

РЕВЕРСИВНАЯ МИКРОФИЛЬТРАЦИЯ

А. К. Видыбида, С. С. Духин, В. П. Дубяга

Известным фактором, снижающим интенсивность баромембранных технологий [1], является концентрационная поляризация, заключающаяся в повышении концентрации задерживаемых мембраной частиц у ее поверхности. Осложняющее влияние концентрационной поляризации на интенсивность мембранного процесса столь велико, что, как справедливо отметил автор обзора

[2], «история развития и разработки мембранных технологий — это история изучения и борьбы с концентрационной поляризацией».

Важнейшим этапом этой борьбы было снижение концентрационной поляризации при организации тангенциального течения жидкости вдоль поверхности мембраны [3]. Роль этого течения состоит в том, что задерживаемые мембраной частицы непрерывно удаляются, увлекаясь потоком жидкости, в результате чего ослабляется

© А. К. ВИДЫБИДА, С. С. ДУХИН, В. П. ДУБЯГА, 1991

процесс накопления частиц вблизи поверхности мембраны — в зоне концентрационной поляризации. В ламинарном и турбулентном режимах течения действует еще дополнительный механизм, связанный с броуновской и турбулентной диффузией [4]. Как известно, турбулентные пульсации порождают интенсивный транспорт частиц, пропорциональный градиенту их концентрации в направлении ее убывания. Важнейшими характеристиками турбулентности являются масштаб турбулентных пульсаций λ и средняя пульсационная скорость u' . По аналогии с кинетической теорией газов коэффициент турбулентного обмена представляют как произведение этих величин [4]

$$D_t = \lambda' u'. \quad (1)$$

Оба сомножителя, фигурирующие в (1), убывают с уменьшением расстояния X до поверхности канала (в нашем случае до поверхности мембраны), так что на некотором характерном расстоянии X' коэффициент турбулентной диффузии падает до величины, равной коэффициенту броуновской диффузии.

Поскольку ввиду накопления задерживаемых мембраной примесей их концентрация возрастает с убыванием X , возникает диффузионный поток от поверхности мембраны вглубь раствора. При $X < X'$ — это поток броуновской диффузии, при $X > X'$ преобладает турбулентная диффузия. Диффузионный отвод задерживаемых мембраной примесей в поток раствора ограничивает рост их концентрации у поверхности мембраны. Повышенная концентрация примесей у поверхности мембраны определяется балансом потоков примеси к поверхности мембраны (за счет конвекции) и от нее (за счет диффузии).

Повышение скорости фильтрации ведет к росту концентрационной поляризации, мерой которой является отношение концентрации у поверхности мембраны C_s и концентрации вдали от нее C_0 . Усиление тангенциального течения ведет к росту коэффициента турбулентной диффузии, а следовательно, и уменьшению C_s , в результате чего необходимая для стабилизации концентрационной поляризации величина диффузионного потока обеспечивается при меньшем перепаде концентрации, меньшей величине X' . Именно на пути интенсификации тангенциального течения в настоящее время снижается вредная роль концентрационной поляризации.

Таким образом, при микрофильтрации рост осадка на поверхности мембраны ведет к росту его гидродинамического сопротивления, которое может многократно превысить гидродинамическое сопротивление мембраны. Накопленный

опыт показал, что устранить эту трудность на пути интенсификации тангенциального течения при приемлемых расходах энергии не удается. В связи с этим в последние годы возрастает интерес к применению реверса потока фильтрации как методу удаления осадка с поверхности мембраны или предотвращения осадкообразования [5—7].

Наряду с публикациями, подтверждающими эффективность этого направления, следует указать и на выпуск некоторыми фирмами установок, использующих этот прием для интенсификации баромембранного процесса [8].

Одномерная модель реверсивной микрофильтрации. В последние годы возросло число публикаций, посвященных теории осадкообразования в процессе микрофильтрации, гелеобразования при ультрафильтрации, но механизм реверсивной фильтрации до сих пор не обсуждался. Между тем, обоснованный выбор многочисленных параметров, влияющих на эффективность применения реверса, крайне затруднен, если не располагать данными о механизме удаления осадка при реверсе и кинетике его формирования в процессе фильтрации между двумя реверсами.

Сложность этих процессов обусловлена тем, что в них одновременно проявляется и конвективный, и диффузионный транспорт, развивающийся в двух измерениях. Поскольку преобладает влияние транспорта в направлении, перпендикулярном к мембране, в качестве первого приближения в данной работе используется одномерная модель процесса. Влияние турбулентного тангенциального течения учитывается в том, что оно обуславливает турбулентную диффузию частиц в нормальном направлении, определяет величину коэффициента турбулентной диффузии и его зависимость от расстояния до поверхности мембраны.

Важнейшими параметрами реверсивной фильтрации является продолжительность единичного импульса обратной промывки T_1 , пауза между реверсами T_2 , т. е. длительность фильтрации между ними, скорости течения жидкости при фильтрации и обратной промывке. Для упрощения рассмотрения эти скорости принимаются равными по абсолютной величине v . Для конкретной мембраны или аппарата можно допустить, что и при реверсивной фильтрации сохраняется обычное значение скорости v . Помимо этого, на выбор величины параметров реверса оказывают влияние некоторые характеристики мембраны и осадка, например, их гидродинамические сопротивления.

Длительность реверса T_1 должна обеспечивать не только удаление осадка, но и затруднить его возврат на поверхность мембраны в процессе последующей фильтрации.

Возврат осадка на поверхность мембраны может осуществиться как во время самого реверса, так и после него. Поэтому важно выявить условия предотвращения вредного действия этих процессов в отдельности.

В первом приближении будем считать, что в процессе реверса осадок перемещается вместе с жидкостью как единое целое. Между сместившимся осадком и мембраной возникает полоска чистой жидкости. Частицы из осадка могут диффундировать в этот слой жидкости. Процесс будет очень быстрым ввиду больших значений градиента концентрации на границе с осадком. Поэтому полоска, пока она тонкая и градиент концентрации велик, заполняется частицами, а осадок, соответственно, частично размывается. Но с ростом смещения осадка X убывает градиент, замедляется диффузия, и с большей определенностью можно отличать осадок и прослойку жидкости, отделяющую его от мембраны.

