

# مدل سازی و شبیه سازی فرایندهای جداسازی غشایی گازها با استفاده از روش خط عملیاتی اصلاح شده

کامران قاسم زاده

دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی ارومیه، ارومیه، ایران

عباس آقائی نژاد میبدی\*+

گروه مهندسی شیمی، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه ارومیه، ارومیه، ایران

**چکیده:** در این پژوهش از روش تقریبی خط عملیاتی اصلاح شده (MOLM) به علت این که تطابق خوبی با حل های دقیق دارد، برای مدل سازی و شبیه سازی فرایندهای جداسازی غشایی گازها استفاده شده است. نخست اعتبار این روش با نتیجه های مقاله های دیگر برای غشاهای آلی و غیر آلی ارزیابی شد و پس از تأیید آن، به عنوان یک مطالعه موردی، با استفاده از این روش، سطح غشای مورد نیاز برای جداسازی ایزومرهای بوتان تولیدی در واحد LPG پالایشگاه تبریز محاسبه شد. نتیجه های این پژوهش نشان داد که روش MOLM برای آرایش جریان ناهمسو کار آیی ندارد ولی برای آرایش جریان همسو می تواند سطح غشای مورد نیاز را با دقت پیشگویی نماید. نتیجه های مدل سازی نشان داد که با استفاده از سامانه های یک مرحله ای نمی توان به فراورده هایی با خلوص بالا دست یافت، بدین منظور طراحی فرایند برای رسیدن به فراورده هایی با خلوص بالاتر از ۹۸٪ از نرمال بوتان و ایزوبوتان تولیدی از واحد LPG پالایشگاه تبریز با استفاده از سامانه های چند مرحله ای غشایی به کمک روش MOLM صورت گرفت و سطح غشای مورد نیاز برابر با  $2910 \text{ m}^2$  به دست آمد. سرانجام، اثر پارامترهای کلیدی مانند انتخاب گری غشا، نسبت فشار جریان خوراک به عبور کرده بر روی سطح غشای مورد نیاز، بررسی شد.

**واژه های کلیدی:** جداسازی؛ فرایند غشایی؛ مدل سازی؛ ایزومرهای بوتان؛ روش خط عملیاتی اصلاح شده.

**KEYWORDS:** Separation; Membrane process; Modeling; Butane isomers; Modified operation line method.

## مقدمه

و جداسازی گازها<sup>(۵)</sup> (GS) به طور گسترده در فرایندهای جداسازی صنعتی مورد استفاده قرار می گیرند [۱]. با توجه به مشکل های

امروزه، فرایندهای غشایی مانند میکروفیلتراسیون<sup>(۱)</sup> (MF)، فراتصفیه<sup>(۲)</sup> (UF)، نانوفیلتراسیون<sup>(۳)</sup> (NF)، اسمز معکوس<sup>(۴)</sup> (RO)

\*عهده دار مکاتبات

+E-mail: a.aghaeinejad@urmia.ac.ir

(۱) Microfiltration

(۴) Reverse osmosis

(۲) Ultrafiltration

(۵) Gas Separation

(۳) Nanofiltration

در خوراک ورودی، ضخامت غشا و نوع جریان واکنشگرها و گاز جاروب کننده بر روی میزان تبدیل متان و تولید هیدروژن را مورد بررسی قرار دادند.

امروزه با توسعه سخت‌افزارهای کامپیوتری، مدل‌های فیزیکی - ریاضی و الگوریتم‌های حل عددی، مدل‌های دینامیک سیالات محاسباتی<sup>(۳)</sup> (CFD) بیشتر مورد توجه قرار گرفته‌اند [۱۶، ۱۵]. معادله‌های موازنه جرم، انرژی و مومنتوم، قوانین بنیادی برای جریان سیال‌ها و فرایندهای انتقال می‌باشند. در واقع فناوری CFD شامل حل عددی معادله‌های حاکم بر دینامیک سیالات می‌باشد. کارایی فرایندهای غشایی به شدت تحت تأثیر پارامترهایی مانند فشار، سرعت سیال و دما می‌باشد که می‌توان آن‌ها را با استفاده از فناوری CFD شبیه‌سازی نمود. به‌طور کلی مطالعه‌های کمی در مورد شبیه‌سازی فرایندهای غشایی و راکتورهای غشایی به ویژه برای جداسازی گازها با استفاده از روش CFD انجام شده است. در سال‌های اخیر، قاسمزاده و همکاران [۱۷-۱۵] یک مدل CFD برای ارزیابی کارایی راکتور غشایی پالادیم - نقره در واکنش انتقال آب - گاز<sup>(۴)</sup> (WGS) و ریفورمینگ متانول با بخار آب ارائه نمودند.

شبکه‌های عصبی مصنوعی<sup>(۵)</sup> (ANN)، سامانه‌های مبتنی بر کامپیوتر هستند که برای شبیه‌سازی فرایند یادگیری از سلول‌های عصبی در مغز انسان طراحی شده‌اند. شبکه‌های عصبی مصنوعی در طول دهه گذشته توجه بسیاری از پژوهشگران را به عنوان مدل‌های پیشگو و تشخیص الگو به خود جلب کرده است [۱۸]. برتری عمده روش شبکه‌های عصبی مصنوعی نسبت به سایر روش‌های مدل‌سازی این است که در این روش دیگر نیازی به حل معادله‌های حاکم بر پدیده‌های انتقال نمی‌باشد و مدل‌سازی بر مبنای داده‌های تجربی و آزمایشگاهی انجام می‌گیرد. در سال‌های اخیر از روش شبکه‌های عصبی مصنوعی به عنوان یک ابزار قدرتمند برای مدل‌سازی فرایندهای جداسازی غشایی بویژه در جداسازی گازها استفاده شده است [۲۲-۱۹].

در این پژوهش از روش تقریبی خط عملیاتی اصلاح شده MOLM<sup>(۶)</sup> به علت اینکه تطابق خوبی با حل‌های دقیق دارد، برای مدل‌سازی و شبیه‌سازی فرایندهای جداسازی غشایی گازها استفاده شد. این روش توسط آقایی نژاد و همکاران

مربوط به انجام کارهای تجربی با غشاها به ویژه در مقیاس‌های صنعتی و نیمه‌صنعتی، استفاده از نتیجه‌های مدل‌سازی فرایندهای غشایی در ارزیابی کارایی آن‌ها از اهمیت خاصی برخوردار است. مهم‌ترین نتیجه به دست آمده از یک مدل‌سازی ریاضی، درک واقعی رفتار سامانه است که ما را قادر می‌سازد به جای به کارگیری انبوهی از متغیرهای سامانه، رفتار نهایی سامانه به وضوح روشن شود. یکی از برتری‌های ابزار مدل‌سازی، صرفه‌جویی در هزینه‌ها به‌واسطه کاهش تعداد آزمایش‌ها می‌باشد [۲].

تاکنون روش‌های مدل‌سازی گوناگونی برای فرایندهای غشایی ارائه شده‌اند که از مهم‌ترین آن‌ها می‌توان به مدل‌های بر مبنای جعبه سیاه<sup>(۱)</sup>، مدل‌های بر مبنای پدیده‌های انتقال، مدل‌های دینامیک سیالات محاسباتی (CFD) و مدل‌های بر مبنای شبکه‌های عصبی مصنوعی اشاره نمود. مدل‌سازی ریاضی فرایندهای غشایی برای جداسازی مخلوط دوجزئی گازی، برای اولین بار توسط والر و استنر، مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت [۳].

روش جعبه سیاه یک مدل ریاضی بر مبنای محاسبه‌های موازنه جرم می‌باشد که برای پیشگویی ترکیب درصد جریان‌های عبور کرده و نگه‌داشته‌شده به‌عنوان تابعی از پارامترهای گوناگون آزمایشگاهی گسترش یافت. در این روش هیچ مکانیسمی برای نفوذپذیری گاز در نظر گرفته نمی‌شود [۷-۴]. با استفاده از این مدل‌ها به سادگی می‌توان شرایط بهینه برای فرایند جداسازی غشایی گاز را پیش از انجام آزمایش‌ها به‌دست آورد.

