

渗透汽化膜过程乙醇水蒸气真空分馏热质传递

张尹, 王丁玗, 刘敬芸, 刘闻达, 姜昊基, 韩露, 肖泽仪, 樊森清*

(四川大学 化学工程学院, 成都 610000)

摘要: 对透醇选择性渗透汽化膜下游的渗透蒸气进行分级冷凝, 重点研究了真空冷凝分馏器的热-质传递行为, 分析了进口渗透蒸气流速对真空冷凝分馏器传热系数与冷凝行为的影响。进口蒸气流速从 3.09 m/s 提高至 8.05 m/s 时, 总传热系数由 37.06 W/(m² · K) 提高至 145.27 W/(m² · K), 渗透蒸气侧冷凝给热系数也由 55.81 W/(m² · K) 提高至 544.60 W/(m² · K)。不同流速下, 传热过程各步骤热阻占比不同, 3.09 m/s 时, 渗透蒸气侧热阻占比较大, 高达 82.99%; 流速提高至 8.05 m/s 后, 冷却介质侧热阻占比增大, 达到 65.66%。随进口蒸气流速的提高, 真空冷凝分馏器中蒸气冷凝量在总渗透蒸气中的占比由 41.82% 提高至 68.19%, 乙醇质量分数由 3.45% 提高到 10.66%。

关键词: 渗透汽化; 乙醇水蒸气; 真空分馏; 传质; 传热

中图分类号: TQ026.2 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-8924(2024)05-0142-08

doi: 10.16159/j.cnki.issn1007-8924.2024.05.017

乙醇是重要的大宗化学品, 具备原料和燃料的双重属性, 在化工、医药等领域被广泛应用, 还可与汽油混合作为运输燃料^[1]。发酵法制乙醇因条件温和, 底物来源广泛, 能实现乙醇的零碳生产, 一直是乙醇工业生产的主要工艺^[2-3]。渗透汽化膜生物反应器制乙醇, 可消除常规发酵中存在的乙醇产物抑制, 进而提高发酵强度, 降低发酵残液量, 并可同时利用发酵反应热为渗透汽化膜过程供能以实现乙醇的初步浓缩^[4-5]。在膜下游, 一般采用抽真空方式快速移走乙醇水蒸气, 以保证较大的渗透汽化传质推动力^[6-7]。在真空条件下, 乙醇水稀薄蒸气导热系数很低、露点低, 目前均采用低温强冷(-20℃以下), 甚至是液氮冷凝的方式回收渗透蒸气, 但是此两种方式均存在能耗高、成本高的缺点, 阻碍了渗透汽化

膜反应器制乙醇的工业化进程^[8-9]。

本课题组前期开发了真空冷凝分馏-机械蒸气压缩-常压冷凝的分级冷凝工艺, 如图1所示^[10-11]。膜下游渗透蒸气依次经过真空冷凝分馏器、真空压缩机和常压冷凝器。由于乙醇蒸气和水蒸气的露点不同, 因此在一级真空冷凝分馏器中, 水蒸气将优先被冷凝, 形成低乙醇浓度的冷凝液; 经过真空压缩机压缩后, 乙醇水蒸气压力提高至常压, 露点提高, 进入二级冷凝器后, 采用常温水做冷却介质即可被完全冷凝^[12]。根据本课题组前期研究, 与低温强冷技术相比, 采用此方式回收渗透蒸气, 可节省51.8%的能耗^[10]。此外, 分级冷凝利用露点差异实现了渗透蒸气的梯度回收, 在二级冷凝器中形成了乙醇浓度更高的溶液, 将进一步降低后续乙醇的精

收稿日期: 2024-04-16; 修改稿收到日期: 2024-05-20

基金项目: 国家重点研发计划课题(2021YFC2101204); 中央高校基本科研业务费(20822041B4013 和 2023SCU12080)

第一作者简介: 张尹(1998-), 男, 四川凉山人, 硕士生, 研究方向为膜过程设备设计。* 通讯作者, E-mail: fansenqing86@scu.edu.cn

引用本文: 张尹, 王丁玗, 刘敬芸, 等. 渗透汽化膜过程乙醇水蒸气真空分馏热质传递[J]. 膜科学与技术, 2024, 44(5): 142-149.

Citation: Zhang Y, Wang D D, Liu J Y, *et al.* Mass transfer and heat transfer behavior of ethanol-water vapor in vacuum condensation dephlegmator during pervaporation membrane process[J]. Membrane Science and Technology(Chinese), 2024, 44(5): 142-149.

馏能耗^[5]. 目前对真空条件下乙醇水混合蒸气冷凝分馏过程的传热与传质行为相关研究较少,对真空冷凝分馏器的结构-流动-分馏行为之间的相互作用关系无模型化的描述,以至于目前真空冷凝分馏器的设计尚缺少依据.

