

УДК 621.565

**В.Л. Бондаренко**

Московский государственный технический университет им. Н.Э. Баумана, Лефортовская наб., д. 1, факультет «Энергомашиностроение», г. Москва, РФ, 105005  
e-mail: nadia@iceblick.com

**А.П. Чуклин**

Одесская государственная академия холода, ул. Дворянская, 1/3, г. Одесса, Украина, 65082  
e-mail: aleksandr.chuklin@gmail.com

## РАСЧЁТ БАРОМЕМБРАННЫХ ПРОЦЕССОВ ИЗВЛЕЧЕНИЯ РЕДКИХ ГАЗОВ

*Разделение газов на мембранах находит всё более широкое применение. Одно из перспективных направлений — использование мембран в оборудовании воздухоразделительных установок для очистки неонгелиевой смеси от азота. Это позволит отказаться от дефлегматоров, что особенно актуально в связи с появлением воздухоразделительных установок с ограниченной выдачей жидкого азота. Представленная математическая модель с высокой степенью точности предсказывает характеристики процесса баромембранного разделения многокомпонентных газовых смесей в широких диапазонах режимов работы. Приведены вычислительные алгоритмы для схем с прямоточным и противоточным способом организации потоков внутри мембраны. Рассмотрены результаты вычислений для случая разделения воздуха и многокомпонентной смеси редких газов. Проведено сравнение экспериментальных данных с результатами расчётов, подтвердившее хорошее их совпадение.*  
**Ключевые слова:** Мембрана. Волокно. Газовая смесь. Воздух. Ne-He-N<sub>2</sub> - смесь. Разделение. Математическая модель.

**V.L. Bondarenko, A.P. Chuklin**

## CALCULATION OF THE BAROMEMBRANE PROCESSES OF RARE GASES EXTRACTION

*Separation of gases on the membranes finds all more widely used. One of the promising directions is the use of membranes in equipment of air separation units for purification neon-helium mixture from the nitrogen. This will allow to refuse the reflux condenser that is especially actual due to the advent of air separation units with limited issuance of liquid nitrogen. The mathematical model with a high degree of accuracy predicts the process characteristics baromembrane separation of multicomponent gas mixtures over wide ranges of operation modes. The computing algorithm for schemes with direct-flow and counter-flow management process within the membrane were formulated. The results of the calculations for the case of air and the multicomponent mixture of rare gases were observed. Experimental data was compared with the results obtained, which confirmed their good coincidence.*

**Keywords:** Membrane.Fiber. Gas mixture. Air. Ne-He-N<sub>2</sub>-mixture. Mathematical model.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Метод разделения газов на мембранах, начиная с момента коммерческого его использования в 1980 г., приобретает все большее значение. Являясь альтернативой криогенным и адсорбционным методам разделения, а в некоторых случаях и заменяя их, баромембранная технология в ряде случаев характеризуется высокой конкурентоспособностью. В тех проектах, где на первый план выдвигаются требования к простоте в эксплуатации и отсутствию в схемах сложных машин и механизмов, газоразделительные мемб-

раны становятся их неотъемлемой частью.

Зачастую, к сдерживающим использование полимерных газоразделительных мембран факторам относятся те из них, которые связаны с определением производительности и необходимой площади мембранных модулей. Трудность расчётов обусловлена тем, что количество газа, поступившего под мембрану (пермеата), напрямую зависит от парциального давления компонента в канале высокого давления (ретентата или нонпермеата), которое, в свою очередь, изменяется по длине канала. В этом случае применение численных методов является необходимым условием для проведения расчётов и получения результатов с высо-

кой степенью достоверности.

Метод, изложенный в настоящей статье, позволяет со значительной степенью точности предсказывать производительность мембранных модулей из полых волокон для разделения многокомпонентных газовых смесей в различных режимах, в том числе и в режиме с высокими значениями отбора пермеата. Данная публикация является продолжением цикла исследований мембранных модулей в применении к многокомпонентным смесям на базе инертных газов.

## 2. ОБЩИЕ СВЕДЕНИЯ

Наиболее общее определение мембраны может быть следующим: мембрана — это селективный барьер между двумя фазами. Причём термин «селективный» может относиться как к мембранам, так и к мембранным процессам. Селективно-проницаемая перегородка разделяет массообменный аппарат на две рабочие зоны, в которых поддерживаются различные давления и составы разделяемой смеси. Мембраны могут быть выполнены в виде плоских листов, труб, капилляров и полых волокон. Наиболее распространённые искусственные мембраны — полимерные.

Далее под термином мембрана будет пониматься мембранный модуль из полых волокон. Его схематическое устройство показано на рис 1.

Как видно из рис. 1,б, единичный мембранный модуль представляет собой картридж с плотно упакованными полыми волокнами. Количество волокон колеблется от десятков до сотен тысяч (рис. 1,в). Они определяют суммарную площадь поверхности разделения и, следовательно, производительность модуля.

