

بررسی آزمایشگاهی و شبیه‌سازی فرآیند میکروفیلتراسیون جریان متقاطع امولسیون نفت در آب با غشای سلولز استات

امیرحسین بهروزی^۱، نوراله کثیری^{۱*}، محمد شیخی^۱ و تورج محمدی^۲

۱- آزمایشگاه تحقیقاتی مهندسی فرآیند به کمک کامپیوتر، دانشکده مهندسی شیمی، نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران

۲- مرکز تحقیقات و فناوری فرآیندهای غشایی، دانشکده مهندسی شیمی، نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران

تاریخ دریافت: ۱۳۹۷/۷/۴ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۷/۱۱/۲۴

چکیده

فاضلاب‌های هیدروکربنی و مشکلات زیست‌محیطی آن سبب شده است که نیاز به رسیدگی فوری داشته باشد. از سوی دیگر خالص‌سازی آب جهت استفاده‌های ضروری انگیزه‌ای برای محققان جهت جداسازی این فاضلاب‌ها توسط فرآیند میکروفیلتراسیون در سال‌های اخیر مورد توجه قرار گرفته است. در این مطالعه، جداسازی امولسیون نفت در آب در فرآیند میکروفیلتراسیون توسط غشای سلولز استات به صورت آزمایشگاهی و شبیه‌سازی بررسی شده است. در بخش آزمایشگاهی، میزان شار تراویده برای آب خالص و امولسیون نفت در آب در فشارهای عملیاتی یکسان و متفاوت به دست آورده شده است. در بخش شبیه‌سازی توسط نرم‌افزار کامسول ورژن ۵/۳، شار تراویده در حالت پایا به کمک قانون دارسی پیش‌بینی شده و با داده‌های آزمایشگاهی مقایسه شده است. مقایسه نتایج نشان داد که مقادیر پیش‌بینی شده برای شارش آب هنگام استفاده از خوراک حاوی قطرات نفت در حالت پایا، در فشارهای عملیاتی ۱ و ۲ بار به میزان ۰/۱۵٪ و ۰/۳۵٪، اما برای آب خالص ۰/۵٪ خطا به دست آمده است. این خطا برای امولسیون نفت در آب می‌تواند ناشی از در نظر نگرفتن ساختار غشا، صرف‌نظر کردن مقاومت‌های گرفتگی داخلی غشا و لایه قطبیدگی غلظتی در معادله دارسی باشد. با حل هم‌زمان معادلات مخلوط، موازنه جرم و قانون دارسی در دامنه محاسباتی، اثر پارامترهای مختلف از جمله سرعت خوراک ورودی و فشار متوسط بر ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی و سرعت‌های خروجی نیز آنالیز شده است. با افزایش سرعت خوراک از ۰/۱ به ۱/۱ متر بر ثانیه در شبیه‌سازی، میزان ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی ۵۲٪ کاهش، با افزایش فشار متوسط از ۱ به ۲ بار، سرعت خروجی جریان تراویده تقریباً ۱۹۰٪ افزایش می‌یابد.

کلمات کلیدی: امولسیون نفت در آب، میکروفیلتراسیون، شبیه‌سازی، غشای سلولز استات، قطبیدگی غلظتی

مقدمه

از فرآیندهای غشایی در اثر به وجود آمدن این پدیده‌ها در حین عملیات جداسازی افت می‌کند. گرفتگی را شاید بتوان تحت عنوان رسوب مواد بر سطح و یا در داخل حفرات یک غشا تعریف کرد که تاکنون شناخت کافی در مورد آن برای فرآیند میکروفیلتراسیون وجود ندارد. به‌طور کلی می‌توان گرفتگی را به دودسته تقسیم کرد: گرفتگی داخلی غشا یا همان چسبیدن مواد به داخل حفرات ساختار غشا و دیگری گرفتگی خارجی غشا یا همان تشکیل یک بر روی سطح غشا [۴، ۵].

در طی فرآیند میکروفیلتراسیون قسمتی از خوراک برگردانده می‌شود و قسمتی دیگر (فاز جداشده) به همراه غلظت کمتری از فاز پخش‌شده نسبت به خوراک از غشا عبور خواهد کرد؛ بنابراین غلظت فاز پخش‌شده در جریان تراویده از غلظت آن در خوراک کمتر خواهد بود. با عبور خوراک از سطح غشا و ادامه جداسازی، غلظت فاز پخش‌شده (مواد حل‌شده) رفته‌رفته در سطح غشا افزایش پیدا می‌کند. این غلظت افزایش‌یافته، منجر به ایجاد یک جریان با مکانیسم غالب نفوذ خواهد شد که به سمت توده خوراک باز خواهد گشت. این پدیده تا زمانی که جریان همرفتی توده دارای فاز پخش‌شده به سمت سطح غشا با شار تراویده از غشا به تعادل برسد ادامه خواهد داشت؛ بنابراین یک پروفایل غلظتی از سطح غشا تا توده خوراک شکل می‌گیرد. این پدیده را که یکی از عوامل بسیار تأثیرگذار بر راندمان سیستم فیلتراسیون غشایی است، قطبیدگی غلظتی می‌نامند [۵]. قطبیدگی غلظتی ممکن است نتیجه تشکیل لایه کیک بر روی سطح غشا و یا ایجاد یک لایه مرزی متمرکز در نزدیکی سطح غشا باشد. این پدیده به‌صورت قابل توجهی متکی به هیدرودینامیک سیستم، طبیعت و اندازه مولکول‌ها، سایز حفره‌ها و خصوصیات غشا است [۶، ۷].

در طول چند دهه گذشته، فرآیند فیلتراسیون غشایی نقش مهمی در روند جداسازی صنعتی ایفا کرده است. فرآیند میکروفیلتراسیون به‌عنوان یک روش کارآمد در صنایع و کاربردهای مختلف فناوری مانند تولید آب آشامیدنی، تصفیه فاضلاب، صنعت داروسازی، بیوتکنولوژی و زیست پزشکی مورد استفاده قرار گرفته است [۱].

فاضلاب هیدروکربنی یک نگرانی مهم زیست‌محیطی است که نیاز به توجه فوری دارد. این فاضلاب می‌تواند از مخزن نفت، نشت از مخازن و مخازن نگهداری و صنایع پالایش و پتروشیمی تولید شود. با توجه به نگرانی‌های زیست‌محیطی و کمبود آب، خالص‌سازی و تصفیه آب‌های آلوده به ترکیبات هیدروکربنی یا نفتی برای تولید آب برای استفاده صنعتی، کشاورزی و سایر موارد ضروری هستند [۲]. میکروفیلتراسیون یک نوع فرآیند فیلتراسیون فیزیکی با نیروی محرکه فشاری است که در آن یک خوراک حاوی ذرات در اندازه میکرون (بزرگ‌تر از ۰/۱ میکرون)، از یک غشا با اندازه حفرات مشخص عبور می‌کند تا میکروارگانیزم‌ها و ذرات معلق از سیال جدا شوند. میکروفیلتراسیون جریان متقاطع یک فرآیند مقرون‌به‌صرفه در ذخیره انرژی برای جداسازی نفت از امولسیون نفت در آب است که به‌طور گسترده‌ای برای جداسازی سوسپانسیون^۱ و ذرات جامد ریز استفاده می‌شود. در این فرآیند، جریان خوراک به دو جریان تقسیم می‌شود؛ قسمتی از خوراک ورودی از غشا عبور می‌کند که جریان تراویده^۲ و قسمتی که پس‌زده می‌شود، جریان باقیمانده^۳ یا پسماند نامیده می‌شود [۳]. در این فرآیندها مشکلات گوناگونی بر روی عملکرد غشا تأثیر می‌گذارند که از جمله آن‌ها می‌توان به تجمع قطرات نفت بر روی سطح غشا و تشکیل رسوب، گرفتگی داخلی غشا و تشکیل لایه قطبیدگی غلظتی^۴ اشاره کرد. شار تراویده از غشا در بسیاری

1. Suspension

2. Permeate

3. Retentate

4. Concentration polarization (CP)

کوپل کردن معادلات ناویر-استوکس^۷، قانون داریسی و معادله موازنه جرم برای شبیه‌سازی لایه قطبیدگی غلظتی درون یک غشای لوله‌ای توسعه دادند. نتایج آن‌ها نشان داد که فرض شار تراویده متغیر برای خروجی غشا می‌تواند نتایج قابل قبول تری نسبت به نتایج آزمایشگاهی داشته باشد. همچنین عباسی و همکاران [۸] به صورت آزمایشگاهی جداسازی نفت از امولسیون نفت در آب توسط غشای سرامیکی میکروفیلتراسیون را بررسی کردند و با استفاده از بررسی عددی مدل‌های هر میا برای پیش‌بینی شار، مشخص شد که مدل تشکیل کیک^۸ بهترین پیش‌بینی را از شار تراویده این فرآیند داشته است.

در این پژوهش برای دو نوع خوراک آب خالص و امولسیون نفت در آب در فرآیند میکروفیلتراسیون جریان متقاطع با استفاده از غشای آب‌دوست سلولز استات^۹، بررسی‌های آزمایشگاهی صورت گرفته و شبیه‌سازی این فرآیند در حالت پایا با استفاده از مدل مخلوط انجام شده است. همچنین اثر پارامترهای عملیاتی بر روی عملکرد فرآیند و لایه قطبیدگی غلظتی بررسی شده است.

معادلات حاکم

در محاسبات CFD معمولاً برای توصیف هیدرودینامیک سیال به دلیل سادگی از معادلات ناویر-استوکس استفاده می‌شود که این معادله برای توصیف هیدرودینامیک آب خالص تراویده از غشا در شبیه‌سازی استفاده شده است؛ اما برای شبیه‌سازی امولسیون نفت در آب از مدل مخلوط^{۱۰} استفاده شده است که معادلات این مدل به همراه معادلات موازنه جرم و داریسی برای توصیف ضخامت

دینامیک سیال محاسباتی^۱ (CFD) یک تکنیک کاربردی است که به طور گسترده‌ای می‌تواند برای شبیه‌سازی هیدرودینامیک سیال بر روی سطح غشا، مدل‌سازی سرعت انتقال جرم و پیش‌بینی لایه قطبیدگی غلظتی استفاده شود. مطالعات CFD در فناوری غشایی می‌تواند به دودسته تقسیم شود: یکی استفاده از داده‌های آزمایشگاهی جهت توسعه مدل‌هایی برای پیش‌بینی شار تراویده از غشا و شبیه‌سازی پدیده قطبیدگی غلظتی بر اساس خواص خوراک و غشا و دیگری توسعه رویکردهای متفاوت برای افزایش تنش برشی روی سطح غشا به منظور افزایش کارایی غشا و همچنین کاهش میزان رسوب [۴].

