

三相环流反应器中的局部相含率

张同旺, 高继贤, 王铁峰, 王金福

(清华大学化工系, 北京 100084)

摘要: 将压差法与气-液相间滑移速度相结合, 提出了利用压差法测量三相区局部相含率的新方法, 将测得的局部固含率进行轴向平均并与由颗粒装填量计算所得的固含率进行比较, 证明了此方法的可靠性. 利用所提出的测量方法, 考察了三相环流反应器中气含率和固含率随操作条件的变化规律. 结果表明, 气含率随表观气速的升高而增大, 且随轴向位置的升高而增大; 大颗粒具有破碎气泡的作用, 能够增大反应器内的气含率; 固含率随表观气速的增加而降低, 且沿轴向变化较大. 表观气速较高时, 固含率沿轴向近似呈 S 形分布.

关键词: 环流反应器; 压差法; 滑移速度; 气含率; 固含率

中图分类号: TQ021 **文献标识码:** A **文章编号:** 1009-606X(2005)05-0485-05

1 前言

气升式三相环流反应器综合了鼓泡塔和机械搅拌釜的优良性能, 具有结构简单、无机械传动部件、易密封、造价低、易实现工业放大等优点, 在化工、石油化工、生物化工和环境工程等领域得到了广泛应用^[1]. 随着能源形势日趋紧张, 环流反应器在液相法合成甲醇、浆态床一步法合成二甲醚、煤直接液化等过程中的应用得到重视, 并取得了重要的研究进展. 虽然环流反应器在工业上已有所应用, 但由于对其内部流动行为尚缺乏系统的认识, 在反应器设计和操作中仍存在理论指导不足的问题. 因此, 对三相环流反应器的流动和传递行为的规律进行深入研究具有十分重要的理论意义和工程应用价值.

目前人们对三相环流反应器的研究^[2,3]多集中于气速和液速均为可控的操作体系. 而在工业过程中, 许多生产过程采取气体连续式、液体间歇式操作, 循环液速系由于上升管和下降管间不同的气含率所致, 但目前关于液体间歇式三相环流反应器内流动行为的研究报道还很少见. Ostergaard 等^[4]研究了加入大颗粒对流化床内传质速率的影响, 发现粒度为 6.98 mm 的三相体系中气液体积传质系数比粒度为 1 mm 的三相体系中的传质系数大 10 倍, 认为这是由于大颗粒具有破碎气泡的作用, 使气泡尺寸降低, 相界面积增加. 而目前关于颗粒装填量和颗粒直径对反应器内流动行为的影响研究还很少.

本研究将压差法与气-液相间滑移速度相结合, 提出了利用压差法测量相含率的新方法. 利用该方法详细考察了表观气速、固体颗粒装填量和颗粒粒径对气-液-固三相区的气含率和固含率的影响.

2 实验

实验装置如图 1 所示, 上升管高度 3.2 m, 内径 0.1 m; 下降管高度 2.75 m, 内径 0.1 m; 气体分布器为孔板分布器, 孔径 1 mm, 开孔率 0.25%. 气体经转子流量计由气体分布器进入上升管, 由于上升管和下降管间不同的气含率, 推动液体在上升管和下降管中循环流动.

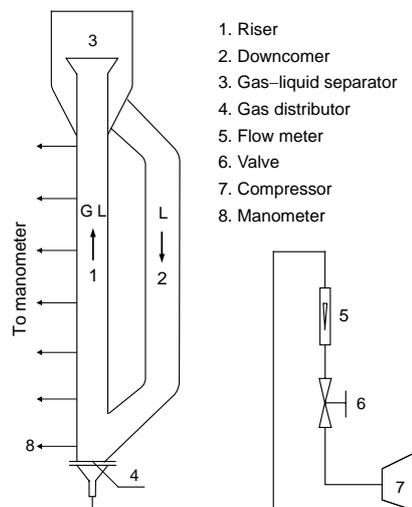


图 1 实验装置图
Fig.1 Scheme of experimental apparatus

以空气-水-玻璃珠为研究体系, 其物理性质如表 1 所示. 沿上升管侧壁开 7 个测孔, 用以测量不同轴向位置间的压差, 测孔与分布器间的距离分别为 0.065, 0.255, 0.54, 1.1, 1.68, 2.25 和 2.85 m. 在讨论相含率随轴向高度的变化时, 以两测孔的中间位置为参考点, 即分别为 0.16, 0.397, 0.82, 1.39, 1.965 和 2.55 m.

