

圆管中泰勒流气液传质的数值模拟及场协同分析

Numerical simulation and field synergy analysis of mass transfer under Taylor flow in capillaries

许闻 刘辉

(北京化工大学 化工资源有效利用国家重点实验室, 北京 100029)

E-mail: hliu@mail.buct.edu.cn

摘要: 利用通用流体力学分析软件 STAR-CD 和 STAR-cmt, 计算了圆管中泰勒流下的液侧体积传质系数, 考察了气泡速度、液膜长度、液栓长度和单元胞长度的影响, 并给出了无因次关联式。结果表明: 液侧体积传质系数随气泡上升速度和液膜长度的增大而增大, 随液栓长度和单元胞长度的增大而减小。最后利用场协同原则分析了泰勒流单元胞内的速度场和浓度场, 结果表明, 在液膜处和半球帽附近的两个区域, 速度场与浓度场的协同程度较高, 对传质起重要作用。

关键词: 泰勒流, 气液传质, STAR-CD, STAR-cmt, 场协同

Abstract Liquid side volumetric mass transfer coefficients under Taylor flow in capillaries were calculated by using STAR-CD and STAR-cmt. The influence of bubble velocity, liquid film length, liquid slug length and unit cell length was studied, and then a dimensionless correlation was proposed. The results showed liquid side volumetric mass transfer coefficients increase with the increase of bubble velocity and liquid film length, and decrease with the increase of liquid slug length and unit cell length. Finally, the principle of field-coordinated enhancement was used to analyze velocity and concentration field during Taylor flow, three areas in liquid slug and liquid film with better coordination between velocity and concentration fields were found. Liquid side mass transfer under Taylor flow was intensified.

Key words Taylor flow; gas-liquid mass transfer; STAR-CD; STAR-cmt; field synergy principle

引言

结构化多相反应器作为一种新型的“过程强化”的反应器, 在气液固三相催化反应领域有广阔的应用前景^[1-5], 这种反应器由规整、重复、相互分隔的通道(尺度 1-3mm, 正方形或圆形)集束构成, 气液两相反应物在通道中接触并在壁面上发生化学反应。在不同的操作条件下, 气液两相的流动形态可分为膜流、气泡流和泰勒流等。其中, 泰勒流也称为栓塞流, 即两个相邻的液栓间隔有一个较长(长度一般大于管径)的气泡, 气泡与管壁之间存在很薄的液膜(尺度为 10-100μm)。

一般认为, 泰勒流不但能提供较大的气液接触面积(较滴流床、淤浆床高一个数量级)^[6,7], 而且液栓内的循环被认为可以增强传质^[8,9], 是应用最广泛的流型。

本文的目的是采用 CFD 模拟的方法计算圆管中泰勒流的液侧传质系数, 考察气泡速度、液膜长

度、液栓长度和单元胞长度的影响，并给出液侧体积传质系数关联式。最后利用场协同原则分析泰勒流单元胞中的速度场和浓度场，以期更准确的理解泰勒流下的传质强化机理。

1. CFD 模型

本文计算对象为圆管中泰勒流单元胞，如图 1(a)所示；其中，两个相邻的液栓间隔有一个较长（长度一般大于管径）的气泡，气泡与管壁之间存在很薄的液膜（尺度为 10-100μm）；而且，相对于气泡，液栓内存在一个液体循环，而液膜以气泡运动的反方向运动。由于轴对称性，计算域选取如图 1(b)所示；其中阴影部分为液体，白色部分为 Taylor 气泡。

