

文章编号: 1006-3080(2019)03-0511-06

DOI: 10.14135/j.cnki.1006-3080.20180427001

以鲍尔环为内构件的鼓泡塔反应器的流体力学性能

张圆飞, 闫宇强, 宗 原, 曹发海

(华东理工大学化工学院, 上海 200237)

摘要:对二甲苯氧化合成对苯二甲酸常用鼓泡塔作为气液反应器, 以填料为内构件可以强化鼓泡塔反应器的气液接触状况, 从而提高反应速率。以金属鲍尔环为内构件, 考察鼓泡塔反应器的气液接触状况, 采用高速摄像技术对气泡群进行图像分析, 同时利用体积膨胀法测定气含率, 研究不同型号鲍尔环作用下的气含率、气泡尺寸和粒径分布。结果表明, $\Phi 25$ 鲍尔环对气泡的切割效果最好, 气泡的尺寸分布较为集中, 主要处于 3.00~6.00 mm 之间, Sauter 平均直径随气速增大而增大, 并在高气速下趋于平缓; 鼓泡塔反应器的气含率随气速增大而增大, 且鲍尔环尺寸越小气含率越大。利用实验数据进行非线性回归, 得到在实验气速范围内气含率与气泡 Sauter 平均直径、比表面积的关系式, 计算值与实验结果较为吻合。

关键词:鲍尔环; Sauter 平均直径; 气含率; 比表面积; 高速摄像技术

中图分类号: TQ021.1

文献标志码: A

鼓泡塔是一种最常见的气-液两相反应装置, 具有结构简单、操作方便、无移动部件及传热传质性能好等优点, 被广泛应用于氧化、加氢、氯化、羰基化、费托合成等多种反应过程^[1-3]。鼓泡塔反应器依靠气泡浮力驱动液相循环及混合, 并通过气液界面进行气液相间物质及能量传递。因此, 鼓泡塔反应器中气液接触面积和两相传质系数均与气泡尺寸密切相关。我国对于对苯二甲酸(PTA)有较大的市场需求, 突出的供需矛盾和可观的利润率促使大量 PTA 装置投产, 对二甲苯氧化合成对苯二甲酸常用鼓泡塔作为气液反应器, 然而由于传统的鼓泡塔反应器中气泡聚并和返混现象严重, 难以得到尺寸较小的气泡群以保证气液相间充分接触。

近年来, 众多研究者对传统鼓泡塔反应器进行了一系列改进, 在其中设置填料、静态混合器、气体分布器^[4-6]等内构件进一步强化鼓泡塔的气液接触状况。其中, 加入不同的填料可以有效切割气泡, 使气液能充分地接触。Matias 等^[7]研究了三相鼓泡塔中规整填料对气含率的影响, 证实了填料能有效提高

气含率, 并得到填料作用下气含率的关系式; Daeseong 等^[8]研究了填料床层中气泡破碎和聚并的机理, 确定了填料切割气泡的作用; 刘春江等^[9]对装填规整填料鼓泡塔内的鼓泡流动进行了 CFD 模拟; 祁贵生等^[10]研究了 3 种不同类型填料对错流旋转填料床气液传质特性的影响, 优选出最佳填料。然而对特定填料作用下的气泡粒径分布规律和填料尺寸对于鼓泡塔流体力学性能的影响鲜有研究。

高速摄像技术是通过高速摄像机拍摄气泡运动状态并通过图像分析获取气泡参数, 是研究气液两相流的常用方法。Kazakis 等^[11]采用高速摄像法研究不同孔径分布器鼓泡时的气泡形态和直径分布, 得到气泡直径的数学关系式; Giorgio 等^[12]利用高速摄像技术研究气体进口为多孔分布管的鼓泡塔的流体力学性能, 并得到气泡直径和比表面积的关系式, 为工业放大提供了设计依据。以填料为内构件的鼓泡塔中, 填料自身的特性参数如空隙率和比表面积对气泡尺寸和气液相比表面积的定量关系至今也鲜有报道。

收稿日期: 2018-04-28

作者简介: 张圆飞(1992-), 男, 江苏常州人, 硕士生, 主要从事气液鼓泡塔反应器强化的研究。

通信联系人: 曹发海, E-mail: fhcao@ecust.edu.cn

引用本文: 张圆飞, 闫宇强, 宗 原, 等. 以鲍尔环为内构件的鼓泡塔反应器的流体力学性能[J]. 华东理工大学学报(自然科学版), 2019, 45(3): 511-516.

