направени за диапазон на скорости на въртене от 300 до 1000 rpm, което съответства на $Re = 5800-19200$.

За специфична геометрия на клетката и бъркачката, CFD симулациите позволяват визуализиране на полето на скорости и срязващи напрежения близо до повърхността на мембраната - фигура 12a). Те показват неравномерно разпределение на напрежението на срязване върху повърхността на мембраната, като стойностите варират в рамките на един порядък на величината.

Поради ниското съотношение на диаметъра на бъркачката към мембраната (0.41), значителна зона от мембраната работи при ниски скорости на течността, което е свързано със съпротивлението на пренасяне на маса в прилежащия граничен слой. Очаква се това да се понижи при повишени напрежения на срязване върху повърхността на мембраната. Същата фигура илюстрира точките, в които се снемат профили на скоростта, нормални на мембраната. Поради аксиалната симетрия на потока са избрани пет точки по радиуса на мембраната - две от тях са разположени в и три - извън зоната на бъркачката (разстояние от оста съответно 5.185 mm; 10.37 mm; 20.745 mm; 31.115 mm; 39 mm). Скоростта на разбъркване е равна на тази, използвана в експериментите, т.е., 300 rpm. Съответните профили на скоростта до мембраната са показани на фигура 12б). Те се отнасят за пространството под бъркачката (разстояние 5 mm от дъното). При движение от оста на бъркачката към периферията на съда скоростта се увеличава, докато се намираме в зоната на бъркачката; след това постепенно намалява, а профилите на скоростта стават по-плавни.



а)



б)

Фигура 12. CFD симулации а) напрежение на срязване (Pa) върху мембранната повърхност; б) профили на скоростта до мембраната

Извършените CFD симулации на нанопилтрационната клетка с дънна мембрана и разбъркване показват неравномерно разпределение на срязващите напрежения по повърхността на мембраната, поради неблагоприятно съотношение на диаметрите на бъркачката и клетката

(=0.41). По-дебели гранични слоеве и високи коефициенти на задържане благоприятстват концентрационната поляризация. Това е важно за масообменното съпротивление в прилежащия към мембраната граничен слой. Дебелината на този граничен слой, определена от скоростните профили в различни точки по повърхността на мембраната, е между 60 и 430 nm и средна стойност от 250 nm за мембраната като цяло.

Тези резултати също така подкрепят необходимостта от по-горе споменатия математичен модел, отчитащ концентрационната поляризация, тъй като тя се проявява по-силно при наличие на по-дебел граничен слой и високи коефициенти на задържане при мембраната.

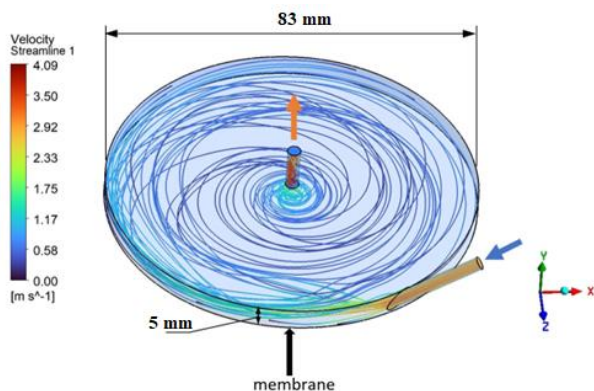
Изводи:

Изчисленият коефициент на масопредаване съгласно теорията за концентрационната поляризация е сравним с наличните в литературата стойности за естествени антиоксиданти от типа на полифенолите.

Изследването позволява да се изчисли и прогнозира значението на концентрационната поляризация при разделянето на полифеноли чрез наночилтруване, както и да се подобрят условията на процеса.

2. Изследване чрез CFD на изнесена цилиндрична клетка с поток на пермеата, тангенциален на мембранната повърхност (CF)

Използвана е система с кръстосан поток METcell (Membrane Extraction Technology Ltd., UK, с четири последователно свързани плоски листови клетки (площ на мембраната 54 cm^2 всяка) при постоянна скорост на напречен поток от $2 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{s}$ и трансмембранно налягане от 20 bar. Филтрационната клетка представлява плосък цилиндър с височина 5 mm, с мембрана в долната част на основата с диаметър 83 mm (фигура 13).



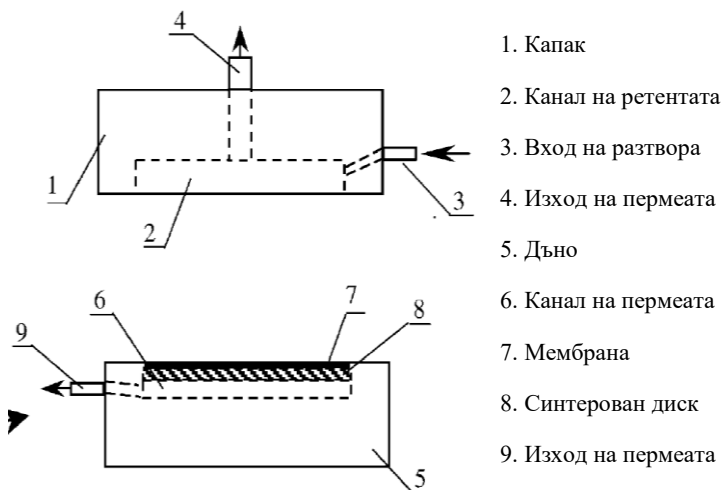
Фигура 13. Филтрационна клетка с напречен поток: размери и линии на напречния поток (оцветени по величината на скоростта) при $Q_f = 2 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{s}$

Както се вижда от фигура 13, тази клетка е проточна, като на фигурата е илюстриран входящия и изходящ поток.

2.1. Предварителна информация от физичните експерименти за определяне на условията на симулацията

За основа на изчисленията са използвани експериментални наблюдения върху поведението на потока при филтруване на полифеноли от етанолов екстракт от Мурсалски чай (*Sideritis ssp*). Използвана е мембрана Duramem 500, подробности за експерименталната инсталация са представени в [21]. Мембраната е подложена на предварителна адаптация с разтворителя. Пермеатният поток J (L/m^2h) се получава от обема на пермеата V_p , определен в различни моменти от време t (уравнение 2).

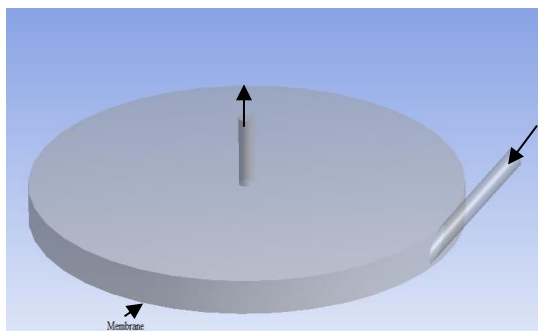
Разтворът навлиза тангенциално в цилиндричната клетка през околната стена на цилиндъра и напуска клетката в центъра на горната основа, осигурявайки турбулентни хидродинамични условия (фигура 14). Площта на мембраната е 54 cm^2 при тангенциален режим Cross-Flow, т.е. посоките на движение на флуида и на пермеата са взаимно перпендикулярни.



Фигура 14. Схема на Изнесена мембранна клетка кръгла с тангенциално подаване на флуида

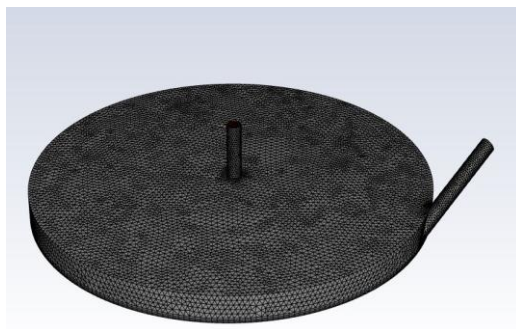
2.2. Особенности на модела и граничните условия

Геометричният модел е показан на фигура 15. Височината на рентгатния канал е 5mm, а диаметърът на входа и изхода е $d_{in/out} = 3 \text{ mm}$, диаметърът на клетката е $D_{cell} = 83 \text{ mm}$. Тангенциалният вход създава кръгов турбулентен поток в клетката, който осигурява стабилна работа чрез намаляване на концентрационната поляризация и предотвратяване на запушването на мембраната. Изходът на концентрата е разположен в центъра на горната част на клетката. Мембраната е разположена на дъното на клетката.