收稿日期: 2004-11-23, 修回日期: 2005-01-04

基金项目: 清华大学博士生创新基金资助项目

作者简介: 张同旺(1975-), 男, 山东省聊城市人, 博士研究生, 化学工程专业; 王金福, 通讯联系人.

表1 实验体系的物性参数

Table 1 Materials parameters used in the experimental system

Component	Substance	Size, d_p (mm)	Bed voidage, ε_b	Viscosity, μ (Pa·s)	Density, ρ (kg/m ³)
Particle 1	Glass bead	3	0.3714	—	2400
Particle 2	Glass bead	10.5	0.3770	—	2400
Particle 3	Glass bead	12	0.3770	—	2400
Particle 4	Glass bead	16	0.3825	—	2400
Liquid	Water	—	—	0.9×10^{-3}	998
Gas	Air	—	—	1.0×10^{-5}	1.2

3 测量方法

在上升管侧壁开7个测孔,采用压差法测量相含率.利用倒U管压差计测量相邻两测孔间压差 Δp ,其与各相含率存在以下关系^[5]:

$$\Delta p = (\varepsilon_g \rho_g + \varepsilon_l \rho_l + \varepsilon_s \rho_s) g H_h - \rho_l g H_h \quad (1)$$

其中 H_h 为两测孔间距离.各相含率满足归一化条件:

$$\varepsilon_g + \varepsilon_l + \varepsilon_s = 1. \quad (2)$$

对于气-液两相体系, $\varepsilon_s = 0$, 可利用式(1)和(2)求取各相含率; 而对于气-液-固三相体系, 式(1)和(2)为非封闭方程组, 只有再找到一个反映气-液-固三相含率的方程才能使方程组封闭, 进而计算得到各相含率. Begovich 等^[6]根据 Maxwell 公式, 利用液含率不同、其三相混合物的电导率也不相同这一原理测量三相床的液含率, 并与式(1), (2)结合, 得到各相的相含率. 由于固体颗粒的粒径越大, 要求的电导探头就越大, 而过大的电导探头将对反应器内的流场产生干扰, 使测得的相含率不能反映反应器内的真实值, 因此利用电导法测量相含率对含大颗粒的三相体系不适用.

对于反应器内含固体颗粒的区域, 由于颗粒对气泡的破碎作用, 气泡直径较小, 在环流反应器中气泡尺寸一般为 1~7 mm^[7], 且大小较均匀^[8], 气泡尾涡作用不明显, 可近似认为与单气泡的上升行为相同. 由于直径 1~10 mm 的单气泡其上升速度近似为 0.25 m/s^[9], 因此假定在反应器中的气-液-固三相区内, 气泡与液相主体间的滑移速度也为 0.25 m/s, 即:

$$U_g / \varepsilon_g - U_l / \varepsilon_l = 0.25. \quad (3)$$

式(1)~(3)构成了关于各相含率的封闭方程组, 在已知表观液速和表观气速的条件下, 根据测得的不同测孔间的压差即可得出测孔间各相含率的平均值.

用超声多普勒测速仪测量下降管中的液体速度^[10], 由于本实验主要考察表观气速较低、反应器处于固定床流区或流化床流区时的流动行为, 故下降管内不含固体颗粒, 且气泡夹带较少, 实验测得的值即为液体中悬浮

物的运动速度, 由于水中的悬浮物具有较好的跟随性, 故其速度即为下降管中的液体速度^[11]. 由于本实验中下降管和上升管直径相等, 因此所测液速即为上升管中的表观液速.

将由式(1)~(3)计算所得的固含率沿轴向进行平均:

$$\bar{\varepsilon}_{s,m} = \sum \varepsilon_s H_h / H_e, \quad (4)$$

H_e 为固体颗粒的膨胀高度. 根据颗粒装填量、床层静止时的颗粒空隙率和颗粒膨胀高度可得反应器三相区内的实际平均固含率:

$$\bar{\varepsilon}_{s,r} = (1 - \varepsilon_b) H_s / H_e, \quad (5)$$

ε_b 为床层静止时的颗粒空隙率, H_s 为床层静止时的颗粒高度, 计算和实际平均固含率值如图2和3所示. 图2为颗粒装填高度 0.69 m 时不同粒径下固含率真实值与测量值的比较, 图3为粒径 16 mm 时不同装填高度下固