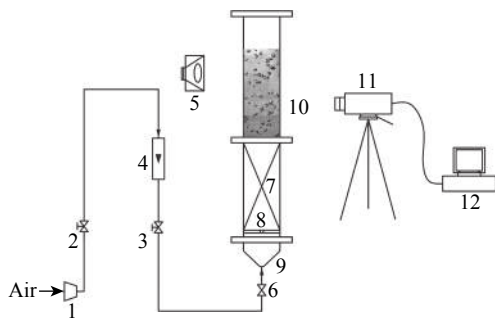
Citation: ZHANG Yuanfei, YAN Yuqiang, ZONG Yuan, *et al.* Hydrodynamics of Bubble Column Reactor with Pall Ring as Internal Component[J]. Journal of East China University of Science and Technology, 2019, 45(3): 511-516.

本研究选用不同型号的金属鲍尔环作为鼓泡塔反应器内填料,利用高速摄像技术采集气泡尺寸信息,研究不同型号鲍尔环作用下的气含率、气泡尺寸和粒径分布,确定最合适的填料型号,同时得到填料作用下全塔的平均气含率、气泡尺寸和气流相比表面积的关联式,为工业化研究提供理论和设计依据。

1 实验装置及方法

1.1 实验装置

鼓泡塔实验装置如图1所示。反应管由有机玻璃制成,尺寸为 $\Phi 130\text{ mm} \times 1\text{ }000\text{ mm}$ 。反应管由两段构成,上段为气液接触段,长600 mm,下段为散堆鲍尔环,长400 mm,两段之间由法兰连接,平静时液面高度为850 mm。进口形式采用中心开孔的单孔板,孔径为4 mm。气室、孔板与反应管通过法兰连接,材质都为有机玻璃。



1—Air pump; 2, 3—Slide valve; 4—Rotameter; 5—LED light; 6—Shut-off valve; 7—Packing; 8—Orifice plate; 9—Air chamber; 10—Bubble column; 11—High speed camera; 12—Computer

图1 鼓泡塔实验装置

Fig. 1 Experimental set of bubble column

实验时气体由小型空气泵输送,并经转子流量计计量后输入鼓泡塔反应器中。当气体在气室内稳定后通过分布板经不同型号填料切割形成较小气泡。在气泡上升过程中,使用美国VRI公司的Phantom系列LC321S高速数字摄像机,垂直于鼓泡塔背光拍摄获得气泡图像信号,拍摄位置距离填料层260 mm。高速摄像机与电脑相连,可以实时采集图像信息。

1.2 数据处理

利用高速摄像机采集分辨率为 $720 \times 1\text{ }200$ 的气泡图像,通过高速摄像机所配套的Phantom Camera Control软件测量气泡尺寸。为确保气泡尺寸测量结果的准确性,每个条件下至少统计300个气泡。