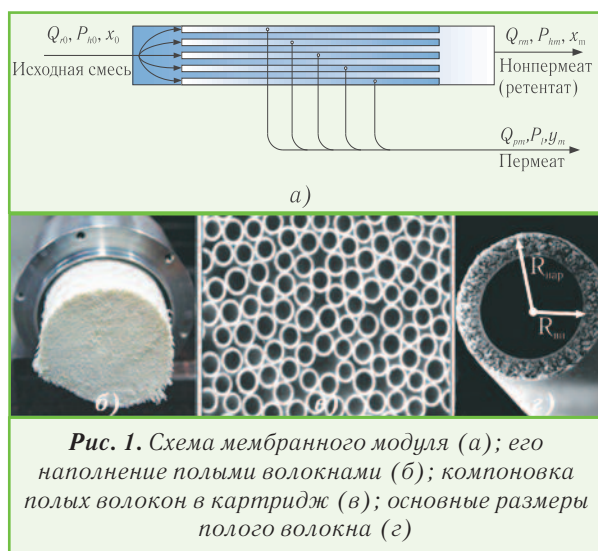


Рис. 1. Схема мембранного модуля (а); его наполнение полыми волокнами (б); компоновка полых волокон в картридже (в); основные размеры полого волокна (г)

Схематически процесс разделения бинарной смеси показан на рис. 1, а. Исходная смесь с начальным расходом  $Q_0$  и концентрацией  $x_0$  проходит внутри цилиндрического канала и, обладая повышенным давлением, стремится проникнуть в полость низкого давления — дренажный канал. По мере движения в напор-

ном канале расход потока уменьшается на величину  $(Q_0 - Q_{r0})$ , а его концентрация изменяется от  $x_0$  до  $x_m$ . Давление при этом снижается на величину  $(P_0 - P_{r0})$ .

В дренажном канале из элементарных объёмов проникающего газа формируется пермеатный поток с расходом  $Q_{pm}$  и концентрацией  $y_m$ . Если целевой продукт отличается от других компонентов смеси меньшей проницаемостью, чем другие компоненты смеси, то он преобладает на выходе из напорного канала в остаточной смеси  $Q_{r0}$ . В противном случае это вещество концентрируется в пермеатном потоке  $Q_{pm}$ .

Относительный расход пермеатного потока  $\theta = Q_{pm}/Q_0$  — важнейший эксплуатационный параметр мембранных установок. Перепад давлений  $\Delta P = (P_0 - P_l)$  между напорным и дренажным каналом — основная движущая сила процесса баромембранного газоразделения. Часто этот фактор характеризуется отношением  $P_l/P_0 < 1$ . Перепад давлений может создаваться подачей сжатой исходной смеси либо за счет вакуумирования пермеатного потока [1].

В зависимости от структуры матрицы, свойств веществ и термодинамических параметров процесса транспорт компонента разделяемой газовой смеси через пористую основу мембраны осуществляется одновременно несколькими механизмами переноса. В общем случае движение компонентов смеси может вызываться конвективно-фильтрационным переносом, различного вида скольжениями вдоль поверхности пор, объёмной диффузией, баро- и термодиффузией, кнудсеновской диффузией (эффузией), поверхностной диффузией, пленочным течением вследствие градиента расклинивающего давления, капиллярным переносом конденсированной фазы в анизотропных структурах. Вещество в порах скелета мембраны может находиться в виде объёмной газовой фазы, капиллярной жидкости и адсорбированной плёнки. В каждом из этих состояний возможны несколько механизмов переноса, взаимосвязанных между собой. Не все виды переноса равнозначны по своему вкладу в результирующий поток вещества, поэтому при вычислении коэффициента проницаемости необходимо определить условия, при которых те или иные формы движения вещества являются доминирующими [2]. Совокупность факторов, образующих сложный механизм переноса, для  $j$ -того компонента смеси может быть выражена в виде отдельной величины — проницаемости  $R_j$ , характеризующей интенсивность (скорость) прохождения компонента через селективный слой.

## 3. МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

В [3,4] широко освещены методы расчёта и моделирования процесса баромембранного разделения смесей газов. Как правило, в их основе лежат итерационные процедуры метода последовательного приближения. В процессе работы было определено, что в случаях, когда количество компонентов больше или равно трём, а их коэффициенты проницаемости имеют значительные различия, данные методики корректны лишь в очень узком диапазоне режимов, характе-

ризующихся малыми  $q$ .

Изложенный далее алгоритм позволяет определять основные параметры процесса разделения многокомпонентной смеси на полимерной мембране из полых волокон. Расчёт процесса баромембранного разделения многокомпонентной смеси сводится к решению уравнений массового баланса по сечениям мембраны. В этом случае можно провести аналогию с определением температурного поля теплообменного аппарата по заданной поверхности.

Перечислим основные допущения, используемые в расчётной схеме:

1. Процесс разделения — стационарный.
2. Гидравлическое сопротивление в дренажном канале пренебрежимо мало.
3. Гидравлическое сопротивление в напорном канале описывается уравнением Хагена-Пуазейля.
4. В расчёте рассматривается производительность одного волокна. Производительность мембранного модуля находится путём умножения полученного результата на число волокон.
5. Размеры волокон и толщина селективного слоя по длине неизменны.
6. Деформация волокон от действия внутреннего давления отсутствует.

### 3.1. Прямоточная схема

На рис. 2 представлен прямоточный мембранный модуль, разделенный на  $m$  секций, равных по площади. Площадь поверхности, через которую происходит сепарация, для одного участка описывается выражением:

$$\Delta F = 2\pi R_{\text{нар}} n_{\text{вол}} l_{\text{вол}} m^{-1}, \quad (1)$$

где  $R_{\text{нар}}$  — наружный диаметр волокна, м;  $n_{\text{вол}}$  — количество волокон в модуле;  $l_{\text{вол}}$  — рабочая длина волокна, м;  $m$  — количество участков.

На рис. 2 использованы обозначения:  $Q_m$  и  $Q_{pn}$  ( $\text{м}^3/\text{с}$ ) — полные объёмные расходы потоков ретентата (нонпермеата) и пермеата;  $x_{n,j}$  и  $y_{n,j}$  — объёмные концентрации  $j$ -го компонента в потоках ретентата и пермеата на участке  $n$ .

