Journal of Chemical Industry and Engineering (China)

## 研究论文

# 多管环流反应器的流动和传质特性

刘永民

刘 铮 袁乃驹

(抚顺石油学院石油化工系, 辽宁 抚顺 113001)

(清华大学化学工程系, 北京 100084)

摘 要 根据动量平衡原理建立了多管气升式环流反应器(MALR)中液体速度的理论关系式,给出了流动阻力系数的计算方法;以 Higbie 的渗透理论为基础提出了计算液体表面微元在相界面暴露时间的方法,并建立了预测体积传质系数的模型方程.测定了空气-水体系中 MALR 的体积传质系数和循环液速随两个上升管表观气速的变化规律,并分别将体积传质系数、循环液速的预测值与实测值进行了比较.

关键词 环流反应器 气升式 循环液速 阻力损失系数 体积传质系数

中图分类号 TQ 052

文献标识码 A

文章编号 0438-1157 (2001) 03-0222-05

# 引言

多管气升式环流反应器(MALR)是一种新型的多级气液反应器<sup>[1]</sup>,由两个升液区、两个降液区、两个气液分离区和两个底箱构成,可根据反应和分离过程的要求独立引入不同的气液组分。因此,既可用于如 Wacker 反应这类两种气体参与的反应过程,也可用于以双金属盐的芳烃溶液分离一氧化碳的络合分离过程。前期工作中已对 MALR 中各管气含率的变化规律进行了详细的研究<sup>[1]</sup>,对液体速度、流动阻力损失系数和传质特性则尚未涉及,而这些参数是 MALR 反应器设计及确定操作条件的基础<sup>[2,3]</sup>。本文以动量平衡原理和 Higbie<sup>[4]</sup>的渗透理论为基础推导建立了液体速度和体积传质系数的模型方程,并实验测量了液体循环速度和体积传质系数,对两个模型的适用性进行了验证。

## 1 理论分析

### 1.1 循环液速

根据动量平衡原理,在稳定状态下,MALR内的上升管和下降管间的流体静压差是液体循环的推动力,该推动力与流体沿循环回路引起的总摩擦压降相平衡<sup>[5-7]</sup>,即

 $P_{1g}[H_{S1}(\mathcal{E}_1 - \mathcal{E}_2) + H_{S2}(\mathcal{E}_3 - \mathcal{E}_4)] = \frac{1}{2}K_{1i}P_{1}u_{1s2}^2$  (1)  $H_{S1}$ 、 $H_{S2}$ 与 $H_{0}$ 差别不大,考虑工程应用计算的简

1999-08-19 收到初稿, 2000-06-06 收到修改稿.

联系人及第一作者: 刘永民, 男, 41 岁, 副教授.

基金项目: 辽宁省自然科学基金资助项目(No. 972050).

捷性要求,将这两个参数用 $H_0$ 代替.上升管气含率为

$$\varepsilon_1 = au_{gs1}^b - cu_{gs3} \qquad (2)$$

式中 a、b、c 为与下降管直径有关的常数,参见文献[1]. 在式(2)中交换下标 1, 3 即为 3 管气含率. 下降管气含率很小,可忽略,则式(1)为

$$2gH_0(\varepsilon_1 + \varepsilon_3) = K_{ft}u_{Ls2}^2$$
(3)

式(3) 为液体速度的模型方程. 若已知  $K_{\rm ft}$ ,则联立式(2) 和式(3) 即可得到液体速度. 总摩擦压降是流体在沿程流动的各局部压降(4个管、2个分离箱和2个底箱)之和<sup>[6]</sup>

$$\Delta p_i = \sum_{i=1}^{4} \Delta p_i + 2 \Delta p_s + 2 \Delta p_B \qquad (4)$$

根据式(4), 总阻力损失系数与各局部阻力损失系数的关系为

$$K_{fi} = \left[ \frac{A_2}{A_1} \right]^2 \left[ \frac{K_{fi}}{(1 - \varepsilon_i)^2} + \frac{K_{f3}}{(1 - \varepsilon_3)^2} \right] + K_{f2} + K_{f4} + 2K_{f5} + 2K_{fB}$$
 (5)