اخیراً مطالعات تجربی و محاسباتی متعددی بر روی کاربرد غشاهای مختلف جهت افزایش بازدهی جداسازی در این فرآیندها انجام شده است [۸-۱۲]. پارامترهای مختلفی از قبیل سرعت جریان متقاطع^۲ (CFV)، فشار متوسط دو سوی سل غشایی^۳ (TMP)، غلظت اولیه خوراک، نوع و جنس غشا، قطر حفرات غشا و هیدرودینامیک سیال روی سطح غشا بر روی عملکرد فرآیند تأثیر می‌گذارند [۱۳-۱۵]. در این فرآیندها مدل‌های مختلفی از جمله مدل هر میا^۴ برای پیش‌بینی شار تراویده از غشا توسعه داده شده است [۱۶، ۱۷]. در سال‌های اخیر برای توصیف شار تراویده از سطح غشا از قانون داریسی^۵ استفاده شده است که این معادله تابعی از فشار متوسط، مقاومت (مجموع مقاومت کیک و مقاومت داخلی غشا) و ویسکوزیته^۶ سیال است [۱۸، ۱۹].

احمد و همکاران [۲۰] یک شبیه‌سازی CFD دوبعدی برای پیش‌بینی لایه قطبیدگی غلظتی درون یک کانال غشایی نازک انجام دادند. آن‌ها یک مقدار ثابت را برای شار تراویده از سطح غشا تحت شرایط آرام در نظر گرفتند. آن‌ها ثابت کردند با افزایش تنش برشی در نزدیکی سطح دیواره، پدیده قطبیدگی غلظتی کاهش می‌یابد. پاک و همکاران [۲۱] یک محاسبات عددی دوبعدی با استفاده از

1. Computational Fluid Dynamics
2. Cross-flow Velocity
3. Trans-membrane Pressure
4. Hermia's Model
5. Darcy's Law
6. Viscosity
7. Navier-stokes
8. Cake Filtration Model
9. Cellulose Acetate
10. Mixture Model

ρ_m ، v_m و μ_m به ترتیب سرعت، چگالی و ویسکوزیته مخلوط هستند.

معادله مومنتم برای مخلوط:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_m \overline{v_m}) + \nabla \cdot (\rho_m \overline{v_m v_m}) = -\nabla P \quad (9)$$

$$+ \nabla \cdot [\mu_m (\nabla \overline{v_m} + \nabla \overline{v_m}^T)]$$

$$+ \rho_m \mathbf{g} + \overline{F} + \nabla \cdot \left(\sum_{k=1}^n \varphi_k \rho_k \overline{v_{dr,q} v_{dr,q}} \right)$$

در این معادله نیز، g و F شتاب گرانش و نیروی وارده به سیال است.

میزان جداسازی نفت توسط غشا توسط ترمی تحت عنوان پس‌زنی^۲ بیان می‌شود که به صورت زیر محاسبه می‌شود:

$$Rejection = \left(1 - \frac{C_p}{C_b}\right) \times 100 \quad (10)$$

که C_p غلظت نفت در جریان تراویده و C_b غلظت نفت در خوراک است.

معادله قانون دارسی:

$$J = \frac{\Delta P}{\mu_m R_{tot}} = \frac{P_1 - P_2}{\mu_m R_{tot}} \quad (11)$$

که در آن، P_1 همان TMP یا فشار متوسط اعمال شده در دو سوی سل غشایی، P_2 فشار در کانال جریان تراویده، μ_m ویسکوزیته مخلوط عبوری از سطح غشا و R_{tot} مجموع مقاومت رسوب و مقاومت داخلی غشا که به صورت به دست آورده شده است:

$$R_{tot} = l_{mem} R_{mem} + l_{cake} R_{cake} \quad (12)$$

l_{cake} و l_{mem} به ترتیب ضخامت‌های لایه کیک و غشا و R_{mem} و R_{cake} مقاومت‌های لایه کیک و غشا هستند که به صورت آزمایشگاهی اندازه‌گیری شده‌اند. معادله ۱۱ به عنوان سرعت عمود بر سطح غشا با واحد متر بر ثانیه (m/s) در شبیه‌سازی در نظر گرفته شده است. برای تعیین ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی از معادله زیر استفاده شده است:

$$\frac{C_o - C_b}{C_b} < 0.01 \quad (13)$$

که در آن C_o و C_b به ترتیب غلظت نفت در توده سیال بالاگذر غشا و غلظت نفت در لایه قطبیدگی غلظتی است.

لایه قطبیدگی غلظتی نزدیک سطح غشا به صورت هم‌زمان حل می‌شوند.

معادلات پیوستگی و مومنتم و موازنه جرم در زیر بیان شده‌اند:

معادله پیوستگی (آب خالص):

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v)}{\partial y} = 0 \quad (1)$$

معادلات مومنتم در دو جهت (آب خالص):

$$u \frac{\partial(\rho u)}{\partial x} + v \frac{\partial(\rho u)}{\partial y} = -\frac{\partial P}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x}(\mu \frac{\partial u}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y}(\mu \frac{\partial u}{\partial y}) \quad (2)$$

$$u \frac{\partial(\rho v)}{\partial x} + v \frac{\partial(\rho v)}{\partial y} = -\frac{\partial P}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial x}(\mu \frac{\partial v}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y}(\mu \frac{\partial v}{\partial y}) \quad (3)$$

که در این معادلات ρ و μ به ترتیب دانسیته و ویسکوزیته سیال، u و v سرعت سیال در جهت x و y مختصات کارتزین و t نمایانگر زمان است.

معادله موازنه جرم:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) \quad (4)$$

که در آن C غلظت و D_y نمایانگر نفوذ نفت در آب در راستای y مختصات است.

معادلات مدل مخلوط امولسیون نفت در آب برای فاز پیوسته آب (p) و فاز گسسته نفت (q) در زیر ارائه شده‌اند:

معادله پیوستگی برای هر فاز:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varphi_k \rho_k) + \nabla \cdot (\varphi_k \rho_k \overline{v_k}) = -\nabla \cdot (\varphi_k \rho_k \overline{v_{dr,k}}) \quad (5)$$

k نمایانگر شمارنده فاز است که در اینجا می‌تواند فاز آب (p) و نفت (q) باشد. همچنین v_k ، ρ_k و φ_k و v_{dr} به ترتیب نمایانگر درصد حجمی، چگالی، سرعت متوسط جرمی، سرعت رانشی^۱ فاز k هستند.

معادله کلی پیوستگی برای مخلوط:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_m) + \nabla \cdot (\rho_m \overline{v_m}) = 0 \quad (6)$$

$$\overline{v_m} = \frac{\sum_{k=1}^n \varphi_k \rho_k \overline{v_k}}{\rho_m} \quad (7)$$

$$\rho_m = \sum_{k=1}^n \varphi_k \rho_k \quad (8)$$

1. Drift Velocity

2. Rejection

میکروفیلتراسیون آب‌دوست لازم است. غشا انتخاب‌شده از جنس سلولز استات و با حفرات متوسط سایز $0/45$ میکرون است. این غشا ساخته شرکت سارتریوس^۲ آلمان با شماره ۱۱۱۰۶-۲۹۳ که ضخامت، تخلخل و سطح مؤثر آن به ترتیب 120μ ، 70% و $50 \text{ (cm}^2\text{)}$ است. عکس میکروسکوپی غشا در شکل ۲ نشان داده شده است.

روش ساخت امولسیون

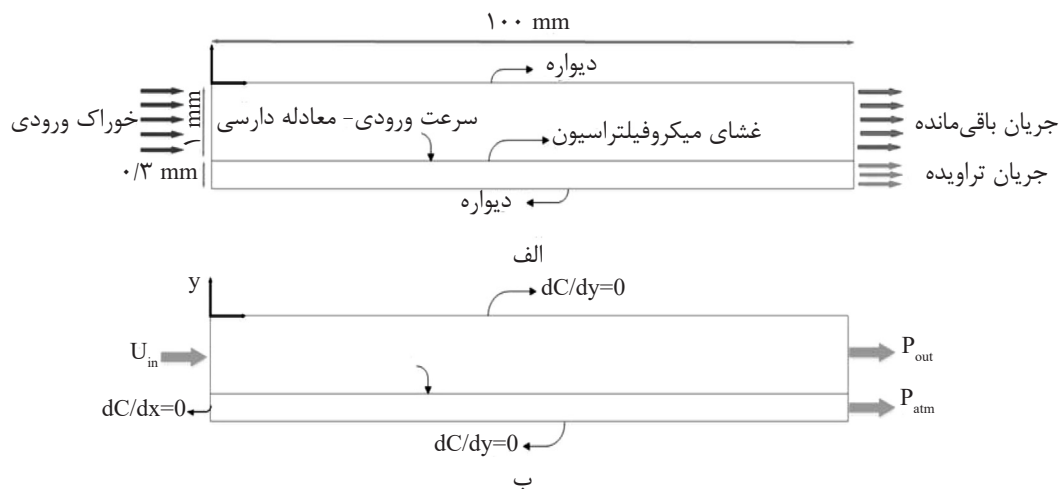
برای تهیه امولسیون از دو نوع سورفکتانت غیر یونی بانام‌های تجاری تویین ۸۰ و اسپن ۸۰ استفاده شده است که مشخصات کامل آن‌ها در جدول ۱ آمده است. پس از تعیین نوع سورفکتانت، برای تعیین روش ساخت امولسیون پایدار باید مقدار سورفکتانت لازم نیز مورد ارزیابی قرار گیرد.

