



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 107563051 A

(43)申请公布日 2018.01.09

(21)申请号 201710766435.0

(22)申请日 2017.08.30

(71)申请人 南京大学

地址 210023 江苏省南京市栖霞区仙林大道163号

(72)发明人 张志炳 田洪舟 周政 张锋

李磊 王丹亮 李夏冰 王广辉

(74)专利代理机构 江苏致邦律师事务所 32230

代理人 徐蓓 尹妍

(51) Int. Cl.

G06F 17/50(2006.01)

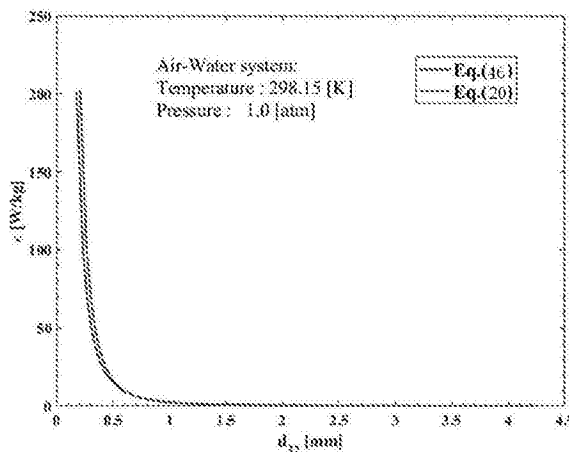
权利要求书6页 说明书17页 附图2页

(54)发明名称

微界面强化反应器气泡尺度构效调控模型建模方法

(57)摘要

本发明涉及一种微界面强化反应器气泡尺度构效调控模型建模方法,以微界面强化反应器最大气泡直径 d_{max} 和最小气泡直径 d_{min} 为自变量,气泡Sauter平均直径 d_{32} 为因变量构建了其数值关系;并基于Kolmogorov-Hinze理论,构建了微界面强化反应器最大气泡直径 d_{max} 、最小气泡直径 d_{min} 与反应器参数间的关系。本发明的方法将反应器气泡尺度与反应器的结构参数、操作参数以及物性参数用具体的数值关系联系在了一起,对于反应器的设计具有指导意义,并且可适用于多种反应器,通用性好,利用本发明的建模方法构建的气泡尺度调控模型,可进一步通过调整反应器的结构参数和操作参数以获得反应过程能效物效的最大化目标,或者在给定反应目标和能耗物耗下,设计出高效的反应器结构。



1. 一种微界面强化反应器气泡尺度构效调控模型建模方法,其特征在在于,包括:

(1) 以微界面强化反应器最大气泡直径 d_{\max} 和最小气泡直径 d_{\min} 为自变量,气泡Sauter平均直径 d_{32} 为因变量,建立 d_{\max} 、 d_{\min} 和 d_{32} 间的关系;具体步骤如下:

设 x , m , n 分别为反应器气液体系中的气泡粒径、气泡粒径几何自然对数的均值和标准差,获取气泡粒径 x 的概率密度函数:

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}nx} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln x - m}{n}\right)^2\right] \quad (1)$$

气泡粒径满足此分布时的气泡Sauter平均直径 d_{32} 为:

$$d_{32} = \exp(m + 2.5n^2) \quad (2)$$

气泡粒径 x 呈对数正态分布,因此 $\ln x$ 的数学期望(算术平均值)为: $\ln(\sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}})$, 根据气泡粒径 x 的概率密度函数绘制气泡粒径概率密度图,当 $x = \sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}}$ 时,概率密度最大;即此处的一阶导数为0:

$$f'(x)|_{x=\sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}}} = 0 \quad (3)$$

将方程(3)代入(1)得到方程(4):

$$f'(x) = -\frac{(n^2 - m + \ln x)}{\sqrt{2\pi}n^3 x^2} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln x - m}{n}\right)^2\right] \quad (4)$$

由(3)、(4)可得:

$$m = n^2 + \ln \sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}} \quad (5)$$

由于:

$$\int_{d_{\min}}^{d_{\max}} f(x) dx = 1 \quad (6)$$

将方程(1)代入(6)并化简后可得:

$$\frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{\ln d_{\min} - m}{n}}^{\frac{\ln d_{\max} - m}{n}} \exp\left[-\left(\frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}\right)^2\right] d\left(\frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}\right) = 1 \quad (7)$$

令: $y = \frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}$, 则上式简化为:

$$\frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{\ln d_{\min} - m}{\sqrt{2}n}}^{\frac{\ln d_{\max} - m}{\sqrt{2}n}} e^{-y^2} dy = 2 \quad (8)$$

方程(8)左端为误差函数,与标准误差函数的差别在于积分限的不同,将式(5)分别代入上述积分上下限,并将方程(8)转化为标准误差函数后可得:

$$\operatorname{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2}n}\right) + \operatorname{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2}n}\right) = 2 \quad (9)$$

方程(9)中, $\operatorname{erf}(\cdot)$ 为误差函数;

对于如下形式的误差函数:

$$\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt \quad (10)$$

采用泰勒级数展开进行近似计算, 泰勒级数展开依据误差函数自变量的取值范围不同而采用不同的形式, 当 $z \leq 4$ 时, $\operatorname{erf}(z)$ 可展开为:

$$\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(z - \frac{z^3}{3 \cdot 1!} + \frac{z^5}{5 \cdot 2!} - \frac{z^7}{7 \cdot 3!} + \dots \right) \quad (11)$$

由于:

$$\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}} < \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}} \quad (12)$$

当 d_{\max}/d_{\min} 为 1000 时:

$$\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}} \geq \sqrt{2 \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} = 2.63 \quad (13)$$

而根据方程 (11):

$$\operatorname{erf}\left(4/\sqrt{2} = 2.8284\right) = 0.999937 \approx 1.0 \quad (14)$$

因此, 当:

$$\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}} \geq \frac{4}{\sqrt{2}} \quad (15)$$

即:

$$0 < n \leq \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} - 2 = 0.73 \quad (16)$$

时, 方程 (9) 近似成立;

此外, 方程 (9) 成立的条件与 n 及 d_{\max}/d_{\min} 的大小有关, 且 n 受 d_{\max}/d_{\min} 的大小的制约; 构建气泡粒径累积概率密度 $g(n)$ 以考察 n 和 d_{\max}/d_{\min} 对方程 (9) 成立条件的影响, 令气泡粒径累积概率密度 $g(n)$ 为:

$$g(n) = \operatorname{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}}\right) + \operatorname{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}}\right) \quad (17)$$

绘制 $g(n) \sim n$ 关系曲线; 获取确保方程 (9) 成立的 n 的可取值范围与 d_{\max}/d_{\min} 的关系;

取不等式 (16) 的等号条件, 即:

$$n = \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} - 2 \quad (18)$$

由式 (5) 及 (18) 确定 m 和 n , 进而由方程 (2) 建立 d_{32} 基本数学模型; 其结果如下:

$$m = 8 + 2 \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - 4 \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} \quad (19)$$

$$d_{32} = \sqrt{d_{\max} \cdot d_{\min}} \exp \left[3.5 \left(8 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - 4 \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} \right) \right] \quad (20)$$

(2) 基于 Kolmogorov-Hinze 理论, 构建微界面强化反应器最大气泡直径 d_{\max} 、最小气泡直径 d_{\min} 与反应器参数间的关系;

能使气泡破裂的最小湍流涡尺度是 Kolmogorov 尺度的 11.4~31.4 倍, 假设此倍率为 11.4, 由于湍流涡仅能破碎直径大于其尺度的气泡, 因此, 气泡直径最小值 d_{\min} 与该湍流涡

尺度一致,即:

$$d_{\min} = 11.4 (\mu_L / \rho_L)^{0.75} \varepsilon^{-0.25} \quad (21)$$

基于Kolmogorov-Hinze理论,最大气泡直径 d_{\max} 由下式(22)确定:

$$d_{\max} = \varepsilon^{-2/5} (\sigma_L We_{\text{crit}} / 2\rho_L)^{3/5} \quad (22)$$

其中, ε 为能量耗散率; μ_L 为液体动力粘度; σ_L 为液体表面张力; ρ_L 为液体密度; We_{crit} 为气泡破碎临界weber数;

基于气泡破碎的共振理论确定 We_{crit} :

$$We_{\text{crit},\alpha_2} = \frac{\alpha_2 (\alpha_2 + 1) (\alpha_2 - 1) (\alpha_2 + 2)}{\pi^2 \{ (\alpha_2 + 1) \rho_G / \rho_L + \alpha_2 \}} \quad (23)$$

其中, α_2 为气泡体积模量, $\alpha_2 = 2, 3, \dots$;当 α_2 越大,气泡高阶振动越激烈,气泡就越小,对于超细气泡颗粒选择 $\alpha_2 = 2$,即 $We_{\text{crit}} = 1.24$;

此时:

$$d_{\max} = 0.75 (\sigma_L / \rho_L)^{0.6} \varepsilon^{-0.4} \quad (24)$$

根据式(20)、(21)、(24)计算得到气泡Sauter平均直径 d_{32} 。

2. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述能量耗散率 ε 采用如下方式获取:

步骤100:将微界面强化反应器总的能量耗散率 ε 的计算划分为微界面强化反应器内三个不同区域能量耗散率的总和,包括反应器主体区鼓泡区的能量耗散率 ε_R ,气液破碎区的 ε_{mix} 以及气液出口区的 ε_{p1} ;

步骤110:其中,反应器主体区鼓泡区的能量耗散率 ε_R 采用如下方式计算:

反应器气体鼓泡过程中,依据气泡对体系做功, ε_R 表示为:

$$\varepsilon_R = v_G \cdot g = \frac{Q_G g}{S_0} \quad (25)$$

其中, Q_G 为反应器内通气体积流量, m^3/s ; S_0 为反应器横截面积, m^2 ;

步骤120:计算气液破碎区的 ε_{mix} :

基于 ε_{mix} 经典计算模型,假设气液混合为绝热过程并忽略液体势能变化,忽略气体质量流量,并使能量耗散率的单位统一为 W/Kg ,获取计算公式如下:

$$\varepsilon_{\text{mix}} = \frac{Q_L^3}{2K_1^4 L_{\text{mix}} S_1^3} \left[1 - 2K_1^2 - K_1^4 (1 + \lambda_1) (3 + \lambda_1) \right] - \frac{\lambda_1 Q_L P_0}{\rho_L S_1 L_{\text{mix}}} \ln \frac{P_1}{P_0} \quad (26)$$