مدل‌های بر مبنای پدیده‌های انتقال به‌صورت یک‌بعدی و دوبعدی برای شبیه‌سازی کارایی فرایندهای غشایی و راکتور غشایی مانند راکتورهای غشایی پالادیم - نقره و سیلیکایی در طول واکنش‌های گوناگون توسعه داده شده‌اند. این مدل‌ها بر مبنای معادله‌های موازنه جرم برای هر جزء، افت فشار در سمت واکنش با معادله ارگان<sup>(۲)</sup>، معادله‌های سرعت واکنش برای راکتورهای غشایی و معادله‌های انتقال برای اجزای عبور کرده از غشا می‌باشد. در این زمینه مطالعه‌های گوناگونی توسط پژوهشگران انجام شده است [۱۴-۸]. وافر و همکاران [۱۳] مدل‌سازی فرایند تبدیل گاز طبیعی با بخار آب را در یک راکتور غشایی پالادیم - نقره مورد بررسی قرار دادند. آن‌ها اثر پارامترهای گوناگونی مانند فشار و دمای محیط واکنش، نسبت متان به بخار آب

(1) Balck box

(2) Ergun equation

(3) Computational fluid dynamics

(4) Water gas shift reaction

(5) Artificial neural network

(6) Modified Operation Line Method

- جریان‌های خوراک و عبور کرده به صورت جریان لوله‌ای<sup>(۳)</sup> هستند.
- از گرادیان‌های غلظت فاز گازی در جهت عبوری از غشا، چشم‌پوشی می‌شود.
- نفوذ مولکولی<sup>(۴)</sup> در جهت خطوط جریان<sup>(۵)</sup> در مقایسه با جریان توده‌ای<sup>(۶)</sup> قابل چشم‌پوشی است.

### آرایش جریان همسو

در شکل ۱، یک سلول غشایی با جریان همسو به طور نمایشی نشان داده شده است

موازنه جرم کلی و جزئی بین ورودی و هر نقطه از سلول غشایی به صورت زیر نوشته می‌شود:

$$L_f = L + V \quad (1)$$

$$L_f x_f = Lx + Vy \quad (2)$$

برای بی بعدسازی معادله‌های بالا از پارامترهای بی بعد زیر استفاده شده است:

$$L^* = \frac{L}{L_f} \quad V^* = \frac{V}{L_f} \quad (3)$$

با استفاده از پارامترهای بی بعد، معادله‌های (۱) و (۲) به صورت زیر ظاهر می‌شوند:

$$L^* + V^* = 1 \quad (4)$$

$$L^* x + V^* y = x_f \quad (5)$$

انتخاب‌گری<sup>(۷)</sup> و عبوردهی<sup>(۸)</sup> و ثابت عبوردهی برای غشا به ترتیب به صورت زیر تعریف می‌شوند:

$$\alpha = \frac{P_1}{P_2} \quad \text{انتخاب‌گری} \quad (6)$$

$$P = \frac{q\delta}{A\Delta P} \quad \text{عبوردهی} \quad (7)$$

$$K = \frac{P}{\delta} \quad \text{ثابت عبوردهی} \quad (8)$$

در روابط بالا،  $\delta$ ،  $A$ ،  $\Delta P$  به ترتیب ضخامت غشا ( $m$ )، سطح غشا ( $m^2$ ) و اختلاف فشار بین محفظه خوراک و عبور کرده می‌باشند.

در سال ۲۰۱۴ میلادی ارایه شد [۲۳]. به عنوان یک مطالعه موردی، با استفاده از این روش، سطح غشای مورد نیاز برای جداسازی ایزومرهای بوتان تولیدی در واحد LPG پالایشگاه تبریز محاسبه شد، همچنین اثر برخی از پارامترهای کلیدی مانند انتخاب‌گری غشا و نسبت فشار جریان عبور کرده<sup>(۱)</sup> به خوراک ورودی بر روی سطح غشای مورد نیاز، بررسی شد.

### بخش نظری

در حالت کلی مدل سازی فرایند غشایی باید موارد زیر را برآورده نماید:

- ۱- در صورتی که ویژگی‌های غشا (اندازه متوسط حفره‌ها، میزان تخلخل و...) و جنس غشا مشخص باشد، مدل بایستی شار عبوری از غشا و غلظت همه اجزا را در جریان نگهداشته شده و جریان عبور کرده از غشایی با سطح مشخص را پیش‌بینی نماید.
- ۲- مدل باید توانائی تعیین سطح غشای مورد نیاز برای شرایط عملیاتی مشخص را داشته باشد.
- ۳- مدل ارایه شده باید از دقت بالا و در همان حال از پیچیدگی کم‌تری برخوردار باشد.

چنانچه اشاره شد در این پژوهش، از روش MOLM برای مدل سازی فرایند غشایی برای جداسازی ایزومرهای بوتان تولیدی در واحد LPG پالایشگاه تبریز در عملیات یک مرحله‌ای با جریان همسو و ناهمسو استفاده شده است که در ادامه این روش با جزئیات بیش‌تری ارایه می‌شود.

### روش خط عملیاتی اصلاح شده (MOLM)

این روش تنها بر پایه موازنه جرم جزئی و کلی دور سلول غشایی<sup>(۲)</sup> استوار است و هیچ فرضی برای مکانیسم نفوذ گاز در نظر گرفته نمی‌شود. به عبارت دیگر این روش حالت خاص و ساده‌ای از روش "جعبه سیاه" محسوب می‌شود. در این روش یک رابطه خطی بین ترکیب خوراک و عبور کرده در نظر گرفته می‌شود. فرضیه‌های ساده کننده در این روش عبارتند از [۲۴]:

- جریان جاروب کننده در سمت عبور کرده، وجود ندارد.
- هیچ برهم‌کنشی بین گازهای موجود در مخلوط وجود ندارد.

(۱) Permeate stream

(۲) Membrane cell

(۳) Plug Flow

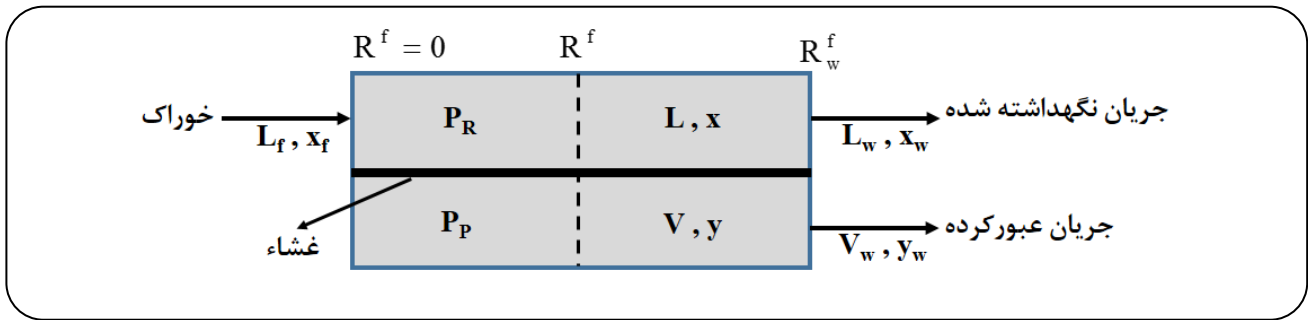
(۴) Diffusion

(۵) Stream Lines

(۶) Bulk

(۷) Selectivity

(۸) Permeability



شکل ۱- سلول غشائی با جریان همسو به طور نمایشی.

برای به دست آوردن تغییرهای ترکیب درصد اجزا در طول سلول غشایی و همچنین محاسبه سطح غشای مورد نیاز، معادله‌های دیفرانسیل (۱۳) و (۱۴) باید به‌طور همزمان حل شوند و برای این منظور می‌توان از روش‌های عددی مانند روش رانگ کاتای مرتبه چهارم و یا اویلر و غیره استفاده نمود. در برخی از موردها مشکل همگرایی روش عددی وجود دارد و به طور طبیعی زمان بر و دشوار خواهد بود. در این مورد می‌توان به جای حل دقیق معادله‌های دیفرانسیل از روش‌های تقریبی استفاده نمود.