基于以上原因,本研究将对渗透汽化膜下游不同渗透蒸气流量下真空冷凝分馏器中乙醇水蒸气的热-质传递行为进行研究,重点分析进口蒸气流速对乙醇水蒸气的传热系数与冷凝分馏行为的影响,为真空冷凝分馏器的设计和运行调控提供依据.

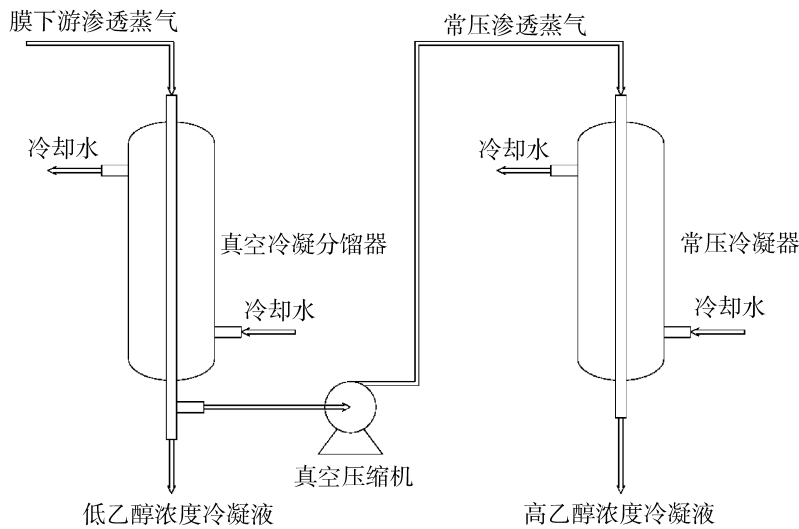


图 1 真空冷凝分馏-机械蒸气压缩-常压冷凝集成原理图

Fig. 1 Schematic diagram of integrated process including vacuum fractional condensation-mechanical vapor compression-atmospheric condensation

1 理论部分

1.1 真空冷凝分馏器总传热系数计算

真空冷凝分馏器的总传热系数由实验室实验测试得到. 实验中采用管壳式换热器作为真空冷凝分馏器,其具体结构如图 2 所示. 冷凝器工作时,乙醇水蒸气走管程,冷却水走壳程,管程和壳程逆流换热. 冷却水流量相较于换热负荷足够大,温度变化很小,可视为恒温流体. 实验过程中的传热系数根据热流体冷凝放热与冷凝器换热负荷相等进行确定,如式(1)、式(2)所示.

$$Q=M_c r \tag{1}$$

$$Q=KA\Delta t \tag{2}$$

$$r=x_1 r_e+(1-x_1) r_w \tag{3}$$

$$A=\pi d_o L \tag{4}$$

$$\Delta t=\frac{T_1+T_2}{2}-t \tag{5}$$

式中: Q 为总换热量, W ; M_c 为冷凝器下端冷凝液收集速率, g/h ; r 为乙醇-水溶液的汽化潜热, kJ/kg ; r_e 、 r_w 分别为乙醇、水的汽化潜热, kJ/kg ; x_1 为一级冷凝液中乙醇质量分数,% . K 、 A 和 Δt 分别为冷凝器总传热系数、基于换热器外表面的换热面积和传

热温差. d_o 、 L 分别为换热管外径和长度, mm . T_1 、 T_2 分别为冷凝器管程中乙醇水蒸气的进、出口温度, $^{\circ}C$; t 为壳程中循环冷却水的温度, $^{\circ}C$.

总传热系数 K 可用式(6)进行计算:

$$K=\frac{M_c[x_1 r_e+(1-x_1) r_w]}{A\left(\frac{T_1+T_2}{2}-t\right)} \tag{6}$$

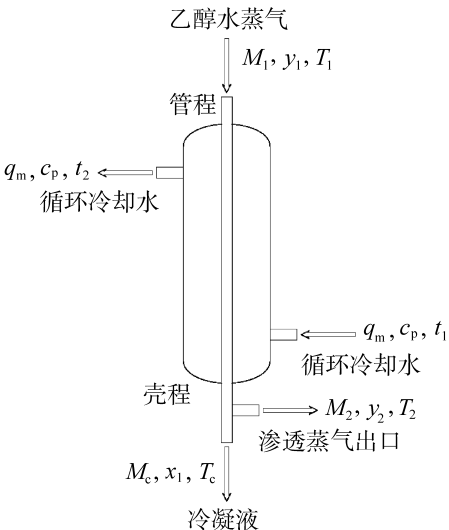


图 2 管壳式换热器结构示意图

Fig. 2 Schematic diagram of shell and tube heat exchanger structure

1.2 冷凝给热系数计算

真空冷凝分馏器传热过程中的总热阻主要由管内对流传热热阻、管外对流传热热阻、管壁传导热阻以及管内、外的污垢热阻组成。基于换热管外表面的总传热热阻表达式为：

$$\frac{1}{K} = \frac{1}{h_i} \times \frac{d_o}{d_i} + R_{s1} \times \frac{d_o}{d_i} + \frac{\delta_w}{\lambda_w} \times \frac{d_o}{d_m} + R_{s2} + \frac{1}{h_o} \quad (7)$$