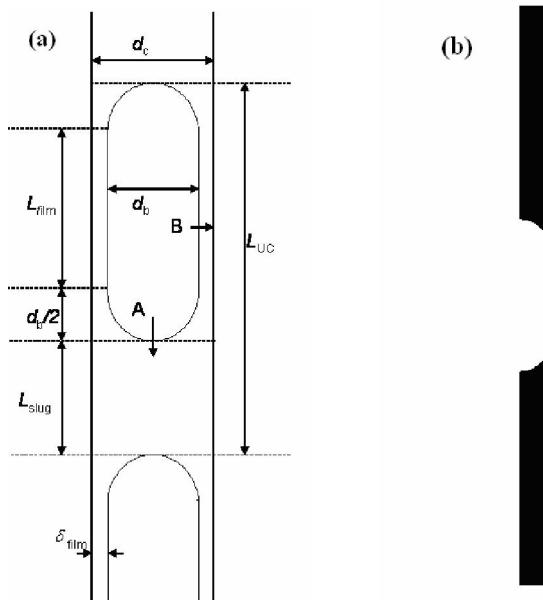


图 1 (a) 泰勒流单元胞，(b) 计算域

以液体部分为计算域，动量方程和连续性方程如下：

$$\rho_L \frac{\partial \mathbf{u}_L}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\rho_L \mathbf{u}_L \mathbf{u}_L - \mu_L \left(\nabla \mathbf{u}_L + (\nabla \mathbf{u}_L)^T \right) \right) = -\nabla p + \rho_L g \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u}_L = 0 \quad (2)$$

采用二维轴对称模型进行计算，在单元胞的上端和下端采用周期性边界条件。建立一个移动的参考坐标（Moving reference system），令这个坐标以气泡上升速度 V_b 向上移动。同时设置管壁处的速度为 $V_{wall} = -V_b$ ，气泡表面采用滑移边界，即 $d\mathbf{u}_L/dn = 0$ ，其中 n 为气泡的法线方向。管中心处为轴对称边界， $d\mathbf{u}_L/dr = 0$ 。

以计算得到的定态速度场为初始场进行非定态气液传质的计算，计算域中传质的对流扩散方程如下：

$$\frac{\partial}{\partial t} C_L + \nabla \cdot (u_L C_L - \nabla C_L) = 0 \quad (3)$$

在 $t=0$ 时刻，设置气泡表面液体浓度为 1，液相中浓度为 0。同样在单元胞的上端和下端采用周

期性边界条件， $C_{L,top} = C_{L,bottom}$ 。管壁处为不透的边界， $dC_L/dr = 0$ 。气泡表面处设置液体浓度为常数， $C_{L,s} = 1$ 。管中心处为轴对称边界， $dC_L/dr = 0$ 。

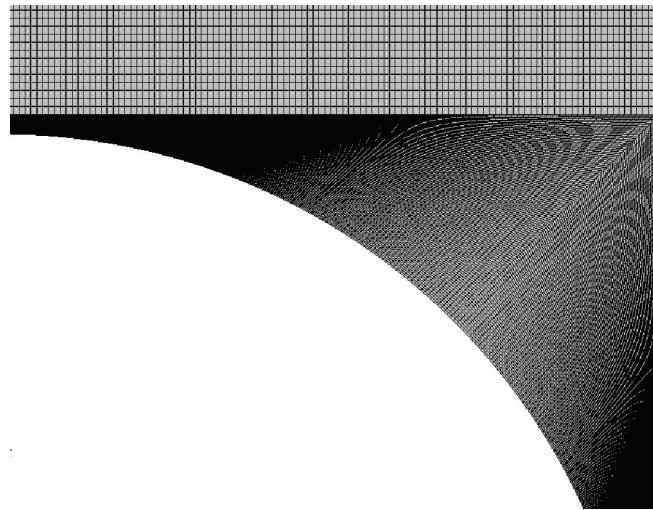


图 2 气泡附近计算域所用网格

采用 Star-CD 软件中 Pro-Star 手动划分网格，划分网格后的网格在 Pro-Star 中导出 ccmg 格式网格文件，将此文件导入 Star-ccm+，并将几何模型转化为二维模式，图 2(b)中也示出了本文计算用的二维网格，在液栓上采用稍粗的网格（尺寸约 $5\mu\text{m}$ ），在接近气泡的区域使用较细的网格，最小的网格尺寸小于 $0.5\mu\text{m}$ ，网格无关性分析发现更细的网格尺寸不影响计算结果。采用 Star-ccm+指定边界条件，选择模型，进行定态速度场和非定态浓度场计算。计算结果的后处理和输出同样在 Star-ccm+ 上进行。所有计算均在 Pentium Core 2 Quad CPU 2.4GHz 微机上进行。

2.计算条件及数据处理

模拟中液相为水，在 1 个大气压， 20°C 下进行计算。液体物性数据取： $\mu_L = 100.5 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ， $\rho_L = 998.1 \text{ kg/m}^3$ 。气体在液相中的扩散系数取 $D_{\text{G,L}} = 1 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ 。本文计算了管径为 1,2 和 3mm 不同单元胞长度和气含率下泰勒流的液侧体积传质系数。表 1 中列出了具体的几何和流动参数。

