

Anizotróp membránrétegben lejátszódó, kémiai reakcióval kísért diffúziós és konvekciós anyagáram leírása

NAGY Endre^{a,*}

^aPannon Egyetem, Műszaki Informatikai Kar, Műszaki Kémiai Kutató Intézet, Pf. 158, H-8201 Veszprém

1. Bevezetés

A szilárd rétegen keresztüli anyagátadási műveletek esetében a diffúziós tényező, konvekció sebesség gyakran nem állandók, hanem folytonosan változnak, vagy rétegenként különböző értékűek, a helykoordináta (pl. anizotróp membránréteg), vagy a koncentráció függvényében. Ilyen folyamatok például a többrétegű membránon keresztüli anyagátadás, a gél elektroforézis, az enzimreakció rétegelt membránban, a heterogén katalitikus reakció membránrétegben. Koncentrációfüggő diffúzió leggyakrabban a Stefan-Maxwell,¹ a Floy-Huggins² elmélettel, vagy a módosított Vignes egyenlettel³ írható le. Locke és munkatársai^{4,5} tanulmányozták összetett membránon keresztüli elektroforetikus, instacionárius anyagtranszportot. A parciális differenciálegyenlet-rendszer – minden, infinitézimálisan vékony membrán rétegre felírt, állandó együtthatójú differenciálegyenletek összessége – megoldásához az operator elméletet alkalmazták,⁶ míg a stacionárius állapotra analitikus megoldást adtak meg. Ez utóbbi esetben a membránon kívüli anyagátadási ellenállást nem veszik figyelembe, ami lényegesen korlátozza a kapott összefüggések alkalmazhatóságát, különösen a vékony membránrétegen keresztüli anyagátadási folyamat leírására.

A megoldáshoz membránt, folytonosan változó diffúziós tényező és/vagy konvekció sebesség esetében, infinitezimálisan vékony rétegekre bontjuk konstans diffúziós tényezővel és konvekciós sebességgel. Az így kapott, állandó együtthatós differenciálegyenlet-rendszert megfelelő határfeltételekkel, analitikusan megoldhatjuk. Nagy, a kétkomponensű elegy, stacionárius pervaporációja,^{7,8} valamint a membrán reaktorban fellépő diffúziós anyagáram⁹ leírására alkalmazza a fenti módszert. A stacionárius, többrétegű vagy anizotróp membránon keresztüli diffúziós és konvekciós, elsőrendű reakcióval kísért anyagátadást, a külső anyagátadási ellenállás figyelembevételével vizsgáljuk. A bemutatott módszer és megoldás előnye, hogy egyszerű összefüggésekkel megadja, bármely, nem állandó együtthatós, közönséges, másodrendű differenciálegyenlet megoldását, amivel könnyen és pontosan számolhatók az összetett közegben lejátszódó, stacionárius anyagátadási folyamatok. Másrészt, a megoldás alkalmazható tetszőleges vastagságú többrétegű membránok esetében is.

2. Elméleti rész

A megoldandó differenciálegyenlet:

$$\frac{d}{dx} \left(D \frac{dc}{dx} \right) - \frac{d(uc)}{dx} - kc = 0 \quad (1)$$

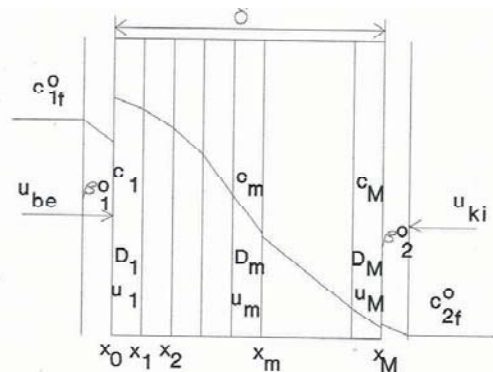
Az (1) összefüggés értelmében az anyagtranszport csak x irányban, a felületre merőlegesen történik.

A peremfeltételei:

$$u_{be} c_{1f}^* + \beta_1^o (c_1^o - c_{1f}^*) = -D_1 \frac{\partial c_1}{\partial x} \Big|_{x=0^+} + u_1 c_1 \Big|_{x=0^+} \quad (2)$$

$$u_{ki} c_{Mf}^* + \beta_2^o (c_{Mf}^* - c_2^o) = -D_M \frac{\partial c_M}{\partial x} \Big|_{x=\delta^-} + u_M c_M \Big|_{x=\delta^-} \quad (3)$$

A gyakorlatban gyakrabban használják a membránban a koncentráció leírására a súlyhányadot (w) vagy térfogathányadot. Pl. a súlyhányad és e közleményben alkalmazott c koncentráció, mol/m³, könnyen átszámolható egymásba a $c = w\rho/M$ összefüggéssel, ahol ρ a membrán átlagos sűrűsége, kg/m³, míg M itt a molekulásúly, kg/kmol.