其中, L_{mix} 为气泡破碎区长度, m ; P_0 、 P_1 分别为气泡破碎区入口液体静压及出口气液混合物压力, Pa ; λ_1 为气液体积流量之比; K_1 为喷嘴直径与气泡破碎区直径的比值, $K_1 = D_N / D_1$; S_1 为气泡破碎器横截面积, m^2 ; ρ_L 为液体密度, kg/m^3 ; Q_L 为反应器内液体循环体积流量, m^3/s ;

$$\lambda_1 = Q_G / Q_L \quad (27)$$

步骤121:计算气泡破碎区入口液体静压 P_0 及出口气液混合物压力 P_1 :

忽略气泡破碎区管壁摩擦损失,则:

$$P_1 - P_0 = \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^4 S_1^2} \left[1 - K_1^2 (1 + \phi_{\text{mix}}) \right] \quad (28)$$

其中, ϕ_{mix} 为气泡破碎区气含率,按下式计算:

$$\phi_{mix} = \frac{\sqrt{1-0.5K_1^2}}{K_1} \cdot \frac{\lambda_1}{1+\lambda_1} \quad (29)$$

忽略管道摩擦及喷嘴处能量损失,依据能量守恒原理,体系实际获得的能量 E_0 为:

$$E_0 = P_0 Q_L + \frac{\rho_L Q_L^3}{2K_1^4 S_1^2} \quad (30)$$

即:

$$P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^4 S_1^2} \quad (31)$$

由式(28)(31)得:

$$P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^2 S_1^2} \left(1 + \frac{\sqrt{1-0.5K_1^2}}{K_1} \cdot \frac{\lambda_1}{1+\lambda_1} \right) \quad (32)$$

步骤122:计算气泡破碎区长度 L_{mix} :

L_{mix} 通过测量气液破碎区管内壁压力突变来确定,或通过如下方式确定:

$$\frac{D_L}{L_{mix}} = 0.089 \left(\frac{P_H}{\rho_L V_N^2} \right) \left(\frac{\rho_{MZ}}{\rho_L} \right) \left\{ \frac{2 \left[0.37(0.25D_1^2 - 0.125D_N^2) \right]^{0.5}}{D_N} - 0.64 \right\} \left(\frac{v_N - U_{e,max}}{v_N} \right) \quad (33)$$

其中: P_H 为气液破碎区上方气压,Pa; ρ_{MZ} 为气液破碎区内气液混合物密度, Kg/m^3 ; v_N 为射流口的射流速度, m/s ; $U_{e,max}$ 为气液破碎区涡旋最大返回速度, m/s ;

P_H 由伯努利方程推得:

$$P_H \approx P_{G0} \quad (34)$$

式中, P_{G0} 为供气压力,Pa;

ρ_{MZ} 通过下式计算:

$$\rho_{MZ} = \rho_G \phi_{mix} + \rho_L (1 - \phi_{mix}) \approx \rho_L (1 - \phi_{mix}) \quad (35)$$

式中, ρ_G 为气体密度, g/m^3 ;

考虑气液破碎区气液混物流速的影响, $U_{e,max}$ 为射流口射流流速与气液破碎区气液混物流速的矢量合成的结果,采用下式计算 $U_{e,max}$:

$$U_{e,max} = 0.085 v_N + \frac{(1+\lambda_1) Q_L}{S_1} \quad (36)$$

将式(34)(36)代入式(33),并化简后可得:

$$\frac{1}{L_{mix}} = \frac{0.089 K_1^4 P_{G0} S_1^2}{\rho_L D_1 Q_L^2} \left[1 - \frac{\sqrt{1-0.5K_1^2}}{K_1} \cdot \frac{\lambda_1}{1+\lambda_1} \right] \left\{ \frac{2 \left[0.37(0.25 - 0.125K_1^2) \right]^{0.5}}{K_1} - 0.64 \right\} \left[0.915 - K_1^2 (1+\lambda_1) \right] \quad (37)$$

获取反应器气泡破碎器长度 L_b ,并根据式(37)计算 L_{mix} ;

①当 $L_{mix} < L_b$ 时,以式(37)的计算结果为 L_{mix} 的实际数值;

②当 $L_{mix} \geq L_b$ 时,说明射流能量近似完全在气泡破碎器区域耗,则:

$$L_{mix} = L_b \quad (38)$$

步骤130:计算气液出口区的 ϵ_{p1} ;

假设气泡在气液出口区呈均匀分布状态,此区域的能量耗散速率 ϵ_{p1} 由下式计算:

$$\varepsilon_{pl} = 0.072 \frac{(Q_L + Q_G)^{2.625} v_L^{0.375}}{D_1^{6.625}} \quad (39)$$

反应器结构设计时保证 λ_1 可调范围足够大,通过实验确定反应器基本结构参数间的关系为 $K_1=0.5$, $L_b=13D_1$;代入前述相应表达式并化简可得:

$$L_{mix} = \frac{579(1+\lambda_1)\rho_L Q_L^2}{P_{G0}(1-0.87\lambda_1)(0.665-0.25\lambda_1)D_1^3} \quad (40)$$

$$P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{13\rho_L Q_L^2}{D_1^4} \quad (41)$$

$$P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{3.25\rho_L Q_L^2(1+2.87\lambda_1)}{D_1^4(1+\lambda_1)} \quad (42)$$

步骤200:确定 ε_R 、 ε_{mix} 和 ε_{pl} 各自的数值大小;

步骤210:依据进入反应器的气液流量等于气泡破碎区出口的气液流量平衡原理,得到:

$$D_0 = 60D_1 \sqrt{\frac{u_1}{(C_L + \lambda_1)H_0}} \quad (43)$$

式中, C_L 为基于反应器内有效体积 $\pi D_0^2 H_0/4$ 的液体循环倍数,即每小时液体循环总体积与反应器有效体积的比值; u_1 为气泡破碎器出口气液混合物线速度,m/s; λ_1 取值0.1~0.5;

由式(43)可知: $D_0 \propto \sqrt{u_1}$,则 u_1 增大时,反应器横截面积 S_0 也增大;结合式(25)可知,此时 ε_R 减小;为对反应器不同区域的能量耗散率进行比较,假设: $u_1=3.0$ m/s; $C_L=20$; $H_0=1.5$ m;由式(43)可得,当 $\lambda_1=0.1\sim 0.5$ 时:

$$D_0 \approx 19D_1 \quad (44)$$

选定 D_1 数值,计算并比较反应器不同区域在不同喷嘴液速下的能量耗散率,确定与气液破碎区的能量耗散率 ε_{mix} 相比,反应器主体区、气液出口区的能量耗散率可忽略不计,即 $\varepsilon_{mix} \approx \varepsilon$;则整个反应器的能量耗散率 ε 与反应器结构参数之间的数学关系,可由式(26)计算确定,即:

$$\varepsilon = \frac{Q_L}{L_{mix} D_1^2} \left\{ \frac{16.5 Q_L^2}{D_1^4} [0.5 - 0.0625(1+\lambda_1)(3+\lambda_1)] - \frac{1.27 \lambda_1 P_0}{\rho_L} \ln \frac{P_1}{P_0} \right\} \quad (45)$$

3. 权利要求2所述方法构建的气泡尺度构效调控模型,其特征在于,构建的气泡尺度构效调控模型如下:

$$d_{32} = \sqrt{d_{max} \cdot d_{min}} \exp \left[3.5 \left(8 + \ln \sqrt{d_{max} / d_{min}} - 4 \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{max} / d_{min}}} \right) \right] \quad (20)$$

$$d_{min} = 11.4 (\mu_L / \rho_L)^{0.75} \varepsilon^{-0.25} \quad (21)$$

$$d_{max} = 0.75 (\sigma_L / \rho_L)^{0.6} \varepsilon^{-0.4} \quad (24)$$

$$\varepsilon = \frac{Q_L}{L_{mix} D_1^2} \left\{ \frac{16.5 Q_L^2}{D_1^4} [0.5 - 0.0625(1+\lambda_1)(3+\lambda_1)] - \frac{1.27 \lambda_1 P_0}{\rho_L} \ln \frac{P_1}{P_0} \right\} \quad (45)$$

$$L_{mix} = \frac{579(1+\lambda_1)\rho_L Q_L^2}{P_{G0}(1-0.87\lambda_1)(0.665-0.25\lambda_1)D_1^3} \quad (40)$$

$$P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{13\rho_L Q_L^2}{D_1^4} \quad (41)$$

$$P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{3.25\rho_L Q_L^2(1+2.87\lambda_1)}{D_1^4(1+\lambda_1)} \quad (42)$$

式中, Q_L 为反应器内液体循环体积流量; L_{mix} 为气泡破碎区长度; D_1 为气泡破碎管直径; λ_1 为气液体积流量之比, $\lambda_1 = Q_G/Q_L$; Q_G 为反应器内通气体积流量; P_0 为气泡破碎器入口处液体的静压; P_1 为气泡破碎区出口气液混合物压力; ε 为能量耗散率; μ_L 为液体动力粘度; σ_L 为液体表面张力; ρ_L 为液体密度。

4. 权利要求1或2所述方法在反应器设计中的应用。

5. 根据权利要求4所述的应用, 其特征在于, 根据所需气泡Sauter平均直径 d_{32} 数值, 通过上述气泡尺度构效调控模型确立的反应器结构参数、物性参数、操作条件和气泡Sauter平均直径 d_{32} 关系, 对反应器进行结构参数和物性参数的设计, 使得反应器结构参数和物性参数符合气泡尺度构效调控模型确定的数值关系。

微界面强化反应器气泡尺度构效调控模型建模方法

技术领域

[0001] 本发明属于化工制造、反应器、建模技术领域,具体涉及一种微界面强化反应器气泡尺度构效调控模型建模方法。

背景技术

[0002] 氧化、加氢、氯化等多相反应在化工生产过程中广泛存在,其宏观反应速率一般受制于传质过程。气液反应的传质速率主要受液侧(或气侧)传质系数及气液相界面面积 a 共同影响。已有研究表明, a 对体积传质系数的影响程度更大,且容易调控。因此,增大 a 被视为提高受传质控制的气液反应体系反应效率的特别有效的途径。

[0003] 气泡Sauter平均直径 d_{32} 是决定 a 大小的关键参数之一,它们主要受气泡间及气液两相间相互作用力影响。气泡聚并和分裂则分别是上述两种作用力的结果,并影响气泡直径的大小。因此,气泡聚并和破裂作为气泡的介观尺度行为,是决定 a 大小的深层次原因。关于气泡聚并和分裂行为的研究由来已久,普遍认为能量耗散率和 d_{32} 是重要的影响因素。事实上, d_{32} 能够影响 a 及体积传质系数大小,是决定气液宏观反应速率的核心因素^[1]。研究显示,当 d_{32} 逐渐减小时,体积传质速率逐渐增大;特别是当 d_{32} 小于1mm时,体积传质速率随 d_{32} 的减小以类似于指数形式较快增大。因此,尽可能地减小 d_{32} 能够强化气液传质并最终增大宏观反应速率。