Условие предотвращения частичного возвращения осадка на мембрану в процессе самого реверса можно сформулировать как условие малости среднеквадратичного смещения частиц за время реверса ΔX по сравнению с X_1

$$\Delta X \ll X_1. \quad (2)$$

Кроме этого, запишем условие малого изменения толщины осадка за время реверса

$$\Delta X \ll d. \quad (3)$$

Оценивая ΔX по формуле Эйнштейна

$$\Delta X = \sqrt{DT_1} \quad (4)$$

и выражая T_1 через X_1 и скорость жидкости при обратной промывке v , получаем на основе (2) ограничение на величину X_1 снизу

$$\sqrt{\frac{DX_1}{v}} \ll X_1,$$

откуда следует

$$X_1 \gg \frac{D}{v}. \quad (5)$$

Из (3) с учетом (4) следует ограничение на величину X_1 сверху

$$X_1 \ll d^2 \frac{v}{D}. \quad (6)$$

Условия (5) и (6) совместимы при следующем ограничении на величины параметров, существующих в реверсивной микрофильтрации

$$\frac{D}{v} \ll X_1 \ll d^2 \frac{v}{D}, \quad (7)$$

откуда следует

$$\frac{D}{v} \ll d^2 \frac{v}{D},$$

так что

$$\frac{D}{v} \ll d. \quad (8)$$

Это условие не накладывает ограничений на параметры микрофильтрации, но практически не выполняется в условиях ультрафильтрации. Происходит это потому, что правая часть в неравенстве (8) имеет примерно одинаковый порядок величины в условиях микро- и ультрафильтрации. Левая часть в условиях ультрафильтрации может быть на много порядков больше, чем при микрофильтрации. Далее будет показано, что в условиях реверсивной ультра- и микрофильтрации наиболее характерное значение толщины осадка порядка толщины селективного слоя мембраны, но может быть на порядок меньше или больше. Для оценки правой части в (8) примем d примерно равным микрону. Скорость v в условиях микрофильтрации варьируем (в зависимости от типа микрофильтра и перепада давления) в пределах 10^{-2} — 10^{-1} см/с, коэффициент броуновской диффузии с учетом размера частиц, характерных для микрофильтрации, варьируем в пределах 10^{-10} — $5 \cdot 10^{-8}$ см²/с. Оценивая на основе этих величин левую часть в неравенстве (8), нетрудно заключить, что это условие при микрофильтрации выполняется очень хорошо. При ультрафильтрации числитель в отношении слева в неравенстве (8) больше, а знаменатель меньше, чем при микрофильтрации. Скорость ультрафильтрации варьируем в пределах 10^{-4} — 10^{-3} см/с, коэффициент диффузии в пределах $5 \cdot 10^{-8}$ — 10^{-6} см²/с; условие (8) может не выполняться. Это означает, что в процессе реверса гель с поверхности ультрафильтрационной мембраны удаляется только частично. Применительно к ультрафильтрации нельзя считать, что осадок с поверхности мембраны при реверсе удаляется как единое целое. В процессе реверса существен диффузионный транспорт частиц из осадка на поверхность мембраны. Детальный анализ этого вопроса, заслуживающего специального рассмотрения, показал, что для предотвращения этой трудности целесообразно при ультрафильтрации использовать малые времена паузы между реверсами. Это обеспечивает предотвращение гелеобразования.

По существу намечается два качественно различных режима реверсивной фильтрации. Первый режим — это относительно длительные паузы между реверсами, так что формируется осадок, но и значительные (но меньшей длительности) реверсы, так что осадок удаляется далеко от поверхности мембраны, что в значительной

степени предотвращает его возвращение на мембрану. Второй режим — это короткие паузы между реверсами, так что осадкообразование развивается незначительно или же гель вообще не формируется.

Принципиальное отличие в возможности применения реверсов при ультрафильтрации и микрофильтрации состоит в том, что в первом случае осадкообразование замедляется под влиянием броуновской диффузии. Повышение концентрации частиц у поверхности селективной мембраны при фильтрации приводит к диффузии в направлении убывания концентрации, т. е. в направлении от мембраны. Так как непосредственно у поверхности мембраны в зоне превалирует броуновская диффузия, процесс диффузионного отвода частиц от поверхности осуществляется за счет броуновской диффузии и, следовательно, на один-два порядка интенсивнее при ультрафильтрации, чем при микрофильтрации.

Чем короче T_2 , тем меньше повышается концентрация у поверхности $C_s(t)$. В пределе при t , стремящемся к нулю, $C_s(t)$ стремится к C_0 . Поэтому при очень малых значениях T_2 и T осадок вообще не образуется, и реверсивная фильтрация протекает качественно иначе, чем при больших значениях T_1 и T_2 , когда осадок формируется.

Режим реверсивной фильтрации при очень малых T_1 и T_2 очень труден для рассмотрения, так как здесь необходимо описание нестационарной конвективной диффузии. Поэтому исследование этой проблемы естественнее начинать с режима, более доступного для рассмотрения, когда формирование осадка почти не осложнено диффузией. В данной работе предпринимается попытка описания первого режима применительно к микрофильтрации.

Осадок легко отделяется от мембраны, если он сформирован из устойчивой суспензии. Менее ясен механизм отделения скоагулированного и сцепившегося с мембраной осадка. Мы исключим из рассмотрения этот случай, и это означает, что осадок, сместившийся на расстояние $X_1 > X'$, может рассеиваться турбулентными пульсациями.

Параметры реверса должны быть подобраны таким образом, чтобы не только удалить осадок с поверхности, но и предотвратить его повторное осаждение на мембрану. Если микрофильтрация начинается сразу после реверса, осадок возвратится на поверхность мембраны. Если же откажется от фильтрации в течение некоторого времени T^* после реверса, возникает возможность рассеивания осадка турбулентными пульсациями. Происходит это ввиду быстрого возрастания коэффициента турбулентности диффузии с расстоянием до поверхности мембраны, в резуль-

тате чего диффузия приобретает асимметричный характер.

Транспорт частиц, сместившихся в направлении от мембраны, усиливается, так как они попадают в область повышенного значения коэффициента диффузии. Транспорт частиц, сместившихся в направлении к мембране, замедляется, так как они попадают в область пониженного значения коэффициента диффузии. В результате следует ожидать, что транспорт в направлении к мембране пренебрежимо мал. Транспорт в направлении от мембраны не только превалирует, но может быть очень интенсивным. Действительно, по мере удаления частиц от мембраны их турбулентная диффузия интенсифицируется очень значительно, что должно привести к интенсификации процесса в целом.

Эти качественные соображения подтвердились при количественном рассмотрении вопроса, которое приведено ниже.