Фигура 15. 3D геометричен модел на филтрационна мембранна клетка кръгла с тангенциално подаване на флуида подаване на флуида

Мрежата на 3D изчислителния домейн е тетраедрична, позволяваща сгъстяване близо до мембранната повърхност. Мрежата е показана на фигура 16 и съдържа 809 293 клетки, определени чрез тестове с различен брой клетки, с цел да се постигне висока точност на резултатите и оптимално време за изчисления.



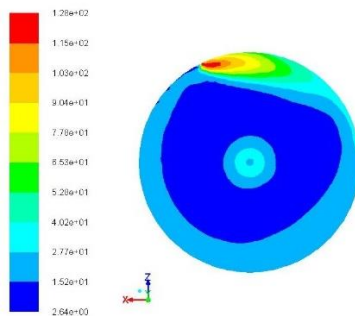
Фигура 16. Изчислителна мрежа, съдържаща 809293 клетки

Изчислителният процес е настроен в няколко етапа чрез панела „Solver“:

- В настоящото изследване е използван моделът “Realizable k-ε model”;
- Използваната течност е вода с постоянни физико-химични свойства;
- Скоростта на подаване е 1,58, 2,83 и 5,90 m/s, при дебит $Q_f = 0,7 - 2,5$ l/min;
- Граничното условие за изхода с налягане е ($p = 0$);
- Всички останали твърди стени на съда (membrane, wall-solid) са задавани като гранично условие тип стена без приплъзване;
- За всяко решение сходимостта е следена непрекъснато. В конкретните изследвания е приет критерий за сходимост $1e-04$ за всички уравнения.

2.3. Резултати – разпределение на скорост, напрежение на срязване, коефициент на масопредаване при CF филтруване.

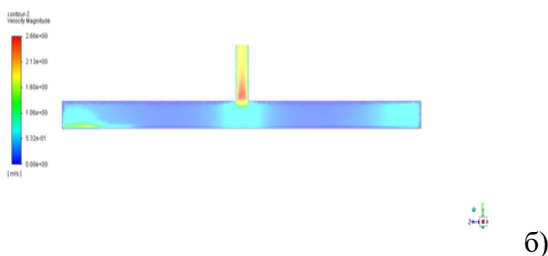
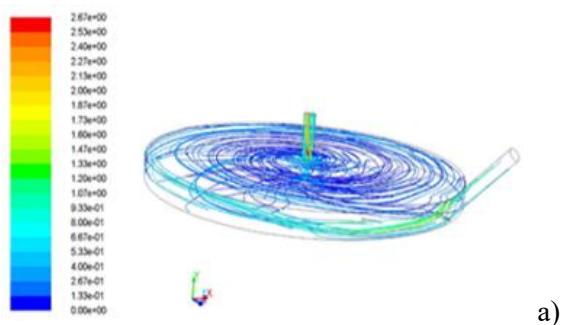
На фигура 17 са представени напреженията на срязване по мембранната повърхност при дебит $Q_f = 2,5$ L/min.



Фигура 17. Напрежения на срязване по мембранната повърхност (Pa), при $Q_f = 2,5$ L/min

Тангенциалната ориентация на захранващия вход води до завихрящ се поток в клетката, който помита

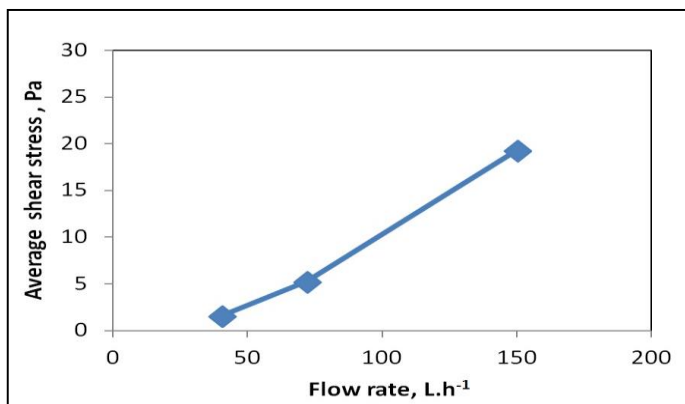
повърхността на мембраната и осигурява тангенциален поток без движещи се части близо до мембраната, както е илюстрирано от линиите на потока на фигура 18а).



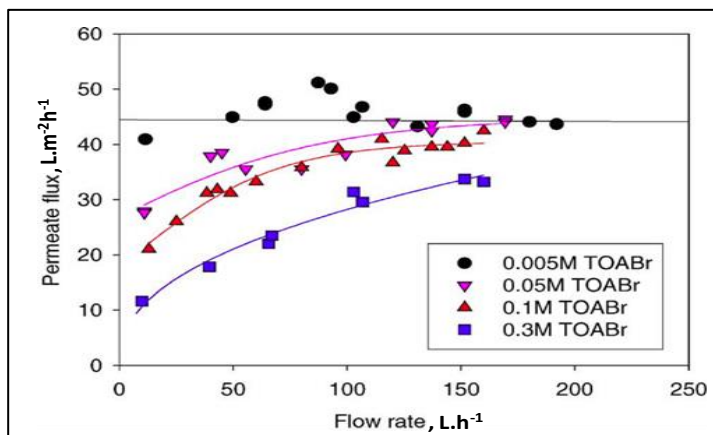
Фигура 18. Разпределение на скоростта (m/s) при а) линиите на потока на плоската кръгла клетка; б) равнина, перпендикулярна на мембраната

Средното напрежение на срязване спрямо скоростта на захранващия поток - фигура 19, се сравнява с експерименталните данни, показващи нарастването на потока на пермеата с увеличаване на скоростта на потока на захранващия материал – фигура 20. Сравнението потвърждава връзката между нарастването на потока на пермеата и силите на срязване на повърхността на

мембраната, което води до намаляване на концентрационната поляризация.

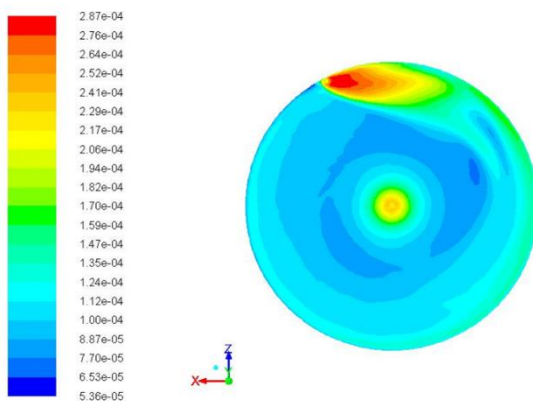


Фигура 19. Средното напрежение на срязване (Pa) спрямо скоростта на захранващия поток (m/s)



Фигура 20. Експериментални данни от литературата за пермеат зависимост на потока от скоростта на захранващия поток при различни концентрации на TOABr в толуенови разтвори

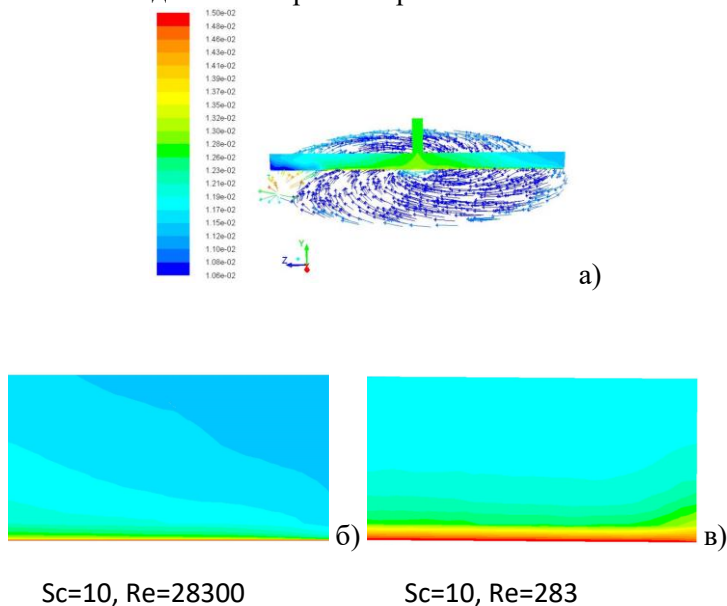
Локалният коефициент на масопредаване по повърхността на мембраната е изчислен по уравнение (4) и показан на фигура 21. При дебит $Q_f = 1,2$ L/min, число на Шмидт $Sc = \mu / D\rho = 1,5 \times 10^3$ и постоянни свойства на разтвора, $\mu = 0,001$ kg/m.s. Разпределението на коефициента на масопредаване е равномерно с изключение на малки области с високи стойности в периферията и центъра на мембраната, които съответстват на високо напрежение на срязване.