[0004] 鼓泡反应器和搅拌-鼓泡反应器是工业上最传统和常用的气液反应器。如PX氧化制TA的塔式鼓泡反应器,气泡直径通常大于10mm,乃至几厘米级,其传质界面面积十分有限,因此必须将反应器做得很大,以提高宏观反应速率,同时必须通过增加鼓气量来促进液体湍流,使气含率提高,进而增大界面面积,但此举必然降低空气中氧的利用率,增大压缩机功率和尾气排放,导致能耗过渡和物料损失及环境污染。从湍流动力学角度看,传统上用得最广泛的搅拌-鼓泡式气液反应器内大多形成对气泡宏观运动有影响但对气泡破碎作用甚微的大涡,气泡不能有效破碎,故气泡直径偏大,传质面积受限,以致反应效率偏低。为强化气液传质,塔式鼓泡反应器一般增设气体分布板、静态混合器等内件以加强混合,而搅拌釜则需安装不同结构的搅拌桨或内筒等结构,以增加液层的含气量。尽管如此,这两种反应器内的气泡直径通常为5~20mm,所提供的单位体积中的相界面面积均十分有限,一般小于 $100\text{m}^2/\text{m}^3$,故反应效率不可能获得突破性提高。因此,工业上经常通过高温高压和加大气量来提高气含率和相界面面积,但这对反应过程的能耗、物耗及反应选择性都有重大的负面影响。

[0005] 由于研发气泡的微破碎技术十分重要,故最近10年来,英、美、德、日等国的大学与研究机构开始关注和研发超细气泡技术^[2-11],但其研究成果具有下列共同缺陷:

[0006] (1) 采用机械破碎、流体撞击、超声等手段虽可得到一定量微米级尺度的气泡,但气液比(气体体积与液体体积之比)太低,一般低于1%,上限不超过5%。此外,产生微气泡的设备能耗和制造成本也太高。

[0007] (2) 国内外尚没有基于液相为连续相且高度湍流的微气泡体系特性,提出过系统

化的微界面传质强化理论、微气泡测试与表征方法、微界面强化反应器构效调控理论及相关数学模型。

[0008] 基于上述原因,虽有零星的应用实验结果发表,但尚未有规模化的工业应用报道,尤其在化工制造领域的应用基本上还处于空白状态。

[0009] 当今时代的化工生产,基于创新、绿色、环保总体考虑,其生存和发展依赖于对材料与过程技术大幅创新。提高反应与分离过程的原子经济性对降低能耗、物耗、增强竞争力至关重要。基于此,我们提出“微界面传质强化反应-精细分离集成系统”新技术,试图从最基本的超细气液颗粒特性研究出发,解决在高度湍流状态下超细颗粒体系中,微界面化学反应器内流体流动、传质、反应、能量转换等构效调控全过程所涉及的理论、技术与应用问题。

[0010] 本发明涉及的超细气液颗粒指的是超细气泡(或超细液滴),是颗粒当量直径处在 $1\mu\text{m} \leq d_0 < 1\text{mm}$ 的微米级气液颗粒。在反应体系中,超细气液颗粒形成了超细界面(或微界面),超细界面的形成大幅强化了传质与反应速率,尤其是受传质控制的反应体系。

[0011] 需要强调,经典的气液混合理论一般基于毫米-厘米级气液颗粒特征,目前最为合理的方法是多尺度能量最小化原理(EMMS)^[12]。当前大多研究工作均是针对传统气液反应器内的毫米级上气泡^[13,14],很少涉及超细颗粒体系。针对超细颗粒体系的混合、传质与反应特性,必须建立新的计算模型、测试与表征方法,以及构效调控模型,为此必须研究新的设备结构、能量输入方式与转换模式,从而形成全新的适合于超细颗粒反应体系的计算软件与硬件平台,为我国的过程工业生产技术上一个新台阶提供技术与装备支持。

[0012] 现有技术中对于 d_{32} 算法的研究一般有两种:

[0013] 1. $d_{32} = \frac{\sum n_i d_i^3}{\sum n_i d_i^2}$, 其中 n_i 代表气泡个数, d_i 代表气泡直径;此算法的缺点是需要知道

体系中的所有气泡的直径大小和气泡个数,这个目前无法做到,并且此式也不包含反应器的结构参数、操作参数以及物性参数,对于反应器的设计没有指导意义,不是真正意义上的构效调控模型;

[0014] 2. $d_{32} = \alpha d_{\max}$, 此式子中比例系数 α ,是通过经验估算出来的,只能针对某些特定的体系,并且误差较大。

[0015] 所谓构效调控数学模型,是指将超细气液颗粒反应体系之反应效率(能效和物效)与体系理化特性、微界面特性、传质特性和反应器结构用数学方法关联起来,从而实现可通过调整结构参数和操作参数以获得反应过程能效物效的最大化目标,或者在给定反应目标(任务)和能耗物耗下,设计出高效的反应器结构。而对于微界面强化反应器而言,此方面工作在国际上仍为空白。

[0016] 参考文献

[0017] [1]Levenspiel O.Chemical Reaction Engineering[M].Wiley New York etc., 1972.

[0018] [2]Xu JH,Li SW,Chen GG,LuoG..Formation of monodispersemicrobubbles in a microfluidic device[J].AIChE Journal,2006,52(6):2254-2259.

[0019] [3]Li P and Tsuge H.Ozone transfer in a new gas-induced contactor with microbubbles[J].Journal of Chemical Engineering of Japan,2006,39(11):

1213-1220.

[0020] [4]Muroyama K,Imai K,Oka Y,Hayashi J,Mass transfer properties in a bubble column associated with micro-bubble dispersions[J].Chemical Engineering Science,201,100:464-473.

[0021] [5]Maeda Y,Hosokawa S,Baba Y,Tomiyama Akio.Generation mechanism of micro-bubbles in a pressurized dissolution method[J].Experimental Thermal and Fluid Science,2015,60:201-207.

[0022] [6]Hasegawa H,Nagasaka Y,Kataoka H.Electrical potential of microbubble generated by shear flow in pipe with slits.Fluid Dynamics Research,2008,40(7-8):554-564.

[0023] [7]Weber J and Agblevor F.Microbubble fermentation of Trichoderma reesei for cellulase production[J].Process Biochemistry,2005,40(2):669-676.

[0024] [8]Rehman F,Medley GJ,Bandulasena H,Zimmerman WB.Fluidic oscillator-mediated microbubble generation to provide cost effective mass transfer and mixing efficiency to the wastewater treatment plants[J].Environmental research,2015,137:32-39.

[0025] [9]Stride E and Edirisinghe M.Novel microbubble preparation technologies[J].Soft Matter,2008,4(12):2350.

[0026] [10]Druzinec D,Salzig De,Kraume M,Czermak P.Micro-bubble aeration in turbulent stirred bioreactors:Coalescence behavior in Pluronic F68containing cell culture media[J].Chemical Engineering Science,2015,126:160-168.

[0027] [11]李宝璋,尚龙安,姜信真.倒喷射式环流反应器的研究[J].西北大学学报(自然科学版).1989,04:65-69.

[0028] [12]Chen JH,Yang N,Ge W,Li JH.Stability-driven structure evolution: exploring the intrinsic similarity between gas-solid and gas-liquid systems [J].Chinese Journal of Chemical Engineering.2012,20(1):167-177.

[0029] [13]Hinze JO.Fundamentals of the hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion processes[J].AIChE Journal.1955,1(3):289-295.

[0030] [14]Zhong S,Zou X,Zhang ZB,Tian HZ.A flexible image analysis method for measuring bubble parameters[J].Chemical Engineering Science,2016,141(17):143-153.

发明内容

[0031] 本发明的目的在于,克服现有技术的缺陷,提供一种微界面强化反应器气泡尺度构效调控模型建模方法。

[0032] 为实现上述目的,本发明采用如下技术方案:

[0033] 一种微界面强化反应器气泡尺度构效调控模型建模方法,包括:

[0034] (1)以微界面强化反应器最大气泡直径 d_{\max} 和最小气泡直径 d_{\min} 为自变量,气泡

Sauter平均直径 d_{32} 为因变量,建立 d_{\max} 、 d_{\min} 和 d_{32} 间的关系;具体步骤如下:

[0035] 设 x, m, n 分别为反应器气液体系中的气泡粒径、气泡粒径几何自然对数的均值和标准差,获取气泡粒径 x 的概率密度函数:

$$[0036] \quad f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi n x}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln x - m}{n}\right)^2\right] \quad (1)$$

[0037] 气泡粒径满足此分布时的气泡Sauter平均直径 d_{32} 为:

$$[0038] \quad d_{32} = \exp(m + 2.5n^2) \quad (2)$$

[0039] 气泡粒径 x 呈对数正态分布,因此 $\ln x$ 的数学期望(算术平均值)为: $\ln(\sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}})$,

根据气泡粒径 x 的概率密度函数绘制气泡粒径概率密度图,当 $x = \sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}}$ 时,概率密度最大;即此处的一阶导数为0:

$$[0040] \quad f'(x)|_{x=\sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}}} = 0 \quad (3)$$

[0041] 将方程(3)代入(1)得到方程(4):

$$[0042] \quad f'(x) = -\frac{(n^2 - m + \ln x)}{\sqrt{2\pi n^3 x^2}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln x - m}{n}\right)^2\right] \quad (4)$$

[0043] 由(3)、(4)可得:

$$[0044] \quad m = n^2 + \ln \sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}} \quad (5)$$

[0045] 由于:

$$[0046] \quad \int_{d_{\min}}^{d_{\max}} f(x) dx = 1 \quad (6)$$

[0047] 将方程(1)代入(6)并化简后可得:

$$[0048] \quad \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{\ln d_{\min} - m}{n}}^{\frac{\ln d_{\max} - m}{n}} \exp\left[-\left(\frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}\right)^2\right] d\left(\frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}\right) = 1 \quad (7)$$

[0049] 令: $y = \frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}$, 则上式简化为:

$$[0050] \quad \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{\ln d_{\min} - m}{\sqrt{2}n}}^{\frac{\ln d_{\max} - m}{\sqrt{2}n}} e^{-y^2} dy = 2 \quad (8)$$

[0051] 方程(8)左端为误差函数,与标准误差函数的差别在于积分限的不同,将式(5)分别代入上述积分上下限,并将方程(8)转化为标准误差函数后可得:

$$[0052] \quad \operatorname{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2}n}\right) + \operatorname{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2}n}\right) = 2 \quad (9)$$

[0053] 方程(9)中, $\operatorname{erf}(\cdot)$ 为误差函数;

[0054] 对于如下形式的误差函数:

$$[0055] \quad \operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt \quad (10)$$

[0056] 其近似计算可采用级数展开。经典的泰勒级数展开,其收敛速度较切比雪夫(Chebyshev)级数慢,但是具有相对简单的代数形式,因此被广泛采用。对于工程研究而言,