Для предотвращения повторного осаждения осадка посредством его рассеивания в поле турбулентных пульсаций необходимо предоставить для этого процесса большее время. Но время T^* не может быть большим по сравнению с временем фильтрации T_2 , так как в течение T^* фильтрация отсутствует и это приводит к снижению производительности. Не рассматривая преждевременный (пока не доказана эффективность турбулентного рассеивания осадка) вопрос об оптимизации времен T_1 , T_2 , T^* , можно задать T^* примерно равным T_2

$$T^* \sim T_2. \quad (9)$$

Более жесткое условие необходимо наложить на время T_1

$$T_1 \ll T_2, \quad (10)$$

так как это время не только теряется для получения фильтрата, но более того, концентрат разбавляется фильтратом. Условие (10) удобно записать в другой форме

$$X_1 \ll X_2 = vT_2. \quad (11)$$

В течение времени фильтрации T_2 на поверхности мембраны скапливаются частицы, полное количество которых в осадке на единицу поверхности составляет $C_0 v T_2$. Если ввести усредненную по сечению концентрацию частиц в осадке C_d , можно записать

$$C_d d = C_0 v T_2. \quad (12)$$

так что

$$X_2 = \frac{C_d}{C_0} d. \quad (13)$$

Выполнимость условия (11) а priori неочевидна, так как для предотвращения возврата осадка

на мембрану необходимо перемещать его в область более интенсивной турбулентности, т. е. увеличивать X_1 , а для предотвращения значительного роста сопротивления осадка (роста d) необходимо, согласно (13), уменьшать толщину слоя жидкости X_2 , транспортируемого через мембрану.

Выяснение возможности выполнимости условия (11) является основной задачей в теоретическом обосновании реверсивной микрофильтрации, рассматриваемой в данной работе. Для этого необходимо получить формулы для X_1 и X_2 .

Оценка величины порции фильтрата между двумя реверсами. Фильтруемая между двумя реверсами порция, мерой которой является толщина слоя порции фильтруемой жидкости X_1 , ограничена условием умеренного роста сопротивления мембраны, покрывающейся осадком. В первом приближении можно задаться условием равенства сопротивления осадка, выделяющегося после прохождения упомянутой порции фильтрата R_d и сопротивления мембраны

$$R_d = R_m. \quad (14)$$

Чтобы оценить R_d , удобно ввести представление об удельном гидродинамическом сопротивлении, приходящемся в осадке на единицу его толщины, r_d и считать его не изменяющимся по толщине

$$R_d = r_d d. \quad (15)$$

Сопоставляя (13), (14) и (15), можно свести вопрос о величине X_2 к оценке r_d

$$X_2 = \frac{C_d}{C_0} \frac{R_m}{r_d}, \quad (16)$$

так как C_d , C_0 , R_m в каждом конкретном случае известны.

Игнорируя полидисперсность частиц и их отклонение от сферической формы, можно выразить r_d через радиус частицы a и пористость осадка ε с помощью формулы Козени—Кармана

$$r_d = \eta \frac{180(1 - \varepsilon)}{C_d (2a)^2 \varepsilon^3}. \quad (17)$$

Естественно, что более точное описание гидродинамических свойств осадка и мембраны можно получить на основе экспериментальных измерений, которые, как известно, свидетельствуют о том, что формулы Козени—Кармана или Пуазейля могут быть применены только для очень грубых оценок. Но для обобщенного анализа нет иного пути, как использование этих формул.

Возможность более точных оценок на основе экспериментальных данных существует только

применительно к конкретным системам. Трудность здесь состоит в том, что свойства осадков могут очень сильно варьировать от системы к системе.

Сопротивление мембраны часто описывают на основе модели прямых цилиндрических капилляров, т. е. формулы Пуазейля. Обе формулы (Пуазейля и Козени—Кармана) дают одинаковую зависимость от радиуса пор, и сильно отличающуюся зависимость от пористости [12]. Но при высоких пористостях эти отличия не столь катастрофичны. В связи с этим отметим, что обычно указывают высокие значения пористости для микрофильтрационных мембран, если исключить из рассмотрения ядерные фильтры, применительно к которым естественно использовать формулу Пуазейля. Поэтому и R_m будем описывать на основе формулы Козени—Кармана

$$R_m = d_m \eta \frac{180(1 - \varepsilon_m)}{(2a_m)^2 \varepsilon_m^3}, \quad (18)$$

где ε_m и d_m — пористость и толщина мембраны (изотропной) или селективного слоя мембраны.

В результате получим

$$d = d_m \left(\frac{a}{a_m} \right)^2 \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m} \right)^3 \frac{1 - \varepsilon_m}{1 - \varepsilon}. \quad (19)$$

Толщина селективного слоя микрофильтрационных мембран различного типа неодинакова, примем ее равной примерно микрону. Обычно приводят значения пористости мембраны близкие к 0,7. Пористость осадков, вероятно, варьирует в широких пределах. В случае полидисперсных систем она, вероятно, значительно ниже за счет распределения меньших частиц в порах, возникающих между крупными частицами. Приходится признать, что сомножитель, зависящий от пористости, может варьировать в широких пределах в зависимости от природы загрязнений и даже в каждом конкретном случае его нелегко определить. Вероятнее всего, что он меньше единицы из-за высокой пористости мембран. В качестве очень грубой оценки примем его равным единице

$$\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m} \right)^3 \frac{1 - \varepsilon_m}{1 - \varepsilon} \sim 1. \quad (20)$$

Известно, что селективность ультра- и микрофильтрации возможна и при размерах частиц, меньших, чем поры. Это происходит либо за счет осаждения частиц в порах, либо за счет формирования осадка, который обеспечивает селективность. Но в случае устойчивых дисперсий осаждение в порах затруднено, так как частицы таких дисперсий плохо прилипают друг к

другу. Между тем, процесс освобождения мембраны от загрязнений посредством реверса должен протекать более эффективно для устойчивых дисперсий, осадки которых не носят характер коагуляционной структуры. Поэтому, имея в виду прежде всего устойчивые дисперсии, следует ограничить рассмотрение условием

$$\bar{a} \sim \bar{a}_m, \quad (21)$$

где \bar{a} — средний радиус частиц.

Значения $a < a_m$ исключаются еще и по той причине, что дисперсии обычно полидисперсны и частицы с $a \ll \bar{a} \sim a_m$ легко проникают через мембрану, т. е. снижают селективность процесса.

