

## 信息技术应用

# 基于甲烷化反应的 $\pi$ 型离心式反应器的模拟及冷态研究

冯 义<sup>1</sup>, 马风云<sup>1\*</sup>, 许光文<sup>2</sup>, 张亚新<sup>1</sup>, 张 峰<sup>1</sup>

(1. 新疆煤炭清洁转化与化工过程新疆维吾尔自治区重点实验室, 新疆大学化学化工学院, 新疆 乌鲁木齐 830046; 2. 沈阳化工大学化学工程学院, 辽宁 沈阳 110000)

**摘要:**为了考察气体穿过反应器床层的压降, 设计了  $\pi$  型离心甲烷化反应器。以有机玻璃为材质, 搭建了  $\pi$  型离心甲烷化反应器的冷态试验装置, 并且采用 CFD 软件对  $\pi$  型离心反应器的流场进行模拟计算。研究表明, 实验结果验证了模拟结果是可靠的; 气体在  $\pi$  型离心反应器中分布均匀; 随着操作气速的增加, 反应器压降增大; 随着空隙率减小, 反应器压降增大。此外, 考察了粉尘浓度对反应器压降的影响, 随着时间增加, 反应器压降的稳定性不受影响。

**关键词:**  $\pi$  型离心甲烷化反应器; 压降; 空隙率; 操作气速; 冷态试验

中图分类号: TQ519

文献标志码: A

文章编号: 0253-4320(2019)02-0202-05

DOI: 10.16606/j.cnki.issn 0253-4320.2019.02.046

## Simulation and cold model study of $\pi$ centrifugal reactor based on methanation reaction

FENG Yi<sup>1</sup>, MA Feng-yun<sup>1\*</sup>, XU Guang-wen<sup>2</sup>, ZHANG Ya-xin<sup>1</sup>, ZHANG Feng<sup>1</sup>

(1. Key Laboratory of Coal Clean Conversion & Chemical Engineering Process of Xinjiang Uyghur Autonomous Region, College of Chemistry and Chemical Engineering, Xinjiang University, Urumqi 830046, China; 2. College of Chemical Engineering, Shenyang University of Chemical Technology, Shenyang 110000, China)

**Abstract:** In order to study the pressure drop of gas across the reactor bed, a  $\pi$  centrifugal methanation reactor is designed. A  $\pi$  centrifugal methanation reactor cold test device is built from organic glass, and the flow field of  $\pi$  centrifugal reactor is simulated by using CFD software. It is verified through experimental results that the simulation results are reliable. Gas can distribute evenly in the  $\pi$  centrifugal reactor. The pressure drop of reactor increases with the increase of operating gas velocity. As the porosity decreases, the pressure drop increases. Moreover, the influence of dust concentration on reactor pressure drop is investigated. The stability of reactor pressure drop is not affected with time.

**Key words:**  $\pi$  centrifugal methanation reactor; pressure drop; void ratio; operating gas speed; cold test

鉴于我国相对富煤、贫油和少气的能源储存现状, 专家预计 2020 年, 我国天然气缺口将超过 900 亿  $\text{m}^3$ , 需进口 30%~40%<sup>[1]</sup>。为解决天然气缺口问题, 早在本世纪初, 中科院大连化物所、西北化工研究院等单位就进行煤制天然气的研究。中科院过程所首次提出了输送床-固定床耦合甲烷化技术<sup>[2]</sup>。该工艺采用了两段甲烷化技术, 直接得到合格的天然气。

原料气在输送床中反应后, 依次经过旋风分离器和过滤器, 从固定床中净化后直接得到合格天然气。随着反应的进行, 由于催化剂会在输送床中磨

损, 反应后的气体会携带颗粒直径不同的粉尘, 气体经过旋风分离器和过滤器后, 20~40  $\mu\text{m}$  的粉尘颗粒仍会进入固定床反应器, 影响固定床甲烷化过程中床层压降的稳定性。因此, 开发低压降的径向反应器具有重要意义。

相对于轴向反应器, 径向反应器具有流道截面积大、流道短、床层阻力小等优点。因而, 它是一种高效节能反应设备<sup>[3-4]</sup>, 已广泛应用于石油、化工、核反应等领域<sup>[5]</sup>。由于径向反应器结构相对复杂, 根据流体在反应器床层流向不同, 可分为 Z 型离心与 Z 型向心、 $\pi$  型离心与  $\pi$  型向心 4 种结