Фигура 21. Цветни контури на разпределението на коефициента на масопредаване (m/s) върху мембранната повърхност, $Q_f=1.2$ l/min, $Sc=1,5 \times 10^3$, $Re=28300$

За целите на визуализацията на разпределението на концентрацията и граничния слой на концентрацията, се правят симулации при $Sc = 10$, тъй като малките размери на концентрационния слой при типичното за филтруване число на Шмидт $\sim 10^3$ изискват много фина мрежа близо до мембраната и значително повече изчислително време. При типични условия, граничният концентрационен слой е около 1/10 от вискозния подслой при филтруване с напречен поток [20].

Фигура 22 а) илюстрира концентрационния граничен слой в близост до мембраната. Вижда се, че дебелината на граничния слой е по-малка при по-висока скорост на напречен поток близо до периферията – фигура 22 б). В случая, показан на фигура 22 в), с по-малко число на Рейнолдс, поради по-високия вискозитет, граничният слой е много по-дебел и по-равномерен.



Фигура 22. Концентрационен граничен слой в близост до мембраната (контури на концентрацията в захранващия разтвор в kg/kg) и граничен слой в близост до мембраната

Числото на Шервуд се изчислява чрез корелацията на Чилтън – Колбърн [21] за турбулентен поток:

$$Sh = 0.023Re^{0.8}, \quad (5)$$

където:

$$Sh = \frac{k_L d_h}{D} \quad (6)$$

и

$$Re = \frac{v_f d_h}{\nu} \quad (7)$$

Тук k_L е средният коефициент на масопредаване (m/s), v_f е входната скорост на подаване (m/s), d_h показва хидравличния диаметър на потока, а $\nu = 1 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ е кинематичния вискозитет.

За да се определи хидравличният диаметър, се приема, че движението на флуида в клетката наподобява поток в спираловиден канал. Тъй като височината на клетката h е много по-малка от нейния диаметър, хидравличният диаметър се изчислява чрез $d_h = 2h$, което представлява съотношението на широчината на потока към височината. Уравнението успешно се използва в [21] за OSN в клетка с кръстосан поток със същата конфигурация, но по-голяма мембранна повърхност (78 cm^2). Сравнението на нашите резултати за k_L с данни от литературни източници е представено за справка в Таблица 1.

Таблица 1. Сравнение на изчисления коефициент на масопредаване (m/s) с литературни данни

Author	Q_f (l/min)	Inlet velocit y v_f (m/s)	Volume- average cross-flow velocity v_{va} (m/s)	$Re \times 10^{-4}$	Sh	$k_L \times 10^5$ (m/s)
This study, $Sc=1500$	0.7	1.58	0.57	1.58	586	3.93
	1.2	2.83	0.25	2.83	934	6.26
	2.5	5.90	1.70	5.90	1680	11.3
Peeva et al. (2004)	0.7 - 1.3					0.6 - 1.9
	2 - 2.5					1.7 - 5.3
Koutsou and Karabelas (2012) $Sc=2025$					500- 950	2 - 11

Вижда се, че стойностите на средния коефициент на масопредаване k_L са сравними с данните от други автори. Трябва да се отбележи, че по-ниските стойности на коефициента на масопредаване, отчетени в [21], се получават при по-големи размери на филтрационната клетка, което води до по-ниска скорост на напречния поток, както и до по-висок вискозитет на изследваните там системи.

Таблица 1 показва добро съгласие между настоящите резултати и електрохимичните измервания в [19], извършени във филтрационна клетка с разбъркване. И двете оценки изглеждат приемливи за изследване на

масопредаването и въздействието на важни фактори върху него.

Изводи:

Изчислените стойности на локалните и средните коефициенти на масопредаване са сравними с наличните справочни данни в литературни източници. Получената картина на локалния коефициент на масопредаване съответства на конкретното разпределение на напрежението на срязване на мембраната и е свързана с параметри като напречния поток, скоростта и физикохимичните свойства на системата.

Тангенциалната ориентация на захранващия вход води до завихряне на потока, който обтича мембранната повърхност и осигурява тангенциален поток близо до мембраната, елиминирайки необходимостта от разбъркване с подвижни компоненти. Кръговият турбулентен поток е благоприятен за високо напрежение на срязване на мембраната и предотвратява запушването.

Увеличаването на коефициента на масопредаване със скоростта на напречния поток, в съответствие с експерименталните данни, потвърждава връзката между увеличаването на потока пермеат и намаляването на поляризацията на концентрационния слой.

3. Изследване чрез CFD в правоъгълна филтрационна клетка

3.1. Предварителна информация от физичните експерименти за определяне на условията на симулацията

Изнесената мембранна клетка – правоъгълна, с площ на мембраната 215 cm^2 , тип Cross-Flow лабораторна клетка за нанофилтруване с надлъжно (по цялата ширина) подаване на флуида (MaxiMem, Prozesstechnik GmbH, Switzerland) [22], е показана на фигура 23. Лабораторният модел на клетката се намира в Институт по Физика на Твърдо Тяло към Българска Академия на Науките.



Фигура 23. Правоъгълна изнесена филтрационна клетка

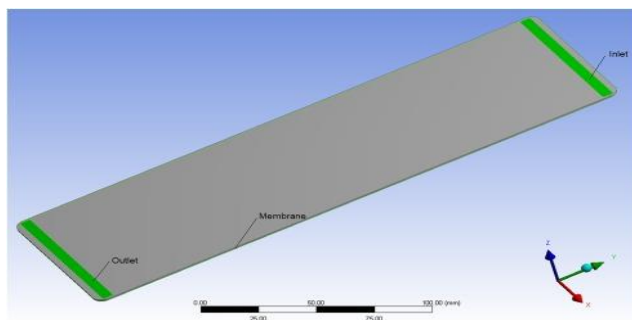
3.2. Особенности на модела и граничните условия

Моделирането чрез CFD (код FLUENT) е фокусирано върху определянето на напрежението на срязване по повърхността на мембраната.

Точен 3D геометричен модел на правоъгълна изнесена мембранна клетка е представен на фигура 24. Моделът бе построен в среда Ansys Design Modeler. След оформянето

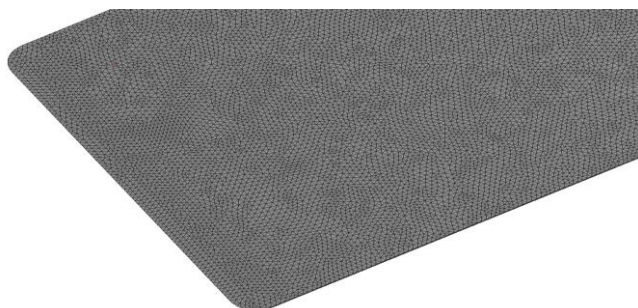
на геометричния модел са определени повърхностите, необходими за задаване на гранични условия (inlet, outlet, membrane).