Значения $\bar{a} > a_m$ также исключаются, так как по многим причинам предпочтительнее использовать мембраны с большим средним размером пор, если только при этом не снижается селективность. В результате приходится заключить, что для устойчивых дисперсий при выборе мембраны следует руководствоваться условием (21). Неустойчивые дисперсии легко формируют коагуляционную структуру в порах мембраны, после чего возникает дополнительный селективный осадок на ее внешней поверхности, т. е. селективность может быть обеспечена и при $\bar{a} \ll a_m$.

Основываясь на выводе (21) и допуская близость значений пористостей селективного слоя мембраны и осадка, заменяем (19) грубо упрощенной оценкой

$$d \sim d_m. \quad (22)$$

Принимая во внимание неопределенность в оценке пористостей и степени выполнения условия (20) и (21), следует иметь в виду, что толщина осадка может отклоняться от оценочного значения (22) в меньшую или большую сторону в несколько раз или, быть может, даже на порядок. Отсюда следует, что такой же элемент неопределенности возникает в оценке T_2 и X_2 .

Это, однако, не означает, что невозможно подготовить рекомендации для выбора величины T_2 . В каждом конкретном случае это можно сделать чисто экспериментальным путем, изменив время, за которое удельная производительность фильтра уменьшится, например, вдвое, что и дает T_2 . Проведенное выше рассмотрение тем не менее представляется полезным, во-первых, потому, что получена некая обобщенная грубая оценка d , и, во-вторых, потому что выявлен важный фактор, который следует учитывать для оптимизации величины T_2 — условие (21).

Постановка задачи о рассеивании осадка после реверса турбулентными пульсациями. Процесс предотвращения возврата осадка на поверхность мембраны после реверса поддается количественному рассмотрению на основе решения

уравнения турбулентной диффузии [10, 11]

$$\frac{\partial C(X, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial X} D_t(X) \frac{\partial C(X, t)}{\partial X}. \quad (23)$$

В начальном условии учитывается, что в результате реверса осадок смещен на расстояние X_1 от поверхности мембраны. Если принять условие

$$X_1 \gg d, \quad (24)$$

влияние отличия в начальном положении частиц в пределах осадка при рассмотрении их смещения на большие расстояния малосущественно. Это означает, что начальное условие можно задать δ -функцией

$$C(X, t)|_{t=0} = \sigma \delta(X - X_1), \quad (25)$$

где

$$\sigma = C_d d, \quad (26)$$

так как при реверсе общее число частиц в осадке не изменилось.

Решение задачи о рассеивании в пространстве тонкого пакета частиц под влиянием диффузии общеизвестно [12], но ограничено условием постоянства коэффициента диффузии. И для решения поставленной задачи пригоден и эффективен традиционный аппарат математической физики, но процедура решения более трудоемкая.

Наибольшая трудность в поставленной задаче связана с описанием зависимости коэффициента турбулентной диффузии от X , которая носит эмпирический характер. Одна из трудностей состоит в том, что предложены различные эмпирические формулы. Механизмы переноса количества движения и вещества идентичны, и поэтому коэффициент турбулентной диффузии принимают обычно равным кинематическому коэффициенту турбулентной вязкости [11, 13]. Последний изучен значительно лучше, и большинство исследований показывают, что в пристенном слое оправдывается зависимость

$$v_t/v \sim \alpha X^3, \quad (27)$$

где v — значение кинематической вязкости в объеме жидкости.

Зависимость D_t не только от X , но и от параметров, характеризующих турбулентное течение вдоль канала (число Рейнольдса Re и среднюю скорость потока u_m), обычно базируется на универсальном описании профиля осредненной скорости турбулентного течения в канале, которое оказывается возможным, если определенным образом ввести безразмерную скорость [14, 15]

$$u_+ = u/u_* \quad (28)$$

и безразмерное расстояние до стенки

$$X_+ = Xu_*/v. \quad (29)$$

Здесь так называемая динамическая скорость определяется формулой

$$u_* = u_m \sqrt{\lambda/8}, \quad (30)$$

а коэффициент сопротивления трению λ формулой Филоненко — Альтшупа

$$\lambda = (1,8 \text{ Re} - 1,64)^{-2}, \quad (31)$$

число Рейнольдса

$$\text{Re} = \frac{2hu_m}{v}, \quad (32)$$

где $2h$ — расстояние между мембранами в канале. Поэтому коэффициент турбулентной диффузии характеризуется как функция от X_+ .

Зависимости вида

$$D_t = KX_+^3 \quad (33)$$

получены рядом исследователей, причем отличаются только значения коэффициентов K [16—21].

На основе данных, приведенных в табл. 1, представляется целесообразным принять значение X , рекомендованное в работах [17]

$$K = 6 \cdot 10^{-4}. \quad (34)$$

Значениям X_+ порядка 10, являющихся верхней границей применимости формулы (34), соответствует $X \sim u_m^{-1}$, где u_m в см/с, X в см.

В результате, уравнение (23) преобразуется к следующему виду

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \kappa \frac{\partial}{\partial X} X^3 \frac{\partial C}{\partial X}, \quad (35)$$

где

$$\kappa = 6 \cdot 10^{-4} \left[\frac{u_m}{v} \sqrt{\frac{\lambda}{8}} \right]^3. \quad (36)$$

Рассеивание осадка турбулентными пульсациями и условие ограниченного роста осадка при длительной фильтрации. Чтобы упростить весьма громоздкую процедуру решения уравнения (35), можно упростить граничное условие при $X=0$. При реверсе промежутки между осадком и мембраной заполняется чистой водой, т. е. $C|_{X=0}=0$. В процессе турбулентной диффузии это условие нарушается, но незначительно, так как $D_t|_{X=0}=0$. Последнее означает, что непосредственно на мембрану частицы не возвращаются, так как непосредственно у ее поверхности поток обращается в ноль. В действительности же осаждение частиц на мембрану осуществляется посредством броуновской диффузии, так что $C|_{X=0} \neq 0$.