شبیه‌سازی این پژوهش با استفاده از نرم‌افزار کامسول ورژن $5/3$ انجام شده است. در این شبیه‌سازی، با توجه به اندازه قطر متوسط در نظر گرفته شده برای قطرات (2μ) بر اساس توزیع اندازه قطرات^۱ و اندازه حفرات گزارش شده برای غشا، میزان پس‌زنی 100% در نظر گرفته شده است به عبارت دیگر قطره نفتی وارد حفرات غشا نمی‌شود و مقاومت غشا (R_{mem}) برای آب خالص اندازه‌گیری شده است. دامنه محاسباتی در شبیه‌سازی به همراه شرایط مرزی اعمال شده در شکل ۱ نشان داده شده است

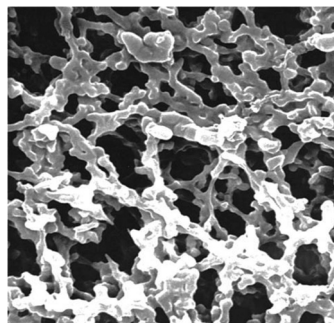
مواد و روش‌ها

غشای مورد استفاده

برای جداسازی امولسیون نفت در آب، غشا

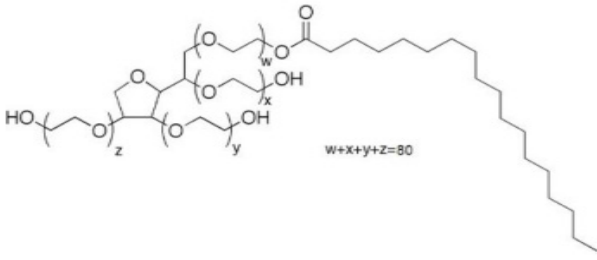
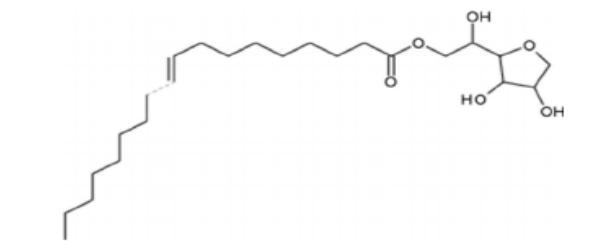


شکل ۱ الف) دامنه محاسباتی (ب) شرایط مرزی اعمال شده



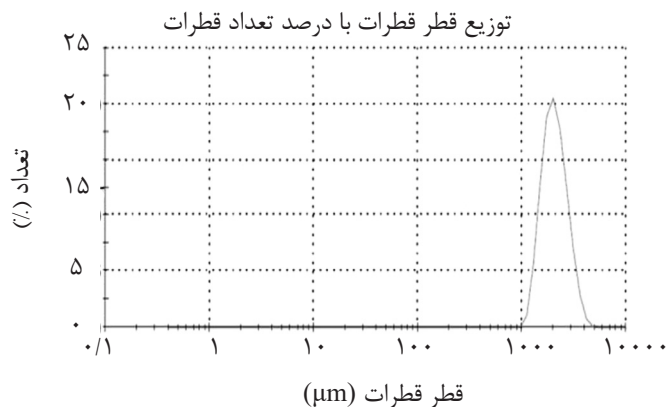
شکل ۲ عکس میکروسکوپ الکترونی غشای سلولز استات

جدول ۱ مشخصات سورفکتانت های تجاری استفاده شده [۲۲]

حلالیت	ساختار مولکولی	مشخصه شیمیایی	سورفکتانت ^۱
حلال در آب		PEG-20 Sorbitanmonooleate	تویین ۸۰
حلال در نفت		Sorbitanmonooleate	اسپن ۸۰

در زمان های مختلف اختلاط، نمونه برداری شد. بررسی نمونه ها توسط میکروسکوپ نشان داد اندازه قطرات نفتی بعد از گذشت حدود ۳۰ min تقریباً ثابت می ماند. از امولسیون نهایی بعد از گذشت زمان اختلاط کافی، جهت اندازه گیری توزیع اندازه قطرات توسط دستگاه زتاسایزر^۲ نمونه برداری شد. بر اساس توزیع اندازه قطرات ارائه شده در شکل ۳ توزیع اندازه قطرات نشان داده شده است که با توجه به آن، اندازه متوسط قطرات را می توان ۲ μm در نظر گرفت که در شبیه سازی نیز همین اندازه استفاده شده است.

با توجه به اینکه نفت سفید از بین دیگر هیدروکربن های در دسترس یکی از کمترین ضریب های اشتعال پذیری (با در نظر گرفتن شرایط نگهداری ایمن) را دارا است به عنوان فاز آلی پخش کننده در محیط آبی انتخاب شد. برای این منظور سه امولسیون با غلظت ۱۰۰۰ mg/L از کروسن^۱ به کمک سه مقدار از سورفکتانت، یعنی به ترتیب ۰/۵، ۱ و ۱/۵ درصد وزنی فاز نفتی تهیه شدند. هر یک از امولسیون ها به مدت یک ساعت در سیستم میکروفیلتراسیون به کمک پمپ سانتریفیوژ به گردش درآمد. سپس از امولسیون های ساخته شده



شکل ۳ توزیع اندازه قطرات امولسیون اندازه گیری شده توسط زتاسایزر

1. Surfactant
2. Kerosene
3. Zeta Sizer

مورد استفاده در شکل ۴ نشان داده شده است.

تحلیل نتایج آزمایشگاهی

محاسبه شار تراویده

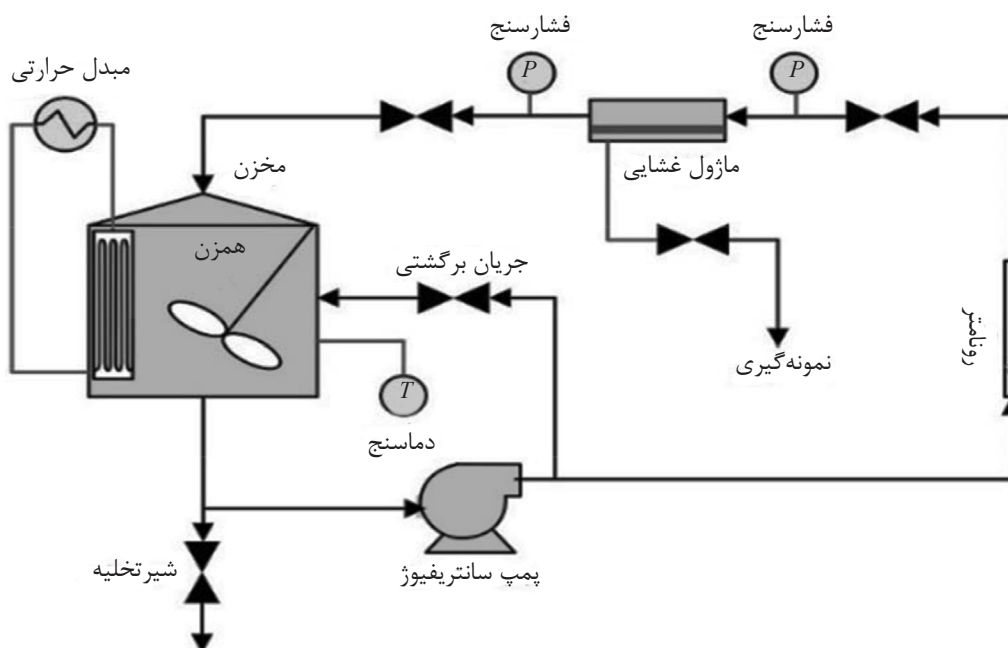
برای محاسبه شار تراویده از غشا، روش وزن سنجی به کار گرفته شده است. وزن محصول تراوش کرده در مدت زمان مشخص توسط ترازوی دیجیتالی با دقت ۰/۱ گرم، اندازه‌گیری شده و سپس به منظور ثابت نگه‌داشتن غلظت خوراک ورودی، به داخل مخزن خوراک بازگردانده شد. رابطه استفاده شده برای محاسبه شار تراویده به صورت زیر است:

$$J = \frac{m}{A \times \Delta t} \quad (13)$$

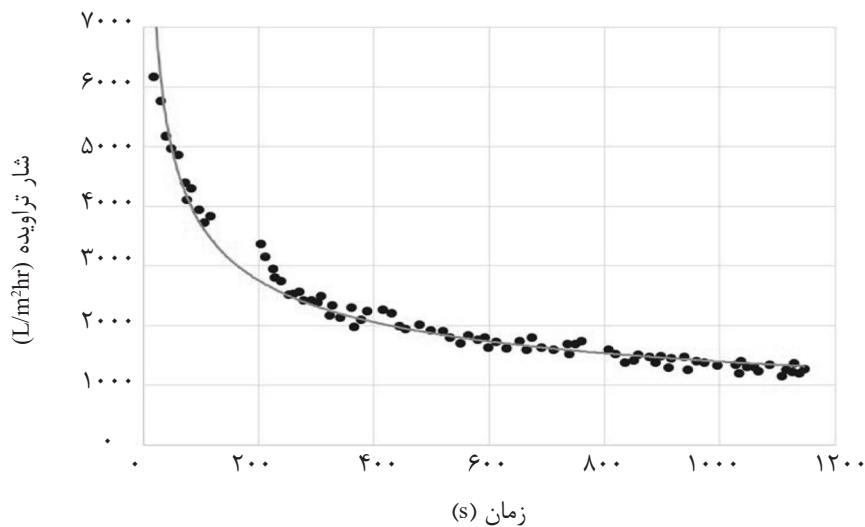
که در آن m میزان آب نفوذ کرده بر حسب (L)، A ، سطح غشا بر حسب (m^2) و t زمان بر حسب (h) است. شار تراویده برای دو خوراک آب خالص و امولسیون نفت در آب در شرایط یکسان آزمایشگاهی اندازه‌گیری شده است. نتایج حاصل از آزمایش‌های انجام شده در دمای ۲۹۸ کلوین، فشار متوسط ۱ bar و سرعت ورودی خوراک ۰/۸ متر بر ثانیه ارائه شده است. نمودار تغییرات شار تراویده با زمان برای آب خالص در شکل ۵ گزارش شده است.