收稿日期: 2018-07-18; 修回日期: 2018-12-03

基金项目: 国家高技术研究发展计划(863 计划)项目(2015AA050502)

作者简介: 冯义(1992-), 男, 硕士生; 马风云(1955-), 女, 教授, 博士生导师, 研究方向为煤化工, 通讯联系人, ma\_fy@126.com。

构<sup>[6]</sup>。流体沿轴向均匀分布是保证压降稳定性的关键<sup>[7-8]</sup>。

Hamedi 等<sup>[9]</sup>设计 Z 型向心反应器用于芳香化合物重整制二甲苯,流体沿径向穿过反应器床层,流道短。研究表明,在相同反应条件下,径向反应器中二甲苯的收率比轴向反应器高 48.0%。Savoretti 等<sup>[10]</sup>提出了 Z 型离心反应器,用于乙苯脱氢制苯乙烯反应,流体沿径向穿过反应器床层,流道短,在反应器中分布均匀,流体穿过床层阻力小、压降低有利于苯乙烯的生产。Iranshahi 等<sup>[11]</sup>设计了 $\pi$ 型向心径向球形反应器用于石脑油重整反应。研究结果表明,在催化剂质量相同的情况下,相比于管式反应器,反应 800 d 后,石脑油重整产率要高 10.1%。Bayat 等<sup>[12]</sup>设计了 Z 型向心反应器用于重链烷烃脱氢制烯烃反应,研究结果表明,相对于管式反应器,烯烃产率和选择性分别提高了 26.0% 和 5.4%。

张峰<sup>[13]</sup>对 4 种不同结构的径向反应器的压力场进行模拟,研究表明, $\pi$ 型离心反应器的压力场分布均匀。因此,本文中主要开发 $\pi$ 型离心反应器,进行冷态试验,对热态试验具有指导作用。

## 1 实验部分

### 1.1 设计的径向反应器的结构

本文中所设计径向反应器为 $\pi$ 型离心式反应器,结构如图 1 所示,由 3 个同轴的内、中和外筒组成,流体流向如箭头方向。反应器结构参数:外筒直径 370 mm,中筒直径 300 mm,内筒直径 126 mm,高度 500 mm,气体入口直径 90 mm,入口高度 40 mm,孔径 5 mm。内筒和中筒都开孔 684 个,孔径为 5 mm,孔呈正方形排列,孔心距为 25 mm,开孔率为 27%。图 1 中黑点的区域为填料位置。反应器外筒自上而下等间距分布 5 个测压点,间距为 83 mm,第 1 测压点位置已在反应器上注明。第 1~5 测压点相对反应器轴向高度位置依次为 1/6、2/6、3/6、4/6 和 5/6,气体入口在反应器顶部。如图 1 所示,点 1 位

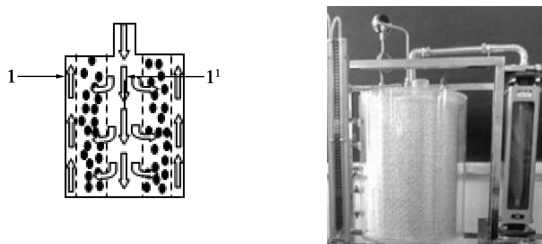


图 1  $\pi$ 型离心反应器结构图及实物图

于 $\pi$ 型离心式反应器的集流流道,对应的点 1<sup>1</sup>位于 $\pi$ 型离心式反应器的分流流道,并且测压点 1-1<sup>1</sup> 2 点是等高的。冷态试验采用压差法,流体介质为空气,填料为直径约 5 mm 的氧化铝小球,氧化铝小球总量为 22.4 kg。采用 U 型管压差计测量 $\pi$ 型离心式反应器床层压降,并且采用 CFD 软件对 $\pi$ 型离心反应器流场进行模拟。

### 1.2 反应器空隙率的确定

空隙率计算公式  $\varepsilon_B = V_{\text{空隙}}/V_{\text{反应器}}$ ,随颗粒的形状、大小而异<sup>[14]</sup>。用 100 mL 烧杯装满颗粒直径约为 5 mm 的氧化铝小球,并向烧杯中添加 600 目 USY 粉末,直至烧杯中的空隙被填满。重复试验 5 次,依次测得床层空隙率为 47%、48%、49%、49%、47%,平均值为 48%。