式中： h_i 、 h_o 分别为管内冷凝给热系数、壳程对流给热系数， $W/(m^2 \cdot K)$ ； R_{s1} 、 R_{s2} 分别为管内、管外污垢热阻， $(m^2 \cdot K)/W$ ； d_i 、 d_o 分别为换热管内、外直径， m ； δ_w 为管壁厚度， m ； λ_w 为管壁热导率， $W/(m \cdot K)$ ，本实验条件下所用管材料 304 不锈钢的热导率为 $16.2 W/(m \cdot K)$ 。

换热管平均直径 d_m 的计算式为：

$$d_m = \frac{d_o - d_i}{\ln \frac{d_o}{d_i}} \quad (8)$$

本实验中所用的管壳式换热器投入使用的时间较短，污垢热阻不大，故忽略污垢热阻，由式(7)可得到管内冷凝给热系数：

$$h_i = \frac{d_o}{d_i \left(\frac{1}{K} - \frac{\delta_w}{\lambda_w} \times \frac{d_o}{d_m} - \frac{1}{h_o} \right)} \quad (9)$$

本研究所用冷却水流速 u_s 为 $0.116 m/s$ ，温度为 $15^\circ C$ 。查阅得到该定性温度下水的物性参数后，壳程对流给热系数 h_o 。根据无相变过渡区给热系数计算方法来确定。计算过程为：

(1) 壳程当量直径 d_e

$$d_e = d_o - d_i \quad (10)$$

(2) 壳程雷诺数 Re_l

$$Re_l = \frac{\rho_w u_s d_e}{\mu_w} \quad (11)$$

式中： ρ_w 为循环冷却水的密度， kg/m^3 ； μ_w 为循环冷却水的黏度， $Pa \cdot s$ 。

(3) 普朗特数 Pr

$$Pr = \frac{c_{p,w} \mu_w}{k_w} \quad (12)$$

式中： $c_{p,w}$ 为循环冷却水的比热容， $kJ/(kg \cdot K)$ ； k_w 为循环冷却水的热导率， $W/(m \cdot K)$ 。

(4) 壳程对流给热系数 h_o

根据无相变过渡区给热系数计算方法，有

$$Nu = 0.023 Re_l^{0.8} Pr^{0.4} \quad (13)$$

$$h = Nu \frac{k_w}{d_e} \quad (14)$$

修正因子 f 的计算式为：

$$f = \frac{6 \times 10^5}{Re_l^{1.8}} \quad (15)$$

最终得到壳侧对流给热系数：

$$h_o = f \cdot h \quad (16)$$

2 实验部分

2.1 实验材料

实验所用乙醇为分析纯，购自于成都赛乐思科技有限公司。所用膜为实验室自制聚二甲基硅氧烷/聚酰胺(PDMS/PA)复合膜，其制备过程详见本课题组之前的报道^[13]。用于测温的仪表为热电偶测温计，用于称量的仪器为电子天平，用于测量溶液中乙醇浓度的仪器为酒精度测量仪。

2.2 总传热系数的确定

实验装置及流程如图 3 所示。温度为 $40^\circ C$ ，乙醇质量分数为 5% 的乙醇水溶液在分离膜上游通过循环泵 C 在料液罐 A 和膜分离单元 B 间循环，当其流经膜表面时，乙醇、水分子被膜选择性吸附，并在膜下游真空压缩泵 E 作用下解吸为蒸气，之后顺序经过真空冷凝分馏器 D(尺寸参数如表 1 所示)和常压冷凝器 F 后被回收，分别存储于真空储罐 G 和常压储罐 H 中。实验过程中，一级冷凝器在真空压缩泵作用下压力维持在 $7 \sim 10 kPa$ 。真空冷凝分馏器进出口处蒸气的温度以及出口处冷凝液的温度均用热电偶测量。为研究不同蒸气流速下，真空冷凝分馏器的总传热系数与管侧的冷凝传热系数，本研究通过选择 3 种有效分离面积均为 $0.024 m^2$ ，但是渗透通量不同的 PDMS 膜(编号 1、2、3)进行实验。各条件下的实验均设置有平行组，数据处理结果取平均值。