سیستم میکروفیلتراسیون

این دستگاه باهدف اندازه‌گیری لحظه‌ای دما و فشار، به ترتیب یک و دو دماسنج و فشارسنج دیجیتال (یکی از فشارسنج‌ها قبل و دیگری بعد از سل غشایی) مجهز شده‌اند. وظیفه تأمین فشار متوسط و سرعت جریان متقاطع مورد نظر بر عهده یک پمپ سانتریفیوژ است. به منظور تنظیم شدت جریان سیال ورودی به سل غشایی (و در نهایت کنترل سرعت خطی سیال بر سطح غشا)، دستگاه به یک روماتر کالیبره شده مجهز شده است. یک مبدل گرمایی در خارج از دستگاه و دو رشته کویل در داخل مخزن خوراک جایگذاری شده‌اند تا تغییرات دمای خوراک با دقت و سرعت کنترل شود. کاربرد دیگر مبدل گرمایی در این پژوهش، ثابت نگه‌داشتن دمای امولسیون، کاهش تغییرات ویسکوزیته آن در طول فرآیند میکروفیلتراسیون است که در این صورت می‌توان فرآیند را با فرض هم‌دما شبیه‌سازی کرد و از حل معادلات انرژی صرف‌نظر کرد. لازم به ذکر است که به منظور اختلاط کامل و یکنواخت شدن دما و غلظت خوراک در داخل مخزن، از یک همزن کوچک استفاده شده است. شماتیک دستگاه آزمایشگاهی میکروفیلتراسیون



شکل ۴ سیستم آزمایشگاهی میکروفیلتراسیون مورد استفاده



شکل ۵ تغییرات شار تراویده با زمان برای آب خالص (فشار متوسط ۱ bar، سرعت خوراک ۰/۸ m/s و دمای ۲۹۳ K)

همچنین مقدار مقاومت غشا در برابر جریان در حالت پایدار برای آب خالص محاسبه شده است و مقدار آن در محاسبه شار تراویده برای امولسیون نفت در آب لحاظ شده است.

اثر فشار متوسط

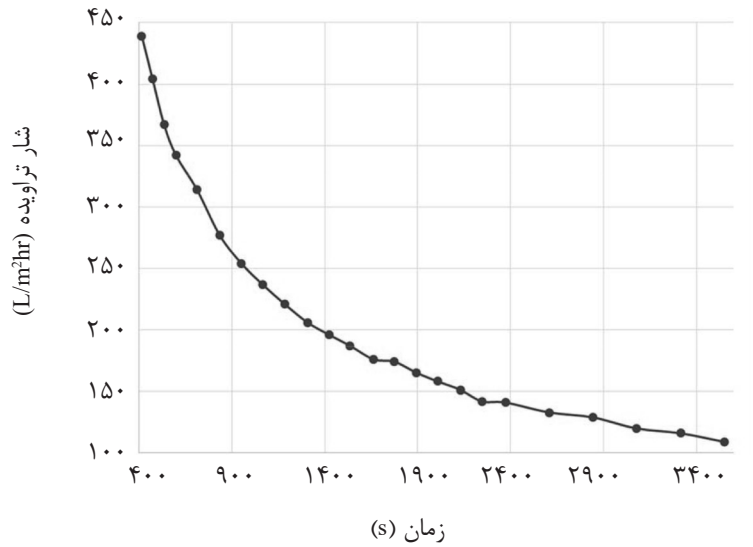
برای بررسی تأثیر فشار متوسط بر شار تراویده، آزمایش در دو فشار متوسط مختلف انجام شد. همان طور که انتظار می رود، با افزایش فشار متوسط از ۱ به ۲ بار میزان تغییرات شار تراویده با زمان، حدود ۱۲۰٪ افزایش یافته است. طبق قانون دارسی، میزان شار تراویده با فشار متوسط رابطه مستقیم دارد که در اینجا تأثیر افزایش فشار متوسط برای امولسیون نفت در آب بر شار تراویده آزمایشگاهی به صورت مقدراری در شکل ۷ گزارش شده است. فشارهای بیان شده به صورت فشار مطلق گزارش شده اند.

تحلیل نتایج شبیه سازی

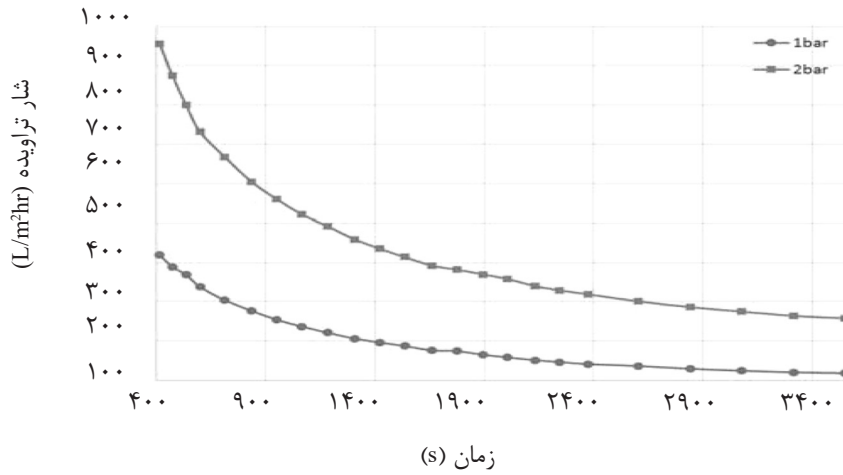
استقلال از مش

برای اثبات مستقل بودن نتایج شبیه سازی از اندازه مش، پروفایل سرعت خروجی در مش هایی با سایزهای متفاوت به دست آورده شده است. در شکل ۸ اثر تغییر مش بندی بر نتایج شبیه سازی بررسی شده است.

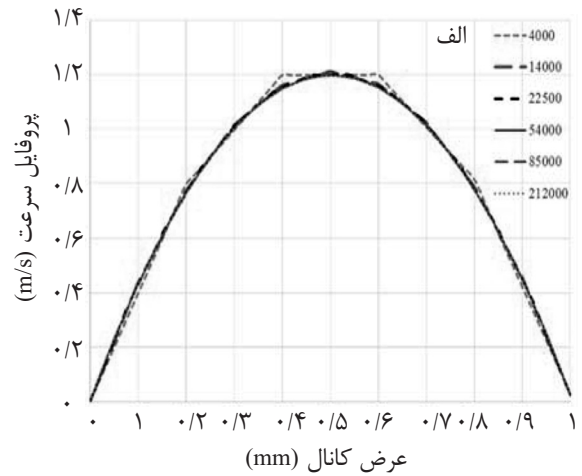
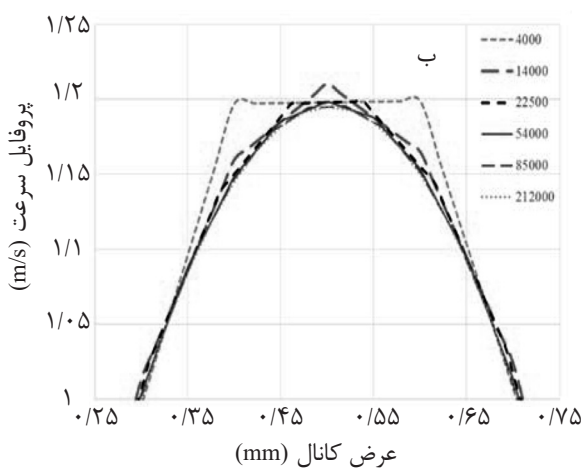
با توجه به ساختار اسفنجی و متخلخل غشای سلولز استات، این غشاها تقریباً همیشه تحت اثر فشار متوسط فشرده می شوند. به گونه ای که این فشردگی غیرقابل بازگشت است. به منظور بررسی اثر فشار متوسط داخل کانال خوراک بر تراوش غشا در اثر تراکم پذیری غشا، فرآیند را با آب خالص یا خوراک در فشار متوسط و یا فشارهای بالاتر مورد آزمایش قرار می دهند؛ اما با توجه به اینکه انجام تست فشردگی در فشارهای بالاتر ممکن است باعث تغییر در ساختار غشا و کاهش ضخامت آن شود، در این مطالعه با در نظر گرفتن شرایط عملی در صنایع، آزمایش در فشار متوسط ۱ بار و با آب خالص انجام شد. مطابق شکل ۵، افت شار برای آب خالص تا دقیقه بیستم از ابتدای فرآیند ادامه خواهد داشت، اما تقریباً شدت این افت از دقیقه پنجم به بعد کاسته خواهد شد؛ بنابراین به منظور اعمال اثر تراکم غشای سلولز استات، تمامی داده های آزمایشگاهی به دست آمده از دقیقه ششم به بعد رسم خواهند شد. برای امولسیون نفت در آب نمودار تغییرات شار تراویده با زمان برای امولسیون نفت در آب در شکل ۶ آورده شده است. همان طور که مشخص است میزان شار تراویده برای امولسیون نفت در آب به مراتب کمتر از آب خالص است که ناشی از تشکیل لایه کیک توسط قطرات نفت بر روی سطح غشا است.



شکل ۶ تغییرات شار تراویده با زمان برای امولسیون نفت در آب (فشار متوسط ۱ bar، سرعت خوراک ۰/۸ m/s و دمای K ۲۹۳)



شکل ۷ اثر افزایش فشار متوسط بر شار تراویده برای امولسیون نفت در آب (سرعت خوراک ۰/۸ m/s و دمای K ۲۹۳)



شکل ۸ توزیع پروفایل سرعت برحسب عرض کانال در مش بندی‌های متفاوت (الف) پروفایل سرعت خروجی جریان باقیمانده (ب) بزرگنمایی پروفایل سرعت در مقدار ماکزیمم

در حالت پایا در جدول ۲ آورده شده است. نتایج نشان می‌دهد که مقادیر پیش‌بینی شده نسبت به داده‌های آزمایشگاهی در فشارهای متوسط ۱ و ۲ بار به ترتیب ۱۵/۷۶٪ و ۳۵/۳۲٪ خطا دارد با اینکه برای آب خالص خطای خیلی کم‌تری مشاهده می‌شود. این خطا برای امولسیون نفت در آب می‌تواند ناشی از در نظر نگرفتن اثر مقاومت لایه قطبیدگی غلظتی و گرفتگی داخلی غشا توسط قطرات نفت باشد.

پروفایل سرعت

انتهای دامنه محاسباتی کانال خوراک و کانال جریان تراویده که توسط غشا از هم جدا می‌شوند، در شکل ۹ (الف) نشان داده شده است. همچنین پروفایل سرعت خروجی این کانال‌ها با توجه به شرط عدم لغزش در دیواره‌ها در شکل ۹ (ب) گزارش شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود سرعت در هر دو کانال با توجه به عدم تغییر در راستای افقی کاملاً توسعه یافته است. گفتنی است که برای در نظر گرفتن نیروی دراگ^۱ در معادلات مخلوط برای دو فاز آب و نفت، ضریب اصطکاک از مدل شیلر-نیومن^۲ استفاده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود حداکثر سرعت خروجی برای کانال خوراک ۱/۲ متر بر ثانیه و برای کانال جریان تراویده 3×10^{-5} متر بر ثانیه است. نمایانگر سمت راست برای مقادیر سرعت کانال خوراک و نمایانگر سمت چپ برای سرعت جریان تراویده است.