## 2 数值模拟

采用 Soliworks 软件对 $\pi$ 型离心式反应器进行建模。通过 MESH 模块做结构化网格划分<sup>[15-20]</sup>,网格数为 4 985 645,图 2 和图 3 分别给出了模型剖面图和网格划分图。在 CFD 软件平台上对 $\pi$ 型离心反应器的压力场和速度场进行模拟。选用湍流数值模型和标准湍流 k-e 方程。设置模拟参数与实验条件相对应,颗粒直径设为 5 mm,空隙率为 0.48。以下是模拟过程的已知条件:速度入口,速度为 [13,15,17,19] m/s;压力出口,为 0.1 MPa。模拟计算在 2 458 步收敛,后处理过程中用平均值法从压力云图中提取反应器的压力。

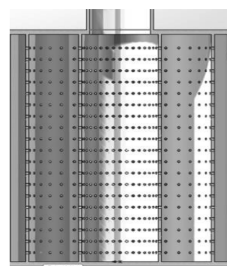


图 2 模型剖面图

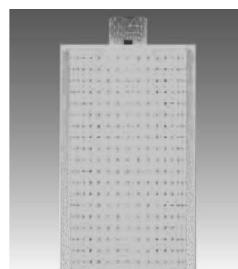
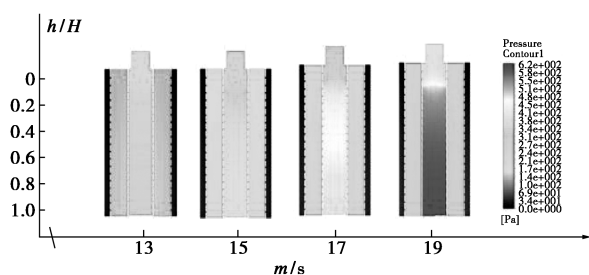


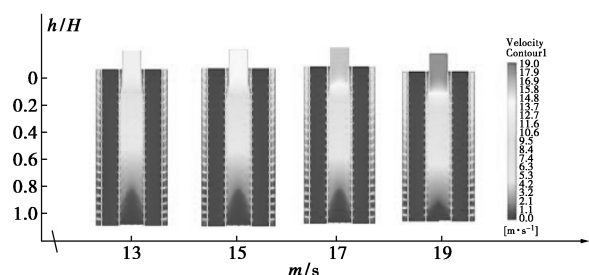
图 3 网格划分图

### 3 模拟与实验结果的讨论

结合 CFD 软件和冷态试验装置对  $\pi$  型离心反应器进行评价。 $\pi$  型离心反应器床层的空隙率为 0.48, 用冷态试验考察操作气速为 13~19 m/s 反应器上分布的 1~5 测压点的压降, 其为实验值。采用 CFD 软件模拟上述条件下的  $\pi$  型离心式反应器的流场分布, 静压云图和速度云图如图 4 所示。从静压云图中提取 [1, 2, 3, 4, 5] 测压点的压降, 其为模拟值。



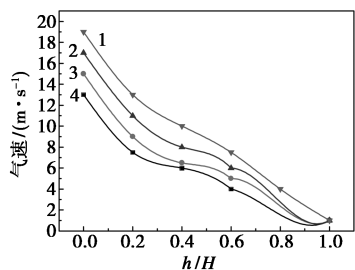
(a) 静压云图



(b) 速度云图

图 4 空隙率为 0.48 时, 不同速度下的静压云图和速度云图

由静压云图可知, 反应器的入口段的压力不均匀, 反应器的入口段位置为相对反应器轴向高度 ( $h/H$ ) 0~0.2 处。由静压云图可知, 入口气速是 19.0、17.0、15.0、13.0 m/s 的条件下, 流体在入口段处的速度分别为 12.5、10.5、8.5、7.0 m/s。图 5 为速度变化曲线, 由图 5 可知, 流体从入口到入口段位置流速变化大, 导致在入口段的压力不均匀。



入口气速: 1—19.0 m/s; 2—17.0 m/s; 3—15.0 m/s; 4—13.0 m/s

图 5 气体在反应器不同位置速度曲线

由速度云图还知, 在反应器的底部存在一段“死区”。模拟研究表明, 随着速度的增大, “死区”长度逐渐减小, 流经该区域的气体增多。

图 6 为不同的操作气速下反应器上测压点压降的实验值和模拟值的分布曲线。由图 6 可知, 反应器床层压降相等。研究表明,  $\pi$  型离心式反应器床层压降与相对反应器的轴向高度无关, 气体沿轴向分布均匀。