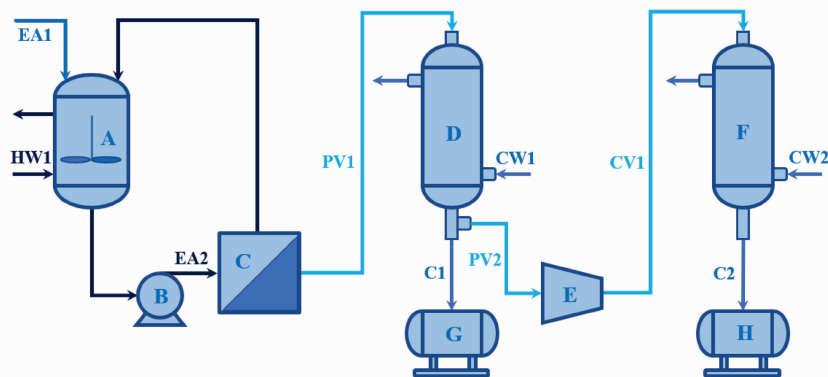
表 1 真空冷凝分馏器的结构参数

Table 1 Structure parameter of the vacuum condensation dephlegmator

名称	尺寸/mm
管程内径 d_i	8
管程外径 d_o	10
壳程内径 D_i	30
壳程外径 D_o	32
换热管长度 L	400

2.3 分析方法

对原始数据进行处理，相关分析方法如下。



A. 料液罐; B. 循环泵; C. 膜分离器; D. 真空冷凝分馏器; E. 真空压缩机; F. 常压冷凝器; G. 真空储罐; H. 常压储罐;
EA1, EA2: 乙醇水溶液; PV1, PV2: 渗透蒸气; C1, C2: 冷凝液; CW1, CW2: 循环冷却水; HW1: 热循环水; CV1: 常压蒸气

图3 实验装置流程图

Fig. 3 Schematic diagram of the experiment setup

(1) 冷凝液质量流量

$$M_c = \frac{m_c}{t} \quad (17)$$

$$M_2 = \frac{m_2}{t} \quad (18)$$

式中: M_c, M_2 分别为 G, H 中冷凝液的质量流量, g/h; t 为收集时间, h; m_c, m_2 分别为 t 时间内 G, H 中冷凝液收集量, g.

(2) 渗透通量

$$M_1 = M_c + M_2 \quad (19)$$

$$J = \frac{M_1}{F} \quad (20)$$

式中: J 为膜的渗透通量, g/(m² · h); M_1 为膜下游乙醇水蒸气质量流量, g/h; F 为膜的有效面积, 0.024 m².

(3) 分离因子

$$\alpha = \frac{y_1(1-y_0)}{y_0(1-y_1)} \quad (21)$$

式中: α 为膜的分离因子; y_0 为膜上游乙醇水溶液中的乙醇质量分数, %; y_1 为膜下游乙醇水蒸气中的乙醇质量分数, %.

(4) 强化分离因子

$$\alpha^* = \frac{y_2(1-y_0)}{y_0(1-y_2)} \quad (22)$$

式中: α^* 为强化分离因子; y_2 为二级冷凝液中的乙醇质量分数, %.

分离因子提升幅度

$$\chi = \frac{\alpha^* - \alpha}{\alpha} \times 100\% \quad (23)$$

式中: χ 为提升幅度, %.

(5) 管程进、出口蒸气流速

$$u_i = \{[M_c \times x_1 + M_2 \times y_2]/46 + [M_c \times (1-x_1) + M_2 \times (1-y_2)]/18\} \times \frac{V_1}{A_s \times 3600} \times 10^{-3} \quad (24)$$

$$u_o = \left[\frac{M_c \times x_1}{46} + \frac{M_c \times (1-x_1)}{18} \right] \times \frac{V_1}{A_s \times 3600} \times 10^{-3} \quad (25)$$

式中: u_i, u_o 分别为管程进、出口蒸气流速, m/s; V_1 为管程温度、压力条件下每摩尔气体对应的体积, L/mol, 可由理想气体状态方程计算得到; A_s 为管口截面积, m².

(6) 管程进口蒸气雷诺数

$$Re_2 = \frac{\rho_v u_i d_i}{\mu_v} \quad (26)$$

式中: Re_2 为管程进口蒸气雷诺数; ρ_v 为管程进口蒸气的密度, kg/m³; μ_v 为管程进口蒸气的黏度, Pa · s.

(7) 渗透蒸气冷凝占比

$$R_p = \frac{M_c}{M_1} \quad (27)$$

$$R_e = \frac{M_c \times x_1}{M_1 \times y_1} \quad (28)$$

式中: R_p 为一级渗透蒸气冷凝占比, %; R_e 为一级乙醇蒸气冷凝占比, %.