气泡可变形,呈现不同的形状。为便于统计,本

文采用Ellingsen等^[13]提出的方法,将气泡的投影近似看成椭圆形,采用长轴和短轴来描述气泡形状尺寸,如图2所示,其长轴和短轴分别表示为 $2a$ 和 $2b$,则单个气泡的体积等效直径可以表示为:

$$d_{eq} = 2\sqrt[3]{a^2b} \quad (1)$$

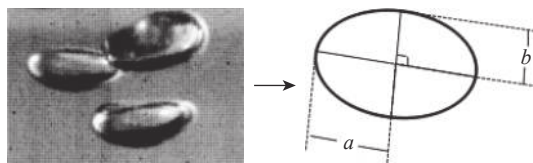


图2 气泡直径处理示意图

Fig. 2 Illustration of the fitting treatment on bubble diameter

气泡Sauter平均直径 d_{32} 为:

$$d_{32} = \frac{\sum_{i=1}^N n_i d_{Bi}^3}{\sum_{i=1}^N n_i d_{Bi}^2} \quad (2)$$

式中, d_{Bi} 为第 i 个气泡的等效直径,单位为mm; n_i 为 i 气泡的序数; N 为气泡总数目。

1.3 填料选择

本文选用5种与所用鼓泡反应器塔径可匹配的金属鲍尔环,其比表面积和空隙率如表1所示,其中 α 为比表面积, ϕ 为空隙率, Φ 为直径, H 为高度。填料采用乱堆的方式装填,填料层总高度为400 mm。

表1 不同鲍尔环规格表

Types	$\Phi \times H/\text{mm}^2$	$\alpha/(\text{m}^2 \cdot \text{m}^{-3})$	$\phi/\%$
$\Phi 10$	10×10	482	91.6
$\Phi 16$	16×16	342	92.8
$\Phi 25$	25×25	206	93.4
$\Phi 38$	38×38	137	94.4
$\Phi 50$	50×50	107	94.9

2 结果与讨论

2.1 Sauter 平均直径

图3示出了不同型号鲍尔环作用下气泡Sauter平均直径随气速 u_G 的变化情况。由图3可知,随着气速提高,气泡均有增大趋势,且增大趋势逐渐变缓。高气速条件下气泡尺寸变化不大的原因是由于高速气体所造成的强湍动作用加剧了气泡的破碎,从而有利于产生较小的气泡。相比较而言,装填较大尺寸的鲍尔环,如 $\Phi 50$ 、 $\Phi 38$,气泡Sauter平均直径在气速小于 0.004 m/s 范围内变化幅度较大,其原因

与鲍尔环结构有关。尺寸较大的鲍尔环空隙率大, 气泡可沿着空隙上升, 因此气泡与填料间的碰撞、切割作用不够明显, 使得气泡尺寸较大。

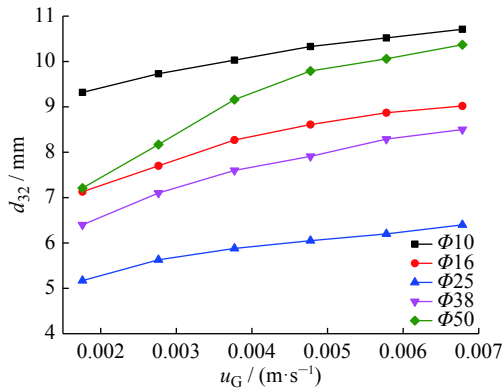


图3 不同鲍尔环下 Sauter 平均直径随流速的变化关系

Fig. 3 Variation of Sauter mean diameter against gas velocities with using of different types of Pall rings

由图3也可发现, $\Phi 25$ 鲍尔环作用下的气泡 Sauter 平均直径最小。使用鲍尔环作用气液接触存在一个最佳尺寸, 这是因为当鲍尔环空隙率小到一定程度时, 气泡进一步聚并为较大气泡的概率增大。可见, 当采用填料强化鼓泡塔反应器中气液接触时, 有必要综合考虑操作工况与填料结构的匹配。