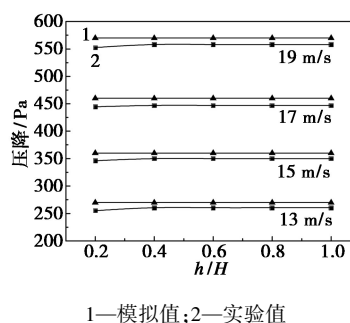
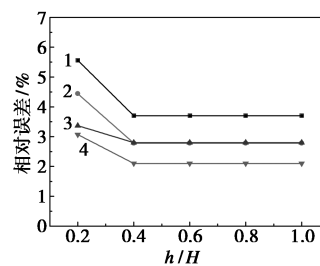


图 6 压降的实验值与模拟值对比

此外, 不同的操作气速下  $\pi$  型离心反应器测压点压降的模拟值与实验值的相对误差分别为 3.7%、2.8%、2.8%、2.1%, 图 7 给出了不同的操作气速下在反应不同位置压降的实验值与模拟值相对误差的分布曲线。相对误差均在 6.0% 以内, 实验结果验证了模拟结果是可靠的。



入口气速: 1—19.0 m/s; 2—17.0 m/s; 3—15.0 m/s; 4—13.0 m/s

图 7 实验值与模拟值相对误差分布曲线图

由以上结果可知, 采用 CFD 软件成功地模拟了反应器的压力场和速度场分布, 发现反应器床层压降与相对反应器轴向高度无关, 即气体在反应器中分布均匀。径向反应器压降小, 充分体现了其优点。

### 4 $\pi$ 型离心反应器冷态试验

#### 4.1 操作气速对反应器床层压降的影响

改变操作气速为 13~19 m/s, 考察其对  $\pi$  型离心反应器床层压降的影响。图 8 为不同操作气速下反应器床层压降的实验值和模拟值的对比曲线图。

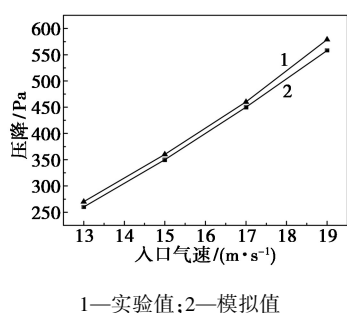


图8 操作气速对径向反应器床层压降的影响

由图8可知,空隙率为0.48,操作气速从13 m/s增加到17 m/s, $\pi$ 型离心反应器床层压降从270 Pa增

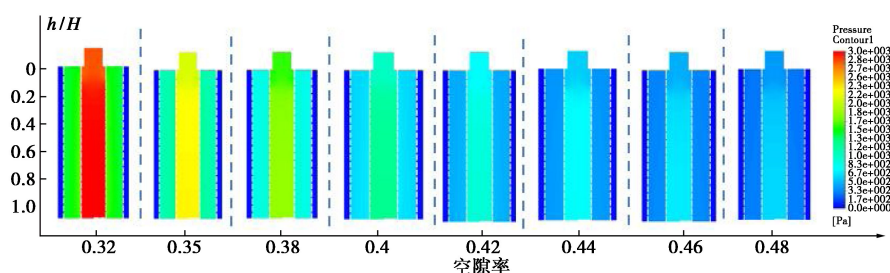


图9 19 m/s下不同的空隙率的静压云图

由图9可知,随着空隙率的减小,反应器的入口段压力不均匀区长度逐渐变短。空隙率为0.48时,反应器的入口段的压力不均匀区域为(0~0.2),空隙率减小到0.32,不均匀区域减小为(0~0.1)。由图9还可看出,随着空隙率减小,反应器压降先缓慢增大,后快速增大。

图10为不同空隙率下反应器床层压降的模拟值的分布曲线。由图10可知,随着空隙率减小, $\pi$ 型离心反应器压降增大。这是由于空隙率减小导致流体穿过反应器床层的阻力变大,从而床层压降就增大。