3 结果与讨论

3.1 膜分离行为

不同膜类型下, 乙醇和水的渗透总通量及乙醇分离因子如表 2 所示, 可以发现, 3 种膜通量具有一

定的梯度,能够为真空冷凝分馏器的运行提供不同的操作参数.同时可以发现,随着分离膜渗透通量从 1 566.25 g/(m² · h)增大到 3 955.42 g/(m² · h),乙醇分离因子从 7.27 降低到 5.88,两者呈明显的 trade-off 效应,膜下游乙醇浓度也呈降低趋势.但是对于乙醇通量来说,其基本呈递增趋势,从433.54 g/(m² · h)提高至 934.66 g/(m² · h).在膜面积相同的条件下,膜下游总渗透蒸气流量与膜的渗透通量成正比.因此,随着膜通量的增大,真空冷凝分馏器管程的进口蒸气流速 u_1 也逐渐增大.蒸气流速越大,表明其在冷凝器中的停留时间越短,也即传热传质进行的时间较短,被冷凝回收的渗透蒸气可能减少,但是相对地,蒸气流速的增大可能会强化蒸气在管程中的流动行为,从而强化其传热和传质过程,使得冷凝回收的蒸气量增多.

3.2 真空冷凝分馏过程传热分析

在测量真空冷凝分馏器进出口渗透蒸气温度的过程中,由于真空条件下蒸气较为稀薄,热电偶测温计的测温结果失真,因此在计算平均传热温差时,基于膜上游料液温度,在考虑热量损失的前提下,根据乙醇水混合溶液气液平衡线计算得到乙醇水蒸气的平均温度为 37 ℃.如表 3 所示,随着真空冷凝分馏器进口渗透蒸气流速从 3.09 m/s 提高至 8.05 m/s,即管内蒸气的雷诺数从 166.80 提高到 419.61,真空冷凝分馏器的总传热量也从 10.24 W 增加至 40.14 W,其中乙醇蒸气冷凝释放热量大约为0.13~1.69 W,水蒸气冷凝释放热量大约为10.11~38.45 W,

可见真空冷凝分馏器中主要发生水蒸气冷凝换热,而且随着蒸气雷诺数的提高,传热过程更强烈.不同流速下的总传热系数和冷凝给热系数如图 4 所示,由图 4 可知,随进口渗透蒸气流速的提高,真空冷凝分馏器的总传热系数由 37.06 W/(m² · K)提高至 145.27 W/(m² · K),相应地,乙醇水蒸气侧冷凝给热系数也由 55.81 W/(m² · K)提高至 544.60 W/(m² · K).相较于常压条件下蒸气的传热系数 [1 400~4 700 W/(m² · K)]来说,真空条件下乙醇水稀薄蒸气的传热系数相对较低^[14].可以推测在渗透蒸气总量一定的情况下,真空冷凝分馏器的冷凝任务越重,分级冷凝中两级冷凝器的总换热面积和总设备体积将会越大,设备的初始建设成本也将越高.同时可以发现,当蒸气流速由 3.09 m/s 提高至 3.68 m/s时,总传热系数和冷凝给热系数分别提高 28.71% 和 36.76%;当蒸气进口流速提高至 8.05 m/s时,两者分别提高 291.99% 和 875.74% (相比 3.09 m/s),其中,蒸气冷凝给热系数相较总传热系数来说,其提高幅度更大.主要原因可能是低蒸气流速下,蒸气冷凝液在管壁形成了缓慢流动的液膜,其传热效果相对较差,但是随着渗透蒸气流速的增大,液膜厚度和质量均不断提高,当流速提高至一定值时,在重力和渗透蒸气吹扫作用下,液膜流动性提高,传热效果得到强化,流速的继续提高甚至可能使液膜撕裂,形成液滴,出现 Marangoni 对流现象,渗透蒸气在管壁形成滴状冷凝,大幅度地强化传热效果^[15-16].

表 2 不同膜的渗透汽化分离行为

Table 2 Pervaporation performance of different composite membrane

膜编号	渗透通量 $J/(\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1})$	分离因子 α	乙醇质量分数 $y_1/\%$	总渗透蒸气流量 $M_1/(\text{g} \cdot \text{h}^{-1})$	一级进口蒸气流速 $u_1/(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$
1	1 566.25	7.27	27.68	37.59	3.09
2	1 829.58	6.46	25.36	43.91	3.68
3	3 955.42	5.88	23.63	94.93	8.05

表 3 不同进口蒸气流速下的雷诺数及传热量

Table 3 Reynolds number and heat transfer under different inlet pervaporation vapor velocity

膜编号	一级进口蒸气流速 $u_1/(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	雷诺数 Re	乙醇蒸气冷凝放热量 Q_e/W	水蒸气冷凝放热量 Q_w/W	总放热量 Q/W
1	3.09	166.80	0.13	10.11	10.24
2	3.68	194.41	0.24	12.94	13.18
3	8.05	419.61	1.69	38.45	40.14