由于气液分离箱、下降管和底箱中的气含率均很低<sup>[1]</sup>,按单相流处理.上升管中气液两相流的阻力损失系数利用气含率适用范围较宽的关系式计 算<sup>[8,9]</sup>

$$K_{fl} = 0.0486 \frac{H_1}{d_1} \left[ -\frac{\sqrt{gd_1}}{u_{1s1}} \right]^{1.1} \mathcal{E}_1^{0.5}$$
 (6)

当上升管气速为零时,与下降管阻力系数计算相同,下降管的阻力损失系数根据 Blasius 公式计算

$$K_{\Omega} = 0.3164 \frac{H_2}{d_2} \left[ \frac{\mu_L}{d_2 \Omega_1 \mu_{LQ}} \right]^{0.25}$$
 (7)

除底箱中弯曲 90°的阻力损失系数按文献[6] 计算外, 其余局部阻力损失系数均查表计算.

### 1.2 体积传质系数

在气升式环流反应器(ALR)的操作中,气液两相间频繁而短暂地接触,很难达到稳定状态.文献 [10,11]应用渗透模型模拟该类反应器的传质特性,取得了令人满意的结果.该模型认为气液相界面上的液体表面微元不断地被液相主体内具有平均浓度的液体微元置换,每个表面微元在气液相界面上的暴露时间都相等,在此暴露时间内进行不稳态的传质[4].

在MALR 中有两个上升管,即有两路气体通 入,每路气体对传质均有贡献,总体积传质系数为  $k_{L}a = f_{1}(k_{L}a)_{1} + f_{3}(k_{L}a)_{3}$  (8)

式中

$$f_1 = \frac{A_1 H_1}{V_{\text{RL}}} (1 - \epsilon_1)$$
  
$$f_3 = \frac{A_3 H_3}{V_{\text{RL}}} (1 - \epsilon_3)$$

 $f_1$ ,  $f_3$  为上升管中单位液体体积占总液体体积的分数. 在上升管 1 中, 依据渗透模型 $^{[4]}$ 有

$$k_{L1} = 2 \sqrt{\frac{\Phi_A}{\pi \theta_1}}$$
(9)

由于在 ALR 中气泡的上升并非直线运动,气泡与液体间的运动相互影响,构成了复杂的气液两相流动体系,文献[10]认为,液体微元在相界面上的暴露时间( $\theta_1$ )为气泡浮升一个气泡直径的距离所需的时间,而该文并未给出可靠的论证.因此,本文引入一校正系数  $f_0$  计算此暴露时间,即

$$\theta_1 = f_0 \frac{d_b}{u_{h1}}$$
(10)

 $f_0$ 越小,暴露时间越短,即气液相界面的更新频率越快,传质速率也越快. 上式中  $u_{hl}$  为气相的滑移速度

$$u_{\rm hl} = \frac{u_{\rm gal}}{\varepsilon_{\rm l}} - \frac{u_{\rm Lal}}{1 - \varepsilon_{\rm l}}$$
 (11)

根据漂流通量模型,可以得到[5,6,10]

$$\frac{u_{gsl}}{g_s} = (C_{0l} + 1)(u_{gsl} + u_{Lsl}) + u_{bt}$$
 (12)

 $C_{01}$ 反映了塔内气含率、气泡大小和液体速度分布的不均匀性. 由于 MALR 内两个上升管尺寸一样,分布器也一样,因此在相同气速范围内  $C_{01}$  及在 3 管中的  $C_{02}$  的值相同,均用  $C_0$  表示. 由式(11)及式(12)可得气相的滑移速度

$$u_{hl} = \frac{C_0(u_{Lel} + u_{gal}) + u_{bt}}{1 - \varepsilon_l}$$
(13)

对于球形气泡, 在上升管中单位液体体积的平

均气液相界面积为

$$a_1 = \frac{6}{d_b} \cdot \frac{\varepsilon_l}{1 - \varepsilon_l} \tag{14}$$

联立式(13)、式(10)、式(9),得到的结果( $k_{L1}$ )与式(14)相乘后代入式(8).对3管做同样的推导,最后可得

$$k_{L}a = 12 \left[ \frac{\Phi_{A}}{\text{Tf}_{0}d_{b}^{3}} \right]^{\frac{1}{2}} \cdot \left[ \frac{A_{1}H_{1}}{V_{RL}} [u_{bt} + C_{0}(u_{gs1} + u_{Ls1})]^{1/2} \cdot \frac{\varepsilon_{1}}{(1 - \varepsilon_{1})^{1/2}} + \frac{A_{3}H_{3}}{V_{RL}} [u_{bt} + C_{0}(u_{gs3} + u_{Ls3})]^{1/2} \cdot \frac{\varepsilon_{3}}{(1 - \varepsilon_{3})^{1/2}} \right]$$
(15)