1. Ábra. Egy anizotróp membrán felosztása konstans paraméterű, infinitezimális vékonyságú rétegekre

Egy anizotróp membrán Δx vastagságú rétegekre való felosztását szemlélteti az 1. ábra, konstans paraméterekkel. Többrétegű membrán ettől csak abban különbözik, hogy a rétegek vastagsága eltérő, és nagyobb érték, valamint, hogy az egyes rétegekben az oldhatósági tényező, H , értéke (az ábra ezt nem jelöli) különböző lehet. Az egyes rétegekre felírandó differenciálegyenlet és a peremfeltételek:

$$D_m \frac{d^2 c_m}{dx^2} - u_m \frac{dc_m}{dx} - kc_m = 0 \quad x_{m-1} < x < x_m \quad (4)$$

Dimenziómentes formában ($X = x/\delta$; $Pe_m = \delta u_m / D_m$,

$$C_m = c_m / c_1^o, \quad Ha_m = \sqrt{\delta^2 k_m / D_m}, \quad c_{1f}^* H_o = H_1 c_1^*, \quad c_{Mf}^* H \delta = H M c_M^*):$$

$$\frac{d^2 C_m}{dX^2} - Pe_m \frac{dC_m}{dX} - Ha_m^2 C_m = 0 \quad X_{m-1} < X < X_m \quad (5)$$

Bevezetve a következő változót:

$$\tilde{C} = C \exp\left(-\frac{PeX}{2}\right) \quad (6)$$

*Nagy Endre, Tel.: +3688-624 040; fax: +3688 624 038; e-mail: nagy@mik.vein.hu; honlap: www.richem.hu/rice/new/staff/Nagy.htm

a következő összefüggést kapjuk:

$$\frac{d^2 \tilde{C}_m}{dX^2} - \Theta_m^2 \tilde{C}_m = 0 \quad (7)$$

ahol

$$\Theta_m = \sqrt{\frac{Pe_m^2}{4} + Ha_m^2}$$

A (7) egyenlet általános megoldása a szakirodalomban ismert:

$$C_m = T_m e^{(\tilde{\lambda}_m X)} + P_m e^{(\lambda_m X)} \quad (8)$$

A T_m és P_m ($m=1,2, \dots, M$) paraméterek értékeit a felosztással kapott rétegek felületére (1. ábra) felírandó belső peremfeltételek alkalmazásával határozhatjuk meg az $X=X_m$ ($m=1,2, \dots, M-1$) helyen:

$$-\frac{dC_m}{dX} + Pe_m C_m = \frac{D_{m+1}}{D_m} \left(-\frac{dC_{m+1}}{dX} + Pe_{m+1} C_{m+1} \right) \quad (9a)$$

$$H_m C_m = H_{m+1} C_{m+1} \quad \text{ha } X=X_m \quad (9b)$$

A fenti belső peremeket kiegészítjük a membrán külső felületére megadható peremfeltételekkel, amelyek a (2) és (3) egyenletek alapján a következők:

ha $X=0$, akkor

$$Sh_1 = \frac{dC_1}{dX} \Big|_{X=0^+} + (Pe_1 + \tau_o) C_1 \Big|_{X=0^+} \quad (10a)$$

ha $X=1$, akkor

$$-Sh_2 C_2^o = -\frac{dC_M}{dX} \Big|_{X=1^-} + (Pe_M - \tau_M) C_M \Big|_{X=1^-} \quad (10b)$$

ahol $Pe_{be} = \frac{u_{be} \delta}{D_1}$; $Pe_{ki} = \frac{u_{ki} \delta}{D_M}$; $Sh_1 = \frac{\beta_1^o \delta}{D_1}$; $Sh_2 = \frac{\beta_2^o \delta}{D_M}$.