Мрежата на 3D изчислителния домейн е тетраедрична, позволяваща сгъстяване близо до мембранната



повърхност. Тя съдържа 1 129 587 елемента, показани на фигура 25. Анализът на зависимостта на резултатите от броя на клетките е извършен с цел избор на мрежа, която постига висока точност на резултатите и оптимално време за изчисления.

Фигура 24. 3D геометричен модел на правоъгълна изнесена мембранна клетка



Фигура 25. Мрежа, съдържаща 1 129 587 елемента

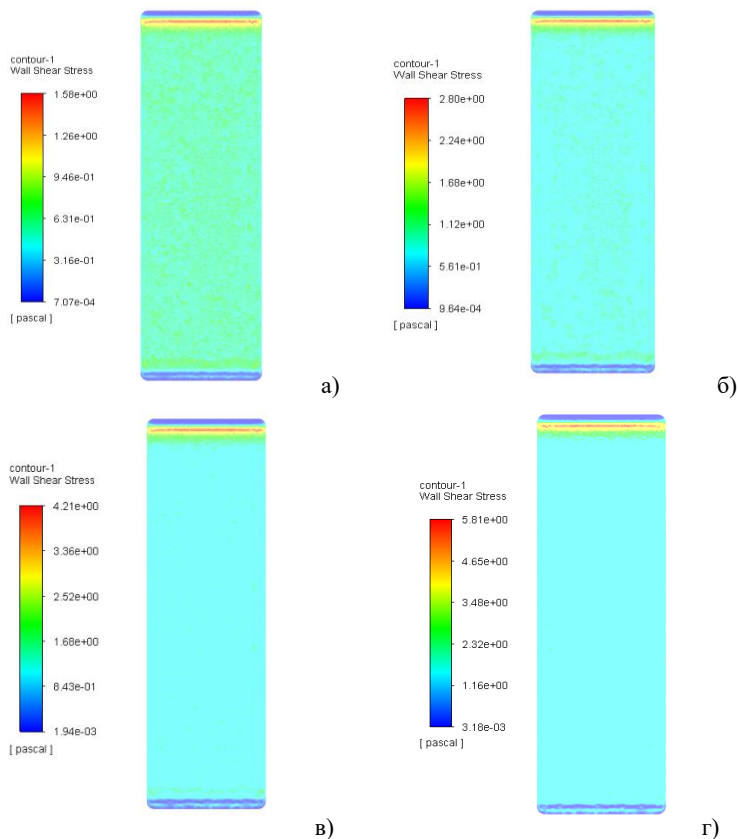
Изчислителният процес е настроен в няколко етапа чрез панела „Solver”. В него са зададени основните параметри, имащи отношение към методиката на изчисление.

- Изчисленията са проведени с отчитане на гравитацията и физичните свойства на водата при 20°C и атмосферно налягане;
- Използван е ламинарен режим ($Re = 260-660$), който съответства на експерименталните условия в клетката. Тези предположения се поддържат от работата на NF клетка в режим на напречен поток с постоянен дебит, и поради скоростта на проникващия поток през мембраната (0,21–0,43 L/h). Скоростта му е незначителна в сравнение с тази на кръстосания (50–125 L/h);
- Скоростта, посочена на входа (0.034, 0.051, 0.068, 0.085 m/s), е в съответствие със стойностите на дебита (48, 72, 96, 120 L/h), използвани в експериментите, и конкретната геометрия (площ на напречното сечение) на входа на клетката;
- Граничното условие за изхода е с налягане ($p = 0$);
- Всички останали твърди стени на съда (membrane, wall-solid) са зададени като гранично условие тип стена (wall);
- За всяка изчислителна процедура непрекъснато се следеше сходимостта. В конкретните изследвания е приет критерий за сходимост от $1e-04$.
- Непропусклива мембрана

3.3. Разпределение на скорости, срязващи напрежения и коефициент на масопредаване при CF филтруване

Това изследване разглежда влиянието на скоростта на обтичане и трансмембранното налягане върху потока пермеат и коефициента на задържане по време на нанофилтруване. По протежение на клетката интензивността на напрежението на срязване е по-висока в

горната част (отчитайки вертикалното положение на клетката и движението на течността надолу), т.е. близо до хранящия канал - фигура 26. Това наблюдение се потвърждава от самата мембранна повърхност след филтруване. Снимка на последната е показана на фигура 27.

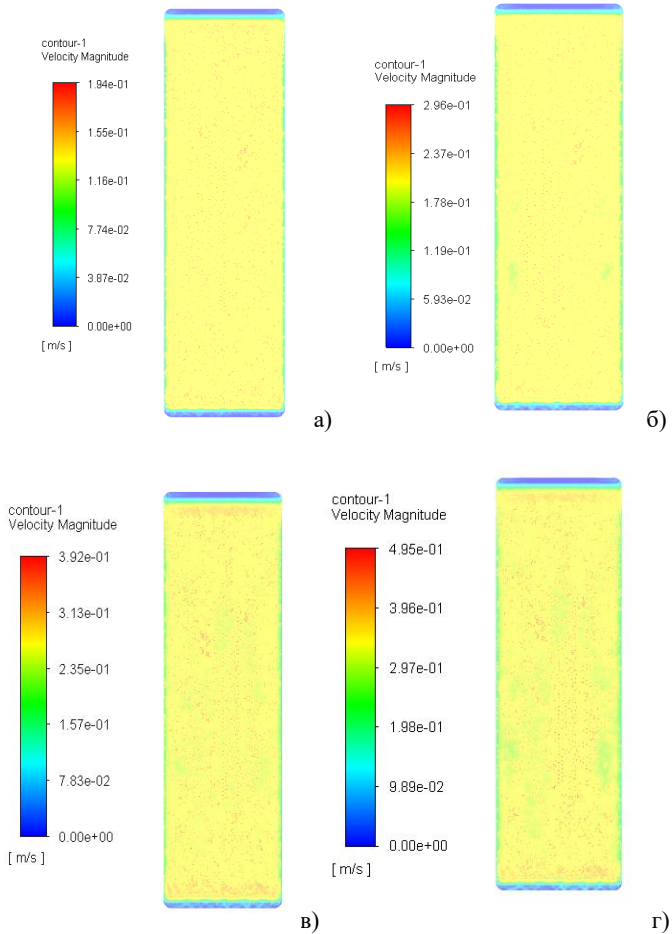


Фигура 26. Напрежения на срязване (P_a) - разпределени върху мембранната повърхност, при тангенциална скорост а) 0.034, б) 0.051, в) 0.069, г) 0.086 m/s



***Фигура 27. Снимка на мембранната
повърхност след нанофилтруване***

На фигура 28 е представена скоростта чрез цветни контури при различни дебити.

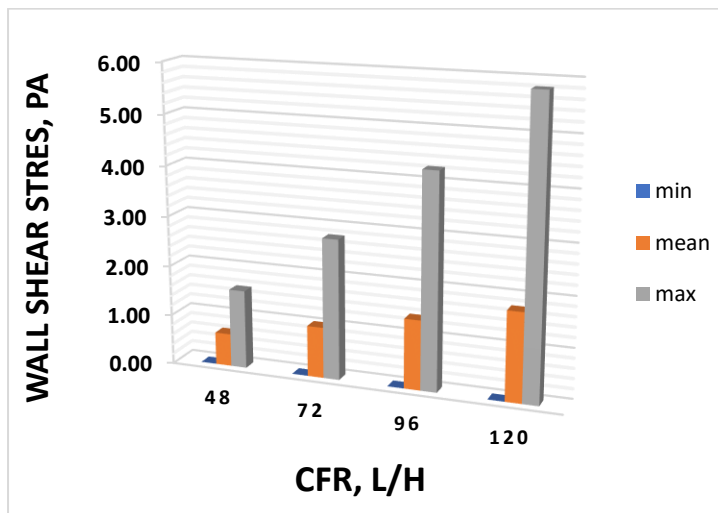


Фигура 28. *Разпределение на скоростта (m/s) във равнина, успоредна на мембранната повърхност на разстояние 1 mm, при тангенциална скорост а)0.034, б) 0.051, в)0.069, г) 0.086 m/s*

Ефектът от по-високия дебит се открива в нехомогенността на разпределението на напрежението на срязване по повърхността на мембраната, т.е.,

максималните срязващи напрежения се увеличават по-бързо от съответния минимум и усреднените по повърхността стойности.