Таблица 1. Зависимость величины коэффициента турбулентной вязкости от безразмерного расстояния до стенки

Формула	Предел применимости	Коэффициент	Источник литературы
$\frac{v_t}{v} = KX_+^3$	$0 < X_+ \leq 5$	$K = 10^{-3}$	[16]
$v_t/v = KX_+^3$	$X_+ < 7,8$	$K = 6 \times 10^{-4}$	[17]
$v_t/v = KX_+^3$	$0 < X_+ < X_{1+}$	$A_1 X_{1+} = f(\text{Re})$	[18]
$v_t/v = K \left(X_+ - Ath \frac{X_+}{A} \right)$	Все X_+	$K = 0,4$	[19]
$v_t/v = KX_+ \times \frac{X_+^3}{(\delta^2 + X_+^2) \left(1 + \frac{bX_+}{R_+} \right)}$		$\delta = 18$ $b = 3,4$ $R_+ = hu_*/v$	[20]

Но при ограничении рассмотрения случаем микрофильтрации коэффициент броуновской диффузии мал и рост концентрации у поверхности мембраны за ограниченное время T^* мал. Поэтому в первом приближении принимается граничное условие

$$\frac{\partial C}{\partial X} \Big|_{X=0} = 0. \quad (37)$$

На основе функции $C(X, t)$, найденной в первом приближении, можно затем найти и поток, обусловленный броуновской диффузией. Можно затем уточнить граничное условие (37)

$$\frac{\partial C}{\partial X} \Big|_{X=0} \sim \frac{\partial C'}{\partial X} \Big|_{X=0}. \quad (38)$$

Решение задачи, характеризуемой уравнениями (35), (37), (25), имеет вид

$$C(X, t) = \frac{\sigma}{\kappa t X X_1} \exp\left(-\frac{X^{-1} + X_1^{-1}}{\kappa t}\right) \times I_2\left(\frac{2(X_1 X)^{\frac{1}{2}}}{\kappa t}\right), \quad (39)$$

где I_2 — модифицированная функция Бесселя [22].

Весьма громоздкая процедура получения этого результата коротко охарактеризована в приложении. Справедливость (39) проверена также подстановкой $C(X, t)$ в уравнение (35). Рассчитанная на ЭВМ функция $f(X, t) = C(X, t)/\sigma$ для нескольких значений значений представлена на рис. 1, δ -функция трансформируется в асимметричную функцию с одним максимумом, высота которого убывает со временем. Поскольку коэффициент

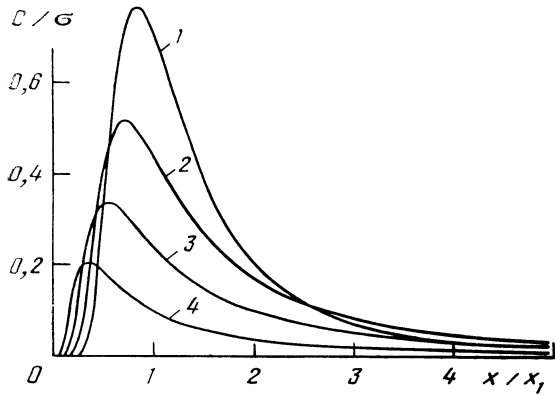


Рис. 1. Кинетика рассеивания осадка, смещенного от поверхности мембраны при реверсе на расстоянии X_1 под влиянием пристенной турбулентности согласно формуле (39): X — расстояние до поверхности мембраны по оси ординат, X_1 — начальное расстояние осадка, $C(X, t)$ — концентрация частиц для различных моментов времени $t, \kappa X_1 t = 0,125$ (1), 0,25 (2), 0,5 (3), 1 (4)

турбулентной диффузии возрастает с X , выполаживание распределения за счет диффузии более интенсивно протекает при $X > X_{\max}$ (X_{\max} — координата максимума). По этой же причине максимум смещается в область меньших X (в каждый момент времени вещество справа от максимума удаляется за счет диффузии интенсивнее, чем слева). Общее число частиц (площадь под кривой) убывает в результате выноса их на бесконечность.

Обозначим содержание частиц в осадке после n -го реверса σ_n . Тогда распределение частиц, возникающее после n -го реверса, описывается также формулой (39), в которой σ заменено на σ_n .

$$C_n(X, t) = \frac{\sigma_n}{\kappa t X X_1} \exp\left(-\frac{X^{-1} + X_1^{-1}}{\kappa t}\right) \times I_2\left(\frac{2}{\kappa t \sqrt{X_1 X}}\right). \quad (40)$$

Необходимо уточнение, так как начальное условие (25) не учитывает наличие частиц в концентрации $C = C_0$ при $X > X_1$. Это означает, что распределение частиц при $X > X_1$ выражается функцией $C_n(X, t)$ плюс C_0 , при $X < X_1$ — функцией $C_n(X, t)$.

Количество частиц, осаждающихся на мембране, между n -м и $n+1$ -м реверсом равно общему их содержанию в пространстве между $X=0$ и $X=X_2$, и, следовательно, осадку, формируемому после n -го реверса

$$\sigma_{n+1} = C_0(X_2 - X_1) + \int_0^{X_2} C_n(X, t) dx = C_0(X_2 - X_1) + \sigma_n \beta, \quad (41)$$

$$\beta = \int_0^{X_2} \frac{\exp\left(-\frac{X^{-1} + X_1^{-1}}{\kappa t}\right)}{\kappa t X_1 X} I_2\left(\frac{2}{\kappa t \sqrt{X_1 X}}\right) dx. \quad (42)$$

Рекуррентная формула (41) определяет последовательность

$$\sigma_{n+1} = C_0(X_2 - X_1) \sum_{i=0}^{n+1} \beta^i. \quad (43)$$

Эта последовательность сходящаяся, если выполняется условие

$$\beta < 1, \quad (44)$$

причем

$$\sigma_\infty = \frac{C_0(X_2 - X_1)}{1 - \beta}. \quad (45)$$

По своему определению β как доля осадка, смещенного при реверсе и возвращающегося на мембрану в результате $n+1$ акта фильтрации, всегда меньше единицы. Но если β близка к единице, реверсы не могут предотвратить рост осадка до значительной толщины

$$d_\infty = \frac{d_0}{1 - \beta}, \quad (46)$$

где

$$d_0 = C_0(X_2 - X_1). \quad (47)$$

К сожалению, формула (42) не сводится к известным табличным интегралам и явный вид функции $\beta(X_1, X_2, t)$ не удается установить.