A peremfeltételekkel kapott algebrai egyenletrendszer megoldásával kapjuk a T_i paraméter értékét (a megoldást máshol ismertetjük):

$$T_1 = \frac{Sh_o \left(\tilde{\lambda}_1 - \frac{\Psi_{M-1}}{\xi_{M-1}} \right) e^{(-\Theta_1 \Delta X)} - B_1}{2(\tau_o \xi_M + \Psi_M) \cosh(\Theta_1 \Delta X)} \quad (11)$$

ahol

$$B_1 = \tilde{\lambda}_o \Omega_{M-1} Sh_M C_2^o e^{(-Pe_M / 2)}$$

A (11) szereplő ψ_{M-1} , ξ_{M-1} és Ω_M értékei az 1. táblázat, összefüggéseivel számolható ki. Mindkét esetben az i futóparaméterrel $i=1$ -től $M-1$ értékig kiszámolandók valamennyi ψ_i , ξ_i és a Ω_i valamint M értékig az E_i és az \tilde{E}_i értékei. A P_i paraméter értékét a (10a) peremfeltételből kapjuk:

$$P_1 = \frac{Sh_1 - \lambda_o T_1}{\tilde{\lambda}_o} \quad (12)$$

A T_i és a P_i paraméterek ismeretében számolható a membrán betáplálási oldalán fellépő teljes anyagátadási áram (J):

$$J = \frac{D_1 c_1^o}{\delta} \left(-\frac{dC}{dX} \Big|_{X=0} + Pe_1 C \Big|_{X=0} \right) = \frac{D_1 c_1^o}{\delta} (\lambda_1 T_1 + \tilde{\lambda}_1 P_1) \quad (13)$$

Az anyagáram növekedését E -vel jelöltük, amit a kémiai reakció nélküli teljes anyagáram, J^o és a kémiai reakcióval kísért anyagáram, J hányadosa adja, $\lim J=J^o$, ha $Ha \rightarrow 0$.

1. Táblázat. Az együttthatók ($i=1, 2, \dots, M$ vagy $M-1$) számolásához felhasználandó összefüggések

$\tau_o = (H_1 / H_o)(Sh_1 - Pe_{be}); \quad \tilde{\lambda}_o = \tau_o + \tilde{\lambda}_1;$
$\tau_M = (H_\delta / H_M)(Sh_2 - Pe_{ki}); \quad \lambda_o = \tau_o + \lambda_1$
$\xi_1 = Hr_{M-1}(\tanh(\Theta_1 \Delta X)[\tau_M - Pe_M / 2] + \Theta_M);$
$\Psi_1 = Dr_{M-1}[E_M \Theta_1 + \tilde{E}_M(\tau_M - Pe_M / 2)];$
$\Omega_1 = \frac{-Dr_{M-1} \tilde{E}_M \cosh(\Theta_M \Delta X) + \Psi_1 Hr_{M-1} \sinh(\Theta_M \Delta X)}{\Theta_M \xi_1 \Theta_M}$
paraméterek $i=1,2, \dots, M-1$:
$\lambda_i = \frac{Pe_i}{2} - \Theta_i; \quad \tilde{\lambda}_i = \frac{Pe_i}{2} + \Theta_i;$
$Dr_i = \frac{D_{i+1}}{D_i} e^{\frac{(Pe_{i+1} - Pe_i) i \Delta X}{2}}; \quad Hr_i = \frac{H_{i+1}}{H_i} e^{\frac{(Pe_{i+1} - Pe_i) i \Delta X}{2}};$
paraméterek $i=2, \dots, M-1$:
$\Psi_i = Dr_{M-i} \left(E_{M+1-i} \Theta_{M+1-i} - \tilde{E}_{M+1-i} \left[\frac{Pe_{M+1-i}}{2} - \frac{\Psi_{i-1}}{\xi_{i-1}} \right] \right)$
$\xi_i = Hr_{M-i} \left(\Theta_{M+1-i} - \left[\frac{Pe_{M+1-i}}{2} - \frac{\Psi_{i-1}}{\xi_{i-1}} \right] \tanh(\Theta_{M+1-i} \Delta X) \right)$
$\Omega_i = \Omega_{i-1} \left(\frac{Dr_{M-i} \tilde{E}_{M+1-i} \cosh(\Theta_{M+1-i} \Delta X) - \Psi_i \Xi_i}{\Theta_{M+1-i}} \right);$
$\Xi_i = \frac{Hr_{M-i} \sinh(\Theta_{M+1-i} \Delta X)}{\Theta_{M+1-i}}$
paraméterek $i=1,2, \dots, M$:
$E_i = \frac{Pe_i}{2} + \Theta_i \tanh(\Theta_i \Delta X); \quad \tilde{E}_i = \Theta_i + \frac{Pe_i}{2} \tanh(\Theta_i \Delta X)$