در قسمت (الف) پروفایل سرعت خروجی جریان باقیمانده نسبت به عرض کانال (ارتفاع خروجی کانال خوراک) در مش‌های مختلف گزارش شده و در قسمت (ب) پروفایل سرعت جهت مشاهده بهتر تأثیر مش بندی، در مقدار ماکزیمم بزرگنمایی شده است. همان‌طور که در شکل ۸ (ب) مشخص است، در تعداد سلول‌های کم پروفایل سرعت به صورت شکسته و مقادیر سرعت متفاوت است اما از تعداد سلول‌های ۸۵۰۰۰ عدد به بیشتر، پروفایل سرعت به صورت سهموی درمی‌آید و تغییر سایز مش تأثیری بر نتایج شبیه‌سازی ندارد. در این پژوهش برای کاهش زمان محاسباتی و اطمینان از مستقل بودن نتایج، مش مربعی با تعداد ۸۵۰۰۰ سلول انتخاب شده است.

شار تراویده محاسبه شده در حالت پایا

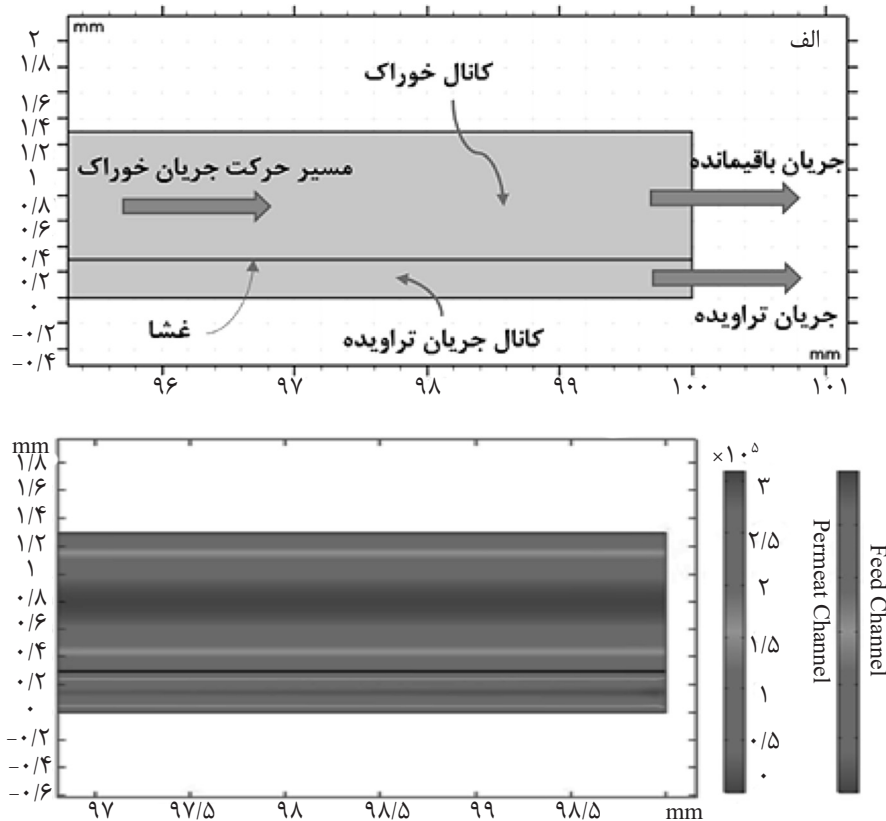
همان‌طور که بیان شد، برای محاسبه شار تراویده در حالت پایا از معادله داریسی استفاده شده است. در این معادله ضخامت و مقاومت ناشی از تشکیل کیک و غشا بر اساس داده‌های آزمایشگاهی (بر اساس شار تراویده در حالت پایدار) محاسبه شده و شار تراویده از غشا فقط تابعی از فشار محلی در سل غشایی است. در شبیه‌سازی انجام شده، شار تراویده برای آب خالص در فشار متوسط ۱ بار و امولسیون نفت در آب در فشارهای ۱ و ۲ بار محاسبه شده است. مقادیر پیش‌بینی شده توسط شبیه‌سازی برای شار تراویده

جدول ۲ شار تراویده در حالت پایا (زمان: ۳۶۰۰ s)

خطای نسبی (%)	شار تراویده در حالت پایا (L/m ² .hr)		فشار متوسط (bar)	نوع خوراک
	شبیه‌سازی	آزمایشگاهی		
۵/۶۴	۱۲۶۸/۸۴	۱۲۰۱	۱	آب خالص
۱۵/۷۶	۱۰۰/۸۲	۸۷/۰۹	۱	امولسیون نفت در آب
۳۵/۳۲	۲۰۵/۲۱	۱۵۱/۶۴	۲	

1. Drag Force

2. Schiller-naumann



شکل ۹ الف) انتهای دامنه محاسباتی برای سل غشایی در شبیه‌سازی (ب) پروفایل سرعت در انتهای کانال‌ها

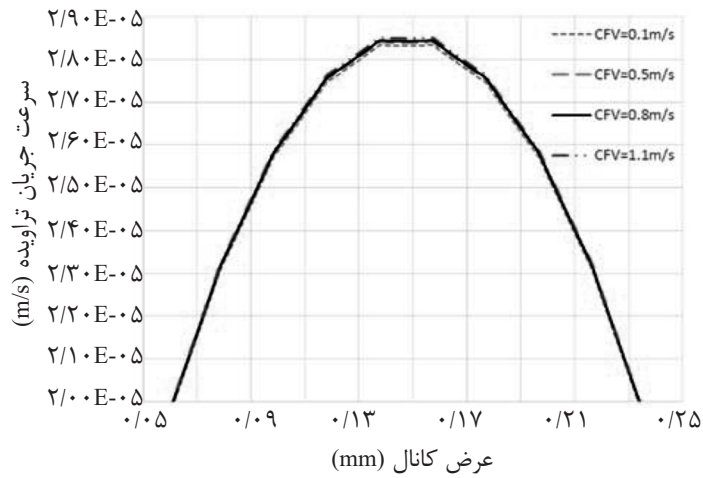
اثر سرعت خوراک

آن بر روی جریان تراویده به کمک محاسبات دینامیک سیال محاسباتی بود که نیازی به استفاده از مدل‌های پیش‌بینی کننده برای نرخ شار تراویده از سطح غشا نباشد که همه عوامل هیدرودینامیکی سیال به‌طور مستقیم بر روی آن تأثیر بگذارد.

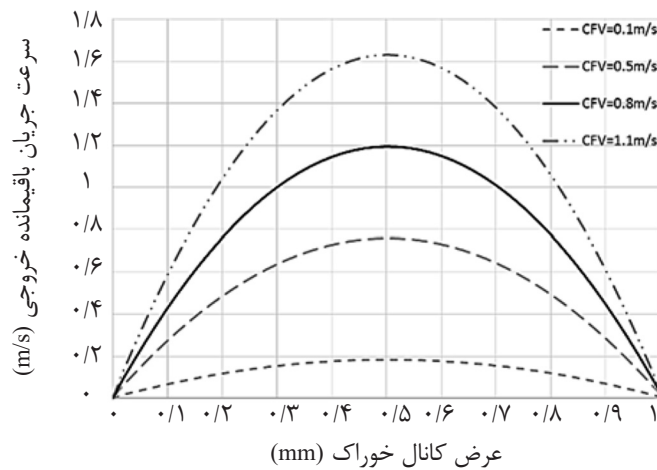
اثر فشار متوسط

در این بخش، اثر فشارهای متوسط متفاوت بر پروفایل سرعت‌های خروجی کانال‌ها بررسی شده است. همان‌طور که در شکل‌های ۱۲ و ۱۳ مشخص است فشار متوسط بر روی سرعت جریان تراویده تأثیر می‌گذارد اما با توجه به اینکه فشار در طول کانال خوراک ثابت و برابر با فشار متوسط است، بر روی سرعت جریان باقیمانده تقریباً بی‌تأثیر است. گفتنی است که گرفتگی داخلی غشا نیز ممکن است باعث تغییر در سرعت جریان تراویده شود که در این شبیه‌سازی ساختار و گرفتگی داخلی غشا در نظر گرفته نشده است. سرعت خوراک ورودی ثابت و برابر با 0.8 m/s در نظر گرفته شده است.

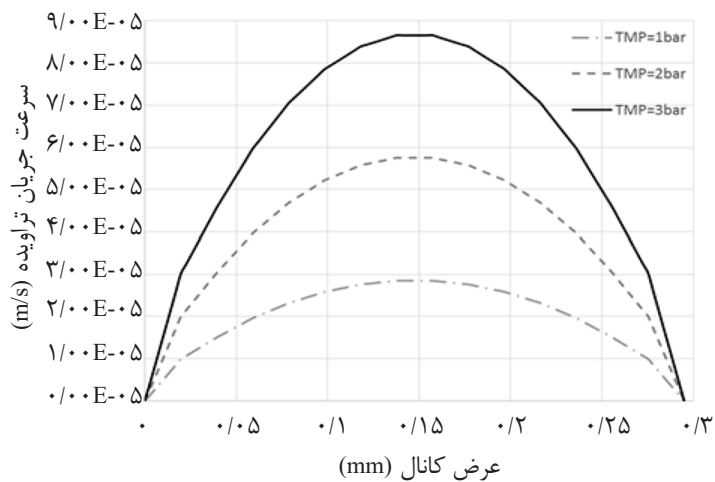
در این بخش، اثر تغییر سرعت متقاطع ورودی بر میزان و پروفایل سرعت برای خروجی کانال‌ها بررسی شده است. شکل ۱۰ سرعت خروجی کانال خوراک و شکل ۱۱ سرعت خروجی کانال تراویده نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود با افزایش سرعت متقاطع ورودی، سرعت خروجی کانال خوراک و جریان تراویده افزایش می‌یابد اما تأثیر آن بر روی سرعت خروجی جریان تراویده بسیار ناچیز است. همان‌طور که بیان شد، در این پژوهش جریان تراویده از غشا تابع از فشار و مطابق با قانون دارسی تعریف شده است که تأثیر سرعت ورودی بر آن در معادله دارسی گنجانده نشده است. با اینکه اثر سرعت در فشار دیده می‌شود اما در سل غشایی اختلاف فشار بین ورودی و خروجی کانال خوراک در طول کل آزمایش‌ها، ثابت و برابر با فشار متوسط است به همین دلیل تأثیر سرعت خوراک بر سرعت جریان تراویده ناچیز است. در مطالعات آینده، باید به دنبال یافتن چگونگی تشکیل رسوب و تأثیر مستقیم