در سال ۱۹۹۲ میلادی، کروویدی<sup>(۱)</sup> و همکاران [۲۴] روش تقریبی خط عملیاتی (OLM) را پیشنهاد دادند. شایان ذکر است که در مدل ارائه شده توسط کروویدی و همکاران، اشتباههایی وجود داشت و منجر به خطای محاسباتی بالایی می‌شد، با توجه به اشتباههایی که در مدل ارائه شده وجود داشت، این مدل در کار پژوهشی پیشین ما اصلاح شده و به‌عنوان روش خط عملیاتی اصلاح شده (MOLM) معرفی شد [۲۳]. در این روش یک رابطه خطی بین ترکیب خوراک و جریان عبور کرده فرض شده است:

$$y = m(x_f - x) + n \quad (15)$$

در معادله (۱۵)،  $m$  و  $n$  (بر اساس شرایط  $x = x_f$ ) برابر مقادیر زیر می‌باشند [۲۳]:

$$n = y_f = \frac{\left\{ 1 + (\alpha - 1)(\gamma + x_f) - \left[ 1 + (\alpha - 1)(\gamma + x_f) \right]^2 - 4\gamma\alpha(\alpha - 1)x_f \right\}^{1/2}}{2\gamma(\alpha - 1)} \quad (16)$$

شایان ذکر است در معادله (۱۶)،  $P_1$  بیانگر عبوردهی جزء ۱ (جزء با عبوردهی بیشتر) و  $P_2$  بیانگر عبوردهی جزء ۲ (جزء با عبوردهی کم‌تر) می‌باشد.

با تعریف پارامترهای  $R^f$  (سطح بدون بعد) و  $\gamma$  (نسبت فشار جریان عبور کرده به خوراک)، معادله‌های دیفرانسیل برای سرعت جریان‌های مولی اجزاء نیز به صورت زیر نوشته می‌شود [۲۴]:

$$R^f = \frac{P_R A P_2}{\delta L_f} \quad (9)$$

$$\gamma = \frac{P_P}{P_R} \quad (10)$$

$$\frac{d(L^* x)}{d(R^f)} = \frac{d(V^* y)}{d(R^f)} = \alpha(x - \gamma y) \quad (11)$$

$$\frac{d(L^*)}{d(R^f)} = \frac{d(V^*)}{d(R^f)} = \alpha(x - \gamma y) + [(1-x) - \gamma(1-y)] \quad (12)$$

در روابط بالا،  $P_P$  و  $P_R$  به ترتیب فشار محفظه عبور کرده و خوراک است.

با ترکیب معادله‌های (۱) تا (۱۲) و ساده‌سازی آن‌ها، معادله‌های زیر برای تغییرهای ترکیب درصد اجزاء در طول سلول غشائی به دست می‌آید [۲۴]:

$$\frac{dx}{dR^f} = \frac{(x-y)\{\alpha(1-x)(x-\gamma y) - x[1-x-\gamma(1-y)]\}}{(y-x_f)} \quad (13)$$

$$\frac{dy}{dR^f} = \frac{(y-x)\{\alpha(1-y)(x-\gamma y) - y[1-x-\gamma(1-y)]\}}{(x_f-x)} \quad (14)$$

شرایط اولیه برای حل معادله‌های بالا به صورت زیر است:

$$L^* = 1 \quad V^* = 0 \quad x = x_f \quad y = y_f \quad \text{at } R^f = 0$$

(۱) Krovvidi

در آرایش جریان ناهمسو، سطح واقعی غشا، A، از طرف انتهایی جریان نگاهداشته شده محاسبه می شود و  $L_w$ ، سرعت جریان مولی نگاهداشته شده می باشد.

رابطه بین  $R^w$  و  $R^f$  به صورت زیر تعریف می شود:

$$R^f = \frac{(x_f - y_f)}{(x_w - y_f)} (R_f^w - R^w) \quad (21)$$

با تعویض  $f$  و  $w$  معادله های (۱۳) و (۱۴) به صورت زیر نوشته می شوند [۲۴]:

$$\frac{dx}{dR^w} = \frac{(x-y)\{\alpha(1-x)(x-\gamma y) - x[1-x-\gamma(1-y)]\}}{y-x_w} \quad (22)$$

$$\frac{dy}{dR^w} = \frac{(y-x)\{\alpha(1-y)(x-\gamma y) - y[1-x-\gamma(1-y)]\}}{x_w - x} \quad (23)$$

شرایط اولیه برای حل معادله های بالا به صورت زیر می باشد:

$$L^* = \left(\frac{L}{L_w}\right) = 1 \quad v^* = 0 \quad x = x_w \quad (24)$$

$$y = y_w \quad \text{at } R^w = 0$$

با حل معادله های دیفرانسیل (۲۲) و (۲۳) برای آرایش جریان ناهمسو با استفاده از روش های عددی مانند روش رانگ کاتای مرتبه چهارم و با اعمال شرایط مرزی، می توان روند تغییرهای ترکیب درصد اجزا و سطح غشای مورد نیاز را محاسبه نمود. در آرایش جریان ناهمسو، یک رابطه خطی بین ترکیب نگاهداشته شده و جریان عبور کرده فرض شده است:

$$y = m(x_w - x) + n \quad (25)$$

در معادله (۲۵)،  $m$  و  $n$  (بر اساس شرایط  $x = x_w$ ) برابر مقادیر زیر می باشند [۴]:

$$n = y_w = \frac{\left\{ 1 + (\alpha - 1)(\gamma + x_w) - \left[ 1 + (\alpha - 1)(\gamma + x_w) \right]^2 - 4\gamma\alpha(\alpha - 1)x_w \right\}^{1/2}}{2\gamma(\alpha - 1)} \quad (26)$$

$$m = - \left[ \frac{dy}{dx} \right]_w = \frac{\left\{ (y_w - x_w) [\alpha - (\alpha - 1)y_w] \right\}}{\left\{ \alpha(1 - x_w)(x_w - \gamma y_w) - x_w [1 - x_w - \gamma(1 - y_w)] \right\} - \left\{ (y_w - x_w) [(\alpha - 1)(\gamma y_w - x_w - \gamma) - 1] \right\}} \quad (27)$$

$$m = - \left[ \frac{dy}{dx} \right]_f = \quad (17)$$

$$\frac{\left\{ (y_f - x_f) [\alpha - (\alpha - 1)y_f] \right\}}{\left\{ \alpha(1 - x_f)(x_f - \gamma y_f) - x_f [1 - x_f - \gamma(1 - y_f)] \right\} - \left\{ (y_f - x_f) [(\alpha - 1)(\gamma y_f - x_f - \gamma) - 1] \right\}}$$

با به دست آوردن مقدار شیب و عرض از مبدأ از معادله های (۱۶) و (۱۷)، معادله خطی (۱۵) را در معادله (۱۳) قرار داده و در بازه  $x = x_w$  و  $x = x_f$  انتگرال گیری می شود و یک عبارت جبری برای سطح بدون بعد به دست می آید [۲۳].

$$R^f = \left[ - \frac{k}{t_1} \ln |t_1 x + t_2| + \frac{k}{2t_1} \ln |px^2 + qx + r| \right] - \quad (18)$$

$$\frac{1}{\sqrt{-t_2}} \left( \frac{kq}{2t_1} + L \right) \ln \left| \frac{2px + q - \sqrt{-t_2}}{2px + q + \sqrt{-t_2}} \right| \Bigg|_{x_f}^x$$

در معادله (۱۸)، پارامترهای گوناگون به صورت زیر تعریف می شوند [۲۳]:

$$t_1 = 1 + m \quad ; \quad t_2 = -(mx_f + n) \quad (19)$$

$$t_3 = (1 - \alpha) \quad ; \quad p = t_3(1 + \gamma m)$$

$$q = -t_3(1 - \gamma t_3) + \gamma(1 + \alpha m) \quad ; \quad r = \lambda \alpha t_3$$

$$t_4 = 4pr - q^2 \quad ; \quad k = \frac{t_1(mt_3 - t_1(t_3 + x_f))}{[qt_1 t_3 - pt_3^2 - rt_3^2]}$$