Amennyiben ismerni akarjuk a membránból kilépő anyagáramot, meg kell határozni a T_m és P_m ($m=2, \dots, M$) értékeit. A (9a) és (9b) belső peremfeltételek alkalmazásával könnyen kiszámolhatjuk a fenti paraméterek értékeit:

$$T_m = \frac{(s_{m-1} Dr_{m-1} \tilde{\lambda}_m - \tilde{s}_{m-1} Hr_{m-1}) e^{-\Theta_m (m-1) \Delta X}}{Dr_{m-1} Hr_{m-1} (\tilde{\lambda}_m - \lambda_m)} \quad (13)$$

és

$$P_m = \frac{(\tilde{s}_{m-1} Hr_{m-1} - s_{m-1} Dr_{m-1} \lambda_m) e^{\Theta_m (m-1) \Delta X}}{Dr_{m-1} Hr_{m-1} (\tilde{\lambda}_m - \lambda_m)} \quad (14)$$

ahol

$$s_m = T_m e^{\Theta_m m \Delta X} + P_m e^{-\Theta_m m \Delta X}$$

és

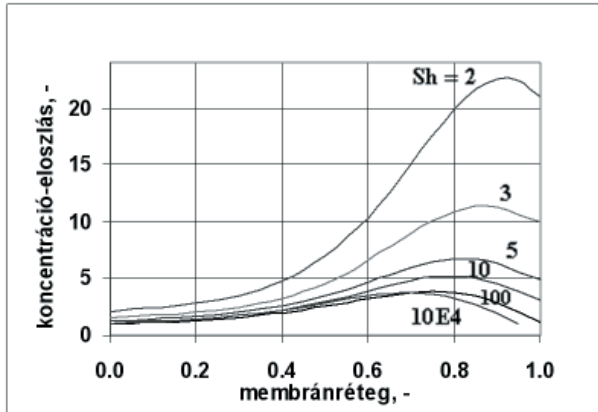
$$\tilde{s}_m = T_m \lambda_m e^{\Theta_m m \Delta X} + P_m \tilde{\lambda}_m e^{-\Theta_m m \Delta X}$$

3. Eredmények és értékelésük

A következőkben néhány, tipikus ábrával szemléltetjük a változó paraméterek, Peclet-szám ($Pe=u\delta/D$), Hatta-szám $Ha = \sqrt{k\delta^2/D}$, valamint a Sherwood-szám ($Sh=\beta^o\delta/D$) hatását a membránon keresztüli anyagátadásra. A kapott anyagátadási összefüggések invariánsok a $D(x)$ (helykoordináta függő diffúziós tényező), $D(c)$ (koncentrációfüggő diffúziós tényező) vagy az $u(x)$, $k(x)$, $k(c)$ függvény alakjára.

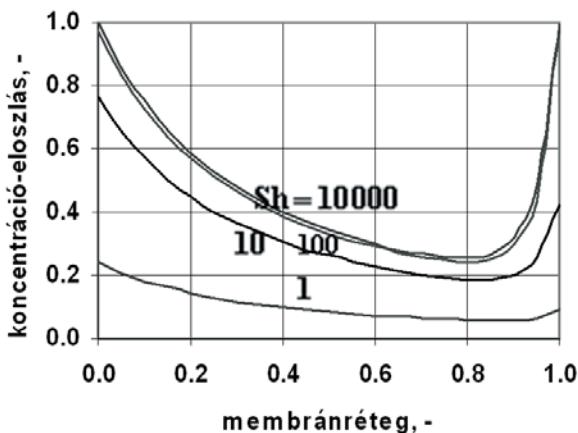
3.1. A Peclet-szám hatása az anyagátadásra

A membrán szerkezetétől függően nő vagy csökken a konvekció sebessége a helykoordináta függvényében. A diffúziós tényező általában nő a koncentrációval, de értéke a membrán szerkezetétől is függhet. A következő két ábrán tipikus koncentráció-eloszlást mutatunk be. Éspedig, amikor a helykoordináta függvényében lineárisan csökken $[Pe_m = 20(1-m/M)]$, ahol $m=1,2,3,\dots, M$ és $M=100$; 2. ábra] és amikor lineárisan nő a Pe -szám $[Pe_m = 1+20m/M]$, ahol