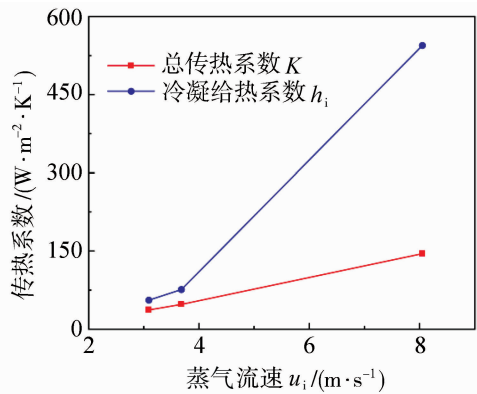


图4 不同进口渗透蒸气流速下的传热系数
Fig. 4 Heat transfer coefficients under different inlet pervaporation vapor velocity

3.3 真空冷凝过程热阻占比分析

真空冷凝分馏器中,乙醇水蒸气冷凝过程的总热阻主要由管壁内外两侧流体的对流传热热阻以及管壁的导热热阻组成. 由于渗透蒸气在不同流速下的传热系数波动较大,因此在制定冷凝器操作方案时需考虑流速的影响. 传热强化工艺调节方案可根据传热过程各传热步骤热阻占比制定,因此,本研究对不同渗透蒸气流速下的传热热阻占比进行了分析. 首先,本研究中根据无相变过渡区给热系数计算方法对壳程循环冷却水的对流给热系数进行了详细计算,得出壳程对流给热系数为 $221.25 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$,管壁热阻为 $6.89 \times 10^{-5} (\text{m}^2 \cdot \text{K})/\text{W}$,进一步计算得到不同流速下,各部分热阻在总热阻中的占比,如图5所示.

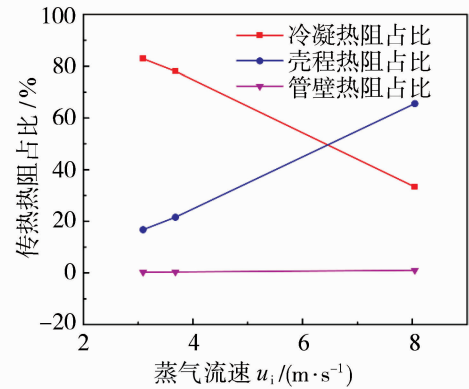


图5 不同进口渗透蒸气流速下各传热步骤热阻占比
Fig. 5 The proportion of heat transfer resistance under different inlet permeate steam flow rates

可以发现,由于管壁材料导热性能较好且管壁较薄(仅为1 mm),管壁热阻在总热阻中占比极小,在0%~1%之间,可忽略不计. 冷凝热阻占比随着

蒸气流速从 3.08 m/s 增大到 8.05 m/s ,其从82.99%降低到33.34%;而壳程热阻占比从16.75%增大到65.66%. 这表明在低蒸气流速下,传热过程限速步骤主要为冷凝热阻,需通过强化蒸气侧冷凝过程,以提高总传热性能;随着流速不断增大,渗透蒸气的湍动程度也越大(雷诺数逐渐增大),蒸气到冷凝液的传热过程得到强化,因此整个冷凝过程从受管内冷凝热阻控制逐渐转变为受管外热阻控制. 当管内外热阻相近时,需同时强化渗透蒸气冷凝过程和管外冷流体换热过程;当流速继续增加,冷流体侧热阻占主导时,继续强化冷凝传热,总传热行为强化效果将不够理想,此时,可通过提高冷流体流速或者降低冷流体温度以提高该侧给热系数,强化总传热效果.

3.4 真空冷凝分馏过程传质分析

当进口渗透蒸气的流速从 3.09 m/s 提高至 8.05 m/s 时,真空冷凝分馏器中渗透蒸气的冷凝速率由 15.72 g/h 提高至 64.73 g/h ,其原因可能为流速增大后,传热系数明显提高,传热过程得到有效强化,相应地,有更多的渗透蒸气被冷凝下来. 随进口渗透蒸气流速的提高,一级冷凝分馏器的渗透蒸气冷凝量占比也逐渐升高,从41%提高至70%,如图6所示. 一级冷凝液中,乙醇质量分数也从3.45%增大到10.66%,其原因可能为,冷凝传质过程中乙醇水蒸气在温度上发生了较大幅度的下降,温度越低,越接近乙醇的露点温度,乙醇蒸气越易被冷凝下来,此外,传热系数的提高也有利于乙醇蒸气的冷凝,因