Расход  $j$ -того компонента в напорном и дренажном каналах определяется из следующих соотношений:

$$q_{r_{n,j}} = x_{n,j} Q_{r_n}; \quad (2)$$

$$q_{p_{n,j}} = y_{n,j} Q_{p_n}. \quad (3)$$

Суммарный расход потоков в напорном и дренажном каналах равен сумме расходов их компонентов. Если принять, что  $K$  — количество компонентов, то

$$Q_{r_n} = \sum_{j=1}^K q_{r_{n,j}}; \quad (4)$$

$$Q_{p_n} = \sum_{j=1}^K q_{p_{n,j}}. \quad (5)$$

Количество  $j$ -го компонента на участке  $n$ , проникшего из напорного в дренажный канал и обусловленного селективной характеристикой участка мембраны

$$\dot{q}_{p_{n,j}} = R_j \Delta F (P_{h_{n-1}} x_{n-1,j} - P_l y_{n,j}). \quad (6)$$

В уравнении (6)  $R_j$  — проницаемость  $j$ -го компонента ( $\text{м}^3/\text{м}^2 \text{сПа}$ );  $P_{h_{n-1}}$  и  $P_l$  — абсолютные давления в напорном и дренажных каналах, Па;  $x_{n-1,j}$  — объёмная концентрация  $j$ -го компонента в потоке ретентата на входе в элементарный участок;  $y_{n,j}$  — объёмная концентрация  $j$ -го компонента в потоке пермеата на элементарном участке;  $\Delta F$  — площадь участка мембраны ( $\text{м}^2$ ), определяемая по выражению (1).

Выделив элементарный участок мембраны, сделаем следующие предположения:

- концентрация  $j$ -го компонента в потоке пермеата зависит исключительно от значений проницаемости, концентрации компонента на входе в участок и давлений в напорном и дренажном каналах;
- концентрация  $j$ -го компонента в ретентате на участке остаётся неизменной.

Перечисленные допущения корректны, когда количество участков разбиения достаточно велико. Исходя из вышесказанного, найдём:

$$y_{n,j} = \frac{R_j \Delta F (P_{h_{n-1}} x_{n-1,j} - P_l y_{n,j})}{\sum_{j=1}^K R_j \Delta F (P_{h_{n-1}} x_{n-1,j} - P_l y_{n,j})}. \quad (7)$$

Для исходной смеси запишем систему из  $K$  уравнений, результатом решения которой являются значения локальных концентрации  $y_{n,j}$  для каждого компо-

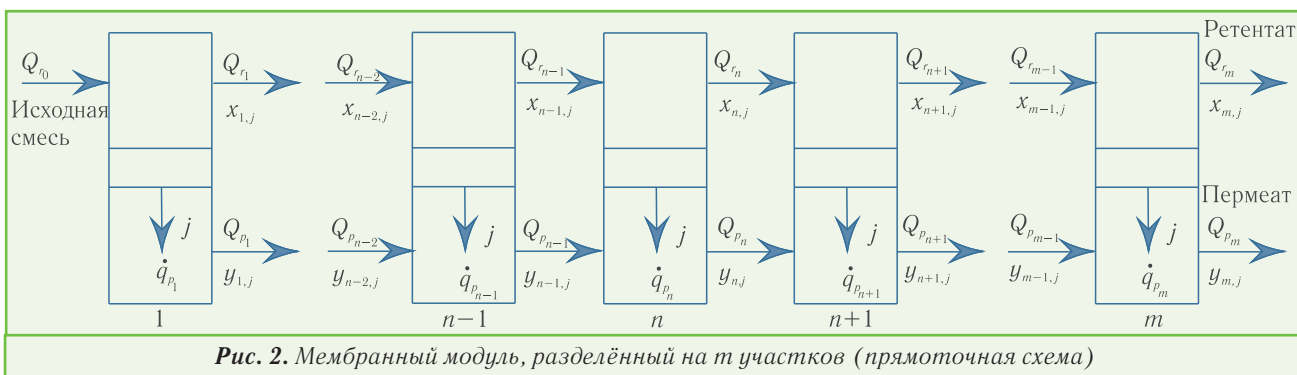


Рис. 2. Мембранный модуль, разделённый на  $m$  участков (прямоточная схема)

нента на рассматриваемом участке. Решение уравнения (7) реализуется итерационным методом Ньютона для систем нелинейных уравнений. В качестве начальных приближений задаются значения концентраций компонентов в потоке пермеата, рассчитанные на предыдущем участке. Для участка № 1 начальными приближениями являются значения концентраций компонентов в исходной смеси.

Итерационные процедуры поиска решения для 3-х компонентной смеси продолжают до выполнения следующего условия:

$$\left| y_{n,1}^{[i]} - y_{n,1}^{[i+1]} \right|, \left| y_{n,2}^{[i]} - y_{n,2}^{[i+1]} \right|, \left| y_{n,3}^{[i]} - y_{n,3}^{[i+1]} \right| \leq 10^{-6},$$

где  $i$  — номер итерации [5].