2. Ábra. A membránon fellépő koncentráció eloszlása, a helykoordinátával csökkenő Peclet-számmal $Pe_m = 20(1 - m/M)$, ($H_m = H_{m+1} = 1$; $D_m = D_{m+1}$; $\beta_1^o = \beta_2^o$; $Ha=0$; $C_2^o=0$; $Pe_{bc}=Pe_i$; $Pe_{ki}=Pe_M$; $M=100$;) $m=1,2,3,\dots, M$ és $M=100$; 3. ábra]. Az első esetben a Pe -szám 19,8-ról 0-ra csökken, míg a második esetben 1-ről 21-re nő, ha $m=1$ -ről $M=100$ -ra változik. A membránt 100 egyenlő, $\delta/100$ vastagságú részre osztva számoltuk a koncentráció-eloszlást. A koncentráció növekedése nagymértékben függ a külső anyagátadási tényező, azaz a Sh -szám értékétől. A növekvő koncentráció azt jelenti, hogy a diffúziós áram ellentétes irányú lesz a konvekciós árammal. A helykoordinátával növekvő Peclet szám esetében, mint ahogy várható, csökken a koncentráció a membránban. Ebben az esetben a kilépő koncentrációt egységnyinek választottuk, $C_2^o = 1$, mert így szemléletesebben érzékeltethető az emelkedő értékű Peclet-szám hatása.

A reakció-sebesség hatása igen különböző lehet, a megszokott, konvekció nélküli diffúziós anyagátadás sebességére kifejtett hatástól. Különböző Sh -számok mellett ábrázoltuk az összanyagátadási áram növekedését a Ha -szám függvényében (5. ábra). Az anyagátadási sebességet a kémiai reakció nélkül kapott anyagátadási áramhoz viszonyítottuk, $E = J/J^o$. Mint látható, a külső anyagátadási tényezőtől függően, azaz a Sh -számtól függően, a reakció-sebességgel csökkenthet is az E értéke.

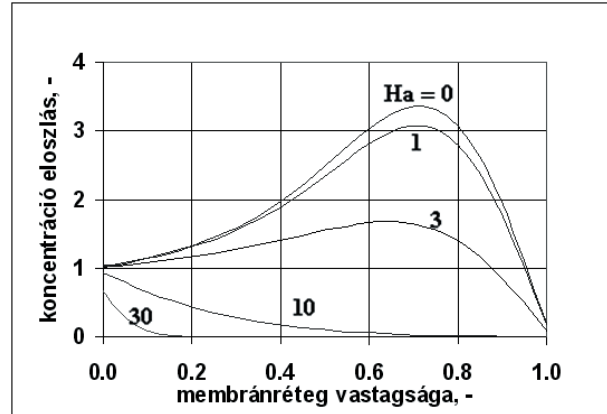


3. Ábra. A membránon fellépő koncentráció eloszlása, a helykoordinátával növekvő Peclet-számmal $Pe_m = (1 + 20m/M)$, ($H_m = H_{m+1} = 1$; $D_m = D_{m+1}$; $\beta_1^o = \beta_2^o$; $Ha=0$; $C_2^o=1$; $Pe_{bc}=Pe_i$; $Pe_{ki}=Pe_M$; $M=100$;) $m=1,2,3,\dots, M$ és $M=100$; 3. ábra]. Az első esetben a Pe -szám 19,8-ról 0-ra csökken, míg a második esetben 1-ről 21-re nő, ha $m=1$ -ről $M=100$ -ra változik. A membránt 100 egyenlő, $\delta/100$ vastagságú részre osztva számoltuk a koncentráció-eloszlást. A koncentráció növekedése nagymértékben függ a külső anyagátadási tényező, azaz a Sh -szám értékétől. A növekvő koncentráció azt jelenti, hogy a diffúziós áram ellentétes irányú lesz a konvekciós árammal. A helykoordinátával növekvő Peclet szám esetében, mint ahogy várható, csökken a koncentráció a membránban. Ebben az esetben a kilépő koncentrációt egységnyinek választottuk, $C_2^o = 1$, mert így szemléletesebben érzékeltethető az emelkedő értékű Peclet-szám hatása.

3.2 A reakció-sebesség hatása az anyagátadásra

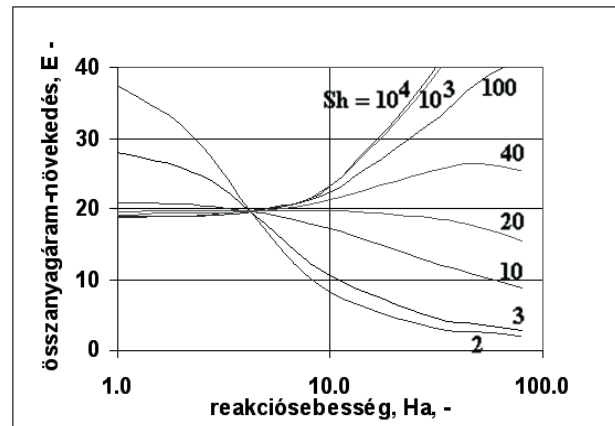
A kérdés az, hogy a diffúziós és a konvektív áram együttesen, hogyan befolyásolja a kémiai reakció hatását.

