

3层气体分布环式气液反应器 混合时间研究

李蒙^{1*}, 王浩同², 马炯¹, 黄正梁², 王靖岱²

(1. 中石化南京工程有限公司, 江苏 南京 211100;

2. 浙江大学联合化学反应工程研究所, 浙江 杭州 310027)

摘要:以空气-水作为模拟介质,采用KCl电解质溶液为示踪剂,考察了内径为480 mm、高径比为1.65的3层气体分布环式气液反应器内,3层气体分布器的气体流量分配以及3层等径式和圆台式气体分布器结构对混合时间的作用规律。并同时考虑了外循环射流对混合时间的影响。研究发现,对于3层等径式气体分布器和异径式气体分布器,当底层气体分布器出孔气速分别为13.11 m/s和15.98 m/s时混合时间最小;引入外循环后,3层等径式气体分布器混合时间随射流量的增大呈“M”型变化,异径式气体分布器的混合时间则随射流量的增大先增加,后基本不变。

关键词:醋酐;羰基化;鼓泡反应器;3层气体分布器;外循环;混合时间

中图分类号:TQ051.7;TH11

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2017)03-0164-04

DOI:10.16606/j.cnki.issn.0253-4320.2017.03.039

Study on mixing time of gas-liquid loop reactor with tri-layer gas distribution

LI Meng^{1*}, WANG Hao-tong², MA Jiong¹, HUANG Zheng-liang², WANG Jing-dai²

(1. Sinopec Nanjing Engineering & Construction Incorporation, Nanjing 211100, China;

2. Research Center for Chemical Reaction Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China)

Abstract: The gas flow rate of tri-layer gas distributor in gas-liquid loop reactor with 480 mm of inner diameter and 1.65 of height-diameter ratio is investigated by using air and water as simulated media, KCl electrolyte solution as the tracer. The effect of the different forms of tri-layer gas distributors on mixing time is also studied. Meanwhile, the effect of outside loops on mixing time is also considered. The result shows that for equal-diameter and truncated cone-shaped tri-layer gas distributors, when the out gas velocity of bottom layer distributor reaches 13.11 m/s and 15.98 m/s, respectively, the mixing time has the minimum value. When the outside loops are introduced, the mixing time of equal-diameter tri-layer gas distributors has the shape of ‘M’ with the increase of out gas velocity of the bottom layer distributor, while the mixing time of the other kind of gas distributor is firstly increased and the unchanged.

Key words: acetic anhydride; carbonylate; bubble reactor; tri-layer gas distributor; outside loop; mixing time

醋酐是国家鼓励发展的基本有机化工原料,主要用于生产醋酸纤维素,还广泛用于医药、染料、农药、军工、香料等行业^[1]。醋酸甲酯羰基合成醋酐工艺具有流程短、产品质量好、消耗低、三废排放少等优点,代表着目前醋酐生产技术的先进水平。目前,国外醋酐生产主要采用该工艺,液相工艺比气相工艺成熟^[2-3]。目前常用的醋酐羰基合成反应釜为搅拌式反应釜,存在密封要求高,制作和运行费用高,机械故障率较高等问题。机械搅拌式反应釜在搅拌时会产生涡流场带,影响气液均布效果,传质效率较低,CO转化率较低。而且设备越大,涡流场带也越大,传质效率越低,CO转化率越低^[4]。

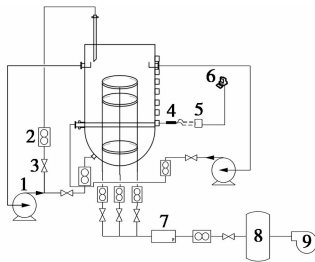
鼓泡塔是在塔体底部设有分布器,将气体分散在液体中进行传质、传热的塔式装置。由于其结构简单、容量系数大,被广泛地应用到吸收、发酵、反应等化工领域中^[5]。内构件技术是反应器设计与开发中的一项重要技术,是众多反应器专利与专有技术的主要特征,不同类型的内构件具有不同的功能,可用于改善流动与混合、强化传热与传质^[6]。目前,关于分布器结构已有一些实验研究工作报道^[7],但大多集中在如多孔板、微孔板等传统气体分布器,而对多层非均匀或者局部通气分布器则研究的较少。

因此本文中提出了一种3层气体分布环式气液反应器,在塔径为480 mm、高径比为1.65的3层气

体分布环式气液反应器内进行混合时间考察研究,其中气体分布器型式分为等径式和圆台式。实现在无搅拌情况下的物料充分混合,同时减少返混,提高反应器效率,解决搅拌密封和运行易出故障的问题,又可保证气液反应的高效实施。