Ниже представлены системы уравнений для трёх- (8) и четырёхкомпонентных смесей:

$$\begin{cases} y_{n,3} = 1 - y_{n,1} - y_{n,2}; \\ (D_{n,1} - D_{n,3})y_{n,1}^2 + (D_{n,2} - D_{n,3})y_{n,2}^2 + \\ + D_{n,3} - D_{n,1} - E_{n,1} - E_{n,2} - E_{n,3} y_{n,1} + E_{n,1} = 0; \\ (D_{n,1} - D_{n,3})y_{n,1}y_{n,2} + (D_{n,2} - D_{n,3})y_{n,2}^2 + \\ + (D_{n,3} - D_{n,2} - E_{n,1} - E_{n,2} - E_{n,3})y_{n,2} + D_{n,2} = 0. \end{cases} \quad (8)$$

$$\begin{cases} y_{n,4} = 1 - y_{n,1} - y_{n,2} - y_{n,3}; \\ (D_{n,1} - D_{n,4})y_{n,1}^2 + (D_{n,2} - D_{n,4})y_{n,2}^2 + D_{n,3}y_{n,3}^2 + \\ + D_{n,4} - D_{n,1} - E_{n,1} - E_{n,2} - E_{n,3} - E_{n,4} y_{n,1} + E_{n,1} = 0; \\ (D_{n,1} - D_{n,4})y_{n,1}y_{n,2} + (D_{n,2} - D_{n,4})y_{n,2}^2 + (D_{n,3} - D_{n,4}) \times \\ \times y_{n,3} + D_{n,4} - D_{n,2} - E_{n,1} - E_{n,2} - E_{n,3} - E_{n,4} y_{n,2} + E_{n,2} = 0; \\ (D_{n,1} - D_{n,4})y_{n,3}y_{n,1} + (D_{n,2} - D_{n,4})y_{n,3}y_{n,2} + \\ + (D_{n,3} - D_{n,4})y_{n,3}^2 + (D_{n,4} - D_{n,3} - E_{n,1} - E_{n,2} - E_{n,3} - \\ - E_{n,4})y_{n,3} + E_{n,3} = 0. \end{cases} \quad (9)$$

В уравнениях (8) и (9)  $E_{n,j} = P_{hi-1,j} x_{n-1,j}$ ;  $D_{n,j} = P_i R_j$ .

Вслед за расчётом локальных концентраций компонентов смеси по уравнению (6) определяются расходы каждого из компонентов  $q_{pn,j}$ , проникших из напорного канала в дренажный через рассматриваемый участок мембраны. Далее по уравнениям (10) и (11) рассчитываются полные расходы потоков пермеата и ретентата:

$$Q_n = Q_{n-1} - \sum_{j=1}^K \dot{q}_{pn,j}; \quad (10)$$

$$Q_{pn} = Q_{n-1} + \sum_{j=1}^K \dot{q}_{pn,j}. \quad (11)$$

На завершающем этапе расчёта участка мембранного модуля по уравнению (12) определяется состав потока ретентата и по уравнению (13) корректируется состав потока пермеата на выходе из участка с

учётом количества вещества, проникшего под мембрану на предыдущих элементарных участках:

$$x_{n,j} = \frac{Q_{n-1} x_{n-1,j} - \dot{q}_{pn,j}}{Q_n}; \quad (12)$$

$$y_{n,j} = \frac{\sum_{j=1}^n \dot{q}_{pn,j}}{Q_{pn}}. \quad (13)$$

Величина потери давления в напорном канале описывается уравнением Хагена-Пуазейля:

$$P_{h_{n-1}} - P_{h_n} = \frac{8\mu\Delta l Q_{n-1}}{\pi R_{вн}^4}, \quad (14)$$

где  $\mu$  — динамическая вязкость, Па·с;  $R_{вн}$  — внутренний диаметр волокна, м;  $\Delta l$  — длина элементарного участка, м.

Решив указанные уравнения вдоль мембранного модуля, можно найти значения расходов и составов потоков пермеата и ретентата на выходе. Предложенная схема обладает высокой вычислительной устойчивостью, она сохраняет работоспособность при расчёте процесса разделения смесей со значительными отличиями в коэффициентах проницаемости и в режимах с большими величинами отбора пермеата, позволяет определить распределение расходов и концентраций компонентов в потоках пермеата и ретентата по длине мембранного модуля.

Значительное влияние на результаты моделирования процесса баромембранного разделения смесей газов оказывает количество участков разбиения. Для большинства случаев минимальным порогом, достаточным для успешного завершения расчётов, является значение  $m=100$ . В случаях, когда рассматриваются газовые смеси, компоненты которых имеют большие различия в значениях проницаемостей, или же рассматривается режим со значительным отбором пермеата, решение может быть найдено при  $m=2000-5000$ .

### 3.2. Противоточная схема

На рис. 3 представлена противоточная схема движения потоков внутри мембранного модуля. Запишем уравнение массового баланса для  $j$ -го компонента на участке  $n$  в виде:

$$q_{r_{n-1,j}} - q_{r_{n,j}} + q_{p_{n+1,j}} - q_{p_{n,j}} = 0. \quad (15)$$

Расход  $j$ -го компонента на участке  $n$ , проникшего из напорного в дренажный канал, обусловленный селективной характеристикой участка мембраны, определяется как