表 1 计算中所用的几何和流动参数

d_h, mm	L_{UC}, mm	L_{flim}, mm	δ_{flim}, mm	ε_G	$V_b, \text{m/s}$
1	10,20,30,40,50	3	0.01	0.07-0.36	0.05,0.1,0.3,0.45,0.6
1	40	3,5,10,20	0.01	0.07-0.50	0.05,0.1,0.45
1	40	10,20	0.01,0.015	0.26-0.50	0.05,0.45
1	32	15	0.01	0.48	0.05,0.45
1	45	8	0.01	0.19	0.05,0.45
1	52	25	0.01	0.30	0.05
2	35	10	0.03	0.31	0.05,0.45

2	45	20	0.03	0.45	0.05,0.45
2	30	5	0.03	0.20	0.05
3	10,20,30,40	5	0.045	0.17-0.68	0.05,0.15,0.3,0.45,0.6
3	40	5,10,20	0.045	0.17-0.53	0.05,0.1,0.45
3	35	10	0.045	0.33	0.05,0.075
3	45	20	0.045	0.47	0.05,0.075

气含率由气泡的与单元胞的体积之比 (式 (13)) 得到 :

$$\varepsilon_G = \frac{\pi d_b^3 / 6 + L_{film} \pi d_b^2 / 4}{L_{UC} \pi d_c^2 / 4} \quad (4)$$

液体表观液速由计算域上端全部网格的平均液速计算得到 :

$$u_{L, \text{domain}} = \frac{\sum_{\text{top}} \text{vol}_i u_i}{\sum_{\text{top}} \text{vol}_i} \quad (5)$$

$$u_L = (u_{L, \text{domain}} - V_{\text{wall}})(1 - \varepsilon_G) \quad (6)$$

式中 vol_i 为 i 网格的体积, $C_{L,i}$ 为 i 网格内的浓度。

气体表观速度和膜接触时间由下两式得到 :

$$u_G = V_b \varepsilon_G \quad (7)$$

$$t_{\text{film}} = \frac{L_{\text{film}}}{V_b + V_{\text{film}}} \approx \frac{L_{\text{film}}}{V_b} \quad (8)$$

本文给出的液侧体积传质系数为毛细管整个管长上的平均值, 计算时间为 t 时, 毛细管的管长可由 $L_{\text{tube}}=V_b t$ 计算, 采用平推流模型可以得到毛细管中的液侧体积传质系数 k_{La} :

$$k_{La} = \frac{u_L}{L_{\text{tube}}} \ln \frac{C_{L,s} - C_{L,t=0}}{C_{L,s} - C_{L,t=t}} = \frac{u_L}{V_b t} \ln \frac{C_{L,s} - C_{L,t=0}}{C_{L,s} - C_{L,t=t}} = \frac{u_L}{V_b t} \ln \frac{1}{1 - C_{L,t=t}} \quad (9)$$

式中 $C_{L,s}$ 为气泡表面处浓度, $C_{L,t=t}$ 为 t 时刻单元胞内液相主体的平均浓度, 液相主体的平均浓度由下式求得 :

$$C_{L,b} = \frac{\sum \text{vol}_i C_{L,i}}{\sum \text{vol}_i} \quad (10)$$

式中 vol_i 为 i 网格的体积, $C_{L,i}$ 为 i 网格内的浓度。

非定态传质计算中, 计算时间取 0.05s, 以保证在所有的计算条件下液膜和液栓中气体的浓度均未饱和。时间步长无关性分析发现取 0.01s 和 0.005s 时得到的结果无明显变化, 故本文取迭代时间步长为 0.01s。

3. 泰勒流液侧体积传质系数的 CFD 计算结果

图 3 中示出了泰勒流单元胞计算域内的速度场。可见在泰勒流下，相对与气泡，液栓内存在一个液体循环，而液膜以气泡运动的反方向运动。这与文献中报道的一致。同时图 4 中示出了计算域中的浓度场。