影响气泡尺寸的因素众多, 很多研究者对气泡的尺寸进行了关联, 如文献[14-15]中的模型, 但是这些模型都是基于无内构件的鼓泡塔而建立的。事实上气泡尺寸也受到填料结构的影响, 因此有必要进一步将填料的结构参数如比表面积 α 、空隙率 φ 与气泡尺寸进行关联。本研究选择 Re (雷诺数)、 Fr (弗劳德数)、 We (韦伯数) 来建立关联式, 其定义式分别为:

$$Fr = \frac{u_G^2}{d_{32}g} \quad (3)$$

$$We = \frac{\rho_L u_G^2 d_{32}}{\sigma_L} \quad (4)$$

$$Re = \frac{\rho_L u_G d_{32}}{\mu_L} \quad (5)$$

因此, d_{32} 的函数关系为:

$$d_{32} = f(Fr, We, Re, \alpha, \varphi) \quad (6)$$

对上式进行无因次分析, 利用实验数据进行非线性回归, 得到 Sauter 平均直径的关联式:

$$d_{32} = 8.02 Fr^{-0.58} We^{0.69} Re^{-0.23} \varphi^{-43.82} \alpha^{-1} \quad (7)$$

图4示出了 Sauter 平均直径的实验值 d_{32exp} 与式(7)的计算值 d_{32cal} 的比较结果, 计算值与实验结果较吻合, 偏差在 $\pm 20\%$ 以内, 表明式(7)对于本体系有较好的适用性。

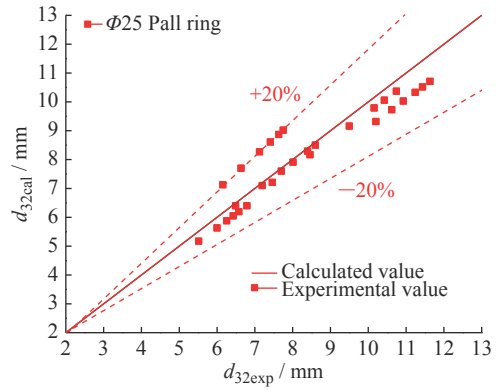


图4 气泡 Sauter 平均直径计算值与实验值比较

Fig. 4 Calculated Sauter mean diameter compared to experimental values

2.2 气泡尺寸分布

气泡的 Sauter 平均直径反映了气泡群尺寸的均值, 但无法获得气泡群尺寸的分布情况。图5统计了气速为 0.002 76 m/s (流量为 0.037 L/s) 下各型号鲍尔环作用下的气泡尺寸的频率分布。由图可见, $\Phi 10$ 、 $\Phi 16$ 、 $\Phi 38$ 、 $\Phi 50$ 鲍尔环作用下产生的气泡尺寸较大, 且尺寸分布较宽, 相比之下 $\Phi 25$ 鲍尔环下的气泡尺寸分布更集中, 且 $d_{eq} \leq 12$ mm。