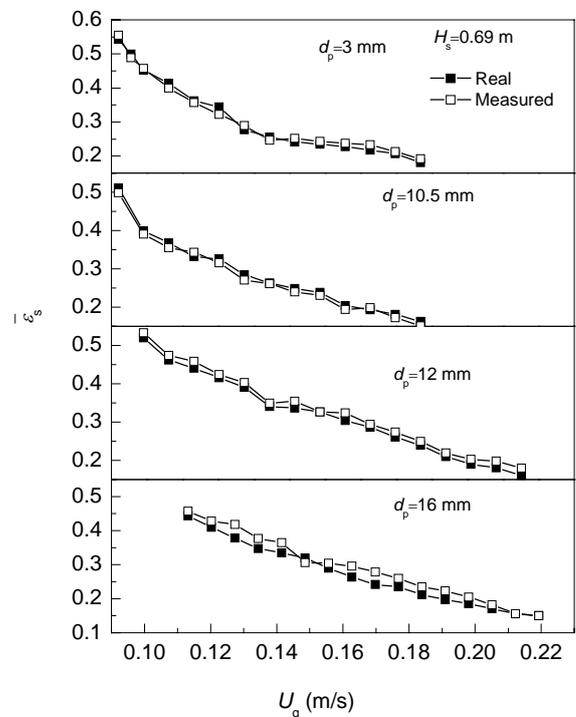


图2 不同粒径时固含率真实值与测量值的比较
Fig.2 Real values and measured values of solid holdup under different particle diameters

含率真实值与测量值的比较. 由图可以看出, 测量值与真实值在所有操作条件下均吻合较好, 说明将压差法与滑移速度结合, 可用来测量环流反应器中气-液-固三相区的相含率.

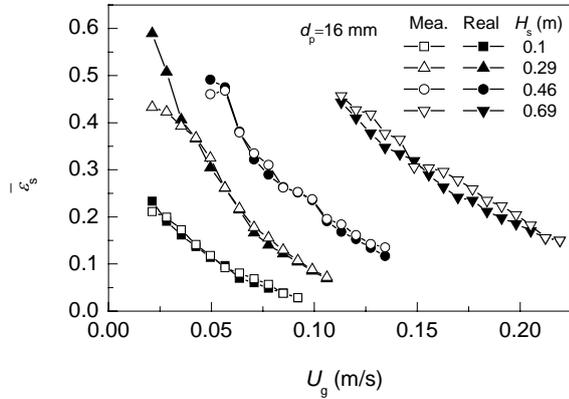


图 3 不同固体装填高度时固含率真实值与测量值的比较
Fig.3 Real values and measured values of solid holdup under different static solid heights

4 结果与讨论

4.1 气含率

气含率是单位体积内气相所占的体积分率, 表观气速一定时, 气含率取决于气泡的上升速度. 因此, 所有影响气泡上升速度的体系性质均能对气含率产生影响. 气含率与气泡大小及其分布共同决定了反应器内的气液相界面面积, 对相间传质速率有重要影响, 是三相环流反应器中的重要参数^[12]. 气体通过分布器进入上升管, 由于上升管和下降管间气含率的差异, 形成液体在上升管和下降管间的整体循环流动, 因此气含率对循环液速也有重要影响. 故研究气含率随操作条件的变化规律对深入理解三相环流反应器的流动行为与传质行为具有十分重要的意义.

图 4 为颗粒装填高度 0.69 m 时, 轴向位置 0.395 m 处气含率随表观气速的变化. 在不同的颗粒粒径下, 气含率均随表观气速增大而增大. 由于在相同表观气速和相同颗粒装填高度下, 颗粒粒径越大, 颗粒床层的膨胀高度越小, 气液混合物流过颗粒床层的阻力越大, 导致循环液速和气泡上升速度降低^[13]. 因此, 在相同表观气速条件下, 气含率随颗粒粒径的增大而增大.

加入大颗粒还具有破碎气泡的作用, Henriksen 等^[14]提出气泡破碎是由于气泡顶部的 Rayleigh-Taylor 不稳定性所致, 认为当颗粒直径大于临界波长的一半时, 才可以破碎气泡, 表明大颗粒更易于使气泡破碎. 增加相界面面积也是气含率随粒径增加而增加的另一重要因素.