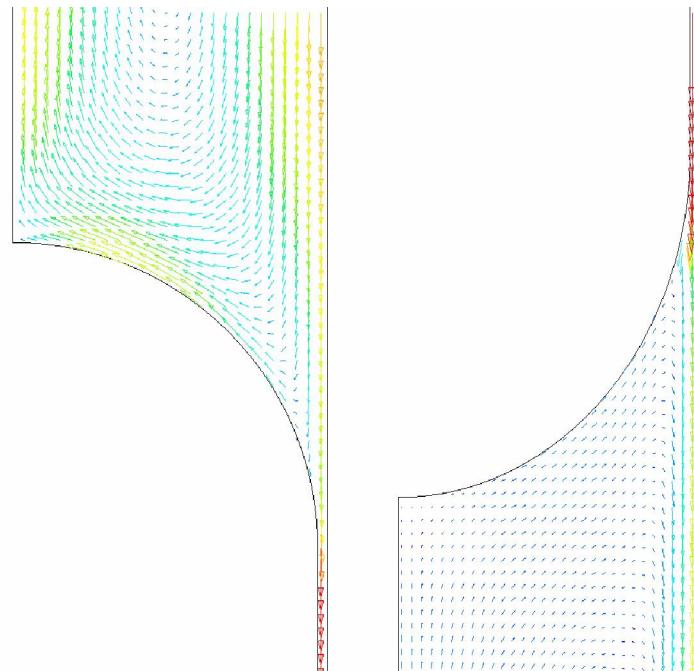


图 3 泰勒流单元胞的速度场 ($d_c=1\text{mm}, L_{UC}=30\text{mm}, L_{film}=3\text{mm}, V_b=0.45\text{m/s}$)



图 4 泰勒流单元胞的浓度场 ($d_c=3\text{mm}, L_{UC}=20\text{mm}, L_{film}=5\text{mm}, V_b=0.05\text{m/s}, t=1\text{s}$)

图 5-8 中分别示出了气泡上升速度, 液膜长度、液栓长度和单元胞长度对液侧体积传质系数的影响。由图可见, 气液传质系数随气泡上升速度和液膜长度的增大而增大, 随液栓长度和单元胞长度的增大而减小。