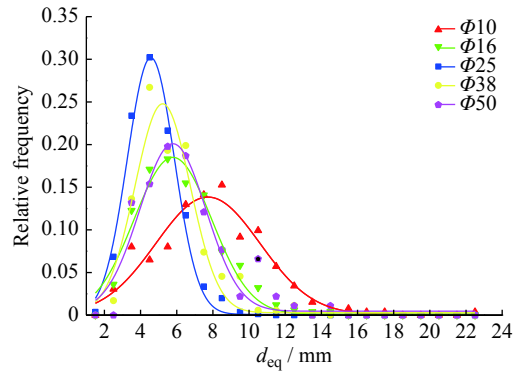


图5 不同型号鲍尔环作用下的气泡群尺寸分布

Fig. 5 Bubble size distribution with using of different types of Pall rings

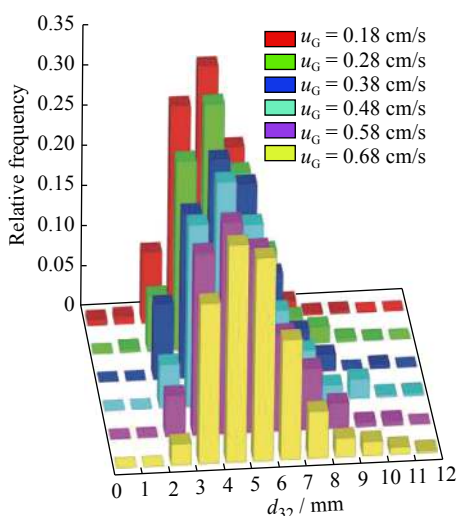
利用高斯函数对图5中的气泡尺寸分布进行拟合, 拟合曲线见图5。表2给出了各拟合曲线的特征参数和分布函数。从表2可见, $\Phi 25$ 鲍尔环作用下的气泡粒径分布的均值和标准差最小, 其分布窄、集中性强、峰值高, 与正态分布曲线拟合程度较高, 说明在此工况下 $\Phi 25$ 鲍尔环对气泡的切割作用最为显著、最稳定。

图6统计了 $\Phi 25$ 鲍尔环作用下气泡群在不同气速下的尺寸分布情况。由图可见, 当气体流速在 0.18~0.68 m/s (流量为 0.023~0.09 L/s) 范围内, $\Phi 25$ 鲍尔环产生的气泡尺寸分布均较为集中, 主要处于 3.00~6.00 mm 之间, 且表现出气泡分布窄、峰值高的特

表2 不同鲍尔环作用下的气泡尺寸正态分布特征参数

Table 2 Bubble size normal distribution characteristics with using of different types of Pall rings

Types	Mean value	Standard deviation	Determining coefficient	Peak height	Frequency distribution function
$\Phi 10$	7.750 7	3.030 5	0.966 8	0.137 7	$f_n(d) = 0.002\ 1 + \frac{2.007\ 2}{6.061\ \sqrt{\pi/2}} e^{-\frac{(d-7.750\ 7)^2}{6.061^2}}$
$\Phi 16$	5.728 1	2.158 5	0.954 8	0.177 3	$f_n(d) = 0.006\ 13 + \frac{0.959\ 4}{4.317\ 07\ \sqrt{\pi/2}} e^{-\frac{(d-5.728\ 09)^2}{4.317\ 07^2}}$
$\Phi 25$	4.571 5	1.274 5	0.972 3	0.301 1	$f_n(d) = 0.001\ 62 + \frac{0.485\ 77}{2.549\ 04\ \sqrt{\pi/2}} e^{-\frac{(d-4.571\ 52)^2}{2.549\ 04^2}}$
$\Phi 38$	5.199 7	1.491 0	0.881 0	0.237 9	$f_n(d) = 0.010\ 32 + \frac{0.888\ 99}{2.982\ 04\ \sqrt{\pi/2}} e^{-\frac{(d-5.199\ 69)^2}{2.982\ 04^2}}$
$\Phi 50$	5.748 1	1.736 5	0.869 4	0.186 9	$f_n(d) = 0.015\ 24 + \frac{0.813\ 48}{3.473\ 05\ \sqrt{\pi/2}} e^{-\frac{(d-5.748\ 09)^2}{3.473\ 05^2}}$

图6 $\Phi 25$ 鲍尔环作用下气泡尺寸分布随气速的变化Fig. 6 Variation of bubble size distribution against gas velocity with using of $\Phi 25$ Pall ring

点。随着气速增大,大尺寸气泡频率略有增加,但其尺寸都小于 12 mm,且气泡整体分布较为稳定。

2.3 平均气含率

气含率是表征鼓泡塔流体力学特性的一种特征参数,其定义为反应器中气相在气液混合相中的体积分数。本研究选用体积膨胀法^[16]计算平均气含率,其计算式为:

$$\varepsilon = \frac{H_R - H_0}{H_R} \quad (8)$$

图7给出了气速 0~0.008 m/s(流量为 0~0.11 L/s)范围内平均气含率随气速的变化关系。由图7可知,床层气含率随鲍尔环尺寸增大而提高。这是因为填料空隙越大,气泡运动受到的阻力越小,气泡能更快地溢出,导致大尺寸填料作用下的气含率较小;而小尺寸填料的床层阻力较大,可以滞留较多的气泡并且降低气泡上升的速度,使气含率升高。在实验气速范围