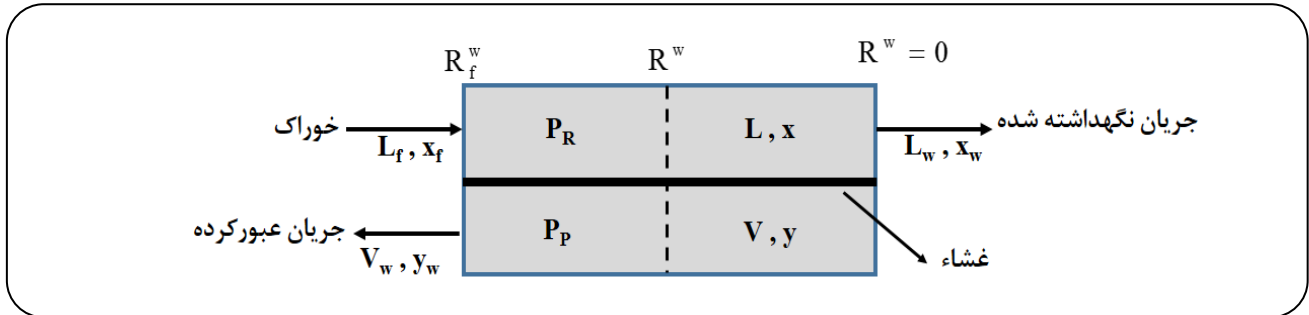
$$L = \frac{t_3 + x_f - kr}{t_3}$$

### آرایش جریان ناهمسو

در آرایش جریان ناهمسو (شکل ۲)، جریان های خوراک و عبور کرده در خلاف جهت یکدیگر هستند. برای سادگی در محاسبه ها، معادله های موازنه جرم و انتقال بر مبنای جریان نگاهداشته شده نوشته می شود. معادله های به دست آمده از موازنه جرم و انتقال همانند معادله های (۴)، (۵)، (۱۱) و (۱۲) می باشند با این تفاوت که بالانویس ها و پایین نویس های  $f$  و  $w$  باید با هم عوض شوند.

سطح بدون بعد برای جریان ناهمسو به صورت زیر تعریف می شود:

$$R_w = \frac{P_R A K_f}{L_w} \quad (20)$$



شکل ۲- سلول غشائی با جریان ناهمسو به طور نمایشی.

با توجه به نتیجه‌های به‌دست آمده از شکل‌های ۳ و ۴ برای آرایش جریان همسو، دیده می‌شود که از روش MOLM می‌توان برای این آرایش جریان استفاده نمود. شایان ذکر است که بیش‌ترین خطای به‌دست آمده برای روش MOLM نسبت به مدل‌های دیگری که در شکل‌های ۳ و ۴ ارایه شدند، کم‌تر از ۵ درصد می‌باشد.

برای ارزیابی روش MOLM برای آرایش جریان ناهمسو، مقایسه‌ای بین روش حل عددی با استفاده از روش رنگ کاتای مرتبه چهارم و روش MOLM صورت گرفت. نتیجه‌ها در شکل ۵ نشان داده شده است. با توجه به شکل دیده می‌شود که مقدارهای کسر مولی نرمال بوتان در جریان عبور کرده پیشگویی شده توسط روش MOLM بزرگ‌تر از ۱ می‌باشد که غیر منطقی است و همچنین تطابق خوبی بین این روش و روش حل عددی وجود ندارد. می‌توان نتیجه گرفت که روش MOLM برای مدل‌سازی سامانه‌های غشایی جداسازی گازها به کمک آرایش جریان ناهمسو مناسب نبوده و توصیه نمی‌شود.

پس از تأیید مدل، در ادامه از روش MOLM برای یک مطالعه موردی برای مدل‌سازی فرایند جداسازی ایزومرهای بوتان تولیدی در واحد LPG پالایشگاه تبریز به کمک آرایش جریان همسو استفاده می‌شود.

#### مطالعه موردی

##### ویژگی‌های جریان خوراک

هدف از این مطالعه موردی جداسازی مخلوطی از گازهای  $iC_4/nC_4$  به وسیله فرایند غشایی است. ویژگی‌های عملیاتی جریان غنی از ایزومرهای بوتان تولیدی در واحد LPG پالایشگاه تبریز در جدول ۱ ارایه شده است. برای ساده‌سازی مسئله از

با به دست آوردن مقدار شیب و عرض از مبدأ از معادله‌های (۲۶) و (۲۷)، معادله خطی (۲۵) را در معادله (۲۲) قرار داده و در بازه‌ی  $x = x_f$  و  $x = x_w$  انتگرال‌گیری می‌شود و یک عبارت جبری برای سطح بدون بعد به دست می‌آید. معادله‌های به دست آمده از کاربرد روش MOLM در آرایش جریان ناهمسو، مشابه با آرایش جریان همسو می‌باشد (معادله‌های (۱۸) و (۱۹)). تنها تفاوتی که وجود دارد این است که بالانویس‌ها و پایین‌نویس‌های  $w$  و  $f$  بایستی جابه‌جا شوند.

#### نتیجه‌ها و بحث

##### بررسی اعتبار مدل

در شکل ۳، روند تغییرهای سطح بدون بعد با ترکیب درصد جریان نگه‌داشته‌شده برای آرایش جریان همسو نشان داده شده است. در این شکل نتیجه‌های به‌دست آمده از روش MOLM با نتیجه‌های پژوهش‌های پن<sup>(۱)</sup> و همکاران [۲۵]، رزمجو و بابالو [۴] در شرایط یکسان، مقایسه شده است. با توجه به شکل دیده می‌شود که تطابق خوبی بین نتیجه‌های روش MOLM و نتیجه‌های پژوهش‌های ارایه شده در مقاله‌ها وجود دارد.

سریدر<sup>(۲)</sup> و همکاران از غشاهای پلیمری گوناگونی برای جداسازی مخلوط گازی پروپان و پروپیلن استفاده نمودند و دیدند که غشای پلیمری اتیل سلولز دارای بازدهی بیش‌تری می‌باشد [۲۶]. در شکل ۴، روند تغییرهای برش مرحله‌ای با ترکیب درصد عبور کرده برای جریان همسو نشان داده شده است. در این شکل نتیجه‌های به دست آمده از روش MOLM با نتیجه‌های پژوهش‌های این پژوهشگران مقایسه شده است. با توجه به شکل دیده می‌شود که تطابق خوبی بین روش MOLM و نتیجه‌های پژوهش‌های ارایه شده توسط سریدر و همکاران [۲۶] وجود دارد.

(۱) Pan

(۲) Sridhar

درصد اجزای  $C_3$  و  $iC_5$  و  $nC_5$  صرف‌نظر کرده (هیدروکربن‌های خطی به‌عنوان جریان غنی از نرمال بوتان و هیدروکربن‌های غیرخطی به‌عنوان جریان غنی از ایزوبوتان) و جریان گاز خروجی به صورت مخلوطی دو جزئی از ایزومرهای بوتان با ترکیب درصد ارایه شده در جدول ۲ در نظر گرفته می‌شود.

### ویژگی‌های غشاء

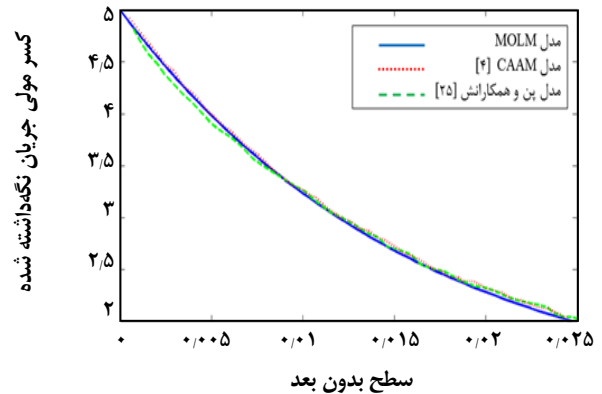
غشاهای ژئولیتی کاربردهای زیادی در فرایند جداسازی غشایی گازها به ویژه برای جداسازی ایزومرهای بوتان دارند [۲۷]. در این پژوهش، غشای ژئولیتی ZSM-5 برای مدل‌سازی فرایند جداسازی غشایی ایزومرهای بوتان در نظر گرفته شده است. کارهای پژوهشی بسیاری در زمینه ساخت این نوع غشاهای صورت گرفته است. گانگ‌لی و همکاران [۲۸] عملکرد غشاهای ژئولیتی ZSM-5 را در جداسازی ایزومرهای بوتان مورد ارزیابی قرار دادند به طوری که نتیجه‌های به دست آمده بیانگر انتخاب‌گری بالای نرمال بوتان نسبت به ایزو بوتان برای این غشاهای در حدود ۱۳ بوده و ثابت عبوردهی نرمال بوتان برای این نوع غشاهای برابر  $8 \times 10^{-8} \text{ mol/m}^2 \text{Pa.s}$  گزارش شده است. در این پژوهش، از این نتیجه‌ها برای مدل‌سازی فرایند جداسازی غشایی ایزومرهای بوتان استفاده شده است. لازم به ذکر است که برای مدل‌سازی فرایند جداسازی غشایی گازها، فشار ۱۲ bar لحاظ شده است.