1 实验装置及方法

多层鼓泡塔反应器由高 550 mm 圆柱筒体及内径 480 mm 的半球形下封头组成,冷模装置实验流程如图 1 所示。

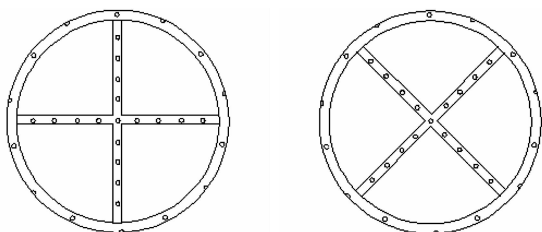


1—离心泵;2—转子流量计;3—阀门;4—双探头电导探针;
5—采集卡;6—计算机;7—电导率仪;8—压力机;
9—缓冲罐;10—风机

图 1 3 层气体分布环式气液反应器冷模装置
实验流程

3 层等径式气体分布器每一层均由 2 个气体分布环管组成,外径 d_s 为 240 mm。在环管内侧向下与水平轴线斜 30° 方向以及环管外侧轴线方向分别开设 2 圈小孔,开孔率为 0.047 5,开孔孔径 d_o 为 1.5 mm。各层气相分布器都由 3 个气相进口管固定,但每层分布器只与其对应气相原料进口管连通。

3 层圆台式气体分布器 3 层布气环从下至上直径依次减小(底层直径 d_1 为 360 mm,中层直径 d_2 为 300 mm,上层直径 d_3 为 260 mm),整体呈圆台型,开孔大小 d_{is} 为 1 mm,每层气体分布器中心均增加十字形气体分布管结构,且同一层的 2 个气体分布环中心的十字架呈 45° 交错放置,以强化整体混合效果,如图 2 所示。



(a) 底层气体分布器的上层 (b) 底层气体分布器的下层

图 2 3 层圆台型气体分布器示意图

实验在常温常压下空气-水体系中进行操作,实验中保持表观气速不变($u_g = 0.005 4 \text{ m/s}$, $V_G = 3.6 \text{ m}^3/\text{h}$),改变底层气体分布器的流量,以改变分布器的出口气速。实验条件如表 1、表 2 所示。

表 1 3 层等径式气体分布环式气液反应器实验条件表

序号	底层气体分布器		中层气体分布器		顶层气体分布器	
	气量/ ($\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$)	气速/ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	气量/ ($\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$)	气速/ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	气量/ ($\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$)	气速/ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)
1	1.20	7.86	1.20	7.86	1.20	7.86
2	1.60	10.48	1.00	6.55	1.00	6.55
3	2.00	13.11	0.80	5.24	0.80	5.24
4	2.40	15.73	0.60	3.93	0.60	3.93
5	2.80	18.35	0.40	2.62	0.40	2.62

表 2 3 层圆台式气体分布环式气液反应器实验条件表

序号	底层气体分布器		中层气体分布器		顶层气体分布器	
	气量/ ($\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$)	气速/ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	气量/ ($\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$)	气速/ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	气量/ ($\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$)	气速/ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)
1	1.20	6.85	1.20	7.86	1.20	9.23
2	1.60	9.13	1.00	6.55	1.00	7.69
3	2.00	11.41	0.80	5.24	0.80	6.15
4	2.40	13.70	0.60	3.93	0.60	4.62
5	2.80	15.98	0.40	2.62	0.40	3.08

采用电解质示踪法对液相混合时间进行检测。测量过程中,将一定体积(80 mL)的饱和 KCl 溶液由反应器上方靠近气液交界面处。采用位于筒体侧壁底部的电导率仪(DDSJ-308A)测量液体电导率值,并将检测结果输入计算机内保存,图 3 为检测过程中液体电导率随时间变化的典型结果。每个数据点实验次数不少于 5 次,混合时间以电导率均匀度达到 95% 所用的时间为标准^[8],即 $0.95 \leq c_j \leq 1.05$ 。

$$c_j = [\kappa(t) - \kappa_i] / (\kappa_\infty - \kappa_i) \quad (1)$$

式中, $\kappa(t)$ 为 t 时刻的电导率; κ_i 为实验初始时的电导率; κ_∞ 为实验结束时达到稳定的电导率。

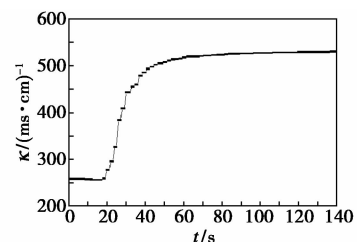


图 3 典型的电导率随时间变化关系

2 结果与讨论

2.1 3 层等径式气体分布器的混合时间

2.1.1 无外循环条件下的混合时间

不同底层分布器出口气速 v_b 下的液相混合时间 t 变化规律如图 4 所示。从图 4 中可以看出,随着底层气体分布器通气量的增大,混合时间先减小后增大;当底层气体分布器出口气速小于 13.1 m/s 时,混合时间随着底层气体分布器通气量的增大而减小且下降的速率较大;当底层气体分布器出口气速大于 13.1 m/s 时,混合时间随着底层气体分布器通气量的增大而增大但增速较小;当底层气体分布器出口气速为 13.1 m/s 时,混合时间达到极小值。可见,当总进气量一定时,3 层气体分布器存在一个最优的进气量分配比例,使得 3 层等径气体分布环式气液反应器内的混合时间最小。