$$\dot{q}_{pn,j} = q_{r_{n-1,j}} - q_{r_{n,j}}. \quad (16)$$

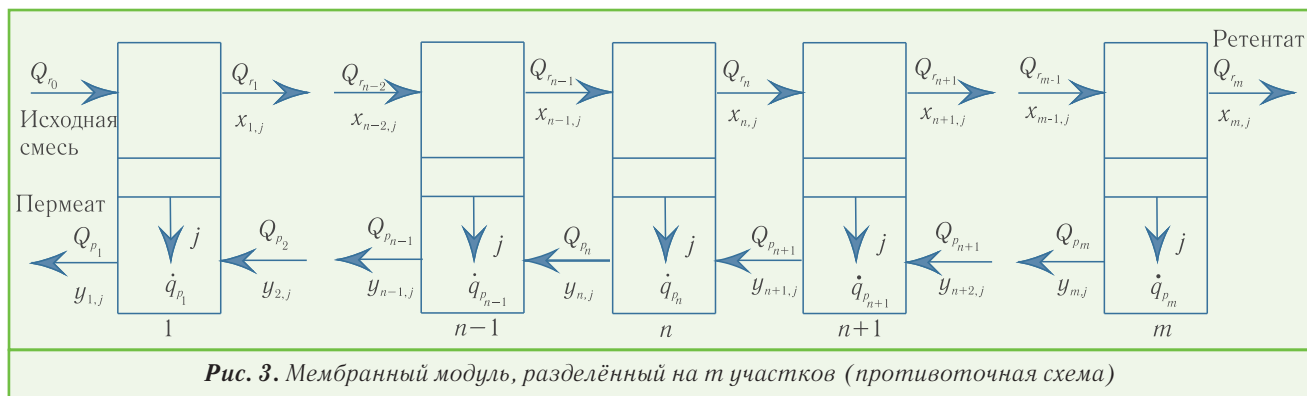


Рис. 3. Мембранный модуль, разделённый на  $t$  участков (противоточная схема)

Величина  $\dot{q}_{p_{n,j}}$  также может быть определена из соотношения (6). Произведя подстановку выражений (2) и (3) в уравнение (6) вместо значений концентраций и объединив полученный результат с (16), запишем:

$$q_{p_{m,j}} = \frac{Q_{p_m}}{\Delta F} \left[ q_{m,j} \left( \frac{P_{p_m} \Delta F R_j}{Q_{p_m}} + 1 \right) - q_{r_{m-1,j}} \right]. \quad (17)$$

Подставив (17) в выражение (15) вместо значений  $q_{p_{n,j}}$  и  $q_{p_{n+1,j}}$ , получим:

$$A_{n,j} q_{r_{n-1,j}} + B_{n,j} q_{r_{n,j}} + C_{n,j} q_{r_{n+1,j}} = 0, \quad (18)$$

где  $A_{n,j} = (Q_{p_n} + \Delta F P_{p_n} R_j) Q_{r_{n+1}}; \quad (19)$

$$B_{n,j} = - \left[ \frac{1}{\Delta F P_{r_j}} (Q_{p_n} + Q_{p_{n+1}}) + \frac{P_{p_n} Q_{p_n}}{P_l Q_{r_n}} + 1 \right] \Delta F P_{r_j} Q_{r_{n+1}}; \quad (20)$$

$$C_{n,j} = (Q_{r_{n+1}} + \Delta F P_{p_n} R_j) Q_{p_{n+1}}. \quad (21)$$

Уравнение (18), записанное для каждого сечения мембранного модуля, формирует систему из  $t$  уравнений, которые могут быть представлены в виде трёхдиагональной матрицы:

$$\begin{bmatrix} B_{1,j} & C_{1,j} & & & & & \\ A_{2,j} & B_{2,j} & C_{2,j} & & & & \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & & & \\ & A_{n,j} & B_{n,j} & C_{n,j} & & & \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & & \\ & & A_{m-1,j} & B_{m-1,j} & C_{m-1,j} & & \\ & & & B_{m,j} & C_{m,j} & & \end{bmatrix} \begin{bmatrix} q_{r_1,j} \\ q_{r_2,j} \\ q_{r_3,j} \\ \dots \\ q_{r_{m-1,j}} \\ q_{r_{m,j}} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -q_{r_0,j} \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (22)$$

Указанные матрицы решаются для каждого ком-

понента методом прогонки. Результатом решения является распределение расходов компонентов в напорном канале. После чего по уравнению (4) находятся полные расходы потока ретентата. Входящие в состав коэффициентов уравнений значения расхода потока пермеата определяются из уравнения материального баланса на каждой ступени. На следующем этапе пересчитываются коэффициенты  $A, B$  и  $C$ , и процесс решения трёхдиагональных матриц повторяется до тех пор, пока не будет достигнута заданная величина погрешности.

В первом круге итераций необходимо задать начальные приближения величин, входящих в состав коэффициентов уравнений. Эти значения могут быть взяты из результатов расчётов проточной модели, рассмотренной ранее.

#### 4. АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ РАСЧЁТОВ ПРОЦЕССОВ БАРОМЕМБРАННОГО РАЗДЕЛЕНИЯ МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ ГАЗОВЫХ СМЕСЕЙ

Отладка расчётных схем и алгоритмов проводилась путём сравнения результатов расчётов с данными заводов-изготовителей мембранных модулей, предназначенных для получения азота и кислорода, или результатами проведенных экспериментов по сепарации смесей на базе инертных газов. Отдельно стоит отметить сложность определения числа волокон газоразделительного модуля. К сожалению, фирмы-изготовители не публикуют этой информации, что создаёт основные трудности при анализе результатов.

Ниже изложены результаты расчётов мембран, используемых в процессах разделения воздуха и Ne-He-N<sub>2</sub>-смеси в широких диапазонах давлений подачи и расходов исходной смеси.

##### 4.1. Разделение воздуха

Процессы разделения воздуха на мембранах находят широкое применение. Большинство из предлагаемых на рынке газоразделительных мембран рассчитаны на производство азота из атмосферного воздуха. Их рабочие показатели, находящиеся в свободном доступе, стали прекрасной основой для отладки расчётных схем процессов баромембранного разделения. В табл. 1 приведены технические данные рассчитываемого мембранного модуля.