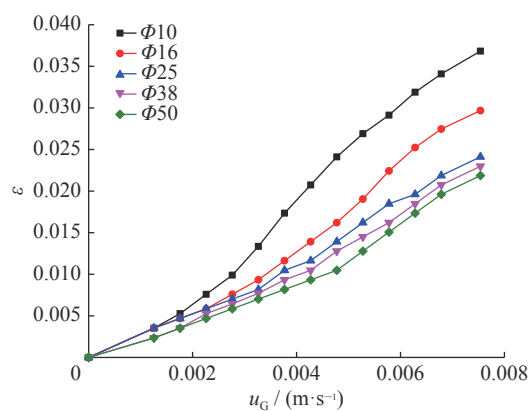


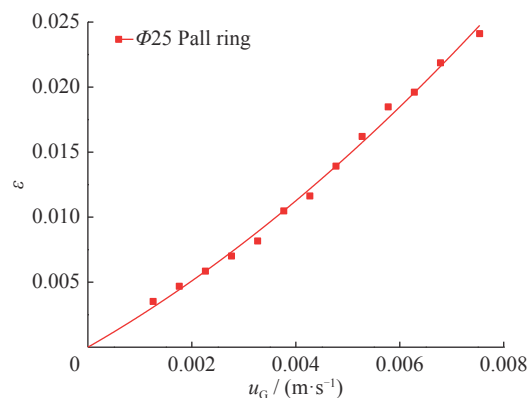
图7 不同型号鲍尔环作用下气含率随气速的变化

Fig. 7 Variation of gas holdup over gas velocity with using of different types of Pall rings

内,气速低时对于气含率的影响并不明显,但随着气速的增大,气含率显著变大,在高气速下又趋于平缓。

本文对气泡切割效果最好的 $\Phi 25$ 鲍尔环作用下的平均气含率与气速关系进行非线性拟合,如图8所示,得到实验气速范围内的关联式:

$$\varepsilon = 132.52 u_G^2 + 2.28 u_G \quad (9)$$

图8 $\Phi 25$ 鲍尔环作用下平均气含率的拟合曲线Fig. 8 Fitting curve of average gas holdup with using of $\Phi 25$ Pall ring

2.4 气液相比表面积

气泡是气液间的传质和传热的重要场所, 因此其气液相比表面积决定了气液相传质、传热的效率, 进而影响反应进行的程度。气液相比表面积 a_F 的计算式为:

$$a_F = 6 \frac{\varepsilon}{d_{32}} \quad (10)$$

本文仅讨论切割气泡效果最好的 $\Phi 25$ 鲍尔环作用下的气液相比表面积。按照式(10)计算的比表面积实验值与气速的关系如图9所示。由图9可见 $\Phi 25$ 鲍尔环作用下的气液相比表面积随着气速的增大明显增大, 在实验气速范围内最大可以达到 $21 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 。

$\Phi 25$ 鲍尔环作用下的气泡尺寸关联式为:

$$d_{32} = 7.69 Fr^{0.58} We^{-0.69} Re^{0.23} \quad (11)$$

由式(9)~(11)可得 $\Phi 25$ 鲍尔环作用下的气液相比表面积:

$$a_F = 7.69 Fr^{0.58} We^{-0.69} Re^{0.23} (132.52 u_G^2 + 2.28 u_G) \quad (12)$$

对 $\Phi 25$ 鲍尔环作用下气液相比表面积的实验值与按式(12)的计算值进行比较, 残差分析结果如图10所示, 两者偏差在 $\pm 20\%$ 以内, 证明上式有较好的相关性。