### نتیجه‌های به دست آمده از مدل MOLM برای سامانه یک مرحله‌ای

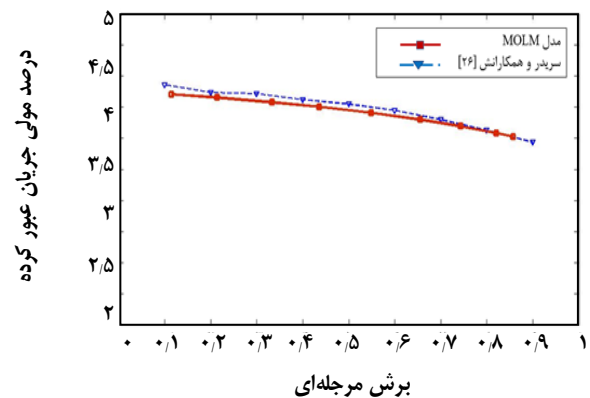
با استفاده از روش خط عملیاتی اصلاح شده، سطح غشایی موردنیاز برای حالتی که ترکیب درصد جریان نگهداشته شده خروجی نسبت به نرمال بوتان برابر ۰/۱ باشد، محاسبه می‌شود. نتیجه‌های به دست آمده از مدل‌سازی و شبیه‌سازی در جدول ۳ ارایه شده است.

پارامتر برش مرحله‌ای<sup>(۱)</sup> که در جدول ۳ ارایه شده است، یکی از پارامترهای مهم در فرایندهای غشایی می‌باشد و به صورت نسبت شدت جریان فراورده‌ی عبور کرده به جریان خوراک ورودی تعریف می‌شود. به عبارتی برش مرحله‌ای بیانگر کسری از خوراک است که از غشا عبور می‌کند.

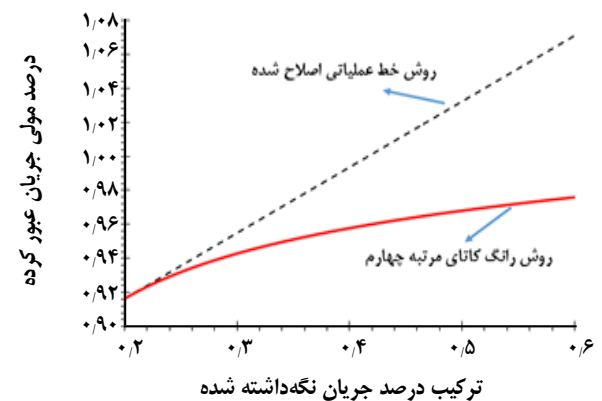
با توجه به نتیجه‌های ارایه شده در جدول ۳ دیده می‌شود که با استفاده از سامانه‌های یک مرحله‌ای نمی‌توان به فراورده‌هایی با خلوص بالا از نرمال بوتان در جریان عبور کرده و



شکل ۳- مقایسه نتایج روش MOLM با نتایج پن و همکاران [۲۵] و رزمجو و بابالو [۴].



شکل ۴- مقایسه روش MOLM با نتیجه‌های سریدر و همکاران [۲۶].



شکل ۵ - مقایسه روش عددی و روش MOLM برای آرایش جریان ناهمسو (ترکیب درصد خوراک: ۰/۶، ترکیب درصد نگه‌داشته شده: ۰/۲، انتخاب‌گری: ۸۰ و نسبت فشار عبور کرده به خوراک: ۰/۱).

(۱) Stage cut

جدول ۱- ویژگی‌های عملیاتی جریان غنی از ایزومرهای بوتان.

اجزاء	درصد مولی	شرایط عملیاتی	
C <sub>۳</sub>	۰٫۵	دما (°C)	۶۵
iC <sub>۴</sub>	۳۶٫۶	فشار (bar)	۱۲-۱۵
nC <sub>۴</sub>	۵۸٫۸	شدت جریان (Ton/h)	۱۳٫۲
iC <sub>۵</sub>	۳٫۱		
nC <sub>۵</sub>	۱		
کل	۱۰۰		

جدول ۲- ترکیب درصد‌های استفاده شده در مدل‌سازی.

اجزاء	درصد مولی
iC <sub>۴</sub>	۳۹٫۷
nC <sub>۴</sub>	۶۰٫۳
کل	۱۰۰

جدول ۳- نتیجه‌های به دست آمده از مدل‌سازی با استفاده از روش خط عملیاتی اصلاح شده برای آرایش جریان همسو.

ترکیب درصد جریان عبور کرده	شدت جریان (مول بر ثانیه)		برش مرحله‌ای	سطح بدون بعد	سطح غشای موردنیاز (متر مربع)
	عبور کرده	نگه‌داشته شده			
۰٫۸۸۸۳	۴۰٫۳۲	۲۲٫۸۸	۰٫۶۳۸۰	۰٫۱۸۸۳	۱۵۹۵

نگه‌داشته شده به مرحله بعدی تغذیه می‌شود. تعداد مرحله‌های در قسمت‌های غنی‌سازی و تهی‌سازی به ترتیب به درجه خلوص دلخواه برای فراورده‌های بالایی و پایینی بستگی دارد. در پالایشگاه تبریز جریان‌هایی دارای هیدروکربن‌های خطی و غیرخطی وجود دارد که هیدروکربن‌های شاخه‌دار می‌توانند به وسیله فناوری تصفیه غشایی از هیدروکربن‌های خطی جداسازی شده و برای افزایش عدد اکتان بنزین تولیدی پالایشگاه مورد استفاده قرار گیرند. یکی از این جریان‌ها، جریان غنی از ایزومرهای بوتان تولیدی واحد LPG می‌باشد. در این بخش با هدف رسیدن به فراورده‌هایی با خلوص بالاتر از ۹۸٪ در جریان‌های عبور کرده و نگهداشته شده نهایی، طراحی فرایند غشایی برای سامانه‌های چندمرحله‌ای به صورت سری و با استفاده از روش خط عملیاتی اصلاح شده (MOLM) صورت گرفت و نتیجه‌های به دست آمده در شکل ۶ نشان داده شده است.

فراورده‌ای غنی از ایزوبوتان در جریان نگهداشته شده دست یافت. به همین منظور، یک راه حل پیشنهادی استفاده از سامانه‌های چندمرحله‌ای غشایی می‌باشد که در بخش بعدی مورد بررسی قرار می‌گیرد.