获得形式较为简单,误差能被工程领域所接受的简洁表达即可,无需追求数学意义上误差极小的精确表达。泰勒级数展开依据误差函数自变量的取值范围不同而采用不同的形式,如:

[0057] 当 $z \leq 4$ 时, $\text{erf}(z)$ 可展开为:

$$[0058] \quad \text{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(z - \frac{z^3}{3 \cdot 1!} + \frac{z^5}{5 \cdot 2!} - \frac{z^7}{7 \cdot 3!} + \dots \right) \quad (11)$$

[0059] 由于:

$$[0060] \quad \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}} < \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}} \quad (12)$$

[0061] 当 d_{\max}/d_{\min} 为1000时:

$$[0062] \quad \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}} \geq \sqrt{2 \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} = 2.63 \quad (13)$$

[0063] 而根据方程(11):

$$[0064] \quad \text{erf}\left(4/\sqrt{2} = 2.8284\right) = 0.999937 \approx 1.0 \quad (14)$$

[0065] 因此,当:

$$[0066] \quad \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}} \geq \frac{4}{\sqrt{2}} \quad (15)$$

[0067] 即:

$$[0068] \quad 0 < n \leq \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} - 2 = 0.73 \quad (16)$$

[0069] 时,方程(9)近似成立;

[0070] 此外,方程(9)成立的条件与 n 及 d_{\max}/d_{\min} 的大小有关,且 n 受 d_{\max}/d_{\min} 的大小的制约;构建气泡粒径累积概率密度 $g(n)$ 以考察 n 和 d_{\max}/d_{\min} 对方程(9)成立条件的影响,令气泡粒径累积概率密度 $g(n)$ 为:

$$[0071] \quad g(n) = \text{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}}\right) + \text{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}}\right) \quad (17)$$

[0072] 绘制 $g(n) \sim n$ 关系曲线;获取确保方程(9)成立的 n 的可取值范围与 d_{\max}/d_{\min} 的关系;

[0073] 取不等式(16)的等号条件,即:

$$[0074] \quad n = \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} - 2 \quad (18)$$

[0075] 由式(5)及(18)确定 m 和 n ,进而由方程(2)建立 d_{32} 基本数学模型;其结果如下:

$$[0076] \quad m = 8 + 2 \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - 4 \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} \quad (19)$$

$$[0077] \quad d_{32} = \sqrt{d_{\max} \cdot d_{\min}} \exp \left[3.5 \left(8 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - 4 \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} \right) \right] \quad (20)$$

[0078] (2) 基于Kolmogorov-Hinze理论,构建微界面强化反应器最大气泡直径 d_{\max} 、最小气泡直径 d_{\min} 与反应器参数间的关系;

[0079] 对于超细气泡体系而言,气泡的破裂和新气泡的形成发生于 ε 较大的气泡破碎区,由于湍流涡向气液界面传递能量存在效率问题,能使气泡破裂的最小湍流涡尺度是Kolmogorov尺度的11.4~31.4倍,假设此倍率为11.4,由于湍流涡仅能破碎直径大于其尺度的气泡,因此,气泡直径最小值 d_{\min} 与该湍流涡尺度一致,即:

$$[0080] \quad d_{\min} = 11.4 (\mu_L / \rho_L)^{0.75} \varepsilon^{-0.25} \quad (21)$$

[0081] 基于Kolmogorov-Hinze理论,最大气泡直径 d_{\max} 由下式(22)确定:

$$[0082] \quad d_{\max} = \varepsilon^{-2/5} (\sigma_L We_{\text{crit}} / 2\rho_L)^{3/5} \quad (22)$$

[0083] 其中, ε 为能量耗散率; μ_L 为液体动力粘度; σ_L 为液体表面张力; ρ_L 为液体密度; We_{crit} 为气泡破碎临界weber数;

[0084] 不同研究所采用的气泡破碎临界weber数 We_{crit} 不同。这主要是weber数与气泡周围的流型有关,而流型较难定量描述。本发明中基于气泡破碎的共振理论确定 We_{crit} :

$$[0085] \quad We_{\text{crit},\alpha_2} = \frac{\alpha_2(\alpha_2+1)(\alpha_2-1)(\alpha_2+2)}{\pi^2 \{(\alpha_2+1)\rho_G/\rho_L + \alpha_2\}} \quad (23)$$

[0086] 其中, α_2 为气泡体积模量, $\alpha_2 = 2, 3, \dots$;当 α_2 越大,气泡高阶振动越激烈,气泡就越小,对于超细气泡颗粒选择 $\alpha_2 = 2$,即 $We_{\text{crit}} = 1.24$;

[0087] 此时:

$$[0088] \quad d_{\max} = 0.75 (\sigma_L / \rho_L)^{0.6} \varepsilon^{-0.4} \quad (24)$$

[0089] 优选的,所述能量耗散率 ε 采用如下方式获取:

[0090] 步骤100:将微界面强化反应器总的能量耗散率 ε 的计算划分为微界面强化反应器内三个不同区域能量耗散率的总和,包括反应器主体区鼓泡区的能量耗散率 ε_R ,气液破碎区的 ε_{mix} 以及气液出口区的 ε_{pl} ;

[0091] 步骤110:其中,反应器主体区鼓泡区的能量耗散率 ε_R 采用如下方式计算:

[0092] 反应器气体鼓泡过程中,依据气泡对体系做功, ε_R 表示为:

$$[0093] \quad \varepsilon_R = v_G \cdot g = \frac{Q_G g}{S_0} \quad (25)$$

[0094] 其中, Q_G 为反应器内通气体积流量, m^3/s ; S_0 为反应器横截面积, m^2 ;

[0095] 步骤120:计算气液破碎区的 ε_{mix} :

[0096] 基于 ε_{mix} 经典计算模型,假设气液混合为绝热过程并忽略液体势能变化,忽略气体质量流量,并使能量耗散率的单位统一为 W/Kg ,获取计算公式如下:

$$[0097] \quad \varepsilon_{\text{mix}} = \frac{Q_L^3}{2K_1^4 L_{\text{mix}} S_1^3} [1 - 2K_1^2 - K_1^4 (1 + \lambda_1)(3 + \lambda_1)] - \frac{\lambda_1 Q_L P_0}{\rho_L S_1 L_{\text{mix}}} \ln \frac{P_1}{P_0} \quad (26)$$

[0098] 其中, L_{mix} 为气泡破碎区长度, m ; P_0 、 P_1 分别为气泡破碎区入口液体静压及出口气液混合物压力, Pa ; λ_1 为气液体积流量之比; K_1 为喷嘴直径与气泡破碎区直径的比值, $K_1 = D_N / D_1$; S_1 为气泡破碎器横截面积, m^2 ; ρ_L 为液体密度, kg/m^3 ; Q_L 为反应器内液体循环体积流量, m^3/s ;

$$[0099] \quad \lambda_1 = Q_G / Q_L \quad (27)$$

[0100] 步骤121:计算气泡破碎区入口液体静压 P_0 及出口气液混合物压力 P_1 :

[0101] 忽略气泡破碎区管壁摩擦损失,则:

$$[0102] \quad P_1 - P_0 = \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^4 S_1^2} \left[1 - K_1^2 (1 + \phi_{mix}) \right] \quad (28)$$

[0103] 其中, ϕ_{mix} 为气泡破碎区气含率, 按下式计算:

$$[0104] \quad \phi_{mix} = \frac{\sqrt{1 - 0.5K_1^2}}{K_1} \cdot \frac{\lambda_1}{1 + \lambda_1} \quad (29)$$

[0105] 忽略管道摩擦及喷嘴处能量损失, 依据能量守恒原理, 体系实际获得的能量 E_0 为:

$$[0106] \quad E_0 = P_0 Q_L + \frac{\rho_L Q_L^3}{2K_1^4 S_1^2} \quad (30)$$

[0107] 即:

$$[0108] \quad P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^4 S_1^2} \quad (31)$$

[0109] 由式 (28) (31) 得:

$$[0110] \quad P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^2 S_1^2} \left(1 + \frac{\sqrt{1 - 0.5K_1^2}}{K_1} \cdot \frac{\lambda_1}{1 + \lambda_1} \right) \quad (32)$$

[0111] 步骤122: 计算气泡破碎区长度 L_{mix} :

[0112] L_{mix} 通过测量气液破碎区管内壁压力突变来确定, 或通过如下方式确定:

$$[0113] \quad \frac{D_1}{L_{mix}} = 0.089 \left(\frac{P_H}{\rho_L V_N^2} \right) \left(\frac{\rho_{MZ}}{\rho_L} \right) \left\{ \frac{2 \left[0.37(0.25D_1^2 - 0.125D_N^2) \right]^{0.5}}{D_N} - 0.64 \right\} \left(\frac{v_N - U_{e,max}}{v_N} \right) \quad (33)$$

[0114] 其中: P_H 为气液破碎区上方气压, Pa; ρ_{MZ} 为气液破碎区内气液混合物密度, Kg/m^3 ; v_N 为射流口的射流速度, m/s; $U_{e,max}$ 为气液破碎区涡旋最大返回速度, m/s;

[0115] P_H 由伯努利方程推得:

$$[0116] \quad P_H \approx P_{G0} \quad (34)$$

[0117] 式中, P_{G0} 为供气压力, Pa;

[0118] ρ_{MZ} 通过下式计算:

$$[0119] \quad \rho_{MZ} = \rho_G \phi_{mix} + \rho_L (1 - \phi_{mix}) \approx \rho_L (1 - \phi_{mix}) \quad (35)$$

[0120] 式中, ρ_G 为气体密度, g/m^3 ;

[0121] 考虑气液破碎区气液混合物流速的影响, $U_{e,max}$ 为射流口射流流速与气液破碎区气液混合物流速的矢量合成的结果, 采用下式计算 $U_{e,max}$:

$$[0122] \quad U_{e,max} = 0.085 v_N + \frac{(1 + \lambda_1) Q_L}{S_1} \quad (36)$$

[0123] 将式 (34) (36) 代入式 (33), 并化简后可得:

[0124]

$$\frac{1}{L_{mix}} = \frac{0.089 K_1^4 P_{G0} S_1^2}{\rho_L D_1 Q_L^2} \left[1 - \frac{\sqrt{1 - 0.5K_1^2}}{K_1} \cdot \frac{\lambda_1}{1 + \lambda_1} \right] \left\{ \frac{2 \left[0.37(0.25 - 0.125K_1^2) \right]^{0.5}}{K_1} - 0.64 \right\} \left[0.915 - K_1^2 (1 + \lambda_1) \right] \quad (37)$$

[0125] 获取反应器气泡破碎器长度 L_b , 并根据式 (37) 计算 L_{mix} ;

[0126] ①当 $L_{mix} < L_b$ 时, 以式 (37) 的计算结果为 L_{mix} 的实际数值;