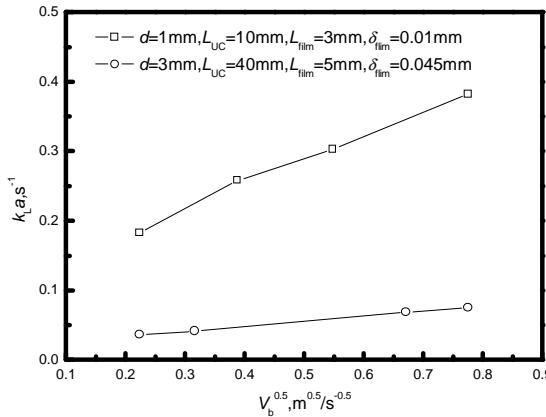


图 5 气泡上升速度对液侧体积传质系数的影响

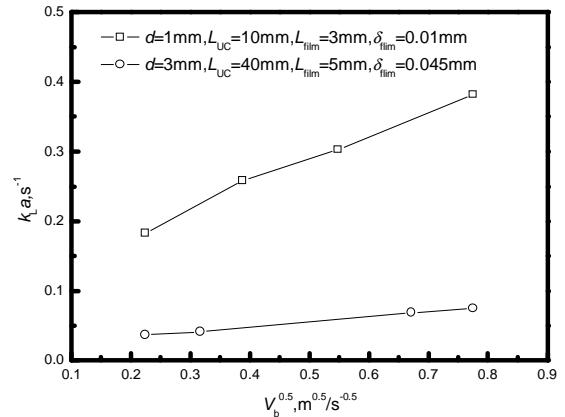


图 6 液膜长度速度对液侧体积传质系数的影响

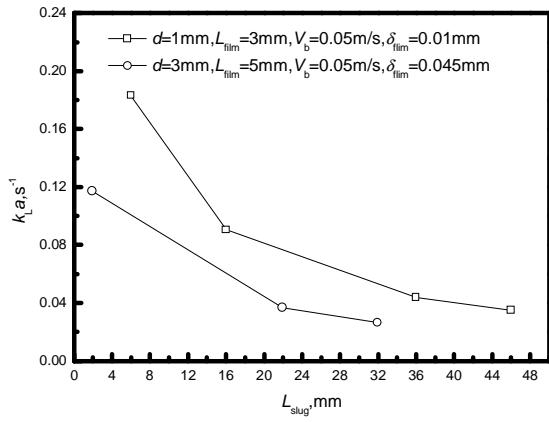


图 7 液栓长度速度对液侧体积传质系数的影响

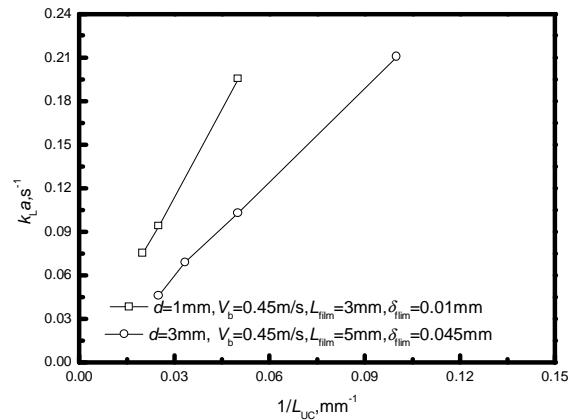
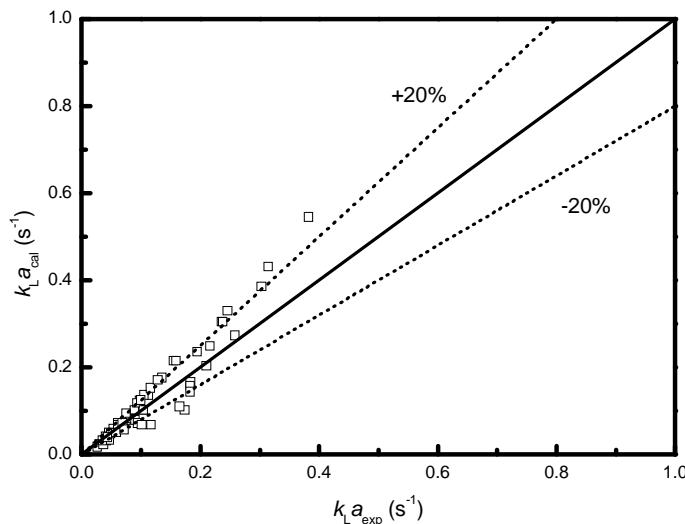


图 8 单元胞长度对液侧体积的影响

为了方便预测泰勒流下的液侧体积传质系数, 我们选取以下无量纲数关联计算得到的液侧体积传质系数:

$$Sh_L ad_h = 5.44 \times 10^{-3} Re_G^{0.458} Re_L^{0.815} Sc^{0.5} \quad (11)$$

图 9 中示出了式(11)的预测值与本文计算结果的比较, 其偏差基本在 $\pm 20\%$ 以内, 可见利用该式可以较准确地预测泰勒流下的液侧体积传质系数。



4. Taylor 流气液传质的场协同分析

过增元等^[10]通过对对流换热物理机制的分析,提出了场协同的概念,即对流换热的强度不仅取决于流体与固体壁面之间的温差、流动速度和流体的热物理及输运性质,而且还取决于流体速度场与热流场间的协同程度。同样,这一理论也可被扩展到对流传质过程^[11],亦即在相同的速度和浓度边界上,流体速度场与浓度场间的协同程度越高,对流传质的强度越高。两者的协同度体现在三个方面:(1)速度矢量与浓度梯度矢量的夹角尽可能小;(2)流体速度剖面尽可能均匀;(3)尽可能使速度标量、浓度梯度标量和速度矢量与浓度梯度矢量夹角余弦值的大值同时出现在某些域上。

图5中示出了典型的泰勒流单元胞中不同位置的速度场与浓度等高线。图5(a)中可见气泡下端液栓与液膜相交的一段狭长区域中速度和浓度梯度均较低,但速度的方向与浓度等高线的方向接近垂直,即速度方向与浓度梯度的夹角接近0°。这说明此处的场协同度很高,传质系数较高。图5(b)中可见液膜上端速度的方向与浓度等高线的方向接近平行,也就是速度方向与浓度梯度的夹角接近90°,但此处浓度梯度和速度均为最大,故此处的场协同度也较高。图5(c)中可见气泡顶端的液栓处速度方向与浓度梯度的夹角亦接近0°,传质系数较高。但气泡速度减小或液膜长度增大时,在液膜处表现为浓度梯度或速度降低,又此处浓度梯度与速度夹角很小,场协同度降低,平均传质系数变小。而在与半球帽接触的液相区域内速度和浓度梯度基数较小,降低的幅度较小,又此处速度和浓度梯度夹角接近90°,故平均传质系数的变化较小。