式(15) 为预测 MALR 的体积传质系数的模型方程. 对于空气-水体系,氧气在水中的分子扩散系数可以从文献中查得,液体循环速度由实验测定,气含率利用已经得到的研究结果[1],气泡终端上升速度和分布参数由液体速度和气含率的实验数据按式(12) 回归计算,根据气泡大小以 $k_{L}a$ 的预测值[按式(15)计算]与实验值的相对误差和为目标函数对 $f_0$ 进行搜索,使目标函数S趋于最小,从而确定 $f_0$ 值.

$$S = \sum_{j=1}^{n} \left| \frac{(k_{L}a)_{j, exp} - (k_{L}a)_{j, exp}}{(k_{L}a)_{j, exp}} \right| \qquad (16)$$

# 2 实 验

MALR 的主体结构见图 1,实验流程参见文献[1],两个上升管(T1,T3)的内径均为 0.09 m,两个下降管(T2,T4)的内径相同,实验中使用的 3种下降管直径分别为 0.05 m、0.07 m 和 0.09 m,4个管的长度均为 1.0 m;上部的两个气液分离箱(S1,S2)的长和宽分别为 0.30 m 和 0.145 m,高为 0.25 m;下部的两个底箱(B1,B2)的长和宽也分别

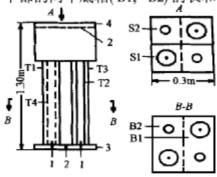


Fig. 1 Schematic view of multi- tube air- lift loop reactor(MALR)

1 —sparger; 2 —baffle; 3 —base box; 4 —separator; B1, B2 —base box 1, 2; S1, S2 —separator 1, 2; T1, T2, T3, T4 —tube 1, 2, 3, 4 化

为 0.30 m 和 0.145 m, 高为 0.05 m; 在 T1 和 T3 的 下部各安装了一个管状微孔气体分布器.

本实验采用空气-水体系,两个上升管表观气速控制在 0~0.082 m·s<sup>-1</sup>,采用电导脉冲示踪法测量液体循环速度<sup>[12]</sup>;使用溶解氧分析仪测定体积传质系数,采用动态矩分析法处理数据<sup>[13,14]</sup>.

## 3 结果与讨论

### 3.1 循环液速

图 2 给出了下降管直径为 0.05 m 的 MALR 中 2 管表观液速与两个上升管表观气速之间的关系(离散点).由图可见,液体循环速度与两个上升管气速均有关,当 3 管气速固定于较小值(低于 0.0467 m\*s¯¹)时 2 管表观液速随 1 管气速的增加而明显增加,当 3 管气速固定于较高值(大于 0.0467 m\*s¯¹)时 2 管表观液速随 1 管气速的增加变化不大.这是因为,在本实验的气速范围内流体的流动均为湍流,当输入气体能量较低时,输入的能量一部分克服流动阻力,气速的增加主要使液速增加;当输入气体能量较高时,气含率增加,上升管内两相流体湍动加剧,气泡间的相互碰撞、聚并和破碎作用加强,尤其是气泡尾涡的能量损失加大,耗散了输入气体的能量,使液速变化不大.

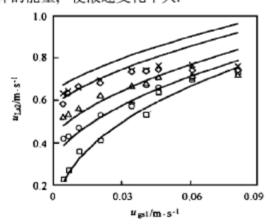


Fig. 2 Liquid circulation rate in downcomer (T2) as a function of gas flow rate in riser 1 (T1) for different gas flow rate in riser 2 (T3) (d<sub>2</sub>= 0.05 m)

— model estimations; □ ○ △ × ♦ experimental data

u=3/m•s<sup>-1</sup>: □ 0; ○ 0.0115; △ 0.0243; × 0.0467; ♦ 0.0612

当 3 管气速固定于 0.0115 m·s<sup>-1</sup>时, 3 种下降 管直径的液体速度示于图 3 中.可见,随下降管直 径的增加,液体循环速度减小.

