



## 正丁醇和表观气速对外环流反应器内气泡特征的影响

沙作良<sup>1</sup>, 韩梅<sup>1</sup>, 王铁峰<sup>2</sup>, 王金福<sup>2</sup>

(1. 天津市海洋资源与化学重点实验室 天津科技大学海洋科学与工程学院, 天津 300457;  
2. 清华大学化学工程系, 北京 100084)

**摘要:** 用双探针电导探头测量了外环流反应器内空气-水和空气-正丁醇水溶液体系中气含率、气泡平均(Sauter)直径、气泡上升速度、气泡尺寸分布以及气液相界面面积. 考察正丁醇浓度和气速对流型和气泡特征的影响规律, 用流体动力学理论和聚并机理对其进行分析. 得到实验条件下正丁醇水溶液浓度影响气含率的临界浓度  $C_{crit}$ .

**关键词:** 外环流反应器; 气泡特征; 气含率; 聚并

**中图分类号:** TQ016      **文献标志码:** A      **文章编号:** 1672-6510(2009)04-0032-05

## Effects of *n*-Butanol and Superficial Gas Velocity on Bubble Characteristics in an External-Loop Airlift Reactor

SHA Zuo-liang<sup>1</sup>, HAN Mei<sup>1</sup>, WANG Tie-feng<sup>2</sup>, WANG Jin-fu<sup>2</sup>

(1. Tianjin Key Laboratory of Marine Resources and Chemistry, College of Marine Science and Engineering, Tianjin University of Science & Technology, Tianjin 300457, China; 2. Department of Chemical Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

**Abstract:** Bubble characteristics in external-loop airlift reactor were investigated using a dual-tip conductivity probe. The parameters investigated include the average gas holdup, bubble Sauter diameter, bubble rise velocity, bubble size distribution and interfacial area. Air was the gas phase and the liquid phase was a mixture of water and *n*-butanol with different concentrations. The effects of concentration of *n*-butanol and superficial gas velocity were studied and analyzed from hydrodynamics and bubble coalescence. It was found that there was a critical concentration of *n*-butanol  $C_{crit}$  above which the average gas holdup remained unchanged at a specific superficial velocity.

**Keywords:** external-loop airlift reactor; bubble characteristic; gas holdup; coalescence

气升式外环流反应器是一类由鼓泡反应器改进的气液两相和气液固三相反应器<sup>[1]</sup>. 它综合了鼓泡床和搅拌釜的性能, 具有结构简单、无机械传动部件、剪切力场均匀<sup>[2]</sup>、低能耗和高能效等优点, 因而被广泛用于诸多领域, 如费托(Fischer-Tröpsch)合成、一步法合成甲醇与二甲醚、汽油脱硫、重油氢化、生物废水处理以及发酵工程等.

气含率、气泡尺寸及其分布和气泡上升速度是环流反应器中表征流动特性的重要参数, 决定了气液有效相界面面积, 与传质、传热和反应速率密切相关. 已有大量学者研究了鼓泡塔内的气泡特征<sup>[3-9]</sup>, 关于气

升式外环流反应器的研究还不多见, 特别是液相为有机溶液并伴有气泡聚并的体系. 实际工业生产主要是在有机醇溶液中进行的, 且气相多以反应物进入混合溶液, 对气体流量和有效传质面积有较高的要求. 因此, 考察气升式外环流反应器内有机醇水溶液中的气泡特征以及气体流速对气泡行为的影响具有重要的应用价值和理论意义.

本文采用改进的双探针电导探头法<sup>[10-11]</sup>, 研究空气-水和空气-正丁醇溶液体系中的流型、气含率、气泡行为参数和气液相界面面积. 考察正丁醇和表观气速对各参数的影响规律, 特别是对相界面面积的影响,

收稿日期: 2008-12-16; 修回日期: 2009-03-03

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(20606021)

作者简介: 沙作良(1956—), 男, 天津人, 教授, zsha@tust.edu.cn.