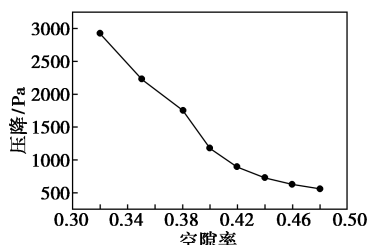


图10 空隙率对反应器床层压降的影响

#### 4.3 粉尘浓度对反应器床层压降稳定性的影响

本文中还对考察了气体携带粉尘浓度对反应器床层压降稳定性的影响。由于输送床所用的催化剂为FCC,因而选用20  $\mu\text{m}$ 左右的USY载体粉末作为粉尘,粉尘浓度为3  $\text{g}/\text{m}^3$ 。图11为气体携带粉尘浓度

加到570 Pa,上面的数值都为实验值,通过计算,实验值相对模拟值的误差都在5%以内,模拟值与实验值相吻合。研究表明,模拟值是可靠的,还发现随着操作气速的增加,反应器床层压降逐渐增大。由径向反应器压降计算公式可知,压降与气体流速的平方呈正比。

#### 4.2 空隙率对反应器床层压降的影响

在操作气速为19 m/s时,改变反应器床层空隙率为0.32~0.48,考察空隙率对 $\pi$ 型离心反应器床层压降分布的影响。图9为不同空隙率下的静压云图。

影响反应器压降稳定性的曲线。

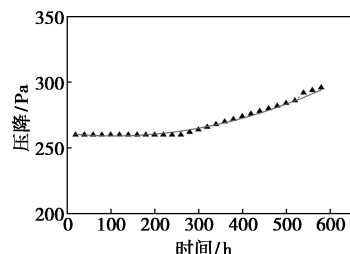


图11 气体携带粉尘浓度对反应器压降的影响

由图11可知,在260 h内, $\pi$ 型离心反应器床层压降保持不变。随着时间增加,反应器床层压降缓慢上升。通过对压降随着时间变化的曲线进行拟合,得到拟合曲线为 $y = 1.5608 \times 10^{-4} x^2 - 0.033x + 260.8$ 。可以推算出,在反应2年后, $\pi$ 型离心反应器床层压降为48 kPa。如果是轴向反应器,在相同条件下,压降要比径向反应器高 $10^4$ 倍, $\pi$ 型离心反应器床层压降为260 Pa。研究表明,使用2年后的 $\pi$ 型离心反应器床层压降值远远小于未投入使用的轴向反应器压降值。因此本文中开发的 $\pi$ 型离心反应器能保证床层压降的稳定性。

## 5 结论

采用CFD软件成功地模拟了 $\pi$ 型离心反应器的流场分布,表明 $\pi$ 型离心式反应器床层的压降与

相对反应器轴向高度无关,即气体在  $\pi$  型离心式反应器中分布均匀; $\pi$  型离心式反应器床层压降小,充分体现了其优点;实验结果验证了模拟结果是可靠的。

空隙率为 0.48,表明随着操作气速增加, $\pi$  型离心式反应器的床层压降增大。随着运行时间增加, $\pi$  型离心式反应器床层压降缓慢增大,但不影响  $\pi$  型离心式反应器床层压降的稳定性。综上所述,本文中开发的  $\pi$  型离心甲烷化反应器保证床层压降的稳定性。