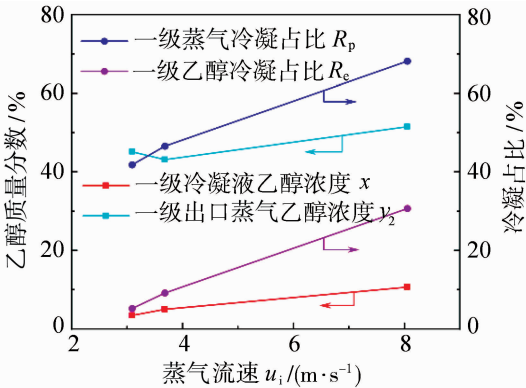


图6 不同进口渗透蒸气流速下真空冷凝分馏器的冷凝行为
Fig. 6 Condensation behavior of the vacuum condensation dephlegmator under different inlet pervaporation vapor velocity

此冷凝液中的乙醇浓度升高. 冷凝量越大, 温度降低的越多, 乙醇蒸气的冷凝占比也从 5.21% 提高至 30.72%. 上述结果说明渗透蒸气流速增加后, 其停留时间的缩短并未影响真空条件下的传质行为, 相反, 随着流速的提高, 真空冷凝分馏器管内的传质变得更加剧烈, 更多的乙醇水蒸气被冷凝.

常压冷凝器中冷凝速率变化很小, 其冷凝速率仅从 21.87 g/h 提高至 30.20 g/h, 渗透蒸气的冷凝占比以及乙醇蒸气的冷凝占比也出现下降. 但是一级出口渗透蒸气中乙醇浓度得到一定幅度的提高, 相较于总渗透蒸气, 其提高 62.79%~118.03%, 相应地, 分离因子也提高 114.72%~243.46%, 如图 7 所示. 但是可以发现, 一级出口渗透蒸气中乙醇浓度随流速的提高, 其仅提高 19.50%. 从冷凝液的后续处理考虑, 当一级冷凝液中乙醇浓度处于较低水平时, 采用常规精馏法对乙醇进行回收所消耗的能量将远高于乙醇自身热量, 增加乙醇生产的成本投入. 由于此部分冷凝液不仅乙醇含量低, 而且对乙醇的冷凝占比也相对较低, 因此将此部分冷凝液用于其他工段供水时, 不仅不会造成乙醇的浪费, 还将节约工艺系统的新鲜用水量. 采用精馏的方法从浓度和冷凝占比均较高的一级出口渗透蒸气中回收乙醇时, 无论在进料浓度上还是总进料量上, 与直接从低乙醇浓度渗透液或者一级冷凝液中回收乙醇相比, 其能耗均相对较低, 也即低流速条件可能更有利于降低乙醇的总分离纯化能耗.

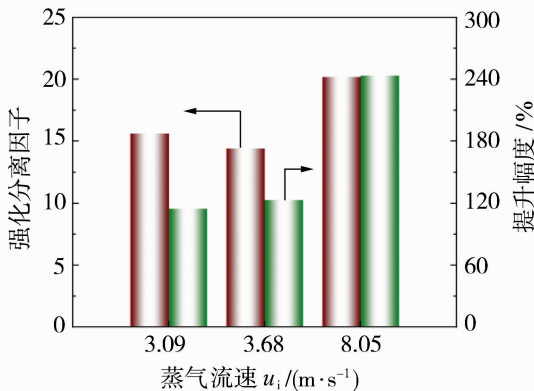


图 7 不同蒸气流速下的强化分离因子及提升幅度

Fig. 7 Enhanced separation factor and its improvement under different inlet pervaporation vapor velocity

4 结 论

对真空冷凝分馏器的乙醇水蒸气的热-质传递行为进行了研究, 重点分析了真空冷凝分馏器进口

渗透蒸气流速对乙醇水蒸气传热系数与冷凝行为的影响. 结果表明, 随着蒸气流速的提高和湍动程度的加剧, 真空冷凝分馏器的传热和传质行为均得到提高. 总传热系数与冷凝给热系数均成倍提高, 但是各传热步骤热阻占比发生变化, 低流速下, 渗透蒸气侧热阻占比较大, 流速提高可强化传热过程, 流速达到一定值后, 冷却介质侧热阻占主导地位, 通过调节冷却介质温度和流量等强化传热过程. 进口流速越大, 真空冷凝分馏器中的渗透蒸气冷凝占比和乙醇蒸气冷凝占比均越高, 冷凝液乙醇浓度也越高.