Tipikus koncentráció-eloszlást ábrázoltunk, különböző reakció-sebességek esetében a 4. ábrán, amelynél a Peclet szám csökken a helykoordinátával. A reakció-sebességgel a koncentráció csökken, értéke, nagyobb reakció-sebességnél, a belépő értéknél kisebb lesz. Ezzel megszűnik a belépő árammal szemben ható diffúziós áram.



4. Ábra. A kémiai reakciósebesség hatása a koncentráció eloszlásra, a helykoordinátával csökkenő Peclet-számmal $Pe_m = 20(1 - m/M)$, ($H_m = H_{m+1} = 1$; $D_m = D_{m+1}$; $\beta_1^o = \beta_2^o$; $Sh_i=100$; $C_2^o=0$; $Pe_{bc}=Pe_i$; $Pe_{ki}=Pe_M$; $M=100$;) $m=1,2,3,\dots, M$ és $M=100$; 3. ábra]. Az első esetben a Pe -szám 19,8-ról 0-ra csökken, míg a második esetben 1-ről 21-re nő, ha $m=1$ -ről $M=100$ -ra változik. A membránt 100 egyenlő, $\delta/100$ vastagságú részre osztva számoltuk a koncentráció-eloszlást. A koncentráció növekedése nagymértékben függ a külső anyagátadási tényező, azaz a Sh -szám értékétől. A növekvő koncentráció azt jelenti, hogy a diffúziós áram ellentétes irányú lesz a konvekciós árammal. A helykoordinátával növekvő Peclet szám esetében, mint ahogy várható, csökken a koncentráció a membránban. Ebben az esetben a kilépő koncentrációt egységnyinek választottuk, $C_2^o = 1$, mert így szemléletesebben érzékeltethető az emelkedő értékű Peclet-szám hatása.

A reakció-sebesség hatása igen különböző lehet, a megszokott, konvekció nélküli diffúziós anyagátadás sebességére kifejtett hatástól. Különböző Sh -számok mellett ábrázoltuk az összanyagátadási áram növekedését a Ha -szám függvényében (5. ábra). Az anyagátadási sebességet a kémiai reakció nélkül kapott anyagátadási áramhoz viszonyítottuk, $E = J/J^o$. Mint látható, a külső anyagátadási tényezőtől függően, azaz a Sh -számtól függően, a reakció-sebességgel csökkenthet is az E értéke.



5. Ábra. A reakciósebesség hatása a membrán felületén belépő teljes anyagátadási áramra $Pe_m = 20(1 - m/M)$ mellett. ($H_m = H_{m+1} = 1$; $D_m = D_{m+1}$; $\beta_1^o = \beta_2^o$; $C_2^o=0$; $Pe_{bc}=Pe_i$; $Pe_{ki}=Pe_M$; $M=100$;) $m=1,2,3,\dots, M$ és $M=100$; 3. ábra]. Az első esetben a Pe -szám 19,8-ról 0-ra csökken, míg a második esetben 1-ről 21-re nő, ha $m=1$ -ről $M=100$ -ra változik. A membránt 100 egyenlő, $\delta/100$ vastagságú részre osztva számoltuk a koncentráció-eloszlást. A koncentráció növekedése nagymértékben függ a külső anyagátadási tényező, azaz a Sh -szám értékétől. A növekvő koncentráció azt jelenti, hogy a diffúziós áram ellentétes irányú lesz a konvekciós árammal. A helykoordinátával növekvő Peclet szám esetében, mint ahogy várható, csökken a koncentráció a membránban. Ebben az esetben a kilépő koncentrációt egységnyinek választottuk, $C_2^o = 1$, mert így szemléletesebben érzékeltethető az emelkedő értékű Peclet-szám hatása.

Így, a bemutatott összefüggésekkel becsülhető a reakció hatása változó diffúziós tényező és konvekciós sebesség esetében, diszpergált katalizátor részecskéket tartalmazó membránreaktorban.