Таблица 1. Характеристики мембранного модуля

Наименование величины	Обозначение	Едм. изм	Значение
Наружный радиус волокна	$R_{нар}$	м	0,00016
Внутренний радиус волокна	$R_{вн}$	м	0,00008
Число волокон	$n_{вол}$	—	120 000
Рабочая длина волокна	$l_{вол}$	м	0,70
Площадь поверхности разделения	$F$	м <sup>2</sup>	84,00

На рис. 4 показан характер изменения составов потоков пермеата и ретентата по длине мембранного модуля. Зелёный цвет соответствует азоту, красный — кислороду, синий — аргону и диоксиду углерода.

Графики дают наглядное представление о характере изменений концентраций и удельных расходов компонентов вдоль разделительной мембраны. Так

как целевой продукт — азот, обладает наименьшей проницаемостью, продукционным потоком является ретентат. На рис. 3 отчётливо видно, что концентрация азота возрастает по мере продвижения потока вдоль поверхности мембраны.

В табл. 2 приведены результаты расчётов основных характеристик процесса разделения воздуха и проведено их сравнение с данными, указанными в технических характеристиках мембранного модуля. Сравнивая полученные результаты, можно судить о высокой степени достоверности предложенной расчётной модели.

Из табл. 2 видно, что значения, полученные в результате расчётов, отличаются от величин, заявленных в технической документации, на 3-6 %. Погрешность увеличивается с ростом величины  $\theta$ , что связано с отсутствием в расчётной модели функции, описывающей зависимость коэффициентов проницаемости от температуры потока ретентата.

#### 4.2. Разделение многокомпонентных смесей редких газов

Большинство крупных воздухоразделительных установок (ВРУ) способны выдавать неоногелиевую

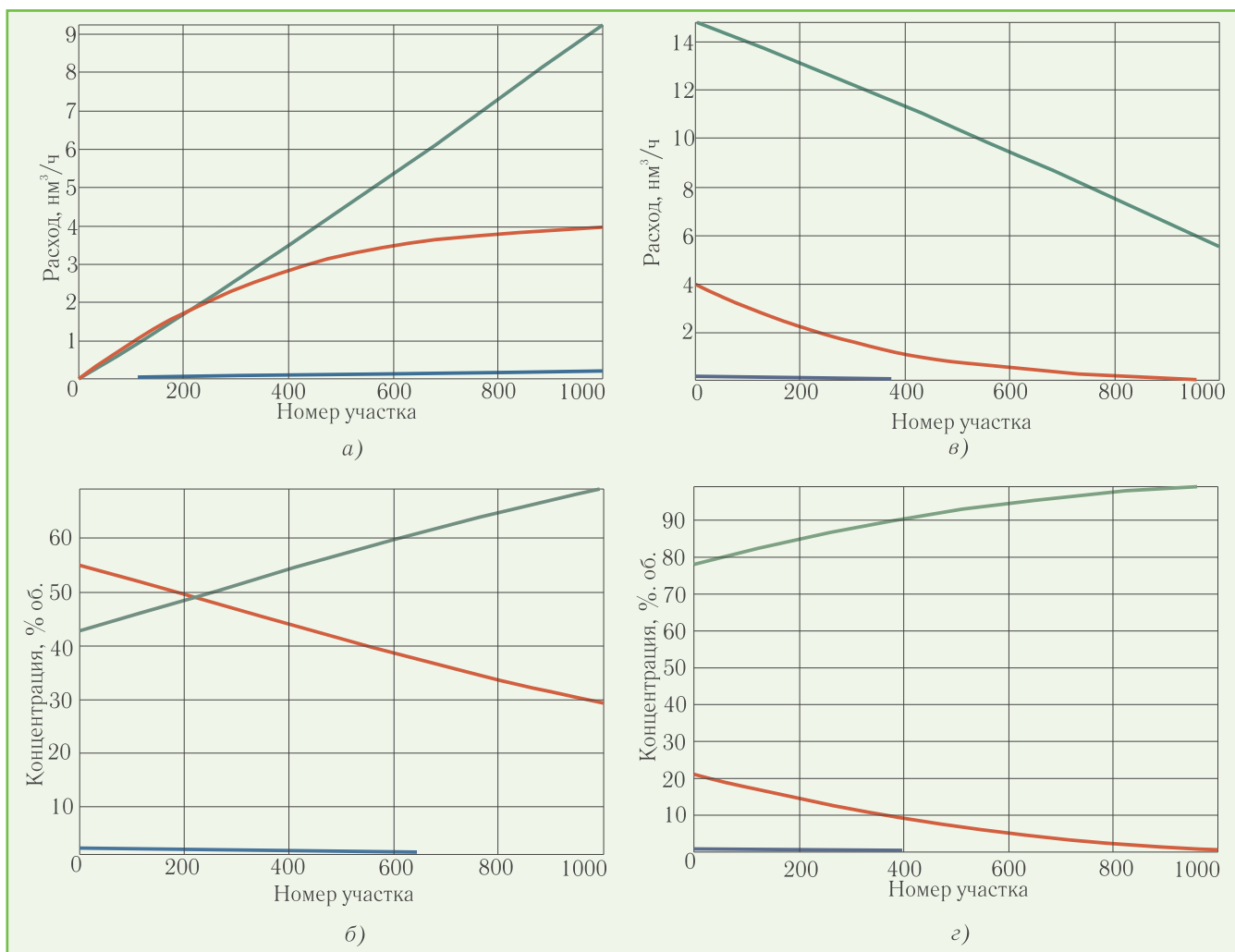


Рис. 4. Изменения расходов и составов потоков пермеата (а,б) и ретентата (в,г) по длине мембранного модуля при разделении воздуха

смесь с концентрацией около 50 %. На выходе из ВРУ устанавливают дефлегматоры, которые обогащают концентрат до 94...96 % [7-9].