[0127] ②当 $L_{mix} \geq L_b$ 时,说明射流能量近似完全在气泡破碎器区域耗,则:

$$[0128] \quad L_{mix} = L_b \quad (38)$$

[0129] 步骤130:计算气液出口区的 ε_{pl} ;

[0130] 假设气泡在气液出口区呈均匀分布状态,此区域的能量耗散速率 ε_{pl} 由下式计算:

$$[0131] \quad \varepsilon_{pl} = 0.072 \frac{(Q_L + Q_G)^{2.625} v_L^{0.375}}{D_1^{6.625}} \quad (39)$$

[0132] 反应器结构设计时保证 λ_1 可调范围足够大,通过实验确定反应器基本结构参数间的关系为 $K_1 = 0.5$, $L_b = 13D_1$;代入前述相应表达式并化简可得:

$$[0133] \quad L_{mix} = \frac{579(1 + \lambda_1) \rho_L Q_L^2}{P_{G0} (1 - 0.87\lambda_1) (0.665 - 0.25\lambda_1) D_1^3} \quad (40)$$

$$[0134] \quad P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{13\rho_L Q_L^2}{D_1^4} \quad (41)$$

$$[0135] \quad P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{3.25\rho_L Q_L^2 (1 + 2.87\lambda_1)}{D_1^4 (1 + \lambda_1)} \quad (42)$$

[0136] 步骤200:确定 ε_R 、 ε_{mix} 和 ε_{pl} 各自的数值大小;

[0137] 步骤210:依据进入反应器的气液流量等于气泡破碎区出口的气液流量平衡原理,得到:

$$[0138] \quad D_0 = 60D_1 \sqrt{\frac{u_1}{(C_L + \lambda_1)H_0}} \quad (43)$$

[0139] 式中, C_L 为基于反应器内有效体积 $\pi D_0^2 H_0 / 4$ 的液体循环倍数,即每小时液体循环总体积与反应器有效体积的比值; u_1 为气泡破碎器出口气液混合物线速度,m/s; λ_1 取值0.1~0.5;

[0140] 由式(43)可知: $D_0 \propto \sqrt{u_1}$,则 u_1 增大时,反应器横截面积 S_0 也增大;结合式(25)可知,此时 ε_R 减小;为对反应器不同区域的能量耗散率进行比较,假设: $u_1 = 3.0$ m/s; $C_L = 20$; $H_0 = 1.5$ m;由式(43)可得,当 $\lambda_1 = 0.1 \sim 0.5$ 时:

$$[0141] \quad D_0 \approx 19D_1 \quad (44)$$

[0142] 选定 D_1 数值,计算并比较反应器不同区域在不同喷嘴液速下的能量耗散率,确定与气液破碎区的能量耗散率 ε_{mix} 相比,反应器主体区、气液出口区的能量耗散率可忽略不计,即 $\varepsilon_{mix} \approx \varepsilon$;则整个反应器的能量耗散率 ε 与反应器结构参数之间的数学关系,可由式(26)计算确定,即:

$$[0143] \quad \varepsilon = \frac{Q_L}{L_{mix} D_1^2} \left\{ \frac{16.5 Q_L^2}{D_1^4} [0.5 - 0.0625(1 + \lambda_1)(3 + \lambda_1)] - \frac{1.27 \lambda_1 P_0}{\rho_L} \ln \frac{P_1}{P_0} \right\} \quad (45)$$

[0144] 本发明的第二目的在于提供上述建模方法构建的气泡尺度构效调控模型。

[0145] 具体的,所述气泡尺度构效调控模型如下:

$$[0146] \quad d_{32} = \sqrt{d_{max} \cdot d_{min}} \exp \left[3.5 \left(8 + \ln \sqrt{d_{max} / d_{min}} - 4 \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{max} / d_{min}}} \right) \right] \quad (20)$$

$$[0147] \quad d_{min} = 11.4 (\mu_L / \rho_L)^{0.75} \varepsilon^{-0.25} \quad (21)$$

$$[0148] \quad d_{\max} = 0.75 (\sigma_L / \rho_L)^{0.6} \varepsilon^{-0.4} \quad (24)$$

$$[0149] \quad \varepsilon = \frac{Q_L}{L_{\text{mix}} D_1^2} \left\{ \frac{16.5 Q_L^2}{D_1^4} [0.5 - 0.0625(1 + \lambda_1)(3 + \lambda_1)] - \frac{1.27 \lambda_1 P_0}{\rho_L} \ln \frac{P_1}{P_0} \right\} \quad (45)$$

$$[0150] \quad L_{\text{mix}} = \frac{579(1 + \lambda_1) \rho_L Q_L^2}{P_{G0} (1 - 0.87 \lambda_1) (0.665 - 0.25 \lambda_1) D_1^3} \quad (40)$$

$$[0151] \quad P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{13 \rho_L Q_L^2}{D_1^4} \quad (41)$$

$$[0152] \quad P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{3.25 \rho_L Q_L^2 (1 + 2.87 \lambda_1)}{D_1^4 (1 + \lambda_1)} \quad (42)$$

[0153] 式中, Q_L 为反应器内液体循环体积流量; L_{mix} 为气泡破碎区长度; D_1 为气泡破碎管直径; λ_1 为气液体积流量之比, $\lambda_1 = Q_G / Q_L$; Q_G 为反应器内通气体积流量; P_0 为气泡破碎器入口处液体的静压; P_1 为气泡破碎区出口气液混合物压力; ε 为能量耗散率; μ_L 为液体动力粘度; σ_L 为液体表面张力; ρ_L 为液体密度。

[0154] 本发明的又一目的在于提供上述方法在反应器设计中的应用。

[0155] 根据所需气泡Sauter平均直径 d_{32} 数值,通过上述气泡尺度构效调控模型确立的反应器结构参数、物性参数、操作条件和气泡Sauter平均直径 d_{32} 关系,对反应器进行结构参数和物性参数的设计,使得反应器结构参数和物性参数符合气泡尺度构效调控模型确定的数值关系。

[0156] 本发明的方法适用于微界面强化反应器,其核心在于气泡破碎器。气泡破碎器的原理是高速射流所携带的气体相互撞击进行能量传递,使气泡破碎,其结构参数有 L_b 、 D_1 ,详细结构见附图1,除此之外该反应器的其它结构参数有 D_0 、 H_0 ,具体反应器结构相关内容已经公布于发明人在先申请的专利CN10618766A中,本发明中不再赘述。

[0157] 本发明具有如下有益效果:

[0158] (1) 利用本发明的建模方法构建的气泡尺度构效调控模型,构建了 d_{\max} 、 d_{\min} 和 d_{32} 的直接计算关系,而不再采用实验拟合的方式获取 d_{32} 的具体数值,极大减少了在反应器中应用时产生的误差;

[0159] (2) 现有的方法构建的 d_{32} 模型多针对的是鼓泡反应器(Bubble column, BC)和鼓泡搅拌釜反应器(Bubbling-stirred reactor, BSR)内的气液体系,或射流泵(gas-liquid jet bump, GLJB)内的空气-水体系。而对于工业微界面反应器(MIR),则不一定适用,其原因在于:①MIR内气泡破碎机制有别于上述反应器;②工业气液反应体系中可能涉及到高粘度液体,而现有技术(如式46)并没有考虑液体粘度对 d_{32} 的影响;而利用本发明的建模方法构建的气泡尺度构效调控模型可适用于工业微界面反应器(MIR),其通用性更好;

[0160] (3) 利用本发明的建模方法构建的气泡尺度构效调控模型,可进一步通过调整反应器的结构参数和操作参数以获得反应过程能效物效的最大化目标,或者在给定反应目标(任务)和能耗物耗下,设计出高效的反应器结构。

附图说明

[0161] 图1是一种反应器结构示意图,用于说明本发明建模方法在反应器装置中的应用;其中1-反应器,2-泵前阀,3-循环泵,4-泵后阀,5-液体流量计,6-换热器,7-气泡破碎器,8-测温仪,9-下降管,10-气体阀,11-气体流量计,12-气相入口,13-压力表,14-液位计; D_0 -反应器直径, H_0 -反应器内初始液位高度, D_1 -气泡破碎管直径, L_b -气泡破碎区长度;

[0162] 图2是 n 及 d_{\max}/d_{\min} 对气泡粒径累积概率密度的影响曲线图;

[0163] 图3是现有技术与本发明的计算结果比较曲线图。

具体实施方式

[0164] 实施例1

[0165] 本实施例具体说明本发明气泡尺度模型的建模方法。

[0166] 本发明的方法,包括:

[0167] (1)以微界面强化反应器最大气泡直径 d_{\max} 和最小气泡直径 d_{\min} 为自变量,气泡Sauter平均直径 d_{32} 为因变量,建立 d_{\max} 、 d_{\min} 和 d_{32} 间的关系;具体步骤如下:

[0168] 设 x 、 m 、 n 分别为反应器气液体系中的气泡粒径、气泡粒径几何自然对数的均值和标准差,获取气泡粒径 x 的概率密度函数:

$$[0169] \quad f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}nx} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln x - m}{n}\right)^2\right] \quad (1)$$

[0170] 气泡粒径满足此分布时的气泡Sauter平均直径 d_{32} 为:

$$[0171] \quad d_{32} = \exp(m + 2.5n^2) \quad (2)$$

[0172] 气泡粒径 x 呈对数正态分布,因此 $\ln x$ 的数学期望(算术平均值)为: $\ln(\sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}})$;

根据气泡粒径 x 的概率密度函数绘制气泡粒径概率密度图,当 $x = \sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}}$ 时,概率密度最大;即此处的一阶导数为0:

$$[0173] \quad f'(x) \Big|_{x=\sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}}} = 0 \quad (3)$$

[0174] 将方程(3)代入(1)得到方程(4):

$$[0175] \quad f'(x) = -\frac{(n^2 - m + \ln x)}{\sqrt{2\pi}n^3 x^2} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln x - m}{n}\right)^2\right] \quad (4)$$

[0176] 由(3)、(4)可得:

$$[0177] \quad m = n^2 + \ln \sqrt{d_{\min} \cdot d_{\max}} \quad (5)$$

[0178] 由于:

$$[0179] \quad \int_{d_{\min}}^{d_{\max}} f(x) dx = 1 \quad (6)$$

[0180] 将方程(1)代入(6)并化简后可得:

$$[0181] \quad \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{\ln d_{\min} - m}{n}}^{\frac{\ln d_{\max} - m}{n}} \exp\left[-\left(\frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}\right)^2\right] d\left(\frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}\right) = 1 \quad (7)$$

[0182] 令: $y = \frac{\ln x - m}{\sqrt{2}n}$, 则上式简化为:

$$[0183] \quad \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{\frac{\ln d_{\min} - m}{\sqrt{2n}}}^{\frac{\ln d_{\max} - m}{\sqrt{2n}}} e^{-y^2} dy = 2 \quad (8)$$