期为实际工业生产和聚并破碎理论研究提供依据和参考。

## 1 实验

### 1.1 实验装置

实验装置如图1所示,主要包括气升式外环流反应器,气体供给系统,双探针电导探头测试系统和计算机数据采集系统四部分。反应器主体由有机玻璃制成,高2 m,上升管和下降管内径0.09 m,气液分离器内径  $D=0.28$  m,分布器为开孔直径1 mm,开孔率0.25%的多孔板。静液面高度  $H_1=1.8$  m,气体经压缩机依次通过稳压阀、转子流量计和气体分布器从底部进入反应器。

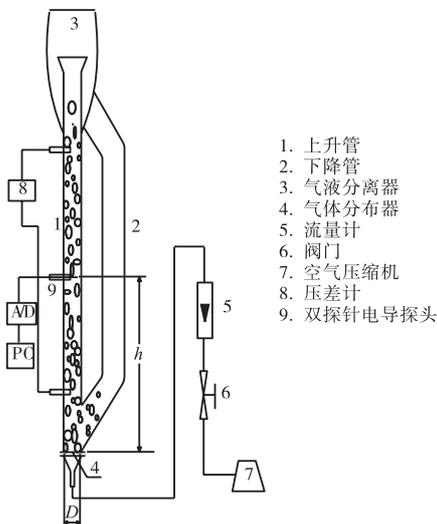


图1 外循环反应器装置图

Fig.1 Schematic diagram of the experimental apparatus

### 1.2 实验方法

实验在常温常压下进行,以空气为气相,液相分别为纯水和体积分数为0.1%、0.45%和0.75%的正丁醇水溶液。

双探针电导探头置于  $h/D=8.78$  的轴向高度,径向测量点位为  $r/R=0$  (反应器中心位置)、0.11、0.22、0.45、0.67 和 0.89,表观气速控制在  $4 \text{ cm/s}$  范围内。探针采样频率为  $10 \text{ kHz}$ ,每次采样点数视反应器中气泡的多少有所调整,保证能够探测到足够数目的气泡信号,以消除样本数量对气泡弦长分布统计结果的影响。将采样信号进行相关的信号处理和算法求解可得到局部气含率、气泡大小及其分布、气泡上升速度及其分布等<sup>[12]</sup>。

平均气含率( $\bar{\varepsilon}_g$ )根据测量得到的局部气含率采用圆环面积加权法求得,表达式如下:

$$\bar{\varepsilon}_g = \frac{\sum_{i=1}^n A_i \varepsilon_i}{\sum A_i}$$

气液相界面积( $a$ )可由 Bürckhart R<sup>[13]</sup>研究得到的如下表达式求得:

$$a = \frac{5.8\varepsilon_i}{d_s}$$

式中:  $\varepsilon_i$  为局部气含率;  $d_s$  为气泡 Sauter 直径。

## 2 结果与讨论

### 2.1 流型

在环流反应器中,流型指流动随表观气速和表观液速变化所呈现的不同相结构。流型不同气泡特征不同,根据平均气含率随表观气速的变化,流型一般被划分为均匀鼓泡区和不均匀鼓泡区,有时两流型间会存在过渡区。而平均气含率是指气相在混合相中所占的体积比率,对反应器内的传质性能和液体循环有重要影响,也是反应器设计和放大的必需参数。在均匀鼓泡区平均气含率随表观气速基本呈线性增加,当流动进入不均匀鼓泡区后,由于气泡间相互作用增强,平均气含率随表观气速增加趋势变缓,两流型之间为过渡区。考察平均气含率随表观气速的变化是一种判别流型的主要方法,即作  $\bar{\varepsilon}_g - v_g$  图,曲线的转折点所对应的表观气速即为流型发生转变处。