Важно располагать формулой, дающей малые значения β , т. е. для достаточно больших времен t , когда значительная доля частиц вынесется турбулентными пульсациями в область $X > X_2$. Это соответствует условию малых значений аргумента функции Бесселя в (40)

$$\kappa t (X_1 X)^{\frac{1}{2}} \gg 2. \quad (48)$$

При этом условии в разложении функции Бесселя в ряд Тейлора можно удержать только первый член [22]

$$I_2(z) \sim \left(\frac{z}{2}\right)^2 \cdot \frac{1}{4}. \quad (49)$$

В итоге получаем асимптотику больших времен для функции (39)

$$C_n(X, t) = \sigma_n g(X, t), \quad (50)$$

где

$$g(X, t) = 1 / \left(2 (\kappa t X_1) X_1 \left(\frac{X}{X_1}\right)^2\right) \exp\left(-\frac{X^{-1} + X_1^{-1}}{\kappa t}\right). \quad (51)$$

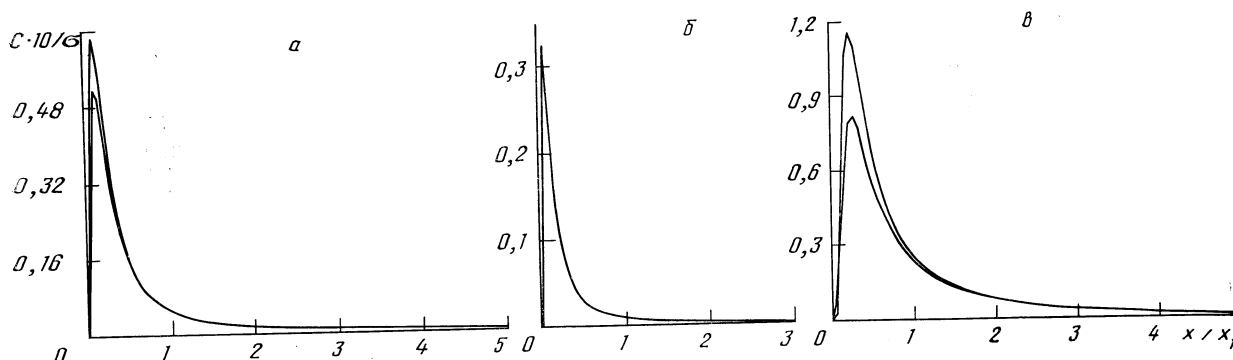


Рис. 2. Описание кинетики рассеивания осадка на основе точной (39) и асимптотической (51) формул. Верхние кривые на каждом рисунке получены по точной формуле, нижние — по асимптотической для различных моментов времени: $\kappa X_1 t = 2$ (а), 4 (б), 1 (в)

На рис. 2, а, б, в, г функции $f(X, t)$, $g(X, t)$ охарактеризованы для нескольких моментов времени. Видно, как сближается асимптотика $g(X, t)$ и точная функция $f(X, t)$ с ростом X и t . Максимумы этих функций сближаются с ростом t .

При подстановке (50) в (42) интеграл легко вычисляется

$$\beta = \frac{1}{z(\kappa t X_1)^2} \exp\left(-\frac{1}{\kappa t X_1} + \frac{1}{\kappa t X_2}\right). \quad (52)$$

Наиболее жесткие условия для выполнимости условия (48) при $X < X_1$, в особенности, при $X \geq 0$. Но, как видно из рис. 2, область малых X не представляет заметного интереса для расчета роста осадка, так как слева от максимума сохраняется значительно меньше частиц, чем справа от него. Имея в виду важность описания распределения частиц при $X \geq X_1$, преобразуем условие (48) к виду

$$\kappa t X_1 \gg 2. \quad (53)$$

Сопоставляя (52) и (53), заключаем, что при условии (53) β очень мало. Это означает, что можно было бы применять и более короткий реверс, чем это следует из условия (53). При условии, прямо противоположном условию (53), можно в ряду, выражающем функцию Бесселя, удержать только первый член, что позволяет легко провести интегрирование. В результате оказывается, что при очень малых реверсах не удается предотвратить повторное осаждение осадка.

Поскольку малые значения параметра $\kappa t X_1$ не обеспечивают предотвращения повторного осаждения, а большие значения — очень малую долю возврата, можно ожидать, что оптимальное значение параметра $\kappa t X_1$ порядка единицы.

Удобной оказалась оценка величины β при $\kappa t X_1 = 1$, т. е. $z = 2$. Для функции Бесселя извест-

ны асимптотики, пригодные при больших и малых значениях z . В качестве весьма грубого приближения для оценки β можно использовать одну асимптотику при $z > 2$, вторую при $z < 2$. Если $\kappa t = 1$, $z > 2$ при $X < X_1$ и $z < 2$ при $X > X_1$. Представляя интеграл (42) в виде суммы двух интегралов, где первый вычисляется в пределах $0, X_1$, второй в пределах X_1, ∞ , можно первый интеграл оценить на основе асимптотики больших z , второй на основе асимптотики малых z .

В результате получим

$$\beta \leq e^{-\kappa t X_1} \left(\frac{1 - e^{-\kappa t X_1}}{\kappa t X_1} + \frac{1 - 2e^{-\kappa t X_1}}{(\kappa t X_1)^3} \right), \quad (54)$$

$$\beta |_{\kappa t X_1 = 1} \leq \frac{1}{3}. \quad (55)$$

Эта оценка подтверждена расчетами интеграла на ЭВМ, данные которых для ряда значений $\kappa t X_1$ в сопоставлении с асимптотической оценкой по формуле (52) представлены в табл. 2.

Итак, в качестве условия обеспечения умеренного сопротивления осадка при реверсивной микрофльтрации можно принять

$$\kappa t X_1 = 1. \quad (56)$$

Обоснование выбора параметров реверсивной микрофльтрации. В формуле (56) t следует конкретизировать — это время, предоставленное для процесса рассеивания осадка турбулентными пульсациями, т. е. T^* . Поскольку мы положили T^* примерно равным T_2 , возникает возможность ввести в формулу (56) X_2 вместо t

$$\begin{aligned} \kappa X_1 T_2 \geq 1, \quad \kappa X_1 T_2 = 6 \cdot 10^{-4} v \left(\frac{u_m}{v} \sqrt{\frac{\lambda}{8}} \right)^3 \times \\ \times \frac{X_1 X_2}{v} \geq 1. \end{aligned} \quad (57)$$

Т а б л и ц а 2. Доля осадка β , возвращающегося на мембрану после реверса в зависимости от времени его рассеивания T^* турбулентными пульсациями

κT^*	β по точной формуле (42)	β по асимптотике (52)
0,125	0,99	0,009
0,25	0,89	0,135
0,5	0,58	0,26
1	0,26	0,18
2	0,89	0,075
4	0,26	0,024
8	0,007	0,0067

* κ рассчитано по формуле (36).