Резултатите от CFD симулациите - обхват на скоростта и напрежения на срязване, както и хомогенността на последните около мембраната - могат да бъдат свързани (макар и качествено) с експериментално наблюдаван незначителен ефект от концентрационната поляризация и запушване. Тоест, хидродинамичните условия в клетките се считат за благоприятни за нанофилтруване на тази многокомпонентна система, в която три групи компоненти са били следени. 2,5-кратното нарастване на дебита води до 3,7 пъти по-високо изчислено максимално напрежение на срязване, докато средните усреднени по повърхността стойности се увеличават 2,7 пъти. Тези резултати са илюстрирани на фигура 29.



Фигура 29. Напрежения на срязване (Pa) спрямо дебита на захванващия тангенциален поток (CFR)

Изводи:

Симулацията на CFD показва картината на потока във филтрационната клетка и равномерното разпределение на напрежението на срязване на стената по цялата повърхност на мембраната. Този резултат потвърди добрите условия по отношение на контрола на запушване и концентрационната поляризация в разглежданите режими на работа.

4. Сравнителен анализ на резултатите от симулиране чрез CFD на нанофилтруване в режими DE и CF филтруване

Обработени са собствени резултати относно поведението на пермеатния поток във времето при нанофилтруване с два типа клетки (DE и CF) с цел анализ на хидродинамичната обстановка около мембранната повърхност, пряко свързана с явленията на замърсяване/запушване на мембраната и следващо намаляване на пермеатния поток. В практиката на мембранното разделяне се използват полуемпирични модели описващи кинетиката на този процес, които в случаите на природни екстракти, дават преимущество на механизма на отлагане на утайка върху мембранната повърхност. Концентрационният профил до мембранната повърхност, който е пряко свързан с явленията на концентрационна поляризация, зависи от моментната стойност на пермеатния поток. Именно в тези случаи хидродинамичното поле около мембраната има съществена роля за възпрепятстване на тези процеси. Използваният в дисертацията CFD подход има голямо предимство, позволявайки да се види разпределението на скоростите и концентрациите и свързаните с тях изчисления (срязващи напрежения, коефициенти на

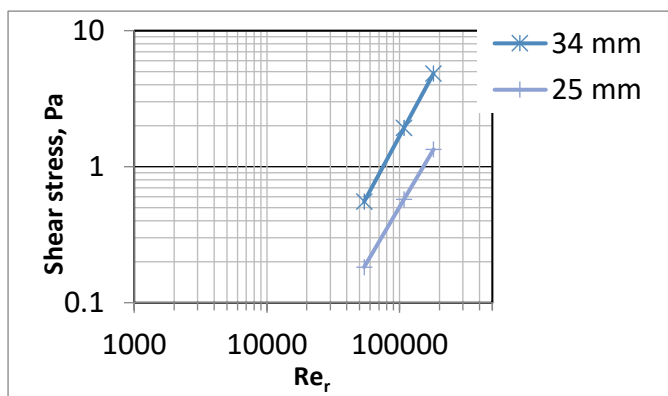
масопредаване) в контекста на конкретна конструкция мембранна клетка или реактор с потопена мембрана.

В настоящата работа е решен хидродинамичният модел за плоска филтрационна клетка с нормален и тангенциален поток спрямо мембраната (DE, CF). Във втория случай изчисленията са проведени за две различни геометрии на клетката и начини на въвеждане на потока. Получените, осреднени по повърхността на мембраната (разстояние 1 mm) срязващи напрежения са обработени като функция на Re на бъркачката (при DE клетката) и Re на обтичащия флуид (при CF клетката). Пространственото разпределение на локалните коефициенти на масопредаване дава информация за разпределението на коефициента на ефективност E_{ff} по повърхността на мембраната. Осреднената по повърхността на мембраната стойност на E_{ff} е важна характеристика, която е функция от работните условия в реактора – число на Рейнолдс, привиден вискозитет, скорост на аериране.

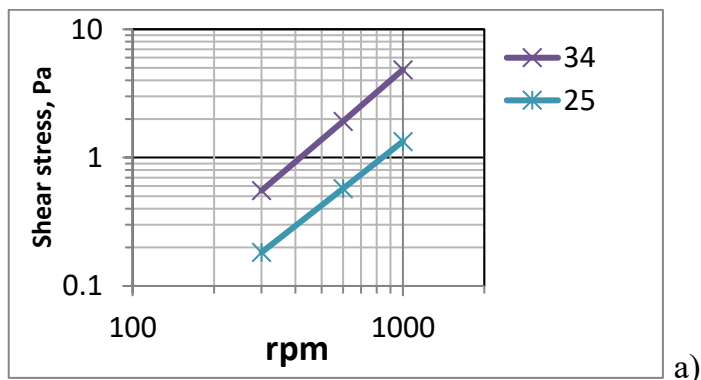
Въртенето на бъркачката предизвиква силен тангенциален поток в DE клетката, който се плъзга по повърхността на мембраната и предотвратява замърсяването ѝ. Увеличаването на потока на пермеата с увеличаване на скоростта на бъркачката, наблюдавано в експеримента, е свързано с увеличаване на силите на срязване на повърхността на мембраната, което позволява контрол на работата ѝ.

Увеличаването на оборотите на бъркачката е една от основните мерки за контрол на запушването на мембраната в тази мембранна клетка. То води до увеличаване на напрежението на срязване на стената (по повърхността на мембраната) и не толкова съществено увеличение на коефициента на масопредаване (урав. 3). Всъщност, ефектът е толкова по-значим, колкото по-силно изразена е концентрационната зависимост на разделянето през мембраната. Това означава по-високи концентрации в

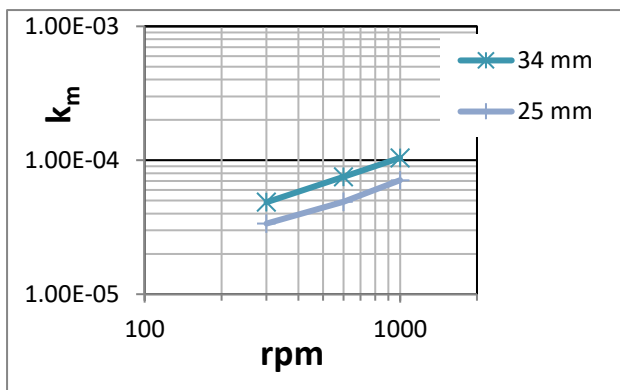
захранването и/или по-голямо отношение на обемите пермеат/захранващ флуид. Влиянието на скоростта на въртене върху срязващите напрежения и коефициентите на масопредаване на повърхността на мембраната е показано на фигура 30 и фигура 31 за два различни диаметъра на бъркачката, респ. различни съотношения към диаметъра на мембраната (83mm).



Фигура 30. Напрежения на срязване (Pa) спрямо числото на Re , осреднено по мембранта повърхност при диаметър на бъркачката 25mm и 34 mm



a)



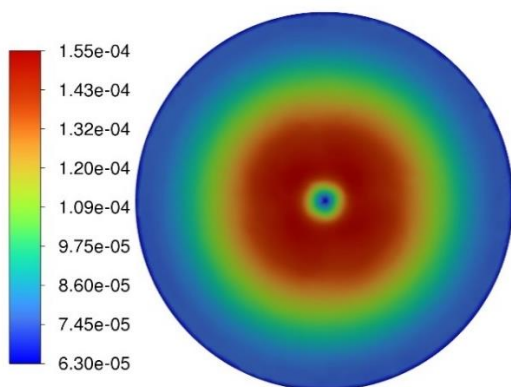
б)

**Фигура 31. а) осреднено по напрежение на срязване (P_a)
 б) Коефициент на масопредаване k_m (m/s) по повърхността на мембраната за диаметър на бъркачката 25 mm и 34 mm**

Резултатите за случай 1 на по-малката бъркачка с $d = 25$ mm в сравнение със случай 2 с диаметър на бъркачката $d = 34$ mm, показват значително намаление на средното повърхностно претеглено напрежение на срязване на стената при мембраната с разлика от около 67% (за скорост на въртене 300 - 1000 rpm), (фигура 31а). По-големият диаметър на бъркачката е важен главно за осигуряване на условия на високо напрежение на срязване при мембраната, благоприятни за контрол на концентрационната поляризация и стабилен процес на филтруване, но ефектът върху коефициента на масопредаване не е толкова съществен. Поради връзката в уравнение (4), според която при постоянни физически свойства, съответното намаление на осреднения коефициент на масопредаване с малката бъркачка е с малка разлика от около 37% (фигура 31б).