实验条件下,得到了空气-水体系和空气-正丁醇溶液体系的  $\bar{\varepsilon}_g - v_g$  图,如图2所示。

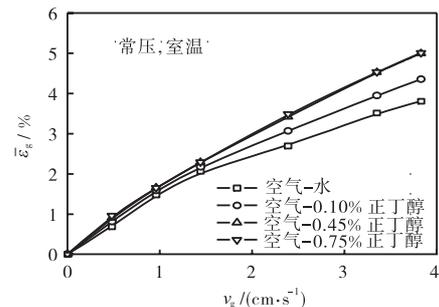


图2 不同体系中平均气含率

Fig.2 Average gas holdup in different systems

整个表观气速范围内,两种体系的平均气含率均随表观气速增大而增加。空气-水中的气含率在不同气速范围内的增加速率不同,转变气速为  $1.5 \text{ cm/s}$ ,即该体系由均匀鼓泡流向过渡流转变的表观气速为  $1.5 \text{ cm/s}$ 。而在空气-正丁醇溶液中,平均气含率在整个气速范围内均呈线性增加,该体系由均匀鼓泡流向过渡流转变的转折点并不显著。这主要由于正丁醇使溶液表面张力减小,气泡刚性增强,气泡尺寸和上升

速度均减小,故气含率显著变大,转折点不显著.当正丁醇体积分数达 0.45%时,气含率随浓度改变无明显变化,得到了实验条件下的临界浓度<sup>[14]</sup> $C_{crit}$  为 0.45%.

为进一步考察流型特征,本工作还选用了另一种判别方法——漂移通量法<sup>[15]</sup>.当液相表观流速为零时,漂移通量( $U_{gl}$ )可定义为

$$U_{gl} = (1 - \bar{\epsilon}_g) \cdot v_g$$

作  $U_{gl} - \bar{\epsilon}_g$  图,曲线的转折点即代表流型发生转变处.图 3 为采用漂移通量法分析的不同体系内的流型特征图,进一步证实了空气-水体系下的三个不同流型区域,与图 2 结论一致.正丁醇溶液在表观流速为 2.40 cm/s 的条件下,流型发生转变,转型流速高于纯水体系,且直接由均匀鼓泡区转变到不均匀鼓泡区,没有出现过渡区.主要是由于正丁醇减小了气泡尺寸,抑制了聚并行为发生,使均匀鼓泡区扩大.这与 Kazaki 等<sup>[15]</sup>研究正丁醇溶液内流型特征时没有发现转变点的结论不一致,这是由于本实验所采用的分布器和测试手段与 Kazaki 等所采用的不同的缘故.

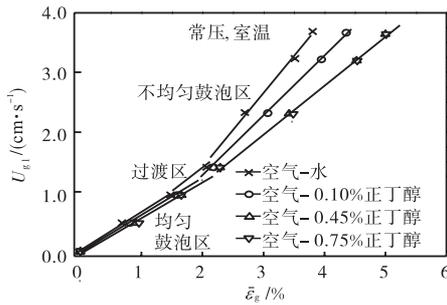


图 3 漂移通量法分析不同体系中流型特征

Fig.3 Characteristics of flow regimes with drift-flux analysis

## 2.2 气泡特征

### 2.2.1 气泡尺寸及其分布

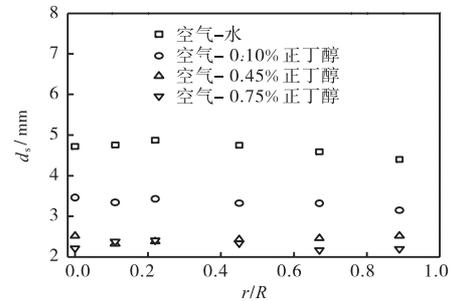
气泡尺寸及其分布对传质的界面积有着巨大影响,衡量气泡大小的主要指标是气泡的平均 Sauter 直径( $d_s$ ):

$$d_s = \frac{\sum n_i d_{bi}^3}{\sum n_i d_{bi}^2}$$

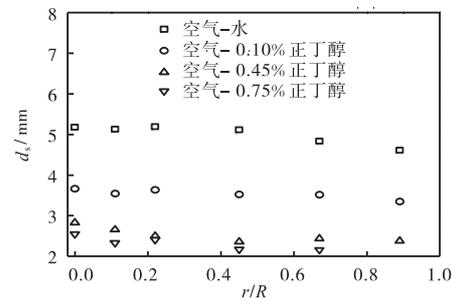
由于气泡大小和运动有一定的随机性,探针不能直接测得气泡直径,只能测得气泡的弦长分布,故对气泡尺寸分布进行考察时,需基于数理统计的方法经过一系列数学变换.此处需用文献[12]的变化方法,由探针测得的气泡弦长分布求气泡平均直径的概率密度分布 (Probability Number Density Function, PDF),即在足够的采样时间内,基于采样数据,经过相应的数学处理得到了气泡平均直径落在中小尺寸范围内的概率,概率密度函数曲线面积为 1,分布越

窄表示气泡尺寸越均匀.