参考文献:

- [1] Aditiya H B, Mahlia T M I, Chong W T, *et al.* Second generation bioethanol production: A critical review[J]. *Renew Sust Energ Rev*, 2016, 66:631—653.
- [2] Sánchez O J, Cardona C A. Trends in biotechnological production of fuel ethanol from different feedstocks[J]. *Bioresource Technol*, 2008, 99:5270—5295.
- [3] Cardona C A, Sánchez O J. Fuel ethanol production: Process design trends and integration opportunities[J]. *Bioresource Technol*, 2007, 98:2415—2457.
- [4] Cao Z Q, Xia C J, Jia W, *et al.* Enhancing bioethanol productivity by a yeast-immobilized catalytically active membrane in a fermentation-pervaporation coupling process[J]. *J Membr Sci*, 2020, 595:117485.
- [5] Jiang H J, Liu J Y, Liu W D, *et al.* Bioethanol production from cassava fermentation in pervaporation membrane bioreactor fed with high concentration sugar[J]. *Fuel*, 2024, 362:130744.
- [6] Qiu B Y, Wang Y Y, Fan S Q, *et al.* Ethanol mass transfer during pervaporation with PDMS membrane based on solution-diffusion model considering concentration polarization[J]. *Sep Purif Technol*, 2019, 220:276—282.
- [7] Zentou H, Abidin Z Z, Issa M A, *et al.* Developing an integrated mathematical model of fermentation-pervaporation system for bioethanol production[J]. *Chem Eng J*, 2023, 473:145229.
- [8] O'Brien D J, Roth L H, McAloon A J. Ethanol production by continuous fermentation-pervaporation: A preliminary economic analysis[J]. *J Membr Sci*, 2000, 166:105—111.
- [9] Cai D, Hu S, Chen C J, *et al.* Immobilized ethanol fermentation coupled to pervaporation with silicalite-1/polydimethylsiloxane/polyvinylidene fluoride composite membrane[J]. *Bioresource Technol*, 2016, 220:124—

- 131.
- [10] Fan S Q, Xiao Z Y, Li M H, *et al.* Pervaporation membrane bioreactor with permeate fractional condensation and mechanical vapor compression for energy efficient ethanol production[J]. *Appl Energ*, 2016, 179:939—947.
- [11] Li J F, Zhou W C, Fan S Q, *et al.* Bioethanol production in vacuum membrane distillation bioreactor by permeate fractional condensation and mechanical vapor compression with polytetrafluoroethylene (PTFE) membrane[J]. *Bioresource Technol*, 2018, 268:708—714.
- [12] Fan S Q, Liu J F, Tang X Y, *et al.* Process operation performance of PDMS membrane pervaporation coupled with fermentation for efficient bioethanol production[J]. *Chin J Chem Eng*, 2019, 27:1339—1347.
- [13] Li L, Xiao Z Y, Tan S J, *et al.* Composite PDMS membrane with high flux for the separation of organics from water by pervaporation[J]. *J Membrane Sci*, 2004, 243:177—187.
- [14] 耿少航, 党建军, 赵 佳, 等. 高压下含大比例不凝气体的水蒸气对流冷凝数值仿真[J]. *水下无人系统学报*, 2021, 29:88—96.
- [15] Wang J S, Yan J J, Li Y, *et al.* Experimental investigation of marangoni condensation of ethanol-water mixture vapors on vertical tube[J]. *Heat Mass Transfer*, 2009, 45:1533—1541.
- [16] Lips S, Meyer J P. Two-phase flow in inclined tubes with specific reference to condensation: A review[J]. *Int J Multiphas Flow*, 2011, 37:845—859.

Mass transfer and heat transfer behavior of ethanol-water vapor in vacuum condensation dephlegmator during pervaporation membrane process

ZHANG Yin, WANG Dingding, LIU Jingyun, LIU Wenda, JIANG Haoji, HAN Lu, XIAO Zeyi, FAN Senqing

(School of Chemical Engineering, Sichuan University, Chengdu 610000, China)

Abstract: Fractional condensation process was used to recover the permeate ethanol-water vapor downstream the pervaporation membrane under vacuum. The heat transfer and mass transfer behavior of the vacuum condensation dephlegmator was stressed. The effects of inlet vapor flow rate on the heat transfer coefficient and condensation behavior of the vacuum condensation dephlegmator were analyzed. When the inlet vapor flowing velocity was increased from 3.09 to 8.05 m/s, the heat transfer process was effectively intensified. The total heat transfer coefficient was increased from 37.06 to 145.27 W/(m² · K), with the vapor side condensing heat transfer coefficient also increasing from 55.81 to 544.60 W/(m² · K). At different flowing velocity, the proportion of thermal resistance in the heat transfer process varied. At low vapor flowing velocity, the vapor side thermal resistance was relatively high, reaching up to 82.99%. After the flow rate increased, the proportion of thermal resistance on the cooling medium side was increased, reaching up to 65.66%. With the increase in feed flowing velocity, the recovery proportion of ethanol-water vapor in the vacuum condensation dephlegmator was improved from 41.82% to 68.19%, with the ethanol recovery proportion increasing from 5.21% to 30.72%. The ethanol mass fraction in the first condensate was also increased from 3.45% to 10.66%.

Key words: pervaporation; ethanol-water vapor; vacuum dephlegmator; mass transfer; heat transfer