Т а б л и ц а 3. Результаты расчета критического значения амплитуды реверса X_1^{cr} на основе формулы (59)

$d, \text{ см}$	C_0/C_d	$X_1^{cr}, \text{ см}$	$v, \text{ см/с}$			
			10^{-2}		10^{-1}	
			$u_m, \text{ см/с}$			
			10^2	$3 \cdot 10^2$	10^2	$3 \cdot 10^2$
1	10^{-2}	10^{-2}	$5 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-3}$
	10^{-1}	10^{-3}	$5 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$
10	10^{-2}	10^{-3}	$5 \cdot 10^{-5}$	$1,5 \cdot 10^{-7}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-6}$
	10^{-1}	10^{-2}	$5 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$

Примечание. d —толщина осадка, C_0/C —отношение объемных долей частиц в обрабатываемой жидкости и в осадке, v — линейная скорость фильтрации, u_m —средняя скорость тангенциального течения жидкости.

Рассеивание осадка можно обеспечить либо увеличением его смещения от поверхности мембраны X_1 , либо увеличением турбулизирующего действия потока жидкости (увеличением κ), либо предоставлением большего времени для их действия T_2 (увеличением X_2). Для получения конкретных числовых значений подставим в формулу (57) значения ν и λ , приняв величину числа Рейнольдса примерно 1200

$$X_1 \sim \frac{500v}{u_m^3 X_2} \quad (58)$$

Чтобы учесть роль концентрации примеси и сопротивления микрофильтра в формуле (58) целесообразно выразить X_2 согласно (13)

$$X_1^{cr} \approx \frac{500vC_0}{u_m^3 d C_d} \quad (59)$$

Рассчитанные по этой формуле значения X_1 (табл. 3) можно рассматривать как критические X_1^{cr} в том смысле, что при меньших значениях X_1 быстро возрастает сопротивление мик-

рофильтра с осадком. При $d=10^{-4}$ см, $u_m=10^2$ см/с, $v=0,1$ см/с, $C_0=10^{-2} C_d$ условие (11) выполняется плохо. Но увеличение скорости u_m только в 3 раза полностью снимает эту трудность. Это происходит благодаря сильной (кубической) зависимости коэффициента турбулентной диффузии от u_m . Увеличение d или уменьшение C_0 приведет только к уменьшению X_1 , как это видно из формулы (59), т. е. условие (11) выполнить еще легче. Затруднения могут возникнуть в том случае, если пористость осадка значительно меньше, чем селективного слоя фильтра. Тогда, согласно (19), d может быть меньше d_m на один-два порядка, что означает такое же значительное изменение X_2^{cr} и X_1^{cr} . Ввиду очень сильной зависимости X_1^{cr} от u_m и эта трудность может быть преодолена благодаря некоторому увеличению u_m .

Увеличением скорости можно обеспечить выполнение условия и при более высоких значениях C_0 , когда X_2^{cr} уменьшается, а X_1^{cr} соответственно увеличивается. Как видно из табл. 3, этого можно достигнуть даже при $C_0 \sim 10^{-1} C_d$.

В тех случаях, когда табличные значения X_1 оказываются близкими к d или даже меньше, естественно, возможно и необходимо использовать большие значения X_1 , так как в табл. 3 дана оценка допустимых значений X_1 снизу.

Приведенное рассмотрение позволяет сформулировать два вывода.

Условие (2) не является лимитирующим, оно легко выполняется даже при наиболее невыгодном сочетании величин параметров посредством увеличения u_m .

Удивительно малые смещения осадка при реверсе оказываются достаточным для его рассеивания и предотвращения заметного возврата на мембрану. Этот последний вывод нуждается в дополнительном исследовании.

Трудности теории реверсивной микрофильтрации. Полученные результаты исключительно благоприятны для реверсивной микрофильтрации. Смещение осадка на расстояние лишь в несколько раз превышающее толщину осадка (что может означать даже смещение на микрон, если осадок много тоньше) оказывается эффективным. Ясно, что такие, и даже на порядок большие (порядка десятка микрон) амплитуды реверса сопряжены с очень малым расходом энергии. Однако в основе этого прогноза лежат эмпирические зависимости, описывающие пристенную турбулентность. Эти зависимости установлены вне всякой связи с рассматриваемой проблемой и следует проявить осторожность при их применении. Это прежде всего касается часто встречающегося утверждения, что кубическая зависимость для коэффициента турбулентной диффузии применима вплоть до самой стенки.

Ясно, однако, что на малых расстояниях возникают экспериментальные трудности в измерении коэффициента турбулентной диффузии и применимость кубической зависимости обоснована лишь при расстояниях, превышающих некоторое значение X'' . Рекомендации о выборе значения X_1 справедливы только в том случае, если X_1 превышает X'' . В противном случае рекомендуемая амплитуда реверса должна превышать X'' , так как только при этом условии работает механизм рассеивания осадка. Глубина проникновения турбулентных пульсаций из турбулентного ядра потока в вязкий подслой возрастает с величиной критерия Рейнольдса. Поэтому важно, чтобы число Рейнольдса, для которого установлена кубическая зависимость, совпадала с числами Рейнольдса, применяемыми в микрофильтрации.

Наряду с этим можно сделать и практический вывод. Учитывая методические трудности измерения коэффициента турбулентной диффузии у самой стенки, следует отдавать предпочтение режимам с возможно большим числом Рейнольдса.

Если даже возможность значительного отклонения от кубической зависимости в направлении ослабления турбулентности не оправдывается, возникают дополнительные осложнения, связанные со взаимодействием поля турбулентных пульсаций и смещаемого в процессе реверса осадка.

Выше рассматривалась задача диффузии не взаимодействующих частиц осадка в заданном поле турбулентных пульсаций. Поведение коллектива частиц осадка будет отличаться во многих аспектах. Один из них — это взаимодействие коллектива частиц на поле турбулентных пульсаций. Как известно [21], введение дисперсных частиц в турбулентный поток снижает уровень турбулентности. Дисперсные частицы ослабляют турбулентность вдали от стенок канала. Ясно, что их воздействие на слабую пристенную турбулентность должно быть выражено в большей степени. Но если смещаемый при реверсе осадок гасит пристенную турбулентность, то тем самым исчезает тот механизм транспорта осадка в турбулентное ядро потока, который предотвращает его возврат на мембрану.