3.3 Biokémiai reakció számolása

A fent bemutatott megoldás M alrétegre osztja a membrán réteget. E rétegek vastagsága elég kicsiny kell, hogy legyen, azért hogy az együtthatókat állandónak

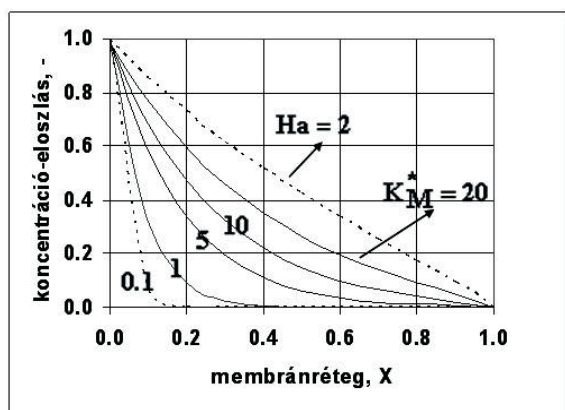
lehesen tekinteni. Emiatt a módszer alkalmazható a fenti módszerrel linearizálható egyéb differenciálegyenletek, így pl. a biokémiában gyakran előforduló Michaelis-Menten egyenlet megoldására is. A Michaelis-Menten egyenletet a $k_m C$ alakban helyettesíthetjük, forrástagként a (4) differenciálegyenletbe, ahol értelemszerűen a k_m értéke a következő lesz ($K_M^* = K_M / c_I^0$, \bar{c}_m a C_m átlagértéke a rétegben):

$$k_m = \frac{v_{max}}{K_M^* + \bar{c}_m} \quad (15)$$

Amennyiben a $\bar{c}_m \ll K_M^*$, akkor elsőrendű reakciósebességet kapunk, ellenkező esetben, $\bar{c}_m \gg K_M^*$, nulladrendű lesz a reakció. A számoláshoz a Long et al.¹⁰ ibuprofén észter, membránreaktorban megvalósított, enzimátikus reszolválása során kapott adatokat használtuk fel. A különböző K_M^* értékek mellett kapott koncentráció-eloszlást a 6. ábrán mutatjuk be. A felső szaggatott görbe elsőrendű ($Ha=2$) reakcióhoz tartozik. Az alsó szaggatott görbe közelítően a nulladrendű reakció koncentráció-eloszlása. A (15) egyenletnek megfelelően a Ha értéke erősen változik a K_M^* értékével, elsősorban ennek a következménye a koncentrációk, egymástól lényegesen eltérő lefutása.

4. Összefoglalás

Változó együtthatós, másodrendű differenciálegyenlet egy közelítő analitikai megoldását mutatjuk be a konvekció, a diffúzió és a kémiai reakció együttes figyelembevételével. Tipikus ábrákkal szemléltetjük a membránon fellépő koncentráció-eloszlást. A módszerrel egyszerűen és egzaktul számolható a membránrétegen fellépő anyagtranszport, figyelembe véve a külső anyagátadási ellenállást is. A kapott koncentráció-értékek, infinitezimálisan vékony rétegek esetén a numerikus megoldással megegyezőek.



6. Ábra. A Michaelis-Menten konstans hatása a koncentráció eloszlásra a membrán rétegben ($v_{max}=10 \mu\text{mol}/\text{dm}^3\text{h}$; $K_m=50 \mu\text{mol}/\text{dm}^3$; $D_m=5,4 \times 10^{-10} \text{m}^2/\text{s}$; $\delta=100 \mu\text{m}$, $Pe_m=1$, $Sh_1=Sh_2=187$, $H_m=1$; $=0$, $M=100$)

Jelölésjegyzék

- c koncentráció, mol/m^3
 C dimenziómentes koncentráció ($=c/c_I^0$)
 D diffúziós koeficiens, m^2/s
 Ha Hatta-szám vagy módosított Thiele modulus
 $Ha_m = \sqrt{\delta^2 k_m / D_m}$
 H oldhatósági tényező,-

- J a membrán betáplálási oldalán fellépő anyagáram, $\text{mol}/\text{m}^2\text{s}$
 J^0 anyagáram kémiai reakció nélkül, $\text{mol}/\text{m}^2\text{s}$
 k reakció-sebességi állandó, $1/\text{s}$
 K_M Michaelis-Menten konstans, mol/m^3
 M a membrán-alréteg maximális száma
 Pe Peclet-szám, $Pe = u\delta / D$
 Sh Sherwood-szám, $Sh = \beta^0 \delta / D$
 u konvekciós sebesség, m/s
 x térkoordináta, m
 β anyagátadási tényező, m/s
 δ membránréteg vastagsága, m