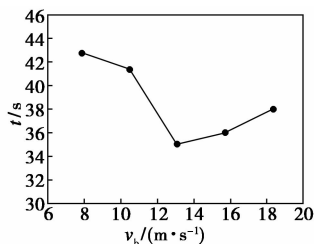


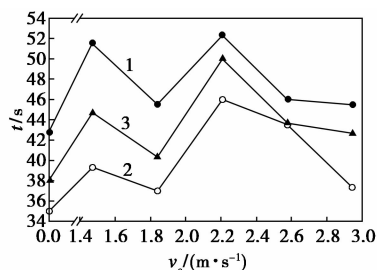
图 4 混合时间与底层气体分布器出口气速的关系

对实验结果进一步分析可以知道,3 层等径气体分布环式气液反应器中混合时间主要由液相主体湍流运动和气泡尾流作用共同决定。随着底层气体分布器通气量的增大,反应器底部区域的气体分散及气液混合状态发生变化。当底层气体分布器通气量较小时,反应器底部的鼓泡状态为均匀鼓泡态,气泡没有发生聚并,气泡大小及分布都比较均匀,液相无明显对流循环,上升气泡引起的液相湍流是液相混合的主要原因,此时混合时间随着底层气体分布器通气量的增大而减小^[9]。当底层气体分布器通气量较大时,反应器底部的气泡发生并聚,从均匀鼓泡态转变为湍流鼓泡态,液相湍流程度没有得到加强,气速的增加更多作用于局部湍流脉动而非液相循环,混合效果反而不如均匀鼓泡流,此时混合时间随着底层气体分布器通气量的增大而增大^[10]。

2.1.2 引入外循环后混合时间

在上述实验的基础上,进一步考虑液体外循环对 3 层等径气体分布环式气液反应器内混合时间的影响。保证 3 层气体分布环的总进气量一定,在底

层气体分布器出口气速分别为 7.86、13.1、18.35 m/s 这 3 种条件下,3 层等径气体分布环式气液反应器中混合时间随液体外循环流速 v_e 的变化如图 5 所示。由图 5 可知,在 3 种底层气体分布器出口气速条件下,混合时间随外循环流量的增大均呈现“M”型的变化,即先增大后减小,再增大后又减小,具有相同的变化规律。这可能是由于 3 层等径气体分布环式气液反应器中液体外循环对反应器内的液相混合有多重作用机制,随着外循环流量的增大,促进液相混合及抑制液相混合的作用交替占据主导地位,使得混合时间随着外循环流量的增大呈现“M”型的变化。



外循环管中液体流速:1—7.86 m/s;2—13.11 m/s;3—18.35 m/s

图 5 不同底层气体分布器出口气速条件下混合时间随外循环管中液体流速的变化

2.2 3 层圆台式气体分布器的混合时间

2.2.1 无外循环条件下的混合时间

3 层圆台型气体分布环式气液反应器中,不同底层分布器出口气速条件下的液相混合时间如图 6 所示。从图 6 中可以看出,混合时间随着底层分布器出口气速的增大呈现先增大后减小的变化趋势。这是因为当 3 层气体分布器的差异较小时(对应图中的底层气体分布器出口气速 6.85 ~ 11.84 m/s),大部分气体从反应器中上部进入反应器后从液面处溢出,气体输入能量的有效利用率较低,对反应器内液体混合的搅拌混合作用相对较弱。在低表观气速下,随着表观气速的升高,气体诱导液体产生的运动受到分布器的阻隔,形成较剧烈的径向运动,轴向运

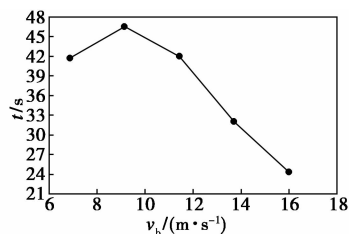
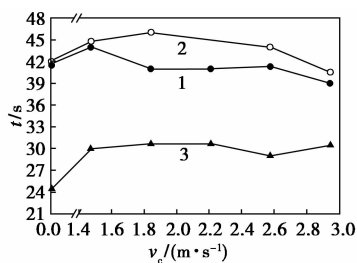