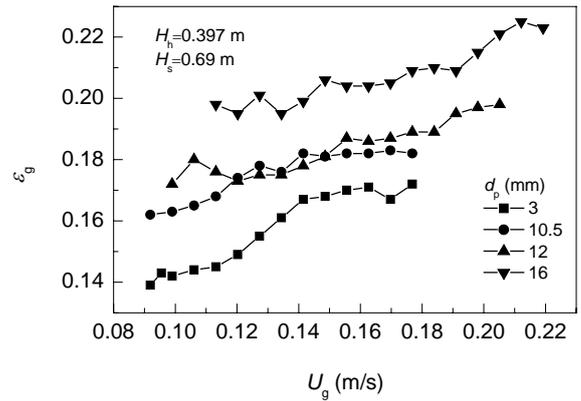


图 4 不同颗粒粒径时气速对气含率的影响
Fig.4 Gas holdup vs. superficial gas velocity under different particle diameters

图 5 为不同颗粒粒径时气含率的轴向变化规律. 相同表观气速下, 各轴向位置处的气含率均随颗粒粒径增大而增大. 由于气泡上升过程中压力降低, 使气体体积增大; 且在轴向位置较低处, 固体颗粒浓度较大, 气液相所占体积较小, 所以气含率随轴向高度增加而增加.

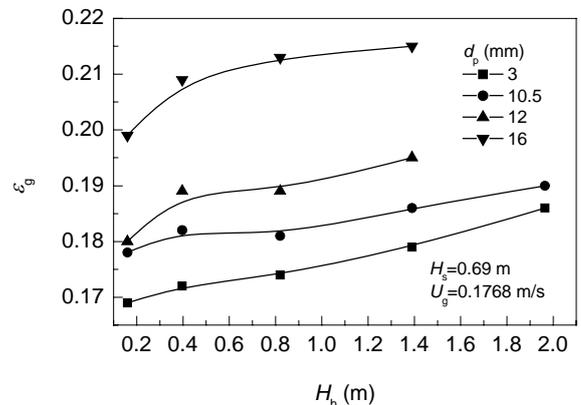


图 5 不同颗粒粒径时气含率的轴向变化
Fig.5 The axial profiles of gas holdup under different particle diameters

图 6 为颗粒粒径一定、不同颗粒装填高度时气含率随表观气速的变化. 由于颗粒装填高度不同, 颗粒的起始流化气速也不相同, 故反应器处于不同流型时的表观气速也不同. 由于本研究主要考察颗粒处于流化区时的相含率, 所以图 6 中不同曲线的起始位置不同. 与图 4 类似, 气含率随表观气速的增加而增加. 由于随颗粒装填高度变大, 反应器内的流动阻力增加, 使相同表观气速条件下, 循环液速较小, 气泡速度降低, 故气含率随颗粒装填高度的增加而增加.

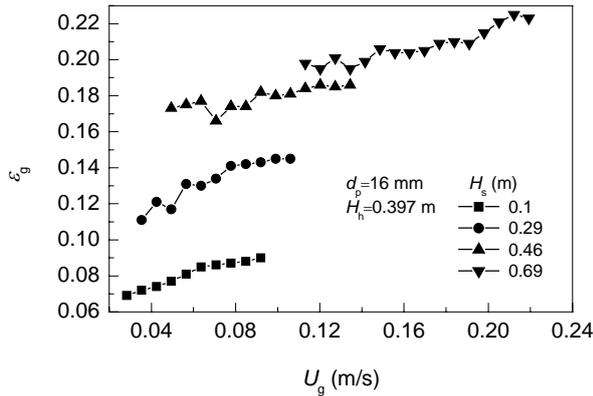


图6 不同颗粒装填高度时气速对气含率的影响
Fig.6 Gas holdup vs. superficial gas velocity under different static solid heights

4.2 固含率

固含率也是环流反应器中的重要参数之一. 对于一些以固体颗粒为催化剂的生产过程, 单位体积内固体表面积对反应速度有重要影响, 因此, 固含率的空间分布对生产效率影响显著. 由前面对气含率的讨论可知, 气含率的轴向变化不大, 因此固含率对液相含率影响较大, Begovich 等^[6]也曾发现类似现象.

图7为颗粒装填高度0.69 m、粒径16 mm时固含率的轴向分布. 因膨胀高度随表观气速增大而增大^[13], 反应器内三相区的固体浓度随表观气速的增加而降低, 所以在不同轴向位置处, 固含率均随表观气速的增加而下降. 由图还可看出, 当表观气速较低时, 固含率沿轴向近似呈线性下降; 而表观气速较高时, 固含率沿轴向近似呈S形分布.