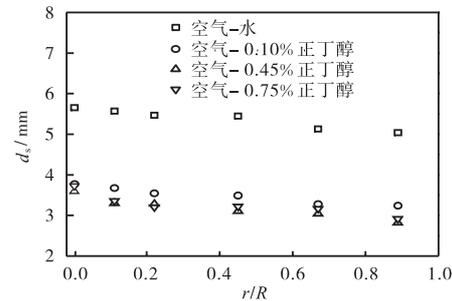
不同表观流速下,气泡平均 Sauter 直径如图 4 所示.在相同表观流速下,醇溶液中的气泡尺寸明显小于水体系,气泡尺寸随正丁醇体积分数增大而减小,当体积分数大于 0.45%时,气泡尺寸不再改变.



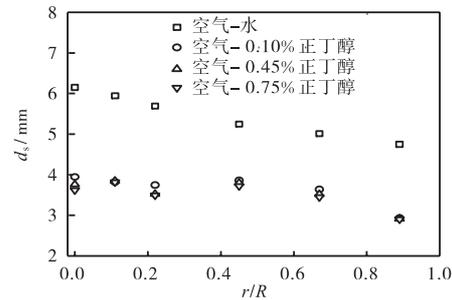
(a)  $v_g = 0.96$  cm/s



(b)  $v_g = 2.40$  cm/s



(c)  $v_g = 3.35$  cm/s



(d)  $v_g = 3.83$  cm/s

图 4 不同体系不同空塔流速平均 Sauter 直径的径向分布

Fig.4 Radial profiles of Sauter mean diameter in different systems for different superficial velocities

正丁醇中气泡尺寸分布范围窄,且浓度大于  $C_{crit}$  时,分布几乎不受浓度影响,如图 5(a)、(b) 概率密度分布 (PDF) 所示.

正丁醇体积分数为 0.1% 的体系中, 气泡平均尺寸随表观气速的变化较小, 其余体系中, 均出现显著变化, 即气泡尺寸变大、范围变宽, 径向分布逐渐呈中心峰分布, 表观气速继续增加, 当大于 2.4 cm/s 时, 正丁醇浓度的影响不再显著, 如图 4(c)、(d) 和图 5(c)、(d) 所示. 正丁醇增强了气泡刚性<sup>[16]</sup>, 抑制了聚并行为, 同时表观气速增大, 增强了体系的湍动强度, 在聚并抑制和湍动强度共同作用下, 出现了上述现象. 对于浓度高的体系, 气含率越大, 湍动强度越剧烈, 聚并破碎行为则越复杂.