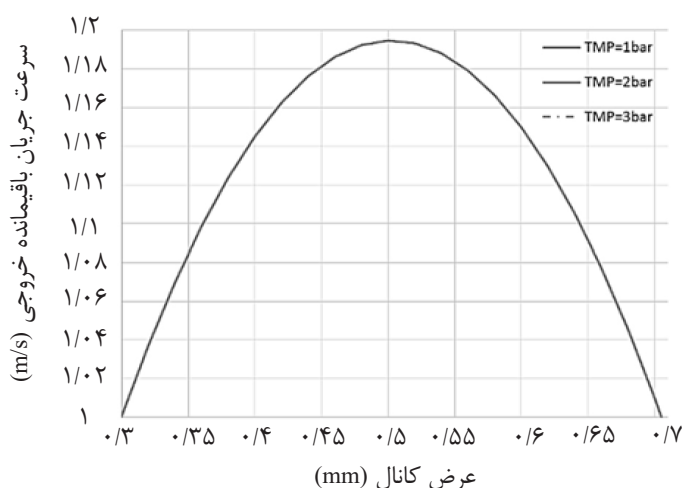
شکل ۱۰ اثر سرعت خوراک ورودی بر سرعت جریان تراویده خروجی (فشار متوسط ۱ bar)



شکل ۱۱ اثر سرعت خوراک ورودی بر سرعت جریان باقیمانده خروجی (فشار متوسط ۱ bar)



شکل ۱۲ اثر فشار متوسط بر سرعت جریان تراویده خروجی (سرعت خوراک ۰/۸ m/s)

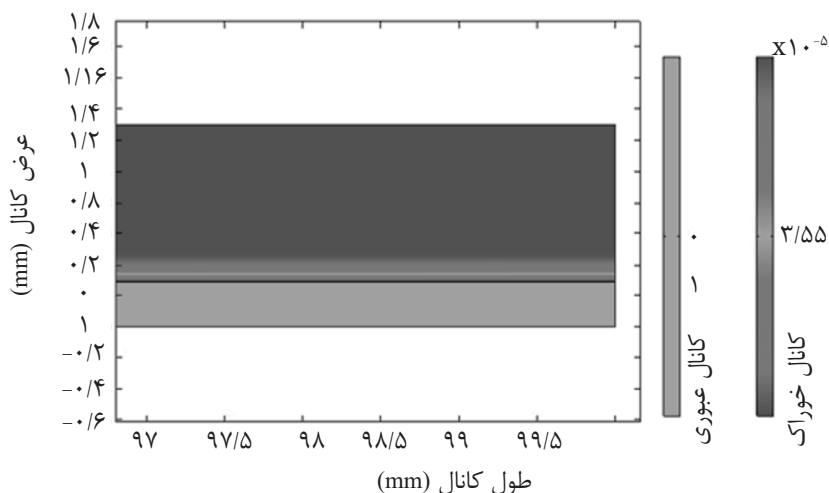


شکل ۱۳ اثر فشار متوسط بر سرعت جریان باقیمانده خروجی (سرعت خوراک ۰/۸ m/s)

اما در ناحیه نزدیک سطح غشا مقادیر بیشتری دارد. این غلظت تقریباً ثابت می‌تواند ناشی از بررسی حالت پایای مسئله و در نظر نگرفتن تجمع قطرات نفت بر روی سطح غشا باگذشت زمان باشد. در این شبیه‌سازی، لایه قطبیدگی غلظتی توسط غلظت نهایی روی سطح غشا و تأثیر آن بر روی لایه‌های نزدیک سطح غشا به‌واسطه ضریب نفوذ تشکیل می‌شود. با بررسی حالت گذرای فرآیند و در نتیجه افزایش غلظت نفت در لایه قطبیدگی غلظتی و تشکیل کیک، ممکن است ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی افزایش یابد که باید به‌صورت تابعی از زمان، خواص فیزیکی و شیمیایی قطرات نفت جهت تشکیل کیک و پارامترهای دیگر بررسی شود.

لایه قطبیدگی غلظتی

همان‌طور که بیان شد، فرض شده است که جداسازی به‌صورت کامل انجام می‌شود و هیچ قطره نفتی از غشا عبور نمی‌کند بنابراین پس‌زنی ۱۰۰٪ است و انتظار می‌رود که غلظت نفت در جریان تراویده صفر به دست آید. برای این منظور، در سطح غشا برای جزء نفت، شار تراویده از سطح غشا به‌عنوان شرط مرزی، مقدار صفر در نظر گرفته شده است. میزان نفوذ قطرات نفت در آب برابر نفوذ مولکولی نفت در آب ($1/2 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$) فرض شده است. پروفایل غلظتی در کانال‌های دو سمت غشا در حالت پایدار در شکل ۱۴ نشان داده شده است. بر اساس نتایج مشاهده شده، غلظت نفت در لایه قطبیدگی غلظتی تقریباً ثابت گزارش شده است

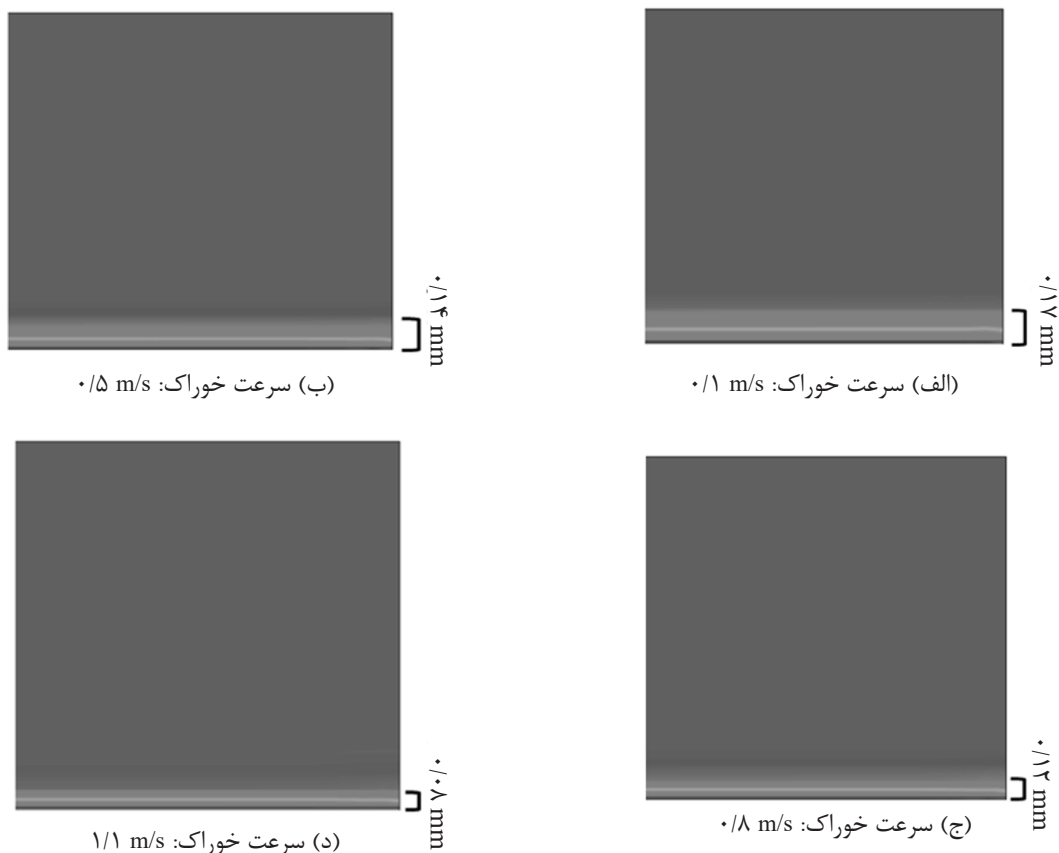


شکل ۱۴ پروفایل غلظتی در انتهای کانال‌های خوراک و جریان تراویده (فشار متوسط ۱ bar و سرعت خوراک ۰/۸ m/s)

اثر سرعت خوراک بر ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی

یکی از عواملی که بر لایه قطبیدگی غلظت نزدیک سطح غشا تأثیر می‌گذارد سرعت جریان متقاطع ورودی است. در اینجا اثر چهار سرعت خوراک ورودی تحت شرایط آرام بر ضخامت این لایه بررسی شده است. نتایج شبیه‌سازی برای چهار سرعت ۰/۱، ۰/۵، ۰/۸، ۱/۱ در شکل ۱۵ ارائه شده است. از بررسی نتایج مشخص شد که افزایش سرعت متقاطع ورودی باعث کاهش ضخامت این

لایه می‌شود. حداکثر ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی برای سرعت‌های ورودی ۰/۱، ۰/۵، ۰/۸، ۱/۱ متر بر ثانیه، به ترتیب ۰/۰۸، ۰/۱۲، ۰/۱۴ و ۰/۱۷ میلی‌متر به دست آمده است. از مقادیر گزارش شده نتیجه می‌شود با افزایش ۱۱ برابری سرعت خوراک ورودی، ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی ۵۲٪ کاهش می‌یابد. در شبیه‌سازی، از معادله ۱۳ برای تعیین حداکثر ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی در کانال خوراک استفاده شده است.



شکل ۱۵ اثر سرعت متقاطع ورودی بر ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی (فشار متوسط ۱ bar)

بررسی شده است.