### 参考文献

- [1] BP 世界能源统计 2015[Z/OL].www.bp.com/statisticalreview.
- [2] Xu G, Liu J, Cui D, *et al.* method and device for catalytic methanation of synthesis gas; WO, 2015/010342[P]. 2015-01-03.
- [3] 汪洋,任珉,袁浩,等.径向反应器的研究与应用进展[J].应用化工,2006,35(9):719-722.
- [4] 王承学.化学反应工程[M].北京:化学工业出版社,2015:154-158.
- [5] 李瑞江,陈春燕,吴勇强,等.大型径向流反应器中流体均布参数的研究[J].化学工程,2009,37(10):28-31.
- [6] 洪若瑜,李洪钟.径向流固定床数学模型研究进展[J].化工冶金,1996,(4):367-373.
- [7] 李瑞江,陈春燕,吴勇强,等.大型径向流反应器中流体均布参数的研究[J].化学工程,2009,37(10):28-31.
- [8] Wang J F, Jing S, Wang T F, *et al.* Mathematical modeling and flow field characteristics of radial flow moving-bed reactors[J]. Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities, 1999, 26(7): 185-188.
- [9] Hamed N, Tohidian T, Rahimpour M R, *et al.* Conversion enhance-ment of heavy reformates into xylenes by optimal design of a novel radial flow packed bed reactor, applying a detailed kinetic model [J]. Chemical Engineering Research & Design, 2015, 95: 317-336.
- [10] Savoretti A A, Borio D O, Bucalá V, *et al.* Non-adiabatic radial-flow reactor for styrene production [J]. Chemical Engineering Science, 1999, 54(2): 205-213.
- [11] Iranshahi D, Rahimpour M R, Asgari A. A novel dynamic radial-flow, spherical-bed reactor concept for naphtha reforming in the presence of catalyst deactivation [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2010, 35(12): 6261-6275.
- [12] Bayat M, Rahimpour M R. Enhanced olefin production via a novel radial-flow membrane reactor of heavy paraffin dehydrogenation in LAB plant [J]. Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers, 2014, 45(6): 2906-2919.
- [13] 张峰. 径向流反应器甲烷化过程模拟及结构强度分析[D]. 乌鲁木齐: 新疆大学, 2018.
- [14] 陈甘棠. 化学反应工程[M]. 北京: 化学工业出版社, 2014, 162-164.
- [15] 王福军. 计算流体力学分析-CFD 软件原理与应用[M]. 北京: 北京大学出版社, 2004: 39-157.
- [16] 苏铭德, 黄素逸. 计算流体力学基础[M]. 北京: 清华大学出版社, 1997.
- [17] 王宇琳. 柴油机缸内气流运动的模拟[D]. 昆明: 昆明理工大学, 2002.
- [18] 许元默, 帅石金, 王建晔. 发动机 CAD/CFD 设计技术[J]. 汽车工程, 2004, (5): 581-584.
- [19] 许元默, 帅石金, 王建晔. 电喷汽油机进气歧管的 CAD/CFD 设计[J]. 汽车工程, 2002, (4): 314-317, 321.
- [20] 韩占忠, 王敬, 兰小平. Fluent 流体工程仿真计算实例与应 21 用 [M]. 北京: 北京理工大学出版社, 2004. ■

### 巴斯夫与广东省政府签署框架协议: 在中国湛江建立智慧一体化基地

2019 年 1 月 10 日, 巴斯夫欧洲公司董事执行会主席薄睦乐 (Martin Brudermüller) 与广东省常务副省长林少春在路德维希港签署框架协议, 进一步明确巴斯夫在中国广东建立智慧一体化 (Verbund) 基地的规划细节。自 2018 年 7 月双方签订谅解备忘录后, 巴斯夫正式宣布在湛江市新建在华第二个一体化基地。

薄睦乐说: “到 2030 年, 中国占全球化工生产总值将增至近 50%。广东是化学创新产品的重要增长市场, 我们的新基地将为多个行业的客户提供支持。我们目标是以产品组合、解决方案和服务助力客户实现可持续增长, 同时也将通过建立创新理念来升级自身的可持续运营。”

广东省政府领导表示: 化学推动着无数下游行业的发展, 巴斯夫新建的综合基地将为广东省的工业转型作出贡献。

根据此份框架协议, 新的湛江一体化基地将从根本上运用循环经济理念, 以可持续的生产方式, 为华南地区客户

提供支持。在一体化基地, 一套装置的废弃物和副产品能被作为另一套装置的原材料使用。一个基于先进技术的智慧生产理念正在酝酿中, 旨在实现资源和能源效率最大化, 降低环境影响。该项目将占地约 9 km<sup>2</sup>。

项目总投资额将达 100 亿美元, 并将分阶段实施。新建基地将包括一个由巴斯夫全资运营、年产 100 万 t 乙烯的蒸汽裂解装置, 还有数个面向消费市场的产品和解决方案生产装置。

巴斯夫在全球运营六个一体化基地: 两个在欧洲 (德国路德维希港、比利时安特卫普), 两个在北美 (美国德克萨斯自由港、美国路易斯安那盖斯马), 两个在亚洲。其中, 巴斯夫在中国南京的一体化基地建于 2000 年, 与中国石化合资经营 (50:50); 其在马来西亚关丹的一体化基地则建于 1997 年, 与马来西亚石油公司 (Petronas) 合资经营 (60:40)。(马存宇)