**Таблица 2.** Результаты расчёта процесса баромембранного разделения воздуха

Расход воздуха	Данные производителя		Результаты расчёта	
	Расход азота	Концентрация азота	Расход азота	Концентрация азота
нм <sup>3</sup> /ч	нм <sup>3</sup> /ч	% об.	нм <sup>3</sup> /ч	% об.
30	15,00	95,00	15,30	94,9
27	13,00	96,00	12,59	96,01
25	11,00	97,00	10,81	96,98
22	8,50	98,00	8,19	97,98
19	6,00	99,00	5,62	98,99

В последние годы появились ВРУ с ограниченной выдачей жидких криопродуктов. Применение типовых дефлегматоров неонгелиевой смеси на таких объектах затруднено. При отсутствии жидкого N<sub>2</sub> мембранные аппараты могут рассматриваться в качестве альтернативного варианта обогащения концентрата [10].

Следует отметить, что мембранные сепараторы, предназначенные для разделения одних газов, например, N<sub>2</sub> и O<sub>2</sub>, во многих случаях оказываются пригодными для разделения многокомпонентных смесей редких газов. Прогнозирование характеристик процесса разделения газовых смесей на мембранах требует решения ряда задач, главной из которых является

определение коэффициентов проницаемостей чистых компонентов. В этом случае единственным методом получения достоверной информации о параметрах мембраны при работе на нетипичных компонентах следует считать собственный эксперимент. Значения коэффициентов проницаемостей определялись из данных, полученных на лабораторной базе ООО «Айсблик».

В табл. 3 представлены экспериментальные данные, полученные в процессе разделения трёхкомпонентной Ne-He-N<sub>2</sub>-смеси со следующими параметрами: x<sub>N<sub>2</sub></sub> = 53 % об., x<sub>Ne</sub> = 31,2 % об., x<sub>He</sub> = 15,8 % об., давление в напорном канале — 490,3 кПа. В этой же таблице приведены результаты расчётов.

Из табл. 3 видно, что как и в случае разделения воздуха, отклонение от экспериментальных данных возрастает с ростом  $\theta$ .

На рис. 5 показан характер изменения составов потоков пермеата и ретентата по длине мембранного модуля. Красный цвет соответствует азоту, зелёный — неону, синий — гелию.

В случае разделения Ne-He-N<sub>2</sub>- смеси целевыми продуктами являются компоненты с наибольшей проникающей способностью, а именно — Ne и He. Целевым потоком, в этом случае, является пермеат. На графике отчётливо видно, что гелий и неон практически полностью переходят из напорного канала в дренажный. Тем не менее, в случае единичного мембранного модуля, высокие значения степени извлечения целевых компонентов соответствуют значительной концентрации азота в продукционном потоке. Эксплуатационные недостатки мембранных сепараторов могут быть частично устранены за счёт использования ступенчатых установок [10].

**Таблица 3.** Экспериментальные и расчётные данные опытов по разделению Ne-He-N<sub>2</sub> -смеси

Экспериментальные данные								
Расход исходной смеси, нм <sup>3</sup> /ч	Пермеат				Ретентат			
	Азот	Неон	Гелий	Расход	Азот	Неон	Гелий	Расход
	% об.	% об.	% об.	нм <sup>3</sup> /ч	% об.	% об.	% об.	нм <sup>3</sup> /ч
19,90	31,00	45,00	24,00	12,70	92,30	7,50	0,20	7,20
16,80	35,00	43,00	22,00	11,70	95,50	4,20	0,30	5,10
13,80	41,00	39,00	20,00	11,10	99,40	0,60	0,00	2,70
Результаты расчёта								
Расход исходной смеси, нм <sup>3</sup> /ч	Пермеат				Ретентат			
	Азот	Неон	Гелий	Расход	Азот	Неон	Гелий	Расход
	% об.	% об.	нм <sup>3</sup> /ч	нм <sup>3</sup> /ч	% об.	% об.	% об.	нм <sup>3</sup> /ч
19,90	29,54	45,50	24,97	12,37	91,55	7,71	0,74	7,53
16,80	33,07	43,69	23,24	11,32	94,20	5,37	0,43	5,48
13,80	40,15	41,29	18,57	10,23	97,43	2,45	0,12	3,29