در قسمت آزمایشگاهی، تغییرات شار تراویده با زمان برای دو خوراک آب خالص و امولسیون نفت در آب به دست آورده شده است. اثر افزایش فشار متوسط بر شار تراویده امولسیون نفت در آب بررسی شد. با استفاده از نتایج آزمایشگاهی برای آب خالص در حالت پایدار شار تراویده، مقاومت غشای سلولز

نتیجه‌گیری

در این مطالعه، با توجه به کاهش روزافزون آب و مشکلات محیط زیستی، به جداسازی فاضلاب‌های نفتی توسط فرآیند میکروفیلتراسیون پرداخته شده است. امولسیون نفت در آب یکی از انواع فاضلاب‌های نفتی است که در اینجا به صورت آزمایشگاهی توسط غشای سلولز استات و شبیه‌سازی در حالت پایا

برابر جریان باشد. همچنین ممکن است بخشی از خطا به دلیل این واقعیت باشد که شبیه‌سازی فرآیند در شرایط پایا انجام شده است که این فرض برای یک فرآیند وابسته به زمان کاملاً درستی نیست. همچنین خطای ناشی از بررسی حالت پایای سیستم باشد. همچنین با حل هم‌زمان معادلات ناویر-استوکس موازنه جرم و قانون داریسی، اثر پارامترهای مختلف از جمله سرعت ورودی خوراک و فشار متوسط بر سرعت خروجی از کانال‌های جریان تراویده و جریان باقیمانده و ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی بررسی شد. نتایج گزارش شده نشان داد که با افزایش سرعت خوراک ورودی از ۰/۱ به ۱/۱ متر بر ثانیه، میزان ضخامت لایه قطبیدگی غلظتی ۵۲٪ کاهش و با افزایش فشار متوسط از ۱ به ۲ بار، سرعت خروجی جریان تراویده تقریباً ۱۹۰٪ افزایش می‌یابد؛ اما با توجه به ثابت نگه‌داشتن فشار متوسط در طول کانال خوراک، افزایش فشار تأثیری بر سرعت خروجی جریان باقیمانده ندارد.

استات به دست آمده و به عنوان مقاومت غشا در معادله داریسی برای پیش‌بینی شار تراویده در شبیه‌سازی استفاده شده است. معادله داریسی استفاده شده برای شار تراویده از غشا در شبیه‌سازی، تابعی از فشار محلی در سل غشایی، مقاومت در برابر جریان (مقاومت ناشی از تشکیل کیک و غشا) و ویسکوزیته سیال است. نتایج نشان داد که خطای ناشی از بررسی حالت پایای شار تراویده برای آب خالص حداکثر ۵٪ در فشار متوسط ۱ بار و برای امولسیون نفت در آب حداکثر ۳۵٪ در فشار متوسط ۲ بار است که با توجه به فرضیات ساده کننده و مطالعات پیشین خطای قابل قبولی است. این افزایش خطا در اثر افزایش فشار متوسط از ۱ به ۲ بار می‌تواند ناشی از افزایش میزان گرفتگی باشد. خطاهای شبیه‌سازی حاضر می‌تواند ناشی از در نظر نگرفتن ساختار غشا، گرفتگی داخلی غشا و در نتیجه افزایش مقاومت داخلی غشا، صرف‌نظر کردن از اثر لایه قطبیدگی غلظتی و مقاومت آن در

علائم و نشانه‌ها

μ : ویسکوزیته $\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$	<i>Rejection</i> : پس‌زنی -
l : ضخامت m	ϕ : درصد حجمی -
زیروند	u : سرعت در جهت x مختصات m.s^{-1}
b : توده سیال در جریان خوراک	v_{dr} : سرعت رانشی m.s^{-1}
k : شمارنده فاز	l : ضخامت m
q : فاز گسسته	C : غلظت mol.m^{-3}
p : جریان تراویده	x, y : محورهای مختصات کارترین -
p : فاز پیوسته	F : نیروی وارده به سیال kg.m.s^{-2}
m : مخلوط	J : شار $\text{L.m}^{-2}.\text{hr}$
	ρ : چگالی kg.m^{-3}
	t : زمان s
	v : سرعت در جهت y مختصات m.s^{-1}
	g : شتاب گرانش m.s^{-2}
	D_y : ضریب نفوذ نفت در آب m^2/s
	P : فشار Pa
	R : مقاومت m^{-1}

- [1]. Fouladitajar A., Ashtiani F. Z., Okhovat A. and Dabir B., "Membrane fouling in microfiltration of oil-in-water emulsions; a comparison between constant pressure blocking laws and genetic programming (GP) model," Desalination, Vol. 329, pp. 41-49, 2013.
- [2]. Monfared M. A., Kasiri N. and Mohammadi T., "Microscopic modeling of critical pressure of permeation in oily waste water treatment via membrane filtration," RSC Advances, Vol. 6, No. 75, pp. 71744-71756, 2016.
- [3]. Hilal N., Ogunbiyi O. O., Miles N. J. and Nigmatullin R., "Methods employed for control of fouling in MF and UF membranes: a comprehensive review," Separation Science and Technology, Vol. 40, No. 10, pp. 1957-2005, 2005.
- [4]. Keir G. and Jegatheesan V., "A review of computational fluid dynamics applications in pressure-driven membrane filtration," Reviews in Environmental Science and Bio/Technology, Vol. 13, No. 2, pp. 183-201, 2014.
- [5]. Mulder J., "Basic principles of membrane technology," Springer Science & Business Media, 2012.
- [6]. Fouladitajar A., Ashtiani F. Z., Rezaei H., Haghmoradi A. and Kargari A., "Gas sparging to enhance permeate flux and reduce fouling resistances in cross flow microfiltration," Journal of Industrial and Engineering Chemistry, Vol. 20, No. 2, pp. 624-632, 2014.
- [7]. Tarleton E. S., "Progress in filtration and separation," Academic Press, 2014.
- [8]. Abbasi M., Sebzari M. R., Salahi A., Abbasi S. and Mohammadi T., "Flux decline and membrane fouling in cross-flow microfiltration of oil-in-water emulsions," Desalination and Water Treatment, Vol. 28, No. 1-3, pp. 1-7, 2011.
- [9]. Das B., Chakrabarty B. and Barkakati P., "Separation of oil from oily wastewater using low cost ceramic membrane," Korean Journal of Chemical Engineering, Vol. 34, No. 10, pp. 2559-2569, 2017.
- [10]. Koltuniewicz A. B., Field R. and Arnot T., "Cross-flow and dead-end microfiltration of oily-water emulsion. Part I: Experimental study and analysis of flux decline," Journal of Membrane Science, Vol. 102, pp. 193-207, 1995.
- [11]. Lim A. and Bai R., "Membrane fouling and cleaning in microfiltration of activated sludge wastewater," Journal of Membrane Science, Vol. 216, No. 1-2, pp. 279-290, 2003.
- [12]. Suresh K. and Pugazhenth G., "Cross flow microfiltration of oil-water emulsions using clay based ceramic membrane support and TiO₂ composite membrane," Egyptian Journal of Petroleum, Vol. 26, No. 3, pp. 679-694, 2017.
- [13]. Bai R. and Leow H., "Microfiltration of activated sludge wastewater—the effect of system operation parameters," Separation and Purification Technology, Vol. 29, No. 2, pp. 189-198, 2002.
- [14]. Rezaei H., Ashtiani F. Z. and Fouladitajar A., "Effects of operating parameters on fouling mechanism and membrane flux in cross-flow microfiltration of whey," Desalination, Vol. 274, No. 1-3, pp. 262-271, 2011.
- [15]. Shokrkari H., Salahi A., Kasiri N. and Mohammadi T., "Prediction of permeation flux decline during MF of oily wastewater using genetic programming," Chemical Engineering Research and Design, Vol. 90, No. 6, pp. 846-853, 2012.
- [16]. Ochoa N., Masuelli M. and Marchese J., "Effect of hydrophilicity on fouling of an emulsified oil wastewater

- with PVDF/PMMA membranes," *Journal of Membrane Science*, Vol. 226, No. 1-2, pp. 203-211, 2003.
- [17]. Salahi A., Gheshlaghi A., Mohammadi T. and Madaeni S. S., "Experimental performance evaluation of polymeric membranes for treatment of an industrial oily wastewater," *Desalination*, Vol. 262, No. 1-3, pp. 235-242, 2010.
- [18]. Emani S., Uppaluri R. and Purkait M. K., "Microfiltration of oil-water emulsions using low cost ceramic membranes prepared with the uniaxial dry compaction method," *Ceramics International*, Vol. 40, No. 1, pp. 1155-1164, 2014.
- [19]. Gruber M., Johnson C., Tang C., Jensen M. H., Yde L. and Hélix-Nielsen C., "Computational fluid dynamics simulations of flow and concentration polarization in forward osmosis membrane systems," *Journal of Membrane science*, Vol. 379, No. 1-2, pp. 488-495, 2011.
- [20]. Ahmad A., Lau K., Bakar M. A. and Shukor S. A., "Integrated CFD simulation of concentration polarization in narrow membrane channel," *Computers & Chemical Engineering*, Vol. 29, No. 10, pp. 2087-2095, 2005.
- [21]. Pak A., Mohammadi T., Hosseinalipour S. and Allahdini V., "CFD modeling of porous membranes," *Desalination*, Vol. 222, No. 1-3, pp. 482-488, 2008.
- [۲۲]. شیخی. م، "بررسی آزمایشگاهی اثر میدان الکتریکی بر شار عبوری از غشای میکروفیلتراسیون در امولسیون آب و نفت"، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه علم و صنعت ایران، ۱۳۹۵.



Experimental and Simulation Study of Cross-Flow Microfiltration Process of Oil-in-Water Emulsion Using Cellulose Acetate Membrane

Amir Hossein Behroozi¹, Norollah Kasiri^{1*}, Mohammad Sheikhi¹ and Toraj Mohammadi²

1. Computer Aided Process Engineering (CAPE) Laboratory, School of Chemical, Oil and Gas Engineering, Iran University of Science and Technology, Tehran, Iran

2. Research and Technology Centre for Membrane Processes, School of Chemical, Oil and Gas Engineering, Iran University of Science and Technology, Tehran, Iran

capepub@cape.iust.ac.ir

DOI: 10.22078/pr.2019.3456.2588

Received: September/26/2018

Accepted: February/13/2019

INTRODUCTION

Over the past few decades, membrane filtration has played an important role in the industrial separation processes. Moreover, hydrocarbon sewage is an important environmental concern which needs urgent attention. In addition, cross-flow microfiltration is an economical energy storage process to separate oil from the oil-in-water emulsion [1].

Recent experimental and computational studies have been carried out on the use of different membranes to increase the separation efficiency in these processes [2]. Various parameters such as cross-flow velocity (CFV), Trans-membrane pressure (TMP), initial feed concentration, membrane type, the diameter of membrane pores and fluid hydrodynamics on membrane surface

function [3]. In these processes, various models, which include the Hermia model, have been developed to predict permeate flux [4]. In the recent years, the law of Darcy has been used to describe the permeate flux through the membrane surface, which is a function of TMP, resistance (summation of cake and internal membrane resistances), and fluid viscosity [5].