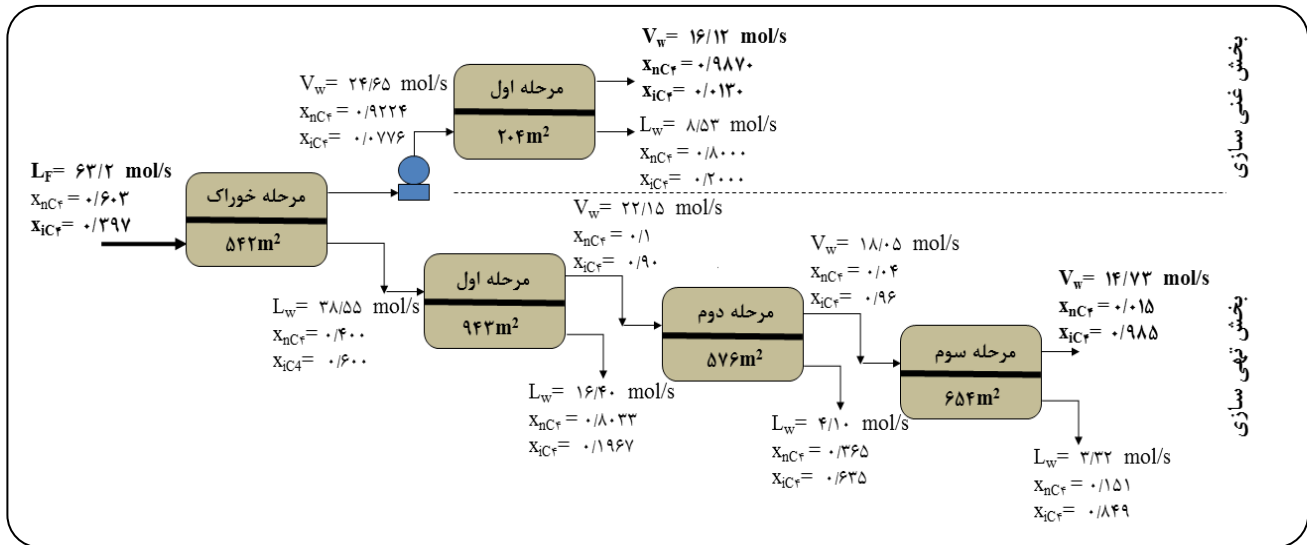
#### توسعه مدل MOLM به سامانه‌های چند مرحله‌ای

در اکثر فرایندهای جداسازی غشایی، امکان رسیدن به فراورده‌ای با خلوص بالا و بازیابی بالا برای هر دو جریان عبور کرده و نگه‌داشته شده وجود ندارد. در چنین شرایطی استفاده از عملیات چندمرحله‌ای ضروری به نظر می‌رسد. یک راه آسان برای افزایش خلوص فراورده، اتصال تعداد مناسبی از سلول‌های غشایی به صورت سری می‌باشد. در قسمت غنی‌سازی<sup>(۱)</sup>، جریان عبور کرده از هر سلول غشایی متراکم می‌شود و به عنوان خوراک وارد مرحله بعدی می‌شود و در قسمت تهی‌سازی<sup>(۲)</sup>، جریان

(۱) Enriching Section

(۲) Stripping Section





شکل ۶ - طراحی فرایند سامانه های غشایی چندمرحله ای به صورت سری با استفاده از روش خط عملیاتی اصلاح شده برای جداسازی ایزومرهای بوتان تولیدی در واحد LPG پالایشگاه تبریز

در فرآورده نگه داشته شده برابر با  $0/1$  می باشد، نشان داده شده است. با توجه به شکل ۷، در یک سطح غشای مشخص، با افزایش انتخابگری غشاء، میزان ترکیب درصد فرآورده عبور کرده افزایش می یابد، به بیانی دیگر، در انتخابگری های بالا با یک سطح پایینی از غشا می توان به خلوص بالایی از نرمال بوتان در جریان عبور کرده دست یافت. همچنین با توجه به شکل دیده می شود که برای رسیدن به فرآورده ای با خلوص  $0/1$  از نرمال بوتان در جریان نگه داشته شده، با افزایش انتخابگری غشاء، سطح غشای مورد نیاز نیز افزایش می یابد ولی در عوض به فرآورده ای در جریان عبور کرده می توان دست یافت که از خلوص بالاتری از نرمال بوتان برخوردار است. روند تغییرهای سطح غشای مورد نیاز و سطح بدون بعد با انتخابگری غشاء برای آرایش جریان همسو در شکل ۸ در مقدارهای گوناگون انتخابگری نشان داده شده است. با توجه به این شکل دیده می شود که با افزایش انتخابگری غشاء، سطح بدون بعد کاهش می یابد ولی سطح غشای مورد نیاز افزایش می یابد. با توجه به معادله (۹)، سطح غشا با سطح بدون بعد رابطه مستقیم دارد، زمانیکه انتخابگری غشا افزایش یابد باعث کاهش عبوردهی جزء ایزوبوتان می شود. شایان ذکر است که سطح غشای مورد نیاز با عبوردهی جزء با عبوردهی کم تر (ایزوبوتان) رابطه عکس دارد. طبق معادله (۹)، با افزایش انتخابگری غشاء، اثر کاهش عبوردهی جزء با عبوردهی پایین تر، بیش تر از سطح بدون بعد است و سرانجام منجر به افزایش سطح غشای مورد نیاز می شود.

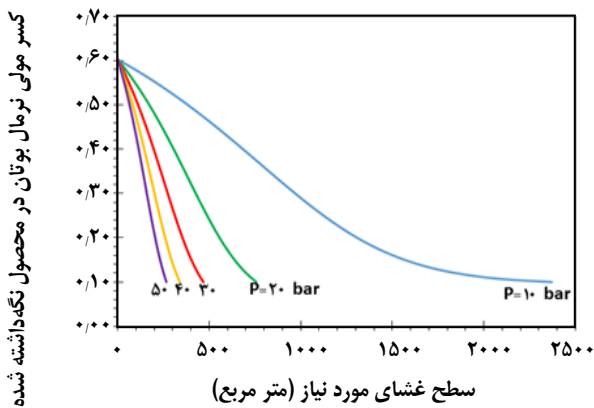
با توجه به شکل دیده می شود که با استفاده از پنج مرحله غشایی (یک مرحله خوراک، یک مرحله در بخش غنی سازی و سه مرحله در بخش تهی سازی) می توان به فرآورده ای با خلوص  $98/7\%$  از نرمال بوتان در بخش غنی سازی و همچنین فرآورده ای با خلوص  $98/5\%$  از ایزوبوتان در بخش تهی سازی دست یافت. شایان ذکر است که سطح غشای کل مورد نیاز برای این طرح غشایی برابر با  $2910 \text{ m}^2$  می باشد. مقدارهای سطح غشای مورد نیاز برای هر مرحله در شکل ۶ نشان داده شده است.

#### اثر پارامترهای کلیدی

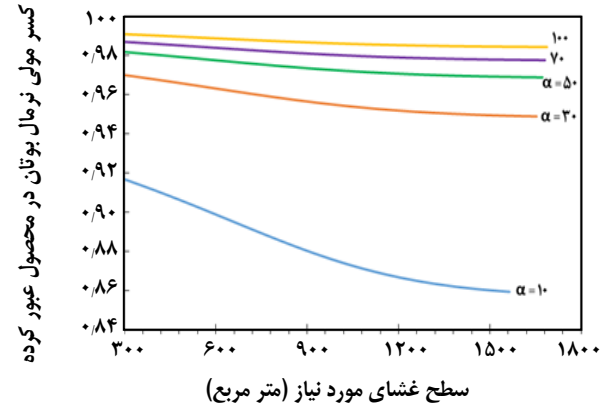
در ادامه کار، اثر بعضی از پارامترهای کلیدی مانند انتخابگری غشا و نسبت فشار جریان عبور کرده به خوراک ورودی بر روی سطح غشای مورد نیاز بررسی شده است. اثر پارامترهای کلیدی در شکل های ۷ تا ۱۰ نشان داده شده است. با توجه به این شکل ها می توان دید که مدل روش خط عملیاتی اصلاح شده (MOLM) به خوبی رفتار سامانه را پیشگویی نموده است.