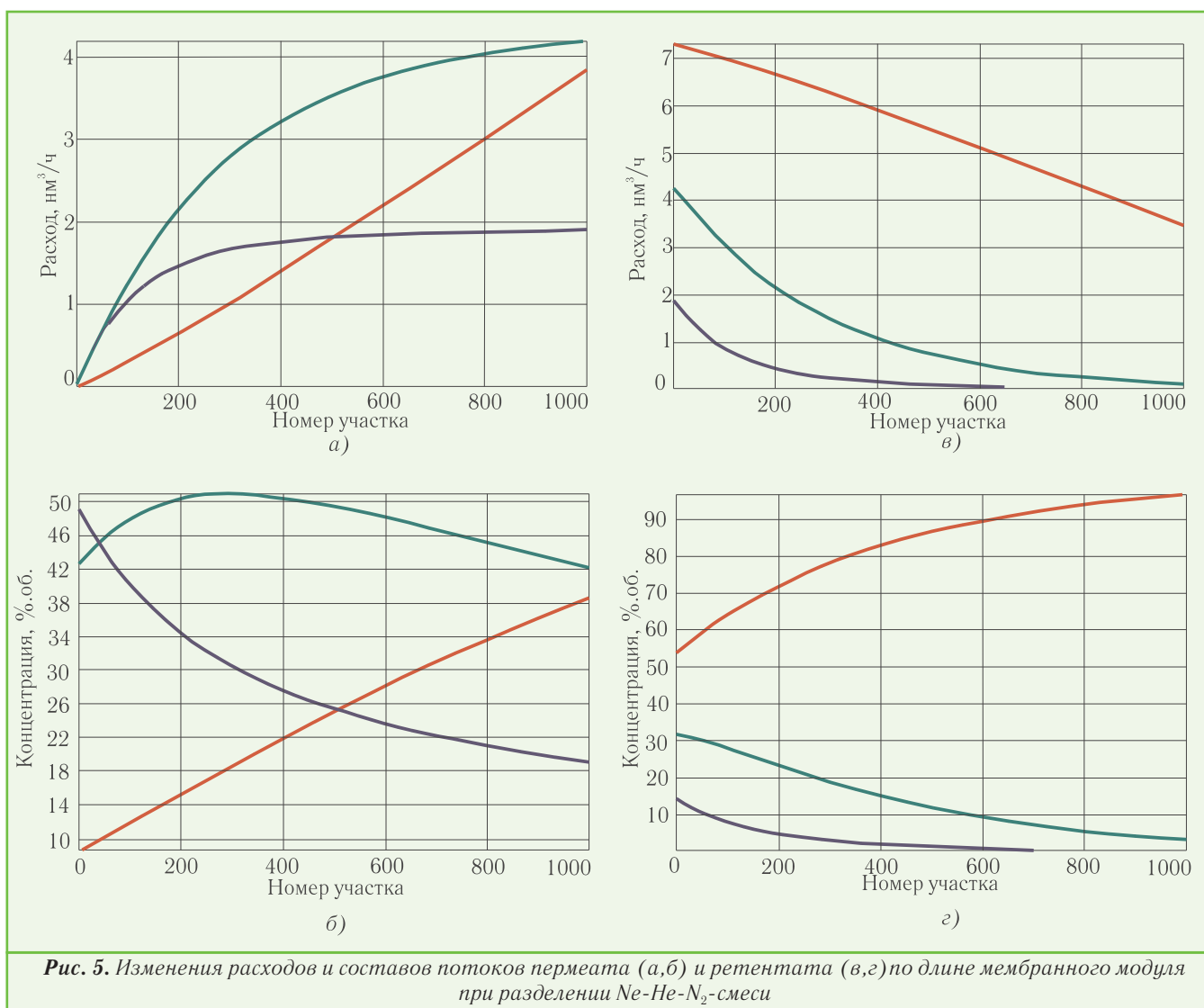


Рис. 5. Изменения расходов и составов потоков пермеата (а,б) и ретената (в,г) по длине мембранного модуля при разделении Ne-He-N<sub>2</sub>-смеси

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Корректное прогнозирование характеристик процесса разделения газовых смесей на мембранах из полых волокон требует разработки и адаптации специальных математических моделей. Представленный в работе расчётный алгоритм позволяет предсказывать показатели процесса баромембранного разделения многокомпонентных газовых смесей в широких диапазонах режимов работы с точностью 3...6 %.

Расчёт характеристик работы газоразделительной мембраны на нетипичных компонентах (отличных от компонентов воздуха) требует проведения экспериментальных исследований для определения коэффициентов проницаемости и других, необходимых для расчётной модели, данных.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Мулдер М. Введение в мембранную технологию: Пер. с англ. — М.: Мир, 1999. — 513 с.
2. Хванг С.-Т., Каммермайер К. Мембранные процессы разделения. — М.: Мир, 1981. — 464 с

3. Дытнерский Ю.И., Брыков В.П., Каграманов Г.Г. Мембранное разделение газов. — М.: Химия, 1991. — 344 с.
4. Hogsett E.J., Mazur W.H. Estimate membrane system area// Hydrocarbon Processing. — 1983. — No 9(A). — P. 52-54.
5. Hoffman Joe D. Numerical Methods for Engineers and Scientists. — New York, Basel, 1992. — 825 p.
6. Coker D.T., Freeman B.D. Modeling multicomponent gas separation using hollow-fiber membrane contractors//Ache Journal. — 1998. — No 6. — V. 44 — P. 1289-1302.
7. Бондаренко В.Л., Симоненко Ю.М. Криогенные технологии извлечения редких газов. — Одесса: ПО «Издательский центр», 2009. — 232 с.
8. Бондаренко В.Л., Вигуржинская С.Ю. Оптимизация системы предварительной очистки неон-гелиевой смеси// Холодильная техника и технология. — 1999. — Вып. 63. — С. 86-91.
9. Техничко-экономическое обоснование степени предварительной очистки Ne-He-смеси. / Бондаренко В.Л., Симоненко Ю.М., Дьяченко О.В. и др.// Технические газы. — 2001. — № 1; 2. — С. 20-23.
10. Применение мембранных процессов в технологиях разделения газовых смесей на основе компонентов воздуха / В.Л. Бондаренко, Н.П. Лосяков, Ю.М. Симоненко, А.П. Чулкин и др. // Технические газы. — 2012. — № 2. — С.19-30.