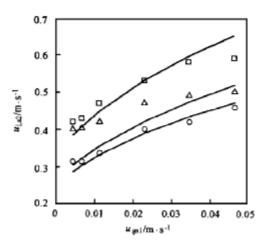


Fig. 3 Liquid circulation rate in downcomer (T2) as function of gas flow rate of riser 1 (T1) for different diameter of downcomer (T2)

 $(u_{gs3}=0.0115 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1})$ — model estimations;  $\square \diamondsuit \bigcirc$  experimental data  $d_2/\text{ cm}$ :  $\square 5.0$ ;  $\triangle 7.0$ ;  $\bigcirc 9.0$ 

按式(6) 计算的结果表明, MALR 中两个上升管的阻力损失系数之和在一个平均值附近上下波动,对于下降管直径为 0.05 m 的 MALR,该平均值为 1.56,最大值为 1.94,最小值为 0.88.按下降管液速换算后,该阻力损失系数之和的平均值在总阻力系数中所占比例按下降管直径增加的顺序为 3.4%、3.3%和 3.9%.按式(5) 计算的结果表明,MALR 的总阻力损失系数与气速无关,仅与下降管直径有关,且随下降管直径的增加而增加,下降管直径为 0.05 m、0.07 m 和 0.09 m 时的总阻力损失系数分别为(6.71 ±0.07)%、(7.48 ±0.09)%及(9.75 ±0.09)%.

利用式(5) 计算的  $K_{\rm ft}$ , 按式(2) 和式(3) 联立得到的下降管液体速度以实线示于图 2 和图 3, 图 2中的实线从下至上 3 管气速分别为 0~ 0.0612  $\rm m^{\circ}$  s<sup>-1</sup>, 图 3 中的实线由上至下  $d_2$  分别为 0.05  $\rm m$ 、0.07  $\rm m$  和 0.09  $\rm m$ . 由图 2 可见,在气速低于0.0467  $\rm m^{\circ}$  s<sup>-1</sup>时,液体速度的预测值与实验值吻合较好,预测值的平均相对误差为 7.3%,对于下降管直径为 0.07  $\rm m$  和 0.09  $\rm m$  的 MALR,在气速低于0.0467  $\rm m^{\circ}$  s<sup>-1</sup>时液体速度预测值的平均相对误差分别为 12% 和 6.2%,总的平均相对误差为 8.5%. 这说明用式(5) 计算总阻力损失系数、用式(2) 和式(3) 预测液体循环速度是可行的.

### 3.2 体积传质系数

在不同的 3 管气速下,体积传质系数( $k_La$ )的实验值随 1 管表观气速的变化关系示于图 4. 可见,传质系数随两个上升管气速的增加而增加,当 3 管气速固定于较高值( $0.0612 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ )时,随着 1 管气速的增加  $k_La$  也增加,当 1 管气速超过 $0.0612 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 后  $k_La$  反而下降.

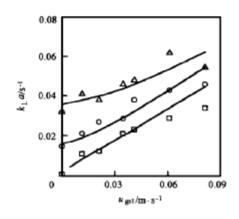


Fig. 4 Volumetric mass transfer coefficients as function of gas flow rate in riser 1 (T1) for different gas flow rate of riser 2 (T3)  $(d_2 = 5.0 \text{ cm})$  — model estimations;  $\square \bigcirc \triangle$  experimental data  $u_{s3}/\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ :  $\square 0$ ;  $\bigcirc 0.0243$ ;  $\triangle 0.0612$ 

式(15) 表明, $k_{L}a$  主要受液相分子扩散系数、 气泡直径( $d_b$ )、气泡终端上升速度、液体循环速度、气体速度、气含率、分布参数( $C_0$ )、暴露时间校正系数以及结构参数的影响。