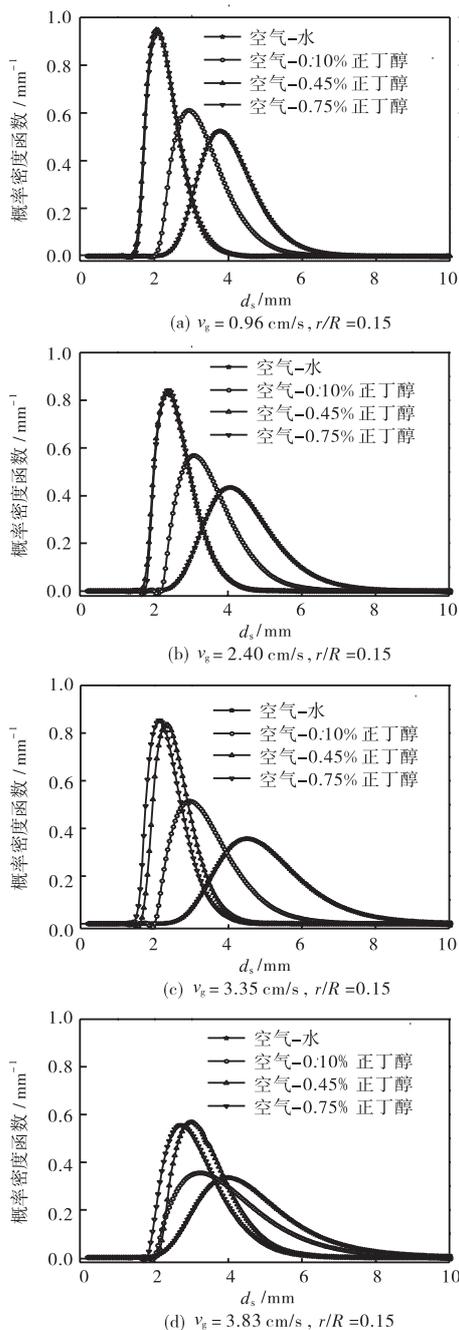


图 5 不同体系气泡尺寸的概率密度分布  
Fig.5 Probability number density distribution of bubble size in different systems

### 2.2.2 气泡上升速度

气泡上升速度( $v_b$ )影响气相在反应器的停留时间, 与气含率密切相关, 对反应器内流动行为和传质行为有重要影响. 实验考察了不同浓度和表观气速下气泡上升速度的特征, 如图 6 所示.

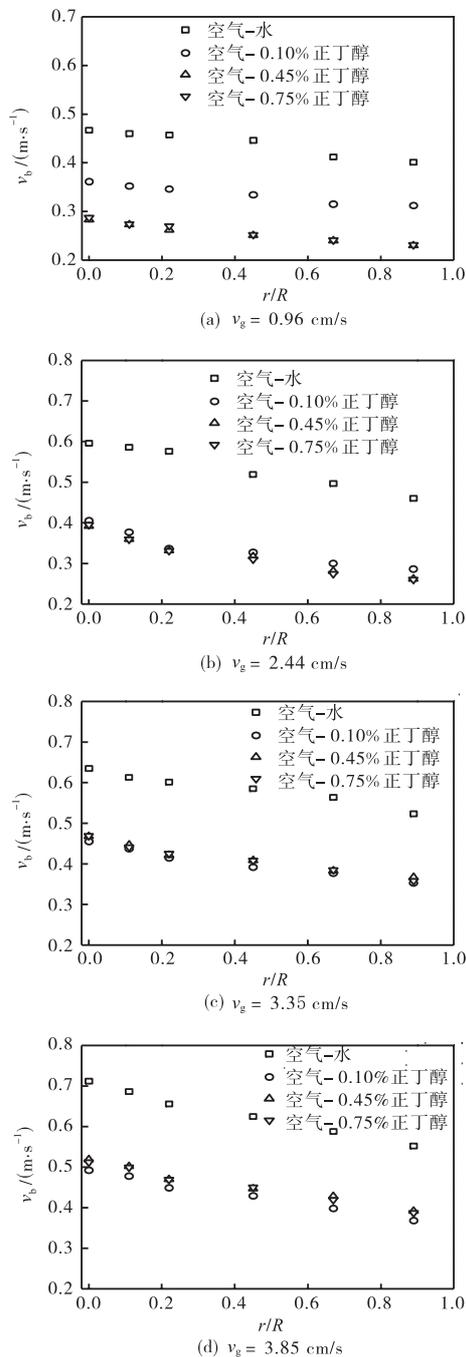


图 6 不同体系中气泡上升速度的径向分布  
Fig.6 Radial profiles of bubble rise velocity in different systems