#### انتخابگری غشا

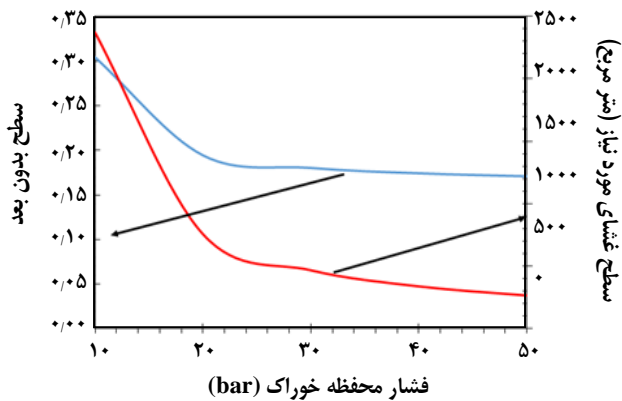
روند تغییرهای کسر مولی نرمال بوتان در جریان عبور کرده با سطح غشای مورد نیاز برای آرایش جریان همسو در شکل ۷ برای حالت هایی که انتخابگری غشا برابر با  $10$ ،  $30$ ،  $50$ ،  $70$  و  $100$  و کسر مولی نرمال بوتان در خوراک ورودی برابر  $0/603$  و



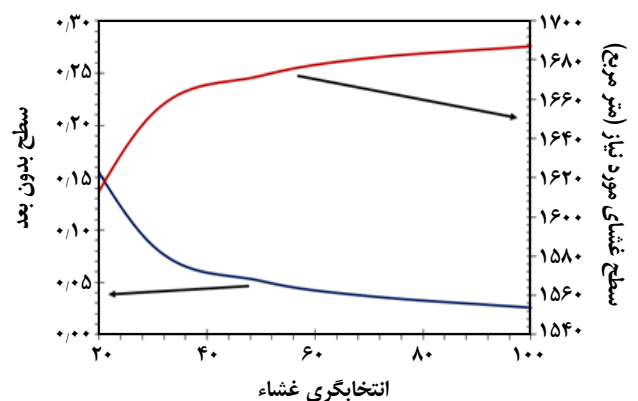
شکل ۹- روند تغییرهای کسر مولی نرمال بوتان در جریان نگهداشته شده با سطح غشای موردنیاز در فشارهای گوناگون محفظه خوراک برای جریان همسو.



شکل ۷- روند تغییرهای کسر مولی نرمال بوتان در جریان عبور کرده با سطح غشای موردنیاز در انتخاب‌گری های گوناگون برای جریان همسو.



شکل ۱۰- روند تغییرهای سطح غشای موردنیاز و سطح بدون بعد با فشار محفظه خوراک برای آرایش جریان همسو.



شکل ۸- روند تغییرهای سطح غشای موردنیاز و سطح بدون بعد با انتخابگری غشاء برای آرایش جریان همسو.

که در فشار ۱۰ bar، سطح غشای موردنیاز برابر با ۲۳۷۱ مترمربع و در فشار ۵۰ bar برابر با ۲۶۶ مترمربع می‌باشد. به عبارتی سطح غشای موردنیاز با افزایش از ۱۰ به ۵۰ bar، در حدود ۹ برابر کاهش یافته است. روند تغییرهای فشار محفظه خوراک بر روی سطح غشای موردنیاز و سطح بدون بعد در شکل ۱۰ نشان داده شده است. با توجه به این شکل دیده می‌شود که سطح بدون بعد و سطح غشای موردنیاز به دلیل رابطه مستقیم آن‌ها با فشار محفظه خوراک، کاهش یافته است.

شایان ذکر است که با افزایش فشار، به دلیل افزایش گردابان انتقال جرم غشایی، سطح غشای موردنیاز کاهش می‌یابد که شامل کاهش هزینه‌های مربوط به غشای موردنیاز می‌باشد. اما از سویی بحث فشرده‌سازی هم شامل افزایش میزان برق مصرفی

#### نسبت فشار خوراک به جریان عبور کرده

روند تغییرهای کسر مولی نرمال بوتان در جریان نگهداشته شده با سطح غشای موردنیاز برای آرایش جریان همسو در شکل ۹ در حالت‌هایی که نسبت فشار جریان خوراک در بازه‌ی ۱۰ تا ۵۰ بار تغییر می‌کند، نشان داده شده است. با توجه به شکل ۹، برای جریان همسو، در مقدارهای بالاتر از کسر مولی نرمال بوتان در فرآورده نگهداشته‌شده، افزایش فشار خوراک نسبت به عبور کرده تأثیری کمتری بر روی سطح غشای موردنیاز دارد ولی در مقدارهای پایین‌تر از کسر مولی نرمال بوتان در جریان نگهداشته‌شده، تأثیر فشار خوراک نسبت به عبور کرده به دلیل افزایش نیروی محرکه فشاری افزایش می‌یابد و در نتیجه سطح غشای موردنیاز به طور چشمگیری هم کاهش می‌یابد. نتیجه‌های مدل‌سازی نشان داد

**فهرست نمادها**

A	سطح غشا، $m^2$
P	عبوردهی اجزا در غشا، $mol.m/m^2 Pa.s$
k	ثابت عبوردهی اجزا در غشا، $mol/m^2 Pa.s$
L	سرعت جریان مولی در محفظه جریان خوراک، $mol/s$
$L_f$	سرعت جریان مولی خوراک ورودی، $mol/s$
$L_w$	سرعت جریان مولی نگه‌داشته خروجی، $mol/s$
$L^*$	سرعت جریان بدون بعد در سمت خوراک، $L/L_f$
m, n	ضرب‌های ثابت در معادله‌های (۱۵) و (۲۵)
$P_H$	فشار محفظه جریان عبور کرده، Pa
$P_L$	فشار محفظه جریان خوراک، Pa
q	سرعت جریان مولی عبوری از غشا، $mol/s$
$R^f$	سطح بدون بعد
V	سرعت جریان مولی در محفظه جریان عبور کرده، $mol/s$
$V_w$	سرعت جریان مولی عبور کرده خروجی، $mol/s$
$V^*$	سرعت جریان بدون بعد در سمت عبور کرده، $V/V_w$
x	کسر مولی جزء با عبوردهی بیش‌تر در سمت خوراک
y	کسر مولی جزء با عبوردهی بیش‌تر در سمت عبور کرده

**پایین نویسی‌ها**

۱	جزء با عبوردهی بیشتر
۲	جزء با عبوردهی کمتر
f	سمت ورودی خوراک
w	سمت خروجی جریان نگه‌داشته شده

**حروف یونانی**

$\alpha$	انتخاب‌گری غشا، $P_1/P_2$
$\gamma$	نسبت فشار جریان عبور کرده به خوراک، $P_p/P_R$
$\delta$	ضخامت غشاء، m

تاریخ دریافت ۱۳۹۶/۱/۱۶ ؛ تاریخ پذیرش ۱۳۹۶/۸/۱۰

و کمپرسور می‌باشد که شامل افزایش هزینه‌های عملیاتی خواهد شد. در بحث اقتصاد مهندسی می‌بایست حالت بهینه‌ای تعیین شود که بر مبنای آن میزان هزینه‌های فرایندی کمینه باشد.

**نتیجه‌گیری**

مهم‌ترین نتیجه‌های به دست آمده از این پژوهش می‌تواند به صورت زیر ارائه شوند:

- به دلیل مشکل‌های مربوط به کارهای تجربی و آزمایشگاهی با فرایندهای غشایی، استفاده از نتیجه‌های مدل‌سازی و شبیه‌سازی می‌تواند بسیار مفید باشد. از آنجایی‌که معادله‌های مربوط به فرایندهای غشایی جداسازی گازها به صورت دستگاه معادله‌های دیفرانسیل بوده و نیاز به روش‌های عددی می‌باشد، استفاده از روش‌های تقریبی با دقت بالا مانند روش OLM اصلاح شده که نیاز به حل معادله‌های دیفرانسیل ندارد، می‌تواند مفید و مؤثر واقع شود.

- روش خط عملیاتی اصلاح شده (MOLM) از دقت بالایی برای مدل‌سازی فرایندهای غشایی یک مرحله‌ای با آرایش جریان همسو برخوردار بوده و استفاده از آن برای آرایش جریان ناهمسو توصیه نمی‌شود.

- طراحی فرایند برای رسیدن به فراورده‌هایی با خلوص بالاتر از ۹۸٪ از نرمال بوتان و ایزوبوتان تولیدی از واحد LPG پالایشگاه تبریز با استفاده از سامانه‌های چندمرحله‌ای غشایی به کمک روش خط عملیاتی اصلاح شده صورت گرفت و سطح غشای موردنیاز برابر با  $2910 m^2$  محاسبه شد.

- در یک کسر مولی نرمال بوتان مشخص برای جریان نگاه‌داشته شده، با افزایش انتخاب‌گری غشا، سطح بدون بعد کاهش و سطح غشای مورد نیاز افزایش می‌یابد.