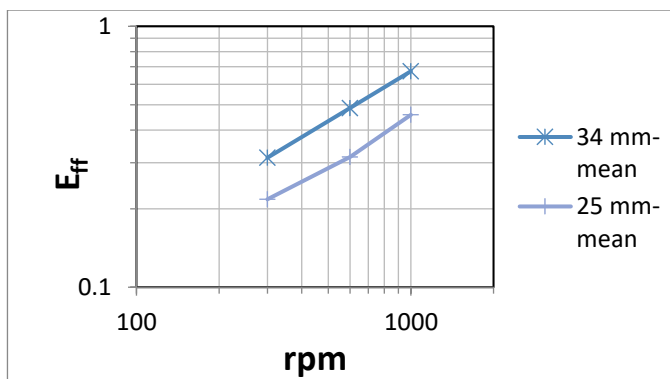
Полученото разпределение на k_L върху повърхността на мембраната (фигура 32) при $d = 34$ mm, $N = 1000$ rpm показва, че най-високата стойност $k_{max} = 1,55 \times 10^{-4}$ m/s се постига на радиално разстояние $r = r_c$ близо до върха на

бъркачката. Максималната стойност на локалния коефициент на масопредаване, постигната при тези условия, може да се приеме като най-високата постижима скорост на масопредаване за филтрационната клетка. Ефективността на филтруване, представена на фигура 33, се изчислява като съотношение на коефициента на масопредаване, претеглена по площта на мембраната средна стойност, към $k_{\max} = 1.55 \times 10^{-4}$ m/s (ур. 1).



Фигура 32. Контурни графики на разпределението на локалния коефициент на масопредаване k_L (m/s) върху повърхността на мембраната при 1000 rpm и $d=34$ mm

По-висока ефективност на масопредаване ($E_{\text{ф}}$) се получава при по-високи скорости на въртене и по-голям диаметър на бъркачката, което се вижда от графиката на фигура 33. Увеличението на ефективността при 1000 rpm в сравнение с това при 300 rpm е около 2 пъти. Увеличението на ефективността при $d_a=34$ mm, в сравнение със случая при $d_a=25$ mm, е около 1.5 пъти.



Фигура 33. Ефективност на масопредаване в DE филтрационна клетка спрямо скоростта на бъркачката (rpm)

Увеличаването на потока на пермеата с увеличаване на скоростта на бъркачката, наблюдавано от експеримента, е свързано с увеличаването на силите на срязване на повърхността на мембраната, което позволява да се контролира работата на мембраната. Известни са няколко критерия за сравнение на DE и CF режимите:

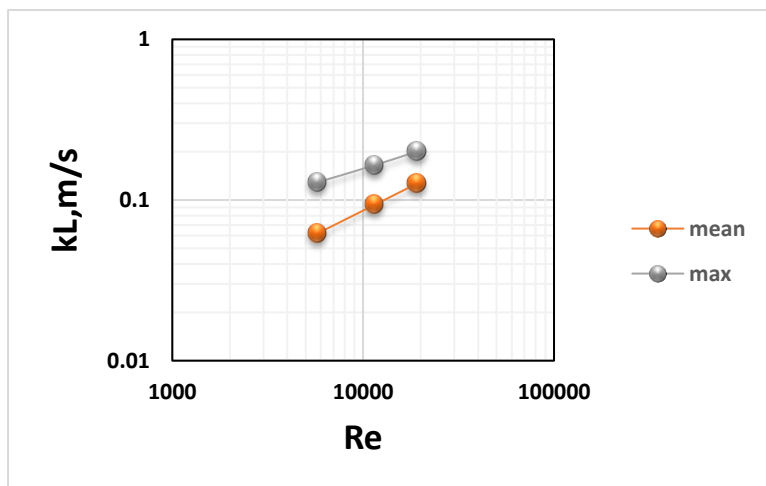
- равенство на числата на Рейнолдс в двете мембранни клетки, изчислени съответно с диаметър и периферна скорост на бъркачката (DE) и респ. тангенциална скорост на потока и хидравличен диаметър на клетката (CF);
- еднакви осреднени по повърхността на мембраната срязващи напрежения;
- еднакви осреднени по повърхността на мембраната коефициенти на масопредаване.

Получените зависимости, следвайки всеки от тези критерии, се различават, поради което експерименталните потвърждения са неотменима част от изследването.

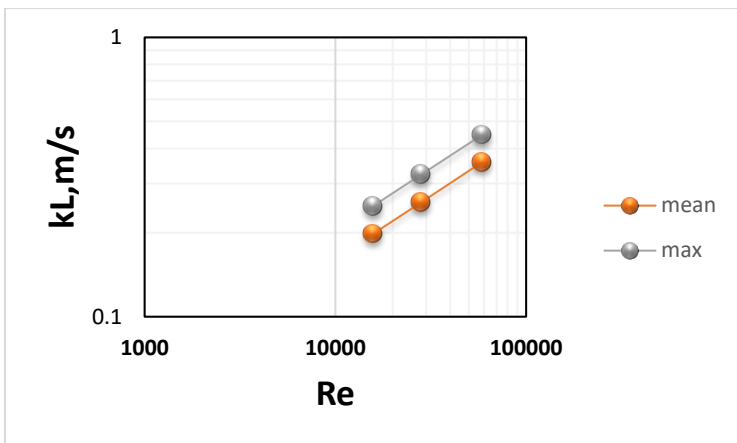
Сравнението между двата режима дава насоки за необходимата скорост на въртене в DE клетката, за да се

съобразят с определени условия на напрежение на срязване в CF клетката. В практиката това съобразяване обикновено се движи от DE в малък мащаб (лабораторни изследвания) към CF с преход към по-големи размери на мембраната, тъй като това е режимът на работа на промишлените мембранни модули.

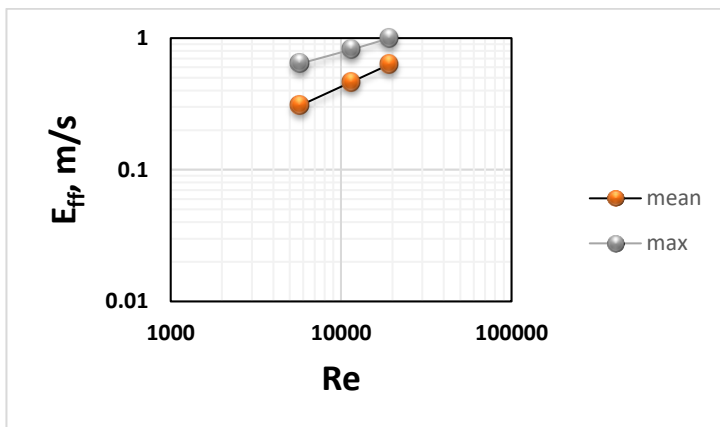
Полученото пространственото разпределение на локалните коефициенти на масопредаване при DE филтруване (фигура 34) и CF филтруване (фигура 35), дава информация за разпределението на E_{ff} по повърхността на мембраната - фигура 36 и фигура 37.