目前  $C_0$  还没有一个精确的理论值,许多研究 表明[5,6,10],该值影响因素较多,取值范围也较 宽, 较多的为  $C_{0}$ + 1= 1~ 1.8, 也有人将其作为经 验调整参数[10]. 本文利用实测的液体速度和文献 [1] 得到的气含率数据按式(12) 回归、得  $u_{bt}$  = 0.24  $m \cdot s^{-1}$ ,  $C_0 = 0.29$ . 许多研究表明[10,11],  $k_L a = d_b$ 的关系较复杂, 当  $d_b$ = 0.0010~ 0.0025 m 时,  $k_L$ 随  $d_b$  的增加而增加; 而当  $d_b$ = 0.0025~ 0.0080 m 时, kL 随 db 的增加而减小[式(15)体现了这种规 律]; 当 d<sub>b</sub> 大于 0.0080 m 时, k<sub>L</sub> 与 d<sub>b</sub> 无关.对环 流反应器的研究表明,Higbie 的渗透理论一般适用 于  $d_b$ = 0.0025~ 0.0080 m 的范围. 环流反应器内 气泡直径的大小与多种因素有关,如物料体系的物 理化学性质和聚并特性、环流反应器内的流体力学 性能及分布器结构等,对于空气-水体系气泡直径 一般在 0.0025~ 0.0080 m. 因此, 本文按式(16)对 上述范围的气泡直径和 $f_0$  同时搜索,得到  $d_b$ = 0.005 m、 $f_0$  为 0.18 时 S 最小. 因此气液相界面上液体表面元的暴露时间小于气泡浮升一个气泡直径距离的时间,气液两相湍动越剧烈,气泡直径越大,气泡在相界面的暴露时间与气泡浮升一个气泡直径距离的时间的偏差越大. 由此按模型方程式(15) 预测的  $k_L a$  示于图 4,在气速低于 0.0612 m·s<sup>-1</sup>时  $k_L a$  的预测值与实验值符合较好,其平均相对误差为 8.3%.

## 4 结 论

- (1) 气速较低(小于 0. 0467 m\*s<sup>-1</sup>) 时,MALR 中下降管液体速度与两个上升管表观气速均有关, 液体速度随气速的增加明显增加;气速较高(大于 0. 0467 m\*s<sup>-1</sup>) 时,液体速度增加很小,甚至不增 加;液体速度随下降管直径的减小而增加.
- (2) 体积传质系数与两个上升管表观气速均有 关,气速较低时,体积传质系数随气速的增加明显 增加;当每个上升管气速都超过 0.0612 m•s<sup>-1</sup>时, 体积传质系数反而下降.
- (3) 对于 3 种下降管直径的 MALR,在两个上升管表观气速均小于 0.0467 m\*s<sup>-1</sup>时,液体速度的理论方程式(3)与实际符合较好,预测值的平均相对误差为 8.5%.
- (4) 在两个上升管表观气速均小于 0.0612 m·s<sup>-1</sup>时, 体积传质系数的模型方程式(15) 与实际符合较好, 预测值的平均相对误差为 8.3%.
- (5)"液体表面微元在相界面上的暴露时间等于气泡浮升一个气泡直径距离的时间"的说法不妥,该暴露时间与气液两相湍动程度及气泡大小有关. 气泡直径为 0.5 cm 时,暴露时间的校正系数 f<sub>0</sub> 为 0.18.