气泡上升速度随正丁醇浓度增大而减小, 随表观气速增大而增加. 当临界达到浓度时, 只受表观气速的影响. 较高气速下, 液相循环速度较大, 加之外环

流反应器剪切场均匀和无返混等,使高浓度体系中气泡上升速度受表观气速影响更显著,气泡上升速度增加速率更大,如图6(b)一(d)。

### 3 结 论

(1)平均气含率随表观气速和正丁醇浓度的增大而增加,当正丁醇浓度超过临界浓度 0.45%时,平均气含率只受表观气速的影响。

(2)正丁醇体系中,流型转变发生在较高气速下,并且均匀鼓泡区扩大,与空气-纯水体系比,正丁醇体系中的过渡区消失。

(3)气泡尺寸以及上升速度均随表观气速和浓度增加而变大,达到临界浓度时只受表观气速影响,上升速度变化大于气泡尺寸,高浓度所受影响更显著。

#### 参考文献:

- [ 1 ] Vial Ch,Poncin S,Wild G,et al. Experimental and theoretical analysis of the hydrodynamics in the riser of an external loop airlift reactor [J]. Chemical Engineering Science,2002,57(22/23):4745-4762.
- [ 2 ] Siegel M H,Robinson C W. Application of airlift gas-liquid-solid reactors in biotechnology [J]. Chemical Engineering Science,1992,47(13/14):3215-3229.
- [ 3 ] Wilkinson P M,Spek A P, Van Dierendonck L L. Design parameters estimation for scale-up of high-pressure bubble columns [J]. AIChE Journal,1992,38(4):544-554.
- [ 4 ] Zahradnik J,Fialová M,Ruzicka M,et al. Duality of the gas-liquid flow regimes in bubble column reactors [J]. Chemical Engineering Science,1997,52:3811-3826.
- [ 5 ] Camarasa E,Vial Ch,Poncin S,et al. Influence of coalescence behaviour of the liquid and of gas sparging on hydrodynamics and bubble characteristics in a bubble column [J]. Chemical Engineering and Processing,1999,38(4/5/6):329-344.
- [ 6 ] Kaji M,Sawai T,Mori K,et al. Behaviours of bubble formation from a bottom porous nozzle bath [C]// Proceedings of the Fifth ExHFT. Thessaloniki, Greece, 2001:1503-1508.
- [ 7 ] Pfleger D,Becker S. Modelling and simulation of the dynamic flow behaviour in a bubble column [J]. Chemical Engineering Science,2001,56(4):1737-1747.
- [ 8 ] Veera U P,Kataria K L,Joshi J B. Effect of superficial gas velocity on gas hold-up profiles in foaming liquids in bubble column reactors [J]. Chemical Engineering Journal,2004,99(1):53-58.
- [ 9 ] Kazakis N A,Mouza A A,Paras S V. Bubble size distribution at the entrance of bubble column with pore sparger [C]//Proceedings of the 17<sup>th</sup> International Congress of Chemical and Process Engineering (CHISA), Prague, Czech Republic,2006:1-17.
- [ 10 ] Kataoka I,Ishii M,Serizawa A. Local formulation and measurements of interfacial area concentration in two-phase flow [J]. International Journal of Multiphase Flow,1986,12(4):505-529.
- [ 11 ] Kataoka I,Ishii M,Serizawa A. Sensitivity analysis of bubble size and probe geometry on the measurements of interfacial area concentration in gas-liquid two-phase flow [J]. Nuclear Engineering and Design,1994,146(1/2/3):53-70.
- [ 12 ] 王铁峰,王金福,杨卫国,等. 三相循环流化床中气泡大小及其分布的实验研究[J]. 化工学报,2001,52(3):197-203.
- [ 13 ] Bürckhart R,Deckwer W D. Bubble Size distribution and interfacial areas of electrolyte solutions in bubble columns [J]. Chemical Engineering Journal,1975,30(3):351-354.
- [ 14 ] Shah Y T,Kelkar B G,Godbole S P,et al. Design parameters estimations for bubble column reactors [J]. AIChE Journal,1982,28(3):353-379.
- [ 15 ] Veera U P,Kataria K L,Joshi J B. Gas hold-up profiles in foaming liquids in bubble columns [J]. Chemical Engineering Journal,2001,84(3):247-256.
- [ 16 ] Kazakis N A,Papadopoulos I D,Mouza A A. Bubble columns with fine pore sparger operating in the pseudo-homogeneous regime:Gas hold up prediction and a criterion for the transition to the heterogeneous regime [J]. Chemical Engineering Science,2007,62(12):3092-3103.