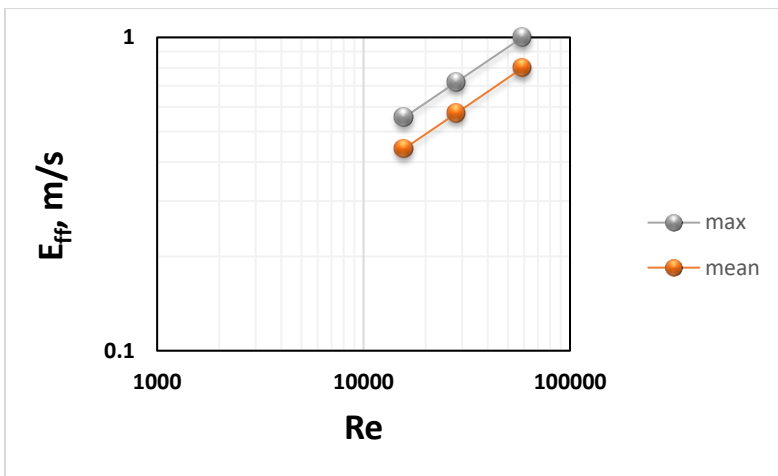
Фигура 34. Осреднен по повърхността и максимален коефициент на масопредаване (m/s) $\times 10^4$ до мембранната повърхност при DE филтруване спрямо числото на Re



Фигура 35. Осреднен по повърхността и максимален коефициент на масопредаване (m/s) $\times 10^{-4}$ до мембранната повърхност при CF филтруване спрямо числото на Re



Фигура 36. Ефективност на масопредаване в DE филтрационна клетка спрямо числото на Re



Фигура 37. Ефективност на масопредаване в CF филтрационна клетка спрямо числото на Re

Мембранните клетки обичайно са изследвани предварително от производителя и се дава препоръчителна стойност или диапазон за обемния дебит на флуида през клетката (за CF) или за оборотите на бъркачката (за DE). Показаните на фигурата данни съответстват на тези диапазони от стойности. В литературата CF клетката се счита, че има преимущества, което се вижда и на представената фигура, където показаните стойности за CF клетката лежат по-високо и отклонението между максимума и средната стойност е по-малко, т.е. имаме по-добро и по-хомогенно по протежение на мембраната масопредаване.

Сравнителният анализ между DE и CF режимите на работа предоставя ценна информация за оптимизиране на хидродинамичните параметри в изследваните филтрационни клетки. При скорост на разбъркване 1000 rpm в DE клетката и скорост 5.90 m/s в CF клетката се

демонстрира общ диапазон на стойности на числото на Рейнолдс между 15 768 и 19 228, което съответства на сходен хидродинамичен режим.

V. ПРИНОСИ

Приносите в настоящия дисертационен труд са свързани с мембранно интегрирани биореактори и са насочени към широка област от промишлени приложения. Основните резултати, представени в дисертацията, са получени чрез моделиране на изчислителната динамика на флуидите, базирани на предишен опит с концентриране на антиоксиданти, като полифеноли и флавоноиди, от екстракти от природни продукти чрез нанофилтруване. Численото изследване използва инструментите на ANSYS FLUENT, базиран на метода на крайния обем, за числено решаване на уравненията на Навие-Стокс.

1. Оценка на влиянието на хидродинамичната картина и разпределение на напреженията на срязване при мембранни филтрационни процеси чрез изчислителната динамика на флуидите

- Допълнени са знанията относно мембранното разделяне/концентриране чрез нанофилтруване в тангенциален режим за концентриране на биологично активни съединения в екстракти от лечебни растения с органични разтворители. Анализирано е влиянието на два фактора – концентрация на разтвореното вещество и скорост на тангенциалния поток, които имат тясна връзка с концентрационната поляризация при нанофилтруване в тангенциален режим.
- Експерименталният подход се допълва от числени техники за оценка на ролята на модела на кръстосан поток в клетката. Разпределението на скоростта и напрежението на срязване върху повърхността на мембраната е получено чрез CFD симулации. Изчисленията позволяват определяне на диапазон от скорости и напрежения, представляващи компромис между минимално запушване на мембраната от една

страна и минимално стресиране/повреждане на клетъчната маса в обема на мембранен биореактор с бъркачка.

2. Описание и прогноза на масопренасянето при мембранни филтрационни процеси чрез CFD

- Проведената CFD симулация разкрива разпределението на концентрацията в захранващия канал. Тя допълва предишни данни за модела на потока с нови знания за преноса на маса, насочени към разбиране и контрол на феномена на концентрационната поляризация. Получените резултати са анализирани в съответствие с наличните експериментални данни.
- Допълнени са знанията за хидродинамиката и масопредаването във филтрационна клетка с нормален поток и механично разбъркване, като чрез CFD симулации са изяснени локалните скоростни профили, дебелините на граничния слой и разпределението на локалните коефициенти на масопредаване, което позволява по-добро разбиране на механизмите, определящи концентрационната поляризация. Изводите от тях намират косвена подкрепа в експерименталните наблюдения в литературата вкл. собствени изследвания с нанофилтруване на природни екстракти.

3. Метод за оценка на ефективността

- Разработеният метод за оценка на ефективността на пренос при интегрирани процеси в биореактор с мембранно разделяне е базиран на използването на потенциала на CFD симулирането и на връзката между хидродинамичната картина в реактора и условията за масопредаване през мембраната. Той има

широк потенциал за сравнителен анализ на различни
конструктивни решения.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] A. Boyle-Gotla, P. D. Jensen, S. D. Yap, M. Pidou, Y. Wang и D. J. Batstone, „Dynamic multidimensional modelling of submerged membrane bioreactor fouling,“ *Journal of Membrane Science*, том 467, pp. 153-161, 2014.
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2014.05.028>
- [2] R. Salcedo-Díaz, P. García-Algado, M. García-Rodríguez, J. Fernández-Sempere и F. Ruiz-Beviá, „Visualization and modeling of the polarization layer in crossflow reverse osmosis in a slit-type channel,“ *Journal of Membrane Science*, том 456, pp. 21-30, 2014.
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2014.01.019>
- [3] K. Xiao, Y. Shen и X. Huang, „An analytical model for membrane fouling evolution associated with gel layer growth during constant pressure stirred dead-end filtration,“ *Journal of Membrane Science*, том 427, pp. 139-149, 2013.
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2012.09.049>
- [4] M. Ngo, T. Ueyama, R. Makabe, X. Bui, L. Nghiem, T. Nga и T. Fujioka, „Fouling behavior and performance of a submerged flat-sheet nanofiltration membrane system for direct treatment of secondary wastewater effluent,“ *Journal of Water Process Engineering*, том 41, p. 10991, 2021.
<https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2021.101991>
- [5] A. Vargas, I. Moreno-Andrade и G. Buitrón, „Controlled backwashing in a membrane sequencing batch reactor used for toxic wastewater treatment,“ *Journal of Membrane Science*, том 320, № 1-2, pp. 185-190, 2008.
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2008.03.073>
- [6] G. B. Van den Berg и C. A. Smolders, „Flux decline in ultrafiltration processes,“ *Desalination*, том 77, pp. 101-133, 1990.
[https://doi.org/10.1016/0011-9164\(90\)85023-4](https://doi.org/10.1016/0011-9164(90)85023-4)
- [7] H. Jiang, Z. Qu, Y. Li, R. Chen и W. Xing, „One-step semi-continuous cyclohexanone production via hydrogenation of phenol in a submerged ceramic membrane reactor,“ *Chemical Engineering Journal*, том 284, pp. 724-732, 2016.
<https://doi.org/10.1016/j.cej.2015.09.037>