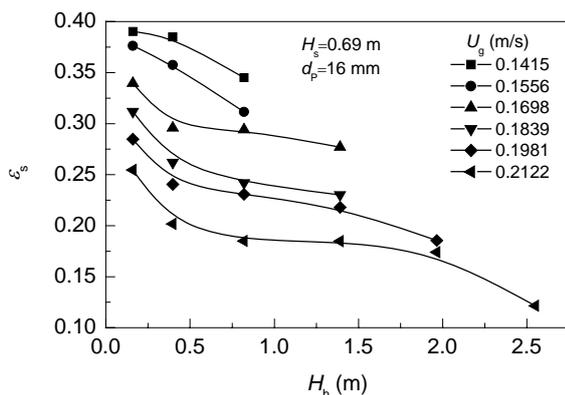


图7 不同表观气速时固含率的轴向分布
Fig.7 The axial profiles of solid holdup under different superficial gas velocities

图8为相同表观气速和相同颗粒装填高度下, 不同颗粒粒径时固含率的轴向分布. 由于颗粒粒径越小, 其

沉降速度越小, 更易被气液混合物夹带, 所以颗粒粒径较小时固含率的轴向分布也较均匀, 随轴向高度的增加变化较小; 颗粒粒径较大时, 固含率沿轴向呈S形分布, 反应器底部的固含率较大, 顶部的固含率较小.

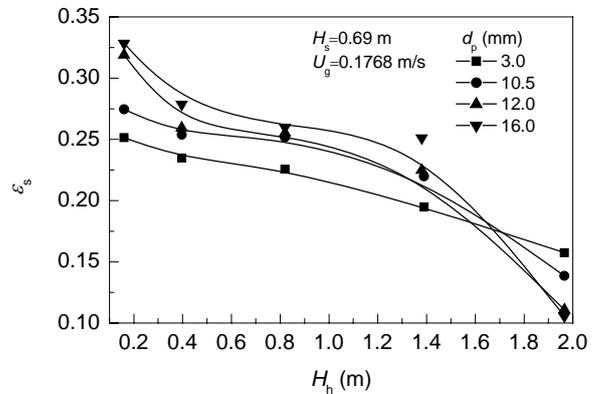


图8 不同颗粒粒径时固含率的轴向分布
Fig.8 The axial profiles of solid holdup under different particle diameters

图9为不同颗粒装填高度下, 颗粒临界循环时固含率的轴向分布. 颗粒装填高度较小时, 固含率也较小. 由图可以看出, 在不同颗粒装填高度下, 固含率均近似呈上稀下浓的S形分布.

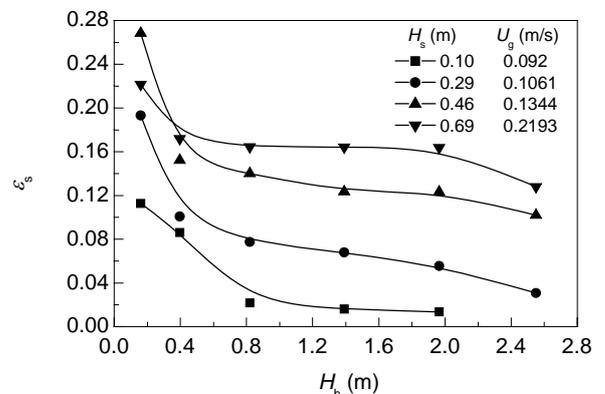


图9 不同颗粒装填高度时固含率的轴向分布
Fig.9 The axial profiles of solid holdup under different static solid heights

5 结论

将压差法与气液相间滑移速度相结合, 提出了利用压差法测量三相环流反应器内相含率的新方法, 并将测得的不同轴向位置处的固含率平均值与由颗粒装填高度计算所得的固含率进行比较, 二者在各操作条件下均能较好地吻合, 证明了该测量方法的可靠性.

利用提出的测量方法研究了三相环流反应器中气含率、固含率的轴向分布及其随操作条件的变化关系.

结果表明:

(1) 在气-液-固三相区内, 气含率随表观气速增加而增加. 随着轴向位置的升高, 气含率略有增加. 随颗粒装填高度和颗粒粒径增加, 气含率相应增加, 表明大颗粒的加入对增加气含率和强化相间传质具有重要作用.

(2) 固含率随表观气速的增加而降低. 表观气速较低时, 固含率沿轴向变化较小, 而表观气速较高时, 固含率沿轴向近似呈上稀下浓的 S 形分布. 相同表观气速下, 颗粒粒径越小, 固含率的轴向分布越均匀.