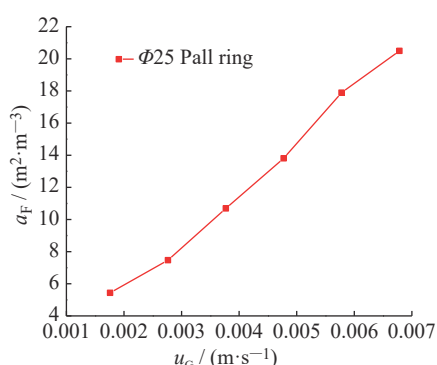


图9 气液相比表面积随气速的变化关系

Fig. 9 Variation of gas-liquid specific surface area against gas velocities

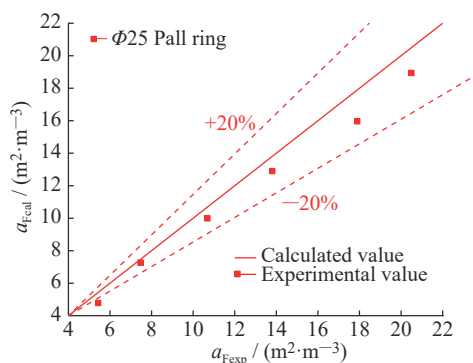


图10 气液相比表面积计算值与实验值比较

Fig. 10 Calculated bubble specific surface area compared to experimental values

3 结 论

鲍尔环对于鼓泡塔气液接触有很好的强化作用, 本文中 $\Phi 25$ 鲍尔环对气泡的切割效果最好。Sauter 平均直径随着气速的增大而增大, 且在高气速下增大的趋势趋于平缓。利用实验数据进行非线性回归, 得到实验气速范围内 d_{32} 与气速、填料空隙率、气液相比表面积的关联式, 计算值与实验结果较为吻合。

鲍尔环尺寸越大, 其作用下鼓泡塔反应器的气含率越大。这是因为填料空隙越大, 气泡运动受到的阻力越小, 气泡能更快地溢出, 导致大尺寸填料作用下的气含率较小。本文建立了实验气速范围内气含率与气速、气液相比表面积的关联式, 计算值与实验结果吻合较好。

符号说明:

- a —— 椭圆长半轴, mm
- a_F —— 气泡比表面积, m^2/m^3
- b —— 椭圆短半轴, mm
- d_{eq} —— 等效直径, mm
- d_{32} —— Sauter 平均直径, mm
- Fr —— 弗劳德数
- H_R —— 鼓泡时液面高度, mm
- H_0 —— 平静时液面高度, mm
- Re —— 雷诺数
- u_G —— 气速, m/s
- We —— 韦伯数
- α —— 填料比表面积, m^2/m^3
- ε —— 气含率
- ρ_L —— 液体密度, kg/m^3
- ρ_G —— 气体密度, kg/m^3
- σ_L —— 液体表面张力, N/m
- φ —— 填料空隙率
- μ_L —— 液体黏度, Pa·s
- μ_G —— 气体黏度, Pa·s

参考文献:

- [1] COLOMBET D, LEGENDRE D, RISSO F, *et al.* Dynamics and mass transfer of rising bubbles in a homogenous swarm at large gas volume fraction[J]. *Journal of Fluid Mechanics*, 2015, 763: 254-258.
- [2] 石岩, 黄子宾, 程振民, 等. 鼓泡塔反应器的两级气泡模型