### 符号说明

A ----管的横截面积, m<sup>2</sup>

a ——单位液体体积的相界面积,  $m^{-1}$ 

 $a_1, a_3$  ——上升管中单位液体体积的相界面积, $m^{-1}$ 

C<sub>0</sub> ——分布参数

d ---直径, m

f<sub>0</sub> ——校正系数

g ——重力加速度,  $m \cdot s^{-2}$ 

H ——MALR 中管的高度, m

 $H_0$  ——反应器中静液高度, m

 $H_{S1}, H_{S2}$  ——气液分散高度, m

 $K_f$  ——摩擦损失系数

 $k_L$  ——液相传质系数,  $m^{\bullet}s^{-1}$ 

 $k_1 a$  ——液相体积传质系数,  $s^{-1}$ 

p ——静压力, Pa

Δp ——压差, Pa

S ---偏差和

u, u, --分别为速度、气相的滑移速度,  $m \cdot s^{-1}$ 

 $u_{bi}$  ——单个气泡在静止水中的终端上升速度, $m \cdot s^{-1}$ 

 $V_{RL}$  ——反应器中液体总体积 $, m^3$ 

**ε——**气含率

θ ----液体表面元在相界面的暴露时间, s

μ---黏度, Pa·s

ρ——密度, kg·m<sup>-3</sup>

 $\phi_A$  ——氧气在水中的分子扩散系数,  $m^2 \cdot s^{-1}$ 

#### 下角标

B -----底箱

b ——气泡

g ——气体

L ——液体

n ---实验点数

S ——气液分离箱

s ——表观

t -----总的

1, 2, 3, 4 ——MALR 中管序号

#### References

 Liu Yongmin (刘永民), Sun Guida (孙桂大), Yuan Naiju (袁乃 駒). Chemical Engineering (化学工程), 1998, 26(2): 23-25

- 2 Liu Qichong (刘期崇), Xia Daikuan (夏代宽), Duan Tianping (段天平), Zhang Yunxiang (张允湘), Wang Jianhua (王建华). Journal of Chemical Industry and Engineering (China) (化工学报), 2000, 51(1): 77-83
- 3 Hu Hua (胡华), Liu Fang (刘芳), Liu Zheng (刘铮), Ding Fuxin (丁富新), Yuan Naiju (袁乃驹). Journal of Chemical Industry and Engineering (China) (化工学报), 1998, 49(1): 59-64
- 4 Higbie R. Trans. AIChE J., 1935, 31: 365-389
- 5 Bakker W A M, van Can H J L, Tramper J, de Gooijer C D. Biotechnol. Bioeng., 1993, 42(8): 994—1001
- 6 Verlaan P, Tramper J, Van't Riet K, Luyben K C A M. Chem. Eng. J., 1986, 33: B43—B53
- 7 Bello R A, Robinson C W, Moo- Young M. Can. J. Chem. Eng., 1984, 62: 573-577
- 8 Akita K, Okzaki T, Koyama H. J. Chem. Eng. Jpn., 1988, 21: 476-482
- 9 Lin Wencai (林文才), Mao Zaisha (毛在砂), Chen Jiayong (陈家镛). Journal of Chemical Industry and Engineering (China) (化工学报), 1995, 46(3): 283—288
- 10 Ayazi Shamlou P, Pollard D J, Ison A P, Lilly M D. Chem. Eng. Sci., 1995, 50: 1579—1590
- 11 Kawase Y, Halard B, Moo- Young M. Chem. Eng. Sci., 1987, 42: 1609—1617
- 12 Liu Yongmin (刘永民), Hu Hua (胡华), Ding Fuxin (丁富新), Yuan Naiju (袁乃驹). Acta Petrolei Sinica (Petroleum Processing Section)[石油学报(石油加工)], 1996, 12(1): 73-79
- 13 Dang N D P, Karrer D A, Dunn I J. Biotechonol. Bioeng., 1977, 19: 853—865
- 14 Hu Hua (胡华). Study on the Bubble Dynamics and Bubble Efficiency of Air - lift Loop Reactor: [dissertation](学位论文). Beijing: Tsinghua University, 1996

# LIQUID CIRCULATION RATE AND VOLUMETRIC MASS TRANSFER COEFFICIENT IN MULTI- TUBE AIRLIFT LOOP REACTOR

## LIU Yongmin

LIU Zheng and YUAN Naiju

(Department of Petrochemical Engineering,

Fushun Petroleum Institute, Fushun 113001, Liaoning, China)

(Department of Chemical Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract A correlation of liquid circulation rate in a multi- tube air- lift loop reactor (MALR) was established on the basis of the momentum balance, in which a new method for the determination of the overall frictional- loss coefficient in air- water system was developed. The method for determining the exposure time of liquid particle in the gas- liquid interphase was proposed, which formed the basis for the calculation of volumetric mass transfer coefficient of gas component according to Higbie's penetration theory. The validity of these two correlations was demonstrated by the fairly good agreements between the calculated liquid rate and mass transfer coefficients with the experimental data.

**Keywords** loop reactor, air – lift, liquid circulation rate, frictional – loss coefficient, volumetric mass transfer coefficient

Received date: 1999- 08- 19. Corresponding author: LIU Yongmin.