[0184] 方程(8)左端为误差函数,与标准误差函数的差别在于积分限的不同,将式(5)分别代入上述积分上下限,并将方程(8)转化为标准误差函数后可得:

$$[0185] \quad \operatorname{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}}\right) + \operatorname{erf}\left(\frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}}\right) = 2 \quad (9)$$

[0186] 方程(9)中, $\operatorname{erf}(\cdot)$ 为误差函数;

[0187] 对于如下形式的误差函数:

$$[0188] \quad \operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt \quad (10)$$

[0189] 其近似计算可采用级数展开。经典的泰勒级数展开,其收敛速度较切比雪夫(Chebyshev)级数慢,但是具有相对简单的代数形式,因此被广泛采用。对于工程研究而言,获得形式较为简单,误差能被工程领域所接受的简洁表达即可,无需追求数学意义上误差极小的精确表达。泰勒级数展开依据误差函数自变量的取值范围不同而采用不同的形式,如:

[0190] 当 $z \leq 4$ 时, $\operatorname{erf}(z)$ 可展开为:

$$[0191] \quad \operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(z - \frac{z^3}{3 \cdot 1!} + \frac{z^5}{5 \cdot 2!} - \frac{z^7}{7 \cdot 3!} + \dots \right) \quad (11)$$

[0192] 由于:

$$[0193] \quad \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}} < \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}} \quad (12)$$

[0194] 当 d_{\max}/d_{\min} 为 1000 时:

$$[0195] \quad \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}} \geq \sqrt{2 \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} = 2.63 \quad (13)$$

[0196] 而根据方程(11):

$$[0197] \quad \operatorname{erf}\left(4/\sqrt{2} = 2.8284\right) = 0.999937 \approx 1.0 \quad (14)$$

[0198] 因此,当:

$$[0199] \quad \frac{\ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}} \geq \frac{4}{\sqrt{2}} \quad (15)$$

[0200] 即:

$$[0201] \quad 0 < n \leq \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} - 2 = 0.73 \quad (16)$$

[0202] 时,方程(9)近似成立;

[0203] 此外,方程(9)成立的条件与 n 及 d_{\max}/d_{\min} 的大小有关,且 n 受 d_{\max}/d_{\min} 的大小的制约;构建气泡粒径累积概率密度 $g(n)$ 以考察 n 和 d_{\max}/d_{\min} 对方程(9)成立条件的影响,令气泡粒径累积概率密度 $g(n)$ 为:

$$[0204] \quad g(n) = \operatorname{erf}\left(\frac{\ln\sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - n^2}{\sqrt{2n}}\right) + \operatorname{erf}\left(\frac{\ln\sqrt{d_{\max}/d_{\min}} + n^2}{\sqrt{2n}}\right) \quad (17)$$

[0205] 绘制 $g(n) \sim n$ 关系曲线,如图2所示;对于确定的气液体系,气泡粒径分布(由 m 和 n 决定)受 d_{\max}/d_{\min} 的影响;当 d_{\max}/d_{\min} 一定时, n 应有唯一确定值,即气泡粒径分布是唯一的。由图2可知:确保方程(9)成立的 n 的可取值范围与 d_{\max}/d_{\min} 密切相关,但当 $n \rightarrow 0$ 时, n 与 d_{\max}/d_{\min} 无关;

[0206] 取不等式(16)的等号条件,即:

$$[0207] \quad n = \sqrt{4 + \ln\sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} - 2 \quad (18)$$

[0208] 由式(5)及(18)确定 m 和 n ,进而由方程(2)建立 d_{32} 基本数学模型;其结果如下:

$$[0209] \quad m = 8 + 2\ln\sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - 4\sqrt{4 + \ln\sqrt{d_{\max}/d_{\min}}} \quad (19)$$

$$[0210] \quad d_{32} = \sqrt{d_{\max} \cdot d_{\min}} \exp\left[3.5\left(8 + \ln\sqrt{d_{\max}/d_{\min}} - 4\sqrt{4 + \ln\sqrt{d_{\max}/d_{\min}}}\right)\right] \quad (20)$$

[0211] (2) 基于Kolmogorov-Hinze理论,构建微界面强化反应器最大气泡直径 d_{\max} 、最小气泡直径 d_{\min} 与反应器参数间的关系;

[0212] 对于超细气泡体系而言,气泡的破裂和新气泡的形成发生于 ε 较大的气泡破碎区,由于湍流涡向气液界面传递能量存在效率问题,能使气泡破裂的最小湍流涡尺度是Kolmogorov尺度的11.4~31.4倍,假设此倍率为11.4,由于湍流涡仅能破碎直径大于其尺度的气泡,因此,气泡直径最小值 d_{\min} 与该湍流涡尺度一致,即:

$$[0213] \quad d_{\min} = 11.4 (\mu_L / \rho_L)^{0.75} \varepsilon^{-0.25} \quad (21)$$

[0214] 基于Kolmogorov-Hinze理论,最大气泡直径 d_{\max} 由下式(22)确定:

$$[0215] \quad d_{\max} = \varepsilon^{-2/5} (\sigma_L We_{\text{crit}} / 2\rho_L)^{3/5} \quad (22)$$

[0216] 其中, ε 为能量耗散率; μ_L 为液体动力粘度; σ_L 为液体表面张力; ρ_L 为液体密度; We_{crit} 为气泡破碎临界weber数;

[0217] 不同研究所采用的气泡破碎临界weber数 We_{crit} 不同。这主要是weber数与气泡周围的流型有关,而流型较难定量描述。本发明中基于气泡破碎的共振理论确定 We_{crit} :

$$[0218] \quad We_{\text{crit},\alpha_2} = \frac{\alpha_2(\alpha_2+1)(\alpha_2-1)(\alpha_2+2)}{\pi^2 \{(\alpha_2+1)\rho_G/\rho_L + \alpha_2\}} \quad (23)$$

[0219] 其中, α_2 为气泡体积模量, $\alpha_2 = 2, 3, \dots$;当 α_2 越大,气泡高阶振动越激烈,气泡就越小,对于超细气泡颗粒选择 $\alpha_2 = 2$,即 $We_{\text{crit}} = 1.24$;

[0220] 此时:

$$[0221] \quad d_{\max} = 0.75 (\sigma_L / \rho_L)^{0.6} \varepsilon^{-0.4} \quad (24)$$

[0222] 其中,能量耗散率 ε 采用如下方式计算:

[0223] 其中,步骤100:将微界面强化反应器总的能量耗散率 ε 的计算划分为微界面强化反应器内三个不同区域能量耗散率的总和,包括反应器主体区鼓泡区的能量耗散率 ε_R ,气液破碎区的 ε_{mix} 以及气液出口区的 ε_{pl} ;

[0224] 步骤110:其中,反应器主体区鼓泡区的能量耗散率 ε_R 采用如下方式计算:

[0225] 反应器气体鼓泡过程中,依据气泡对体系做功, ε_R 表示为:

$$[0226] \quad \varepsilon_R = v_G \cdot g = \frac{Q_G g}{S_0} \quad (25)$$

[0227] 其中, Q_G 为反应器内通气体积流量, m^3/s ; S_0 为反应器横截面积, m^2 ;

[0228] 步骤120: 计算气液破碎区的 ε_{mix} :

[0229] 基于 ε_{mix} 经典计算模型, 假设气液混合为绝热过程并忽略液体势能变化, 忽略气体质量流量, 并使能量耗散率的单位统一为 W/Kg , 获取计算公式如下:

$$[0230] \quad \varepsilon_{mix} = \frac{Q_L^3}{2K_1^4 L_{mix} S_1^3} \left[1 - 2K_1^2 - K_1^4 (1 + \lambda_1) (3 + \lambda_1) \right] - \frac{\lambda_1 Q_L P_0}{\rho_L S_1 L_{mix}} \ln \frac{P_1}{P_0} \quad (26)$$

[0231] 其中, L_{mix} 为气泡破碎区长度, m ; P_0 、 P_1 分别为气泡破碎区入口液体静压及出口气液混合物压力, Pa ; λ_1 为气液体积流量之比; K_1 为喷嘴直径与气泡破碎区直径的比值, $K_1 = D_N / D_1$; S_1 为气泡破碎器横截面积, m^2 ; ρ_L 为液体密度, kg/m^3 ; Q_L 为反应器内液体循环体积流量, m^3/s ;

$$[0232] \quad \lambda_1 = Q_G / Q_L \quad (27)$$

[0233] 步骤121: 计算气泡破碎区入口液体静压 P_0 及出口气液混合物压力 P_1 :

[0234] 忽略气泡破碎区管壁摩擦损失, 则:

$$[0235] \quad P_1 - P_0 = \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^4 S_1^2} \left[1 - K_1^2 (1 + \phi_{mix}) \right] \quad (28)$$

[0236] 其中, ϕ_{mix} 为气泡破碎区气含率, 按下式计算:

$$[0237] \quad \phi_{mix} = \frac{\sqrt{1 - 0.5K_1^2}}{K_1} \cdot \frac{\lambda_1}{1 + \lambda_1} \quad (29)$$

[0238] 忽略管道摩擦及喷嘴处能量损失, 依据能量守恒原理, 体系实际获得的能量 E_0 为:

$$[0239] \quad E_0 = P_0 Q_L + \frac{\rho_L Q_L^3}{2K_1^4 S_1^2} \quad (30)$$

[0240] 即:

$$[0241] \quad P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^4 S_1^2} \quad (31)$$

[0242] 由式 (28) (31) 得:

$$[0243] \quad P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{\rho_L Q_L^2}{2K_1^2 S_1^2} \left(1 + \frac{\sqrt{1 - 0.5K_1^2}}{K_1} \cdot \frac{\lambda_1}{1 + \lambda_1} \right) \quad (32)$$

[0244] 步骤122: 计算气泡破碎区长度 L_{mix} :

[0245] L_{mix} 通过测量气液破碎区管内壁压力突变来确定, 或通过如下方式确定:

$$[0246] \quad \frac{D_1}{L_{mix}} = 0.089 \left(\frac{P_H}{\rho_L v_N^2} \right) \left(\frac{\rho_{MZ}}{\rho_L} \right) \left\{ \frac{2 \left[0.37(0.25D_1^2 - 0.125D_N^2) \right]^{0.5}}{D_N} - 0.64 \right\} \left(\frac{v_N - U_{e,max}}{v_N} \right) \quad (33)$$

[0247] 其中: P_H 为气液破碎区上方气压, Pa ; ρ_{MZ} 为气液破碎区内气液混合物密度, Kg/m^3 ; v_N 为射流口的射流速度, m/s ; $U_{e,max}$ 为气液破碎区涡旋最大返回速度, m/s ;