由以上分析可见,泰勒流局部传质系数的变化与浓度场和速度场的变化有关系,半球帽附近的两个区域速度矢量与浓度梯度矢量的夹角非常小,速度场与浓度场的协同程度较高,对传质起重要作用。考虑管壁的膜流,液膜中速度矢量与浓度梯度矢量的夹角接近90°,且随着液膜长度增加浓度梯度明显降低,传质系数降低。而泰勒流气泡的半球帽不但能增加气液的接触面积,而且半球帽结构使附近形成了浓度场和速度场协同度较高的区域,相比管壁膜流(假设液膜速度与泰勒流气泡速度一致),气液传质得到强化,尤其在较低的液膜速度时更明显。

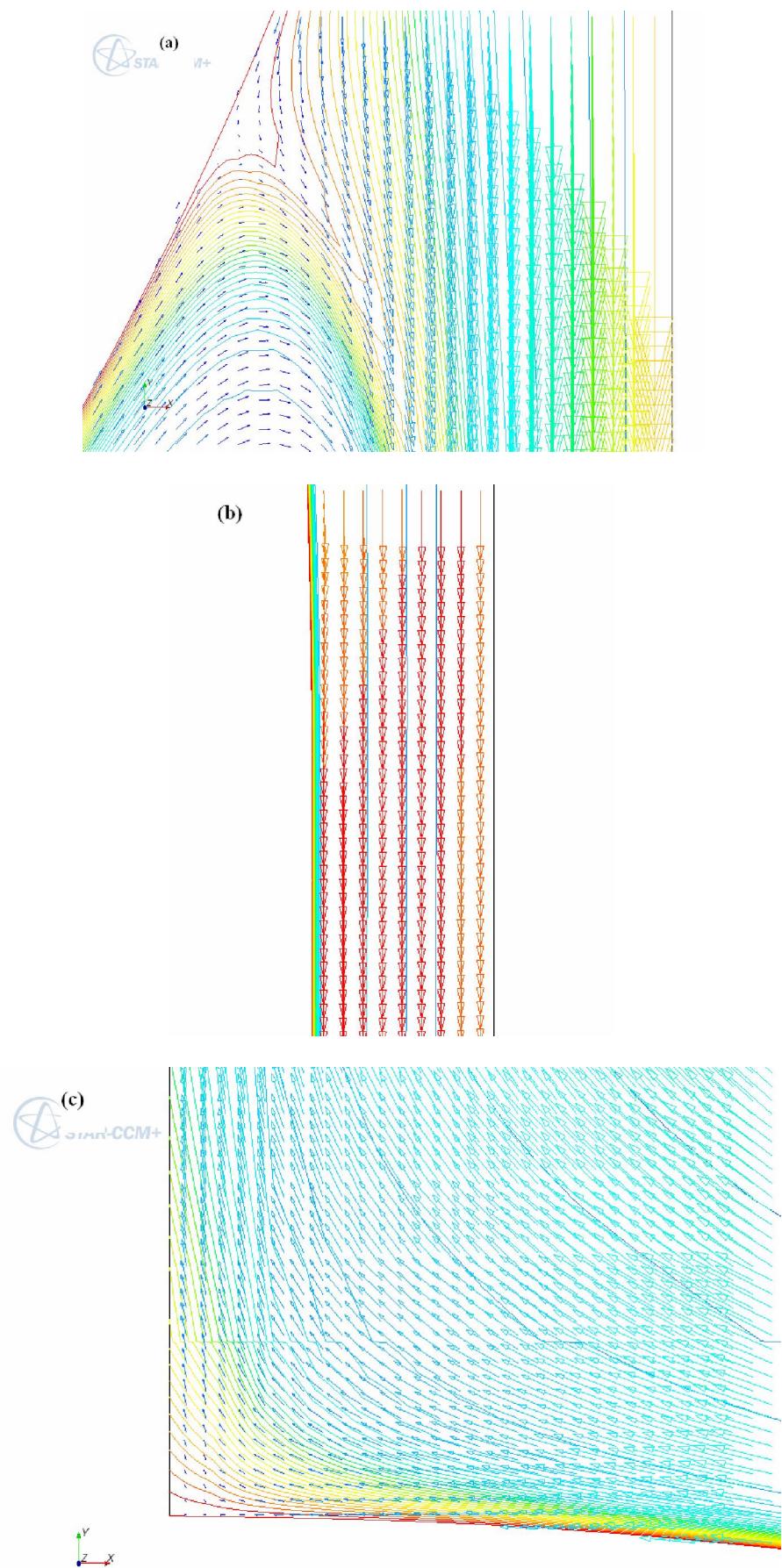


图 5 泰勒流单元胞计算域中不同位置速度场与浓度场分布，(a)液膜下端半球帽处(b)液膜处(c)
液膜上端半球帽处

$d=3\text{mm}$, $L_{\text{UC}}=30\text{mm}$, $L_{\text{film}}=5\text{mm}$, $f_{\text{lim}}=0.045\text{mm}$, $V_b=0.6\text{m/s}$

5. 结论

(1) 采用 CFD 模拟的方法计算了圆管中泰勒流的液侧体积传质系数，考察了气泡速度、液膜长度、液栓长度和单元胞长度的影响，结果表明气液传质系数随气泡上升速度和液膜长度的增大而增大，随液栓长度和单元胞长度的增大而减小。

(2) 将液侧体积传质系数进行了无因次关联，获得了相应的关联式。关联式预测偏差基本在 $\pm 20\%$ 以内。

(3) 对泰勒流单元胞内进行了场协同分析，结果表明，液膜处和半球帽附近的两个区域速度场与浓度场的协同程度较高，对传质起重要作用。与管壁膜流相比，泰勒流的气液传质得到强化。

参考文献

- [1] Nijhuis T. A., Kreutzer M. T., Romijn A. C. J. Kapteijn F., Moolijin J. A., Monolithic catalysts as efficient three-phase reactors[J]. Chemical Engineering Science, 2001, **56**(3): 823-829
- [2] Roy S., Bauer T., Al-Dahhan M., Lehner P., Turek T. Monoliths as multiphase reactors: a review [J]. AIChE Journal 2005, **50**(11): 2918-1938
- [3] Kreutzer M.T., Kapteijn F., Moolijin J. A., Ebrahimi S., Kleerebezem R., van Loosdrecht M.C.M., Monoliths as Biocatalytic Reactors: Smart Gas-Liquid Contacting for Process Intensification[J]. Ind. Eng. Chem. Res., 2005, **44**(25), 9646-9652