- 参数研究[J]. 化学工程, 2016, 44(1): 44-48.
- [3] 周晓琳, 田震, 王丽军, 等. 鼓泡塔中气泡群运动的实验与模拟[J]. 化学反应工程与工艺, 2016, 32(6): 481-489.
- [4] BIRRER F R, BÖHM U. Gas-liquid dispersions in structured packing with high-viscosity liquids[J]. *Chemical Engineering Science*, 2004, 59(20): 4385-4392.
- [5] ROY S, BAUER T, AL-DAHMAN M, *et al.* Monoliths as multiphase reactors: A review[J]. *AIChE Journal*, 2004, 50(11): 2918-2938.
- [6] SCHNEIDER G. Static mixers as gas/liquid reactors[J]. Institution of Chemical Engineers Symposium Series, 1990, 121: 109-119.
- [7] MATÍAS M, URSULA B. Influence of structured packing on gas holdup in a three-phase bubble column[J]. *Chemical Engineering Science*, 2007, 62(23): 6595-6603.
- [8] JO D, REVANKAR S T. Investigation of bubble breakup and coalescence in a packed-bed reactor: Part 2. Development of a new bubble breakup and coalescence model[J]. *International Journal of Multiphase Flow*, 2011, 37(9): 1003-1012.
- [9] 刘春江, 成洁, 袁希钢. 规整填料内鼓泡流动的二维CFD模拟[J]. 中国科技论文在线, 2008, 3(13): 933-940.
- [10] 祁贵生, 刘有智, 王焕, 等. 不同填料错流旋转填料床气液传质特性研究[J]. *化学工程*, 2014, 42(5): 18-22.
- [11] KAZAKIS N A, MOUZA A A, PARAS S V. Experimental study of bubble formation at metal porous spargers: Effect of liquid properties and sparger characteristics on the initial bubble size distribution[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2008, 137(2): 265-281.
- [12] BESAGNI G, INZOLI F. The effect of liquid phase properties on bubble column fluid dynamics: Gas holdup, flow regime transition, bubble size distributions and shapes, interfacial areas and foaming phenomena[J]. *Chemical Engineering Science*, 2017, 170: 270-296.
- [13] ELLINGSEN K, RISSO F. On the rise of an ellipsoidal bubble in water: Oscillatory paths and liquid-induced velocity[J]. *Journal of Fluid Mechanics*, 2001, 440(440): 235-268.
- [14] WILKINSON P, HARINGA H, DIERENDONCK L L V. Mass transfer and bubble size in a bubble column under pressure[J]. *Chemical Engineering Science*, 1994, 49(9): 1417-1427.
- [15] AKITA K, YOSHIDA F. Bubble size, interfacial area, and liquid-phase mass transfer coefficient in bubble columns[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development*, 1974, 13(1): 84-91.
- [16] 王利东. 高压下规整填料塔中液相流体力学行为和传质性能的研究[D]. 天津: 天津大学, 2000.

Hydrodynamics of Bubble Column Reactor with Pall Ring as Internal Component

ZHANG Yuanfei, YAN Yuqiang, ZONG Yuan, CAO Fahai

(School of Chemical Engineering, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China)

Abstract: Bubble column reactor is widely used in oxidation, hydrogenation, chlorination, etc., due to its simple structure, convenient operation, no moving parts, and good heat and mass transfer performance. However, the conventional bubble column reactors are currently difficult to meet the production requirements. The reinforcement of gas-liquid contact of bubble column reactor has been a new direction in the research of bubble column reactor. Some researches show that the packing set in bubble column reactor can reinforce the gas-liquid contact and thus improve the reaction rate. However, the hydrodynamics performance of packing set bubble column reactor and the influences of the structural parameter on its performances have not yet been explored. In this study, metal Pall rings were used as the internal component to investigate the gas-liquid contact condition in the bubble column reactor. The average gas holdup was measured by volume expansion method and the bubble size and bubble size distribution upon using different types of Pall rings were studied by high-speed camera technology. The results showed that $\Phi 25$ Pall ring had the best bubble cutting ability, by which the bubble size distribution is confined within 3.00–6.00 mm. The Sauter mean diameter of bubbles increased with gas velocity and levelled off at high gas velocities. The average gas holdup of the bubble column reactor increased with the gas velocity, and the smaller the Pall ring size is, the larger the gas holdup can be achieved. The experimental data was used for nonlinear regression and the correlation of the gas holdup. Sauter mean diameter and gas-liquid specific surface area were obtained within the experimental gas velocity range. The calculated values agreed well with the experimental results.

Key words: Pall ring; Sauter mean diameter; gas holdup; specific surface area; high-speed camera technology