[0248] P_H 由伯努利方程推得:

[0249] $P_H \approx P_{G0}$ (34)

[0250] 式中, P_{G0} 为供气压力, Pa;

[0251] ρ_{MZ} 通过下式计算:

[0252] $\rho_{MZ} = \rho_G \phi_{mix} + \rho_L (1 - \phi_{mix}) \approx \rho_L (1 - \phi_{mix})$ (35)

[0253] 式中, ρ_G 为气体密度, g/m^3 ;

[0254] 考虑气液破碎区气液混合物流速的影响, $U_{e,max}$ 为射流口射流流速与气液破碎区气液混合物流速的矢量合成的结果, 采用下式计算 $U_{e,max}$:

[0255] $U_{e,max} = 0.085 v_N + \frac{(1 + \lambda_1) Q_L}{S_1}$ (36)

[0256] 将式(34) (36)代入式(33), 并化简后可得:

[0257]

$$\frac{I}{L_{mix}} = \frac{0.089 K_1^4 P_{G0} S_1^2}{\rho_L D_1 Q_L^2} \left[1 - \frac{\sqrt{1 - 0.5 K_1^2} \lambda_1}{K_1 (1 + \lambda_1)} \right] \left\{ \frac{2 [0.37 (0.25 - 0.125 K_1^2)]^{0.5}}{K_1} - 0.64 \right\} [0.915 - K_1^2 (1 + \lambda_1)] \quad (37)$$

[0258] 获取反应器气泡破碎器长度 L_b , 并根据式(37)计算 L_{mix} ;

[0259] ①当 $L_{mix} < L_b$ 时, 以式(37)的计算结果为 L_{mix} 的实际数值;

[0260] ②当 $L_{mix} \geq L_b$ 时, 说明射流能量近似完全在气泡破碎器区域耗, 则:

[0261] $L_{mix} = L_b$ (38)

[0262] 步骤130: 计算气液出口区的 ε_{pl} ;

[0263] 假设气泡在气液出口区呈均匀分布状态, 此区域的能量耗散速率 ε_{pl} 由下式计算:

[0264] $\varepsilon_{pl} = 0.072 \frac{(Q_L + Q_G)^{2.625} v_L^{0.375}}{D_1^{6.625}}$ (39)

[0265] 反应器结构设计时保证 λ_1 可调范围足够大, 通过实验确定反应器基本结构参数间的关系为 $K_1 = 0.5$, $L_b = 13D_1$; 代入前述相应表达式并化简可得:

[0266] $L_{mix} = \frac{579(1 + \lambda_1) \rho_L Q_L^2}{P_{G0} (1 - 0.87\lambda_1) (0.665 - 0.25\lambda_1) D_1^3}$ (40)

[0267] $P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{13 \rho_L Q_L^2}{D_1^4}$ (41)

[0268] $P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{3.25 \rho_L Q_L^2 (1 + 2.87\lambda_1)}{D_1^4 (1 + \lambda_1)}$ (42)

[0269] 步骤200: 确定 ε_R , ε_{mix} 和 ε_{pl} 各自的数值大小;

[0270] 步骤210: 依据进入反应器的气液流量等于气泡破碎区出口的气液流量平衡原理, 得到:

[0271] $D_0 = 60 D_1 \sqrt{\frac{u_1}{(C_L + \lambda_1) H_0}}$ (43)

[0272] 式中, C_L 为基于反应器内有效体积 $\pi D_0^2 H_0 / 4$ 的液体循环倍数, 即每小时液体循环总体积与反应器有效体积的比值; u_1 为气泡破碎器出口气液混合物线速度, m/s ; λ_1 取值 $0.1 \sim 0.5$;

[0273] 由式(43)可知: $D_0 \propto \sqrt{u_1}$, 则 u_1 增大时, 反应器横截面积 S_0 也增大; 结合式(25)可知, 此时 ε_R 减小; 为对反应器不同区域的能量耗散率进行比较, 假设: $u_1 = 3.0 \text{ m/s}$; $C_L = 20$; $H_0 = 1.5 \text{ m}$; 由式(43)可得, 当 $\lambda_1 = 0.1 \sim 0.5$ 时:

$$[0274] \quad D_0 \approx 19D_1 \quad (44)$$

[0275] 选定 D_1 数值, 计算并比较反应器不同区域在不同喷嘴液速下的能量耗散率, 确定与气液破碎区的能量耗散率 ε_{mix} 相比, 反应器主体区、气液出口区的能量耗散率可忽略不计, 即 $\varepsilon_{\text{mix}} \approx \varepsilon$; 则整个反应器的能量耗散率 ε 与反应器结构参数之间的数学关系, 可由式(26)计算确定, 即:

$$[0276] \quad \varepsilon = \frac{Q_L}{L_{\text{mix}} D_1^2} \left\{ \frac{16.5 Q_L^2}{D_1^4} \left[0.5 - 0.0625(1 + \lambda_1)(3 + \lambda_1) \right] - \frac{1.27 \lambda_1 P_0}{\rho_L} \ln \frac{P_1}{P_0} \right\} \quad (45)$$

[0277] 实施例2

[0278] 本实施例以图1所示的反应器为例, 说明实施例1所述建模方法构建的模型在二氧化碳和水体系反应器中的应用。图1的反应器结构可为现有微界面强化反应器的结构, 仅采用本发明的方法进行参数设计, 本发明中对反应器的结构不再赘述。

[0279] 根据实施例1构建的气泡尺度构效调控模型如下:

$$[0280] \quad d_{32} = \sqrt{d_{\text{max}} \cdot d_{\text{min}}} \exp \left[3.5 \left(8 + \ln \sqrt{d_{\text{max}} / d_{\text{min}}} - 4 \sqrt{4 + \ln \sqrt{d_{\text{max}} / d_{\text{min}}}} \right) \right] \quad (20)$$

$$[0281] \quad d_{\text{min}} = 11.4 (\mu_L / \rho_L)^{0.75} \varepsilon^{-0.25} \quad (21)$$

$$[0282] \quad d_{\text{max}} = 0.75 (\sigma_L / \rho_L)^{0.6} \varepsilon^{-0.4} \quad (24)$$

$$[0283] \quad \varepsilon = \frac{Q_L}{L_{\text{mix}} D_1^2} \left\{ \frac{16.5 Q_L^2}{D_1^4} \left[0.5 - 0.0625(1 + \lambda_1)(3 + \lambda_1) \right] - \frac{1.27 \lambda_1 P_0}{\rho_L} \ln \frac{P_1}{P_0} \right\} \quad (45)$$

$$[0284] \quad L_{\text{mix}} = \frac{579(1 + \lambda_1) \rho_L Q_L^2}{P_{G0} (1 - 0.87 \lambda_1) (0.665 - 0.25 \lambda_1) D_1^3} \quad (40)$$

$$[0285] \quad P_0 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{13 \rho_L Q_L^2}{D_1^4} \quad (41)$$

$$[0286] \quad P_1 = \frac{E_0}{Q_L} - \frac{3.25 \rho_L Q_L^2 (1 + 2.87 \lambda_1)}{D_1^4 (1 + \lambda_1)} \quad (42)$$

[0287] 式中, Q_L 为反应器内液体循环体积流量; L_{mix} 为气泡破碎区长度; D_1 为气泡破碎管直径; λ_1 为气液体积流量之比, $\lambda_1 = Q_G / Q_L$; Q_G 为反应器内通气体积流量; P_0 为气泡破碎器入口处液体的静压; P_1 为气泡破碎区出口气液混合物压力; ε 为能量耗散率; μ_L 为液体动力粘度; σ_L 为液体表面张力; ρ_L 为液体密度。

[0288] 实施例3选用的模型主要考虑 L_{mix} 小于 L_b 的情况, 因为相反的情况不常见, 比较极端。反应器结构参数还需满足: $\lambda_1 = 0.1 \sim 0.5$ 、 $K_1 = 0.5$ 、 $L_b = 13D_1$;

[0289] 对于二氧化碳和水体系, 当操作条件为: $Q_L = 2000 \text{ L/h}$ ($5.56 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$), 气体流量 $Q_G = 0.2 Q_L$, $T = 298 \text{ K}$, $P_{G0} = 1 \text{ atm}$; 而此体系中液相的物性参数为: $\rho_L = 1000 \text{ kg/m}^3$, $\mu_L = 8.9 \times 10^{-4} \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $\sigma_L = 7.197 \times 10^{-4} \text{ N/m}$; 反应器气泡破碎管直径 $D_1 = 0.02 \text{ m}$; E_0 表示体系输入的能量, 即循环泵铭牌上的额定功率, 取 $E_0 = 1000 \text{ W}$ 。

[0290] 根据操作条件和上述模型可计算得到的气泡Sauter平均直径 $d_{32}=0.426\text{mm}$ ，而传统工艺条件下得到的气泡平均直径为 1mm 左右。由此可见，本反应器的气泡平均直径要比通常反应器产生的气泡平均直径小一倍多。

[0291] Levenspiel认为，多相体系的宏观反应速率可由下式表示：

$$[0292] \quad -r_A = \frac{1}{\frac{1}{H_A k_G a} + \frac{1}{k_L a} + \frac{1}{k_S a_s} + \frac{1}{(k_A C_B) \chi_A f_s}} \cdot \frac{P_G}{H_A}$$

[0293] 经化简后的气液反应宏观速率方程可简化为：

$$[0294] \quad -r_A = P_G \cdot \left(\frac{1}{k_G a} + \frac{H_A}{k_L a} + \frac{H_A}{k_A} \right)^{-1}$$

[0295] 表1和表2是相同体系不同粒径下的各个参数的对比情况：

[0296] 表1不同粒径下模型公式计算的参数

[0297]

粒径 (mm)	ε (W/kg)	v_0 (m/s)	v_{32} (m/s)	a (m^2/m^3)	k_G ($\text{mol}/(\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s})$)	k_L (m/s)	k_A (m/s)
1	1.29	0.421	0.426	12.48	0.1	1.82×10^{-3}	3.9×10^{-2}
0.476	10.72	9.56×10^{-2}	0.1	111.42	0.22	1.25×10^{-3}	3.9×10^{-2}
0.1	1001.03	4.21×10^{-3}	9.11×10^{-3}	5828.45	1.03	5.75×10^{-4}	3.9×10^{-2}

[0298] 表2不同粒径下模型公式计算的三种阻力(气膜、液膜、本征)

[0299]

粒径 (mm)	$\frac{1}{k_G a}$ ($\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}/\text{mol}$)	$\frac{H_A}{k_L a}$ ($\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}/\text{mol}$)	$\frac{H_A}{k_A}$ ($\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}/\text{mol}$)	r_A ($\text{mol} \cdot \text{m}^3/\text{s}$)	Re
1	0.78	1.32×10^5	7.66×10^4	3.67×10^{-2}	39791
0.476	0.41	2.14×10^4	7.66×10^4	8.18×10^{-2}	39791
0.1	1.66×10^4	8.92×10^2	7.66×10^4	1.42×10^{-1}	39791