EXPERIMENTAL PROCEDURE EMULSION PREPARATION

In order to prepare emulsion, two non-ionic surfactants have been used with commercial names for the Twin 80 and Span 80. Moreover, the required amount of surfactant should also be evaluated to choose the preparing method for stable emulsion. For this purpose, three

emulsions with a concentration of 1000 mg/L (mg/L) from kerosene were prepared using three amounts of surfactant, i.e. 0.5, 1 and 1.5% by weight of the oil phase. Moreover, all emulsions were circulated in the microfiltration setup using a centrifuge pump for an hour. Then, the emulsions were sampled at different times of mixing. The examination of samples by microscope showed that the number of oil droplets remained almost constant after about 30 minutes. The final emulsion was sampled after sufficient mixing time using zeta sizer to measure the droplet size distribution (DSD). Based on the droplet size distribution given in Fig. 1, the average droplet size can be considered as 2 microns, which is also used in the simulation.

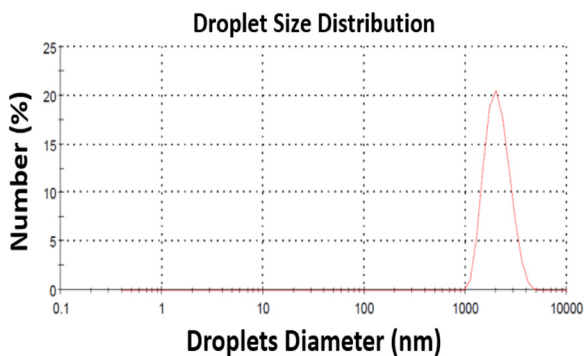


Figure 1: Droplet size distribution.

MICROFILTRATION SETUP

This device is equipped with a calibrated rotameter a thermometer and two digital barometers. A heat exchanger is placed in the setup and two coils inside the feed tank to control the changes in feed temperature and reduce its viscosity changes during the microfiltration process. In which case, it is possible to simulate the process with the assumption at the isothermal condition and eliminate energy equations in the simulation. It should be noted that a small stirrer was used to completely mix the temperature and concentration in the feed tank. The schematic view of the microfiltration setup is shown in Fig. 2.

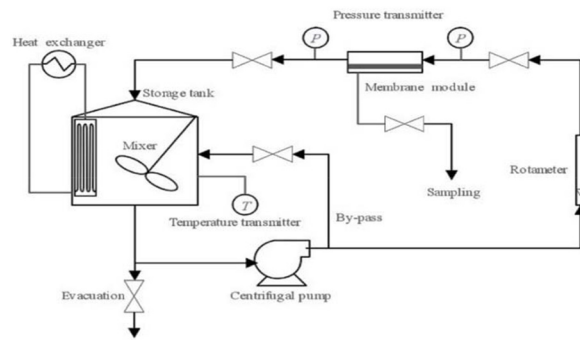


Figure 2: Microfiltration setup

RESULTS AND DISCUSSION PERMEATE FLUX

The equation below has been used to calculate the permeate flux through the membrane:

$$J = \frac{m}{A \times \Delta t} \tag{1}$$

where m is the water volume pass through the membrane (L^3), A is the membrane area (m^2), and t is process time with the unit of h.

The experimental permeate fluxes are shown for pure water and oil-in-water emulsion in Fig. 3 (a) and Fig. 3 (b) respectively.

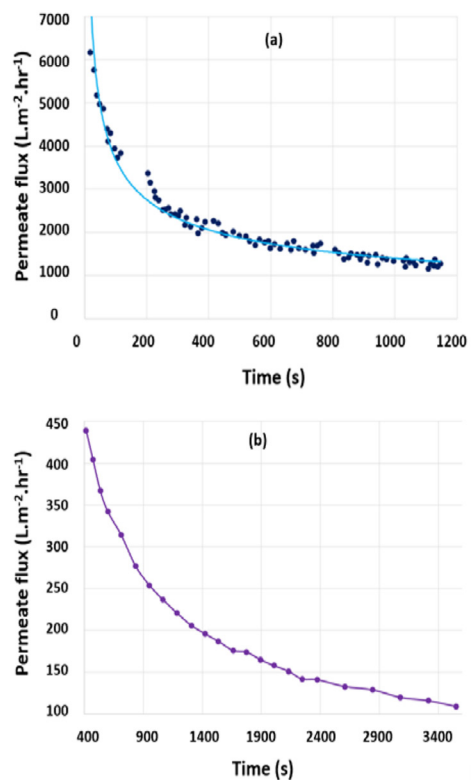


Figure 3: Variation of permeate flux vs. time for (a) pure water (b) oil-in-water emulsion at TMP of 1 bar, CFV of 0.8 m/s and temperature of 293 K.

However, due to the fact that performing compaction testing at higher pressures may cause a change in the membrane structure and reduce its thickness. In this study, by taking into account the industrial conditions, the test was carried out at TMP of 1 bar for pure water as feed. As shown in Fig. 3 (a), the permeate flux for pure water will decrease until the 20th minute from the beginning of the process, but almost the intensity of this drop will reduce from the fifth minute. Therefore, in order to apply the effects of cellulose acetate membrane compacting, all the experimental data are reported after the sixth minute.

TMP EFFECTS ON PERMEATE FLUX

The experiments were carried out at two different TMPs to investigate the effects of TMP on flux. As expected, by increasing pressure from 1 to 2 bar, the values of permeate fluxes have increased about 120%. According to Darcy's law, the permeate flux has a direct relation with TMP. Here, the effects of TMP on experimental permeate flux for oil-in-water emulsion is reported in Fig. 4.

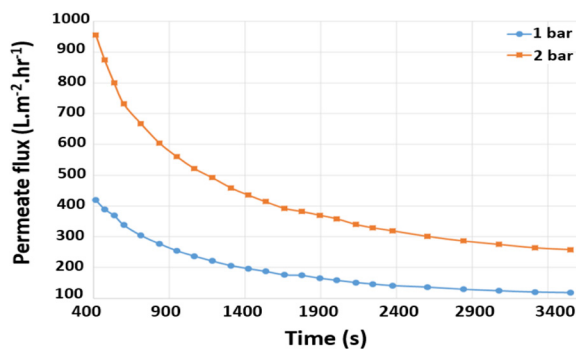


Figure 4: The effects of TMP on permeate flux vs. time for oil-in-water emulsion at CFV of 0.8 m/s and temperature of 293 K.

VELOCITY PROFILE

The effects of CFV and TMP on the output velocity profile of the concentrate and permeate channels are investigated as shown in Fig. 5 (a) and Fig.

5 (b) respectively. As expected, by increasing CFV, the outlet velocity of concentrate channel increases, and also by increasing TMP, the outlet velocity of the permeate channel increases due to Darcy's law equation.

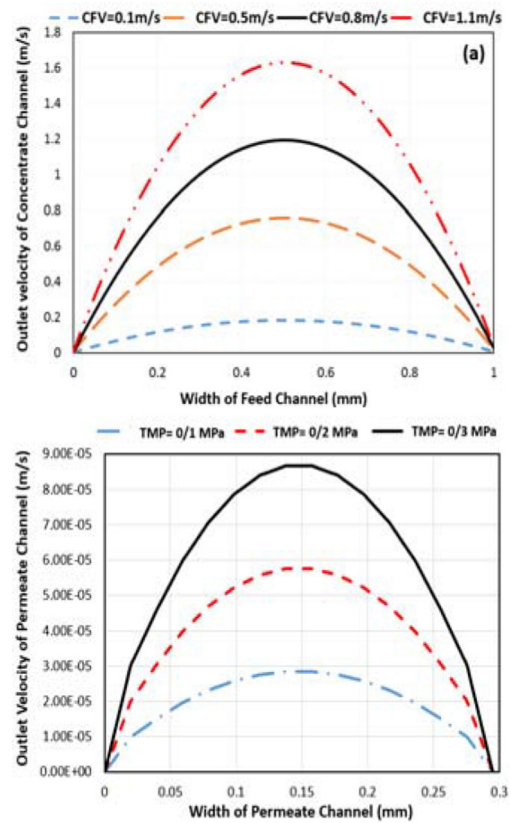


Figure 5: Effects of CFV and TMP on velocity profile at outlet (a) concentrate channel (b) permeate channel.

CONCLUSIONS

Time variation of permeate flux has been obtained for both pure water and oil-in-water emulsion as feeds. The effect of TMP increasing on the permeated flux was also investigated. Darcy's law equation has been used to simulate membrane permeate flux which is a function of local pressure in membrane module, resistance to flow (resistance of cake formation and membrane) and fluid viscosity. The results showed that the errors for steady-state fluxes are 5% and 35% for pure water and oil-in-water emulsion at 1 and 2 bars respectively. Due to

simplifying assumptions and previous studies, the errors are acceptable. Also, by solving the Navier-Stokes equations, mass balance and Darcy's law, the effects of various parameters such as CFV and TMP on the output velocity of the concentrate and permeate channels and the thickness of the CP layer were investigated. Finally, the results showed that by increasing feed speed from 1.0 to 1.1 m/s, the CP thickness decreases 52% and by increasing TMP from 1 to 2 bars, the outlet velocity of permeate channel increases by about 190%. However, due to the constant pressure condition over the feed channel, the increase in TMP does not affect the outlet velocity of the concentrate channel.

REFERENCES

- [1]. Monfared M. A., Kasiri N. and Mohammadi T., "Microscopic modeling of critical pressure of permeation in oily waste water treatment via membrane filtration," RSC Advances, Vol. 6, No. 75, pp. 71744-71756, 2016.
- [8]. Abbasi M., Sebzari M. R., Salahi A., Abbasi S. and Mohammadi T., "Flux decline and membrane fouling in cross-flow microfiltration of oil-in-water emulsions," Desalination and Water Treatment, Vol. 28, No. 1-3, pp. 1-7, 2011.
- [15]. Shokrkar H., Salahi A., Kasiri N. and Mohammadi T., "Prediction of permeation flux decline during MF of oily wastewater using genetic programming," Chemical Engineering Research and Design, Vol. 90, No. 6, pp. 846-853, 2012.
- [17]. Salahi A., Gheshlaghi A., Mohammadi T. and Madaeni S. S., "Experimental performance evaluation of polymeric membranes for treatment of an industrial oily wastewater," Desalination, Vol. 262, No. 1-3, pp. 235-242, 2010.
- [18]. Emani S., Uppaluri R. and Purkait M. K., "Microfiltration of oil-water emulsions using low cost ceramic membranes prepared with the uniaxial dry compaction method," Ceramics International, Vol. 40, No. 1, pp. 1155-1164, 2014.