Alsó indexek

f folyadék

1,2 fázisok

Felső indexek

* membrán felülete

o főtömeg

Köszönetnyilvánítás

A szerzők köszönetüket fejezik ki az Országos Tudományos Kutatási Alapnak (No. 063615/06) a kutatási téma pénzügyi támogatásáért

Hivatkozások

1. Krishna, R.; Wesselingh, J.A. *Chem. Engng. Sci.* **1997**, *52*, 862-906
2. Mulder, M. *Basic principle of membrane technology*, Kluwer, Dordrecht, **1996**
3. Bitter, J.G.A. *Transport mechanisms in membrane separation processes*, Shell-laboratorium, Amsterdam, **1991**
4. Locke B.R.; Arce P. *Chem. Engng. Sci.* **1993**, *48*, 1675-1686
5. Locke B.R.; Arce P.; Park Y. *Chem. Engng. Sci.* **1993**, *48*, 4007-4022
6. Ramkrishna D; Amundson N.R. *Chem. Engng. Sci.* **1974**, *29*, 1457-1464
7. Nagy E. J. *Membrane Sci.* **2006**, *274*, 159-168
8. Nagy E. *Desalination* **2004**, *163*, 345-354
9. Nagy E. *Ind. Eng. Chem. Res.* **2007**, *46*, 2295-2306
10. Long, W.S., Bhatia, S., Kamaruddin, A. *J. Membrane Sci.* **2003**, *219*, 69-88

Convective-diffusive mass transport, accompanied by chemical reaction, through anisotropic membrane layer

The mass transport of solutes in multiphase layered systems such as membranes and gels or in medium with discontinuous variation in physical properties has important application to a wide range of separation and purification processes. Such kind of separation methods are e.g. the purification of macromolecules in biotechnology using gel electrophoreses, membrane electrophoreses, gel-particle electro-chromatography and separation of components in anisotropic solid layer or in composite medium, etc. During the mass transport through anisotropic membrane the mass transport parameters, namely diffusion coefficient, convective velocity, the reaction rate constant, varies continuously as a function of the space co-ordinate. Similarly, the concentration dependent diffusion coefficient can also cause its continuous variation in the diffusion path. The solution of the above problems means practically the same task. A number of theoretical, empirical approaches have been made in order to model the mass transport in gels and membranes. Most of this work considers the transport across single layers of medium with unvarying properties. Locke and Arce⁴ as well as Locke et al.⁵ developed solution to the general problem using operator-theoretic methods in both cases, namely for steady-state and unsteady-state conditions and for zero-

order and first-order source system. Their model does not involve the external mass transfer coefficient. The role of the external mass transfer resistance could be important, especially in the case of the mass transport through thin membrane layer and/or mass transport accompanied by chemical reaction. On the other hand, the solution developed gives essentially simpler equations for the calculation of the mass transfer rate or the concentration distribution. The general solution of a second-order, ordinary differential equation with varying parameters will be given elsewhere.

This work is focused on the mass transport through anisotropic or multi-layered membrane layer with continuously varying or piecewise constant physical properties, and consequently, with varying diffusion coefficient, convective velocity and reaction rate constant. The effect of a chemical reaction should also be taken into account at enzyme catalyzed or by other catalyst catalyzed chemical reactions.

Role of the external mass transfer coefficients on the both sides of the membrane could be very important, especially, in presence of chemical reaction in the membrane matrix. This paper gives a

quasi-analytical solution for this problem. Essential of this solution methodology is that the membrane is divided to M sub-layer with constant diffusivity and convection velocity. Thus, the thickness of these sub-layers should be very thin (in the case of continuously varying parameters as in an anisotropic membrane or e.g. concentration dependent diffusion coefficient) or the thickness is determined by the thicknesses of the membrane layers (multilayered membrane). The algebraic equation system obtained with applying the boundary conditions was solved by means of the well known Cramer rules applying them to determinants obtained from the equations. The function of the variation of the parameters can be occasional; the model developed can be applied at any function of the variable parameters. The convective velocity strongly alters the concentration distribution, and consequently, the mass transfer rate. Its change as a function of space co-ordinate could cause significant increase of the concentration in the membrane layer. The concentration distribution and the mass transfer rate are given in explicit, closed mathematical forms. It is shown the effect of the external mass transfer coefficient, the reaction rate and the convective velocity on the concentration distribution and the mass transfer rate.