[0300] 如表1、表2所示，当气泡直径变为原来的 $1/10$ 和 $1/2$ 时，气液相界面积分别增大了约467倍和9倍，宏观反应速率分别增大了约4倍和2倍，而反应阻力逐渐由液膜控制过渡到由本征反应阻力控制。可见微气泡尺度确实强化了气液传质速率。

[0301] 实施例3

[0302] 本实施例以图1所示的反应器为例，说明实施例1所述建模方法构建的模型在空气-水体系反应器中的应用，与现有预测 d_{32} 模型相比的优越之处。

[0303] 对于空气-水体系，现有技术一般采用如下公式预测 d_{32} ：

$$[0304] \quad d_{32} = 0.65 d_{\max} \quad (46)$$

[0305] 构建上式与本发明方法构建的 d_{32} 预测公式计算结果对比曲线图，如图3所示。由图3可知，当能量耗散率 ε 足够小(ε 小于 10 (W/kg))时，本研究与采用公式(46)的计算结果基本一致；当 ε 逐渐增大时，两者预测结果有一定差异：对于空气-水体系，当 ε 大于 10 (W/kg) 时，公式(46)所得结果相对较小，但两者之间的误差是可以接受的。

[0306] 公式(46)不足之处在于：1、该方程中的系数是基于实验拟合得到的，并不能关联反应器设计参数；2、方程中 d_{\max} 的数学表达式是基于各向同性湍流理论得到的，而该理论适用的前提是能量耗散率无穷大，此时，液体粘度对气泡大小的影响可以忽略。近几年来，全

能谱的气泡粒径分布已有研究,但形式较复杂,其中亦存在一些经验参数,因此仍需要进一步简化形式和模型参数的合理确定。

[0307] 而本发明的方法也是基于各向同性湍流理论得到,但通过对气泡粒径分布的概率统计分析,通过合理的数学处理得到的关系式,关联到液体粘度这一对工业反应器内气泡大小有重要影响的物性参数,可作为进一步工业应用的基础。

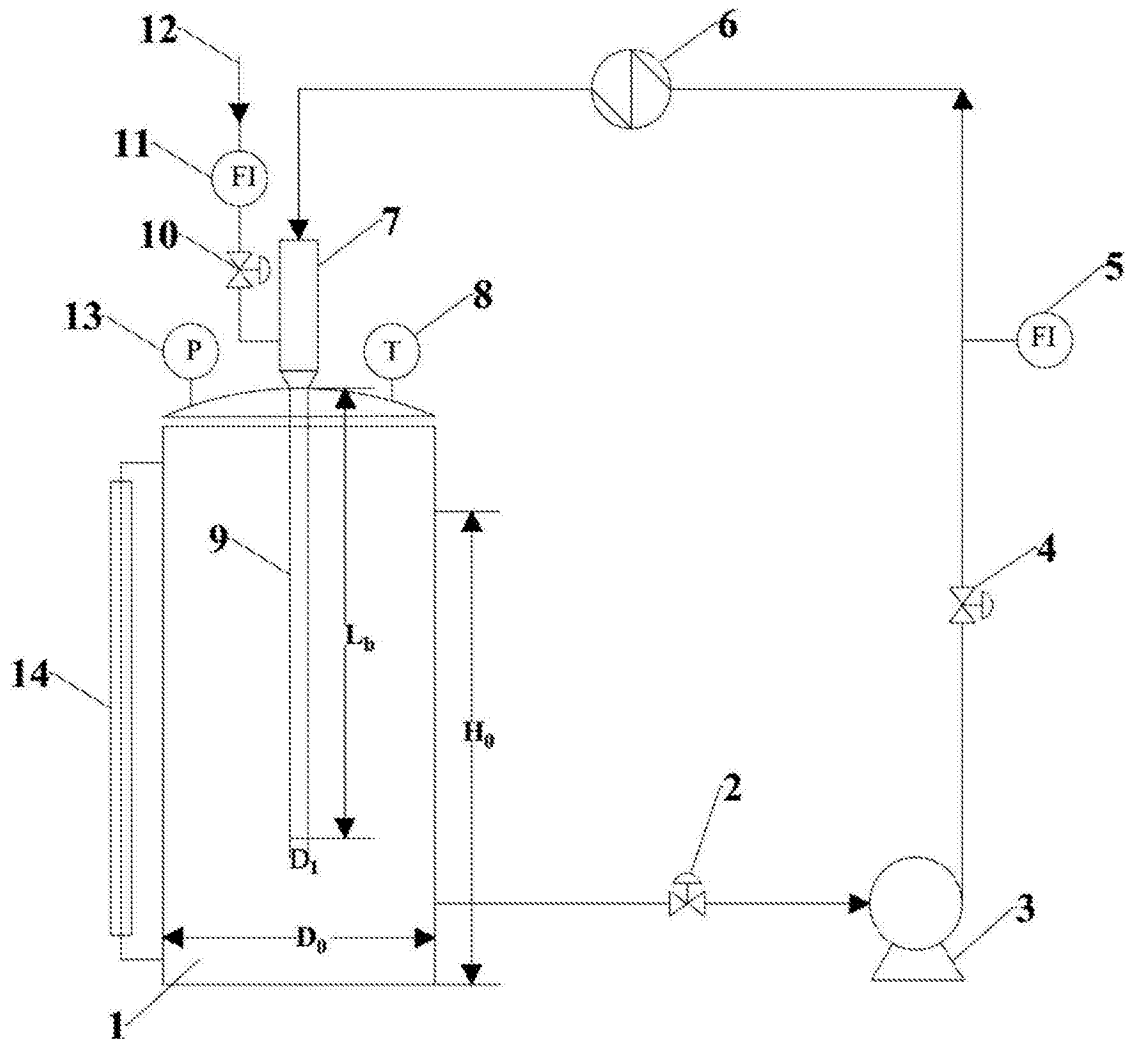


图1

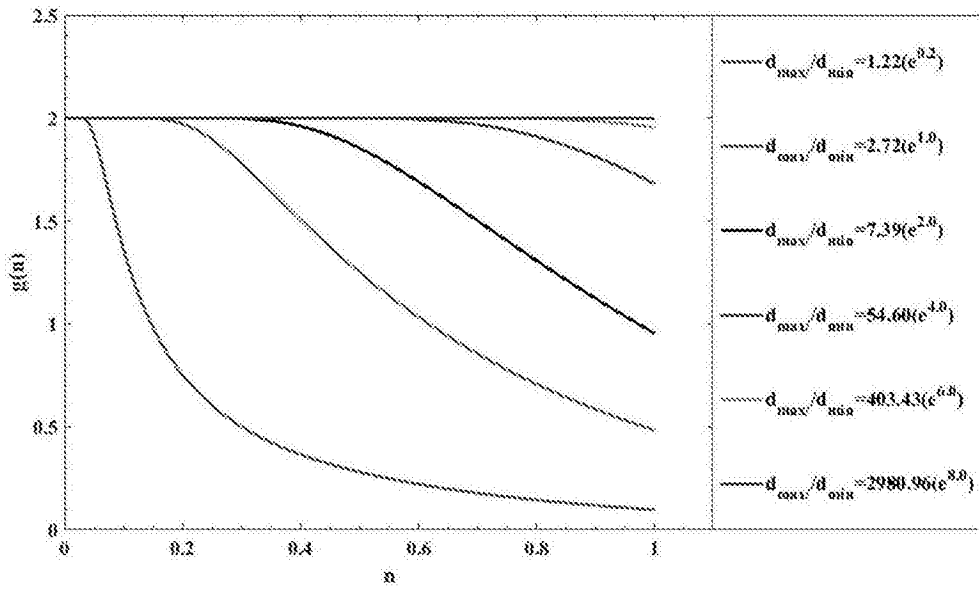


图2

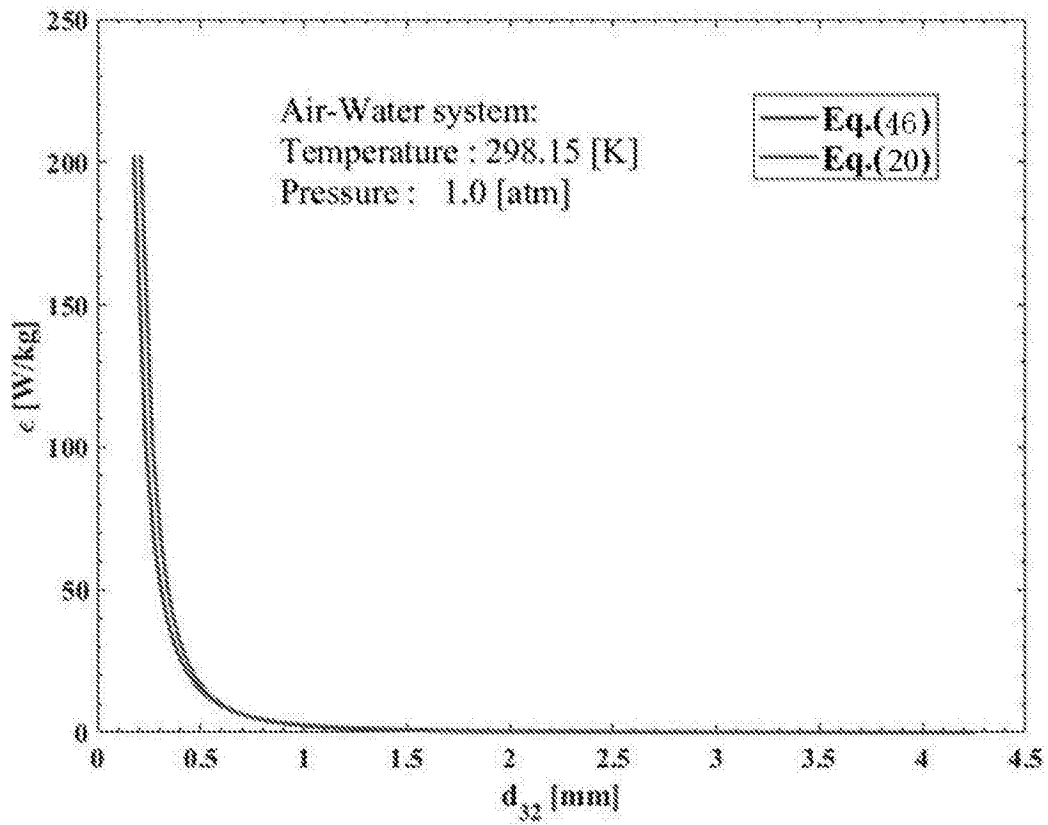


图3