Приложение. Уравнение (23), начальное условие (25), граничное условие (37), посредством преобразования Лапласа приводятся к виду

$$u''(X, P) + \frac{3}{X} u'(X, P) - \frac{P}{\kappa X^3} u(X, P) = -\frac{1}{\kappa X_1^3} \delta(X - X_1). \quad (\text{П.1})$$

$$\left. \frac{\partial u(X, P)}{\partial X} \right|_{X=0} = 0. \quad (\text{П.2})$$

$$\lim_{|P| \rightarrow \infty} u(X, P) = 0,$$

$$|\arg P| < \frac{\pi}{2}, \quad (\text{П.3})$$

где $u(X, P)$ — изображение по Лапласу функции $C(X, t)$, штрих означает дифференцирование по X . Условие (П. 3) — общее для всех изображений по Лапласу. Для получения частного решения задачи (П. 1) достаточно [23] найти решение $v(X, P)$ краевой задачи

$$v''(X, P) + \frac{3}{X} v'(X, P) - \frac{P}{\kappa X^3} v(X, P) = 0, \quad (\text{П.4})$$

$$v(X_1) = 0, \quad v'(X_1) = -\frac{1}{\kappa X_1^3}. \quad (\text{П.5})$$

Решение задачи (П.4) получается из $v(X_1, P)$ по формуле

$$u(X, P) = \theta(X - X_1) v(X, P), \quad (\text{П.6})$$

где θ — функция Хевисайда.

Общее решение уравнения (7) имеет вид [24]

$$v(X, P) = X^{-1} Z_2 \left(2i \sqrt{\frac{P}{\kappa X}} \right), \quad (\text{П.7})$$

где Z_2 — цилиндрическая функция общего вида. Используя соотношения между функциями Бесселя I_m , Макдональда K_m и другими частными цилиндрическими функциями, представим (П. 7) в виде

$$v(X, P) = AX^{-1} I_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X}} \right) + BX^{-1} K_2 \times \times \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X}} \right). \quad (\text{П.8})$$

Определяя константы A, B из условий (П. 5) и используя формулу (П. 6), имеем

$$u(X, P) = \frac{1}{\kappa X X_1} \theta(X - X_1) \left[I_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X_1}} \right) \times \times K_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X}} \right) - K_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X_1}} \right) \times \times I_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X}} \right) \right]. \quad (\text{П.9})$$

К фундаментальному решению (П. 9) следует прибавить частное решение однородного уравнения (П. 8), в котором константы A и B выбраны так, чтобы обеспечить условия (П. 2), (П. 3). В результате, учитывая асимптотики функций K_2, I_2 при больших и малых значениях аргумента, имеем фундаментальное решение для зада-

чи (П. 1), (П. 2), (П. 3)

$$u(X, P) = \frac{20(X - X_1)}{\kappa t X_1} \left[K_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X_1}} \right) I_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X}} \right) + I_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X_1}} \right) K_2 \left(2 \sqrt{\frac{P}{\kappa X}} \right) \right]. \quad (\text{П. 10})$$

Используя формулы обратного преобразования Лапласа из [25], получаем решение (40).

1. Дытнерский Ю. И. Обратный осмос и ультрафильтрация.— М.: Химия, 1978.— 351 с.
2. Черкасов А. И. Концентрационная поляризация и ее влияние на процессы ультра- и микрофильтрационного разделения // Тез. докл. 4 Всесоюз. конф. по мембранным методам разделения смесей.— М., 1987.— С. 11—20.
3. Брык М. Т., Цапюк Е. А. Ультрафильтрация.— Киев: Наук. думка, 1989.— 287 с.
4. Франк-Каменецкий Д. А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике.— М.: Наука, 1987.— 490 с.
5. Climenius R. Microfiltration—the modern state // Desalination.— 1985.— 53, N 1/2/3.— P. 363—372.
6. Khalib Z. Membrane filtration—the modern technology // Chem. Proc.— 1986.— 49, N 4.— P. 87—89.
7. Van Cassel T. J., Ripperger S. Cross flow microfiltration in the industry // Ibid.— P. 373—387.
8. Control of concentration polarisation and fouling of membranes in medical, food and biotechnical applications / Н. Bauser, Н. Chimiell, N. Sitton, E. Walitza // Membrane Sci.— 1986.— 27, N 2.— P. 195—200.
9. Ханпель Дж., Бреннер Г. Гидродинамика малых чисел Рейнольдса.— М.: Мир, 1976.— 499 с.
10. Соу С. Гидродинамика многофазных систем.— М.: Мир, 1971.— 536 с.
11. Хинце И. О. Турбулентность, ее механизм и теория.— М.: Физматгиз, 1963.— 680 с.

12. Тихонов А. Н., Самарский А. А. Уравнения математической физики.— М.: Гостехиздат, 1953.— 660 с.
13. Конт-Белло Ж. Турбулентное течение в канале с параллельными стенками.— М.: Мир, 1968.— 176 с.
14. Монин А. С., Яглом А. М. Статистическая гидродинамика. Механика турбулентности.— М.: Наука, 1965.— 327 с.
15. Идельчик И. Е. Справочник по гидравлическим сопротивлениям.— М.: Госэнергоиздат, 1975.— 560 с.
16. Owen P. Dust deposition from a turbulent airstream // Aerodynamic Capture of Particles / Ed. E. G. Richardson.— London: New York, 1960.— P. 8—25.
17. Murphree E. V. Relation between heat transfer and fluid friction // Ind. and Eng. Chem.— 1932.— 24, N 7.— P. 72.
18. Mizushima T., Ogino F. Eddy viscosity and universal velocity profile in turbulent flow // J. Chem. Soc. Jap.— 1970.— 3, N 2.— P. 166—170.
19. Travis J. R., Buhr H. O., Sesonske A. A model for velocity and eddy diffusivity distribution in turbulent flow // Can. J. Chem. Eng.— 1971.— 49, N 1.— P. 14—18.
20. Mei J., Squire W. A simple eddy viscosity model for turbulent pipe and Channel flow // AIAA.— 1972.— 10, N 3.— P. 350—352.
21. Медников Е. П. Турбулентный перенос и осаждение аэрозолей.— М.: Наука, 1981.— 173 с.
22. Абромовиц М., Стиган И. Справочник по специальным функциям.— М.: Наука, 1979.— 830 с.
23. Владимиров В. С. Уравнения математической физики.— М.: Наука, 1968.— 436 с.
24. Корн Г., Корн Т. Справочник по математической физике.— М.: Наука, 1968.— 720 с.
25. Лыков А. В. Теория теплопроводности.— М.: ГИТТЛ, 1952.— 392 с.

Ин-т теор. физики АН УССР;
Ин-т коллоид. химии и химии воды
им. А. В. Думанского АН УССР,
г. Киев
Полимерсинтез, г. Владимир

Поступила
23.09.90