- در یک مولی نرمال بوتان مشخص برای جریان نگاه‌داشته شده، و یا در یک سطح غشای ثابت با افزایش انتخاب‌گری غشا، ترکیب درصد جریان عبور کرده افزایش می‌یابد

- با افزایش نسبت فشار خوراک به عبور کرده، سطح بدون بعد به دلیل افزایش نیروی محرکه فشاری کاهش می‌یابد و در نتیجه سطح غشای مورد نیاز هم کاهش می‌یابد.

**مراجع**

- [1] Baker, Richard W, "Membrane Technology and Applications", 2nd ed., John Wiley and Sons, Inc. ISBN : 0-470-85445-6 (2004).

- [2] Rahmanian B., Pakizeh M., Mansoori S.A.A., Abedini R., [Application of Experimental Design Approach and Artificial Neural Network \(ANN\) for the Determination of Potential Micellar-Enhanced Ultrafiltration Process](#), *Journal of Hazardous Materials*, **187**(1): 67-74 (2011).
- [3] Weller S., Steiner W.A., [Separation of Gases by Fractional Permeation Through Membranes](#), *Journal of Applied Physics*, **21**: 279-283 (1950).
- [4] Razmjoo A., Babaluo A.A., [Simulation of Binary Gas Separation in Nanometric Tubular Ceramic Membranes by a New Combinational Approach](#), *Journal of Membrane Science*, **282**(1): 178-188 (2006).
- [5] Shindo, Y., Hakuta T., Yoshitome H., Inoue H., [Calculation Methods for Multicomponent Gas Separation by Permeation](#), *Separation Science and Technology*, **20**(5-6): 445-459 (1985).
- [6] Aghaeinejad-Meybodi A., Ghasemzadeh K., Babaluo A.A., Morrone P., Basile A., [Modeling Study of Silica Membrane Performance for Hydrogen Separation](#), *Asia-Pacific Journal of Chemical Engineering*, **10**(5): 781-790 (2015).
- [7] غلامزاده، محمد ابراهیم؛ کارگری، علی؛ ذکایی آشتیانی، علی، [مدلسازی و حل تقریبی جداسازی نیتروژن و متان در یک مدول غشایی پیچشی، نشریه شیمی و مهندسی شیمی ایران، \(۱\) ۵۳: ۵۷ تا ۶۹ \(۱۳۹۵\)](#).
- [8] Ghasemzadeh K., Zeynali R., Basile A., [Theoretical Study of Hydrogen Production Using Inorganic Membrane Reactors During WGS Reaction](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **41**(20): 8696-8705 (2016).
- [9] Ghasemzadeh K., Morrone P., Babaluo A.A., Basile A., [A Simulation Study on Methanol Steam Reforming in the Silica Membrane Reactor for Hydrogen Production](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **40**(10): 3909-3918 (2015).
- [10] Ghasemzadeh K., Morrone P., Liguori S., Babaluo A.A., Basile A., [Evaluation of Silica Membrane Reactor Performance for Hydrogen Production via Methanol Steam Reforming: Modeling Study](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **38**(36): 16698-16709 (2013).
- [11] Ghasemzadeh K., Morrone P., Iulianelli A., Liguori S., Babaluo A.A., Basile A., [H<sub>2</sub> Production in Silica Membrane Reactor via Methanol Steam Reforming: Modeling and HAZOP Analysis](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **38**(25): 10315-10326 (2013).
- [12] Ghasemzadeh K., Liguori S., Morrone P., Iulianelli A., Piemonte V., Babaluo A.A., Basile A., [H<sub>2</sub> Production by Low Pressure Methanol Steam Reforming in a Dense Pd-Ag Membrane Reactor in co-Current Flow Configuration: Experimental and Modeling Analysis](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **38**(36): 16685-16697 (2013).
- [۱۳] وافری، بهزاد؛ کرمی، حمیدرضا؛ کریمی، غلامرضا، [مدلسازی فرآیند ریفرمینگ گاز طبیعی با بخار آب در راکتور غشایی پالادیم-نقره برای تولید هیدروژن، نشریه شیمی و مهندسی شیمی ایران، \(۳\) ۳۰: ۲۵ تا ۳۷ \(۱۳۹۰\)](#).
- [14] Huang Du-shu., Yi Zhong-zhou., Huang Zhao-long., Yi Ping., Li Zi-jing., Liu Wei., [Mass Transfer Mechanism and Mathematical Model for Extraction Process of l-Theanine Across Bulk Liquid Membrane](#), *Iran. J. Chem. Chem. Eng (IJCCE)*, **31**(2): 53-58 (2012).

- [15] Ghasemzadeh K., Andalib E., Basile A., [Evaluation of Dense Pd–Ag Membrane Reactor Performance During Methanol Steam Reforming in Comparison with Autothermal Reforming Using CFD Analysis](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **41**(20): 8745-8754 (2016).
- [16] Ghasemzadeh K., Andalib E., Basile A., [Modelling Study of Palladium Membrane Reactor Performance during Methan Steam Reforming Using CFD Method](#), *Chemical Product and Process Modeling*, **11**(1): 17-21 (2016).
- [17] Ghasemzadeh K., Zeynali R., Ahmadnejad F., Babalou A.A., Basile A., [Investigation of Palladium Membrane Reactor Performance During Ethanol Steam Reforming Using CFD Method](#), *Chemical Product and Process Modeling*, **11**(1): 51-55 (2016).
- [18] Khataee A.R., Kasiri M.B., [Artificial Neural Networks Modeling of Contaminated Water Treatment Processes by Homogeneous and Heterogeneous Nanocatalysis](#), *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, **331**:86-100 (2010).
- [19] Rostamizadeh M., Rezakazemi M., Shahidi K., Mohammadi T., [Gas Permeation through H<sub>2</sub>-Selective Mixed Matrix Membranes: Experimental and Neural Network Modeling](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **38**(2): 1128-1135 (2013).
- [20] Rezakazemi M., Mohammadi T., [Gas Sorption in H<sub>2</sub>-Selective Mixed Matrix Membranes: Experimental and Neural Network Modeling](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **38**(32): 14035-14041 (2013).
- [21] Farno E., Ghadimi A., Kasiri N., Mohammadi T., [Separation of Heavy Gases from Light Gases Using Synthesized PDMS Nano-Composite Membranes: Experimental and Neural Network Modeling](#), *Separation and Purification Technology*, **81**(3): 400-410 (2011).
- [22] Rostamizadeh M., Hashemi Rizi S.M., [Predicting Gas Flux in Silicalite-1 Zeolite Membrane Using Artificial Neural Networks](#), *Journal of Membrane Science*, **403**: 146-151 (2012).
- [23] Aghaeinejad-Meybodi A., Ghasemzadeh K., Babaluo A.A., Shafiei S., Letter to the Editor on “[Approximate Solutions for Gas permeator Separating Binary Mixtures](#)”[*J. Membr. Sci.* **66** (1992) 103–118], *Journal of Membrane Science*, **454**:109-110 (2014).
- [24] Krovvidi K.R., Kowali., Vemury S., Khan A., [Approximate Solutions for Gas Permeators Separation Binary Mixtures](#), *Journal of Membrane Science*, **66**:103-118 (1992).
- [25] Pan C.Y., [Gas Separation by High-Flux, Asymmetric hollow-fiber membrane](#), *AIChE Journal*, **32**(12):2020-2070 (1986).
- [26] Sridhar S., Khan A.A., [Simulation Studies for the Separation of Propylene and Propane by Ethylcellulose Membrane](#), *Journal of Membrane Science*, **159**: 209-219 (1999).
- [27] Kazemzadeh A., Bayati B., Kalantari N., Babaluo A.A., [Tubular MFI Zeolite Membranes Made by In-Situ Crystallization](#), *Iran. J. Chem. Chem. Eng. (IJCCE)*, **31**(2): 37-44 (2012).
- [28] Li G., Kikuchi E., Matsukata M., [ZSM-5 Zeolite Membranes Prepared from a Clear Template-Free Solution](#), *Microporous and Mesoporous Materials*, **60**: 225-235 (2003).