符号表:

d	直径 (m)		下标
g	重力加速度 (m/s^2)	b	静止床层
H	高度 (m)	e	膨胀
Δp	压差 (Pa)	g	气体
U	表观速度 (m/s)	h	测孔
ε	相含率	l	液体
ρ	密度 (kg/m^3)	m	测量值
		r	实际值
		s	固体

参考文献:

- [1] Hyndman C L, Larachi F, Guy C. Understanding Gas-phase Hydrodynamics in Bubble Columns: A Convective Model Based on Kinetic Theory [J]. Chem. Eng. Sci., 1997, 52(1): 63-77.
- [2] Fan L S, Hwang S J, Matsuura A. Hydrodynamic Behaviors of a Draft Tube Gas-Liquid-Solid Spouted Bed [J]. Chem. Eng. Sci., 1984, 39 (12): 1677-1688.
- [3] Chern S H, Fan L S, Muroyama K. Hydrodynamics of Cocurrent

- Gas-Liquid-Solid Fluidized Beds [J]. AIChE J., 1984, 30: 288-294.
- [4] Ostergaard K, Fosbol P. Transfer of Oxygen across the Gas-Liquid Interface in Gas-Liquid Fluidized Beds [J]. Chem. Eng. J., 1972, 3: 105-111.
- [5] 张同旺, 靳海波, 何广湘, 等. 加压大型气液鼓泡床中气含率的实验和关联 [J]. 过程工程学报, 2002, 2(6): 481-484.
- [6] Begovich J M, Watson J S. An Electroconductivity Technique for the Measurement of Axial Variation of Holdups in Three-phase Fluidized Beds [J]. AIChE J., 1978, 24(2): 351-354.
- [7] Zhang T W, Wang J F, Wang T F, et al. Effect of Internal on the Hydrodynamics in External-loop Airlift Reactors [J]. Chem. Eng. Process., 2005, 40: 81-87.
- [8] Henriksen H K, Ostergaard K. On the Mechanism of Break-up of Large Bubbles in Liquids and Three-phase Fluidized Beds [J]. Chem. Eng. Sci., 1976, 29: 626-629.
- [9] Garcia-Calvo E, Leton P, Arranz M A. Theoretical Prediction of Gas Holdup in Bubble Columns with Newtonian and Non-Newtonian Liquids [J]. Chem. Eng. Commun., 1996, 143: 117-132.
- [10] Wang T F, Wang J F, Jin Y. Application of Doppler Ultrasound Velocimetry in Multiphase Flow [J]. Chem. Eng. J., 2003, 92: 111-122.
- [11] 沈熊. 激光多普勒测速技术与应用 [M]. 北京: 清华大学出版社, 2004. 178.
- [12] 范良士. 气液固流态化工程 [M]. 北京: 中国石化出版社, 1993. 136.
- [13] 张同旺, 高继贤, 王金福, 等. 三相环流反应器流体力学行为的实验研究 [J]. 化工学报, 2005, 56(7): 1213-1217.
- [14] Henriksen H K, Ostergaard K. On the Mechanism of Breakup of Large Bubble in Liquids and Three-phase Fluidized Bed [J]. Chem. Eng. Sci., 1974, 29: 626-629.

The Local Phase Holdups of Three-phase Loop Reactors

ZHANG Tong-wang, GAO Ji-xian, WANG Tie-feng, WANG Jin-fu

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

Abstract: Better understanding of the hydrodynamic behavior in three-phase airlift loop reactors (TPALRs) is important for their design and scale-up. In the present paper, combination of pressure difference method with gas-liquid inter-phase slip velocity was proposed to measure the phase holdups in TPALRs. The comparison between the measured axial-averaged solid holdups and those calculated from the solid loading shows that the used method is reliable. The gas holdup and solid holdup were experimentally studied with the proposed measuring method. The results show that the gas holdup increases with the increase in the superficial gas velocity, and increases along the axial position. Large particles can break bubbles and increase the gas holdup. The solid holdup decreases with the increase in the superficial gas velocity, and its variation along the axial position is more remarkable than that of the gas holdup. The solid holdup decreases with the increase in the superficial gas velocity. At high superficial gas velocities, the solid holdup has an S-type axial profile.

Key words: airlift loop reactor; pressure difference method; slip velocity; gas holdup; solid holdup