- [8] Z. Trad, C. Vial, J.-P. Fontaine и C. Larroche, „Modeling of hydrodynamics and mixing in a submerged membrane bioreactor,“ *Chemical Engineering Journal*, том 282, pp. 77-90, 2015.
<https://doi.org/10.1016/j.cej.2015.04.119>.
- [9] X. Yan, Q. Wu, J. Sun, P. Liang, X. Zhang, K. Xiao и X. Huang, „Hydrodynamic optimization of membrane bioreactor by horizontal geometry modification using computational fluid dynamics. *Bioresource Technology* 2016, 200, 328-34.,“ *Bioresource Technology*, том 200, pp. 328-334, 2016.
<https://doi.org/10.1016/j.biortech.2015.10.050>
- [10] Z. F. Cui, S. Chang и A. G. Fane, „The use of gas bubbling to enhance membrane processes,“ *Journal of Membrane Science*, том 221, № 1-2, pp. 1-35, 2003.
[https://doi.org/10.1016/S0376-7388\(03\)00246-1](https://doi.org/10.1016/S0376-7388(03)00246-1)
- [11] E. Braak, M. Alliet, S. Schetrite and C. Albasi, "Aeration and hydrodynamics in submerged membrane bioreactors," *Journal of Membrane Science*, vol. 379, no. 1-2, pp. 1-18, 2011.
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2011.06.004>.
- [12] P. Wei, Z. Kaisong, W. Gao, L. Kong и R. Field, „CFD modeling of hydrodynamic characteristics of slug bubble flow in a flat sheet membrane bioreactor,“ *Journal of Membrane Science*, том 445, pp. 15-24, 2013
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2013.05.036>.
- [13] X. Liu, Y. Wang, D. Waite и G. Leslie, „Fluid Structure Interaction analysis of lateral fibre movement in submerged membrane reactors,“ *Journal of Membrane Science*, том 504, pp. 240-250, 2016.
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2015.12.056>.
- [14] M. Mushtaq, M. Bibi, R. Mehmood, M. Amin, K. Sanullah и A. Iqbal, „Fluid Dynamics Technique in Membrane Bioreactor Systems,“ *Archives of Computational Methods in Engineering*, том 31, pp. 641-661, 2024.
<https://link.springer.com/article/10.1007/s11831-023-09993-y>
- [15] K. Feng, C. Li, M. Zhang и X. Liu, „Simulation and Computational Study of CFD on Tube MBR Membrane Assembly,“ *Discrete Dynamics in Nature and Society, Special Issue*, 2021.

- <https://doi.org/10.1155/2021/5577715>.
- [16] „EVONIK METCell equipment,“ [Онлайн]. Available: <https://www.m-ps.ch/product-and-services/evonik-metcell-equipment>
- [17] I. Tsibranska, I. Saykova и В. Tylkowski, „Flux and rejection behavior in nanofiltration of polyphenols and flavonoids from,“ *SCIENTIFIC WORKS OF UNIVERSITY OF FOOD TECHNOLOGIES*, том L.XII, pp. 514-518, 2015.
https://scholar.google.com/scholar?hl=bg&as_sdt=0%2C5&q=Flux+and+rejection+behavior+in+nanofiltration+of+polyphenols+and+flavonoids+from&btnG=
- [18] „ANSYS FLUENT 12.0 Theory Guide,“ ANSYS Inc. 2009-01-23, [Онлайн]. Available: https://www.afs.enea.it/project/neptunius/docs/fluent/html/th/main_pre.htm.
- [19] С. Р. Koutsou и А. Karabelas, „Shear stresses and mass transfer at the base of a stirred filtration cell and corresponding conditions in narrow channels with spacers,“ *Journal of Membrane Science*, том 399, pp. 60-72, 2012.
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2012.01.029>.
- [20] L. Reiss и Т. Hanratty, „An experimental study of the unsteady nature of the viscous sublayer,“ *AIChE Journal*, том 9, № 2, pp. 154-160, 1963.
<https://doi.org/10.1002/aic.690090204>.
- [21] L. Peeva, E. Gibbins, S. Luthra, L. White и R. Stateva, „Effect of concentration polarisation and osmotic, pressure on flux in organic solvent nanofiltration,“ *Journal of Membrane Science*, том 236, pp. 121-136, 2004.
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2004.03.004>.
- [22] [Онлайн]. Available: <https://www.psrozesstechnik.com/en/membrane-technology/membrane-unit-construction/membrane-filtration-laboratory/membrane-filtration-maximem.html>.
<https://www.ps-prozesstechnik.com/en/membrane-technology/membrane-unit-construction/membrane-filtration-laboratory/membrane-filtration-maximem.html>.

Публикации и доклади на научни резултати по темата на дисертацията

Публикации

1. Dzhonova - Atanasova, D., Panjovska, S., Tsibranska, I.. Flow behavior in a stirred dead-end filtration cell. Scientific Works of University of Food Technologies, 64, 1, 2017, ISSN:1314-7102, 214-223;
https://uft-plovdiv.bg/site_files/file/scienwork/scienworks_2017/docs/3-30.pdf
2. Daniela B. Dzhonova-Atanasova, Iren H. Tsibranska, Stela P. Paniovska. CFD Simulation of Cross-Flow Filtration. Chemical engineering transactions, 70, AIDIC, 2018, ISSN:2283-9216, DOI:10.3303/CET1870341, 2041-2046. SJR:0.293;
<https://www.aidic.it/cet/18/70/341.pdf>
3. I.Tsibranska, D.Dzhonova-Atanasova, St. Panyovska. Effect of variable flux and rejection in membrane separation of polyphenols-containing natural extracts. Journal of Chemical Technology and Metallurgy, 55, 4, University of Chemical Technology and Metallurgy, 2020, ISSN:1314-7471, 765-771. SJR :0.259;
https://journal.uctm.edu/node/j2020-4/12_19-170_p_765-771.pdf
4. Tonova, K., Lazarova, M., Dencheva-Zarkova, M., Paniovska, S., Tsibranska, I., Stanoev, V., Dzhonova, D., Genova, J. Separation of glucose, other reducing sugars and phenolics from natural extract by nanofiltration: Effect of pressure and cross-flow velocity. Chemical Engineering Research and Design, 162, October 2020, Elsevier, 2020, ISSN:0263-8762, (Scopus):0.83, JCR-IF (Web of Science):3.35 Q1.
<https://doi.org/10.1016/j.cherd.2020.07.030>

Доклади и постери

1. Dzhonova-Atanasova, D., Paniovska, S, Tsibranska, I. Flow Behaviour in Dead-End Filtration Cell: Experimental Observation and CFD Modelling, Юбилеен десети пролетен семинар на докторантите и младите учени "Интердисциплинарна химия", 21-23.04.2017, София, България;
2. S. Panyovska, D. Dzhonova, I Tsibranska, N. Kalassov, R. Manatbaev. CFD modeling of mass transfer through a membrane , optimization of a liquid distributor in a semi-industrial packed column by cfd methods. Sustainable processes, sustainable systems, sustainable environment, 08.11.2019 София, България;
3. Nurdaulet Kalassov, Daniela Dzhonova, Irene Tsibranska, Stela Panyovska, Rustem Manatbayev. Application of integrated membrane bioreactors in renewable energy industry optimization of a liquid distributor in a semi-industrial packed column by cfd methods, sustainable processes, Sustainable systems, sustainable environment, 08.11.2019 София, България;
4. D. Dzhonova, St. Paniovska, I. Tsibranska, Flow behavior in a stirred dead-end filtration cell, International Scientific Conference "Food science, Engineering and Technologies, 2017, 20 - 21.10.2017, Plovdiv, Bulgaria;
5. D. Dzhonova, P. Velikov, V. Stanev, St. Paniovska, A numerical study of mass transfer in a cross-flow filtration cell, Юбилейна научна конференция с международно участие "25 години инженерно франкофонско обучение в химикотехнологичен и металургичен университет", 27-29.09.2017, София, България;
6. I. Tsibranska, D. Dzhonova-Atanasova, St. Paniovska, Effect of variable flux and rejection – numerical simulation and experimental evidence in membrane separation of polyphenols-containing natural extracts, Tenth Jubilee

National Conference on Chemistry, 26-28.09.2019, София, България;

7. Dzhonova-Atanasova, Daniela, Tsibranska, Iren, Paniovskа, Stela, CFD simulation of cross-flow filtration, 21st Conference on Process Integration for Energy Saving and Pollution Reduction, 25 - 29.08.2018, Прага – Чехия;
8. Stela Panyovska, Daniela Dzhonova, Iren Tsibranska, CFD simulation of dead-end filtration, 23 Polish Conference on Chemical and Process Engineering, 02 - 05.06.2019, Варшава, Полша.