- [4] Kreutzer M.T., Kapteijn F., Moolijin J.A., Heiszwolf J.J., Multiphase monolith reactors: Chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels[J]. Chemical Engineering Science, 2005, **60**,(22): 5895-5916
- [5] Chen G.W., Yue J., Yuan Q., Gas-Liquid Microreaction Technology: Recent Developments and Future Challenges[J]. Chinese Journal of Chemical Engineering, 2008, **16** (5):663-669
- [6] Díuska E., Wroński S., Hubacz R., Mass transfer in gas- liquid Couette- Taylor flow reactor [J]. Chemical Engineering Science, **56**(3), 2001, 1131-1136
- [7] 乐军, 陈光文, 袁权, 罗灵爱, Le H. G., 微孔道内气液传质研究 [J], 化工学报, 2006, **57**(6):1296-1303
- [8] Günther A., Jhunjhunwala M., Thalmann M., Schmidt M.A., Jensen K. F., Micromixing of Miscible Liquids in Segmented Gas Liquid Flow[J]. Langmuir, 2005, **21**(4):1547- 1555
- [9] Irandoust, S., Andersson B., Simulation of flow and mass transfer in Taylor flow through a capillary[J], Computers & Chemical Engineering, 1989, **13** (4-5): 519-526
- [10] 过增元, 换热器中的场协同原则及其应用 [J], 机械工程学报, 2003, **39**(12) 1-9

- [11] Chen, Q. , Meng J.A. , Field synergy and optimization of the convective mass transfer in photocatalytic oxidation reactors, International Journal of Heat and Mass Transfer, 2008,51(11-12)2863-2870.