图 6 3 层圆台型气体分布环式气液反应器混合时间与底层气体分布器出口气速的关系

动受到抑制,不能像标准鼓泡塔形成顺畅的全釜循环,使混合恶化;随着表观气速的进一步增加,液相运动速度加快,全釜混合时间缩短^[10]。

2.2.2 引入外循环后混合时间

在上述实验的基础上,进一步考察液体外循环对3层圆台型气体分布环式气液反应器内混合时间的影响,如图7所示。从图7中可以看出,液体外循环流速对混合时间的影响相对较小;当3层气体分布器的通气量相同时(对应图中的底层气体分布器出孔气速6.85 m/s),混合时间随着外循环流速的增大先增大后减小,当外循环流量足够大时,外循环促进了反应器内的液相混合;当底层气体分布器的通气量较大时,有外循环时的混合时间反而大于没有外循环时的混合时间,外循环抑制了反应器内的液相混合。由于液体外循环流速较低,液体射流对反应器内流体混合的影响相比气泡的影响来说较小,气泡是3层圆台型气体分布环式气液反应器中影响液体混合的主要因素。

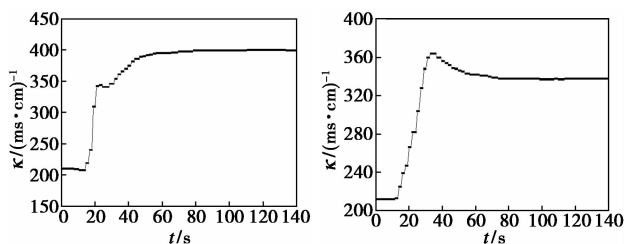


外循环管中液体流速:1—6.85 m/s;2—11.41 m/s;3—15.98 m/s

图7 不同底层气体分布器出孔气速条件下混合时间随液体外循环流速的变化

2.3 2种气体分布器混合时间的对比

从图中数据可知,在表观气速为0.0056 m/s的条件下且不引入外循环时,3层等径气体分布环式气液反应器中混合时间的变化范围为35~43 s,3层圆台型气体分布环式气液反应器中混合时间的变化范围为24.3~41.7 s。结合观测到的气泡分散



(a) $v_e = 0$ m/s

(b) $v_e = 1.473$ m/s

图8 3层等径气体分布环式气液反应器中无外循环时电导率随时间的变化

状态可知,与3层等径气体分布环式气液反应器相比,3层圆台型气体分布环式气液反应器中气体分散状态得到了较为明显的改善,但是气泡尺寸较大,仍处于载气状态。

当引入外循环时,电导率随时间变化的曲线如图8所示。体外循环均会对反应器内部的流场形成扰动,从而对反应器内充分的混合起到一定作用。

3 结论

(1)3层等径式气体分布器的混合时间随着底层气体分布器通气量的增大先减小后增大,3层气体分布器存在一个最优的进气量分配比例,使得混合时间最小;混合时间随外循环流量的增大呈现“M”型的变化规律,即先增大后减小再增大后又减小,有外循环时的混合时间均大于无外循环时的混合时间。

(2)3层异径式气体分布器混合时间随着底层分布器出口气速的增大呈现先增大后减小,增大底层气体分布器通气量可以改善液相混合,缩短混合时间;外循环对液相混合的影响较小,气泡是影响液体混合的主要因素。

参考文献

- [1] 王振宇,马晓迅,唐应吉. 羰基合成醋酐联产醋酸的工业模式研究[J]. 现代化工,2009,29(9):68-69,71.
- [2] 高俊文. 甲醇羰基化制醋酐市场及技术进展[C]. 北京:第五届全国工业催化技术与应用年会,2008.
- [3] 李涛. 甲醇羰基合成技术评述[J]. 精细化工原料及中间体,2012,(3):3-6.
- [4] 吴永国,宋宪稳,张艳群,等. 羰基合成醋酐大型化技术[J]. 乙醛醋酸化工,2013,(2):6-8.
- [5] 高桥照男,宫原敏郎,薛冠申. 鼓泡塔的设计技术现状及其要点[J]. 化学工程,1987,(6):67-74.
- [6] 张煜. 湍动鼓泡塔充分发展段的流体力学与内构件技术研究[D]. 杭州:浙江大学,2011.
- [7] 李光,杨晓钢,蔡清白. CFD优化大型浅层鼓泡塔管式气体分布器结构[J]. 中国科技论文在线,2008,(12):890-896.
- [8] Amiri T Y, Moghaddas J. Experimental study of the mixing time in a jet-mixed gas-liquid system [J]. Chem Eng Technol, 2010, 33, (2):327-333.
- [9] 蔡清白,沈春银,戴干策. 大直径浅层鼓泡塔的混合时间[J]. 化学反应工程与工艺,2009,25,(1):23-28.
- [10] 马跃龙,黄娟,沈春银,等. 鼓泡塔中液相混合时间的影响因素[J]. 华东理工大学学报:自然科学版,2010,36(2):165-172. ■