

微通道气液两相流型及界面面积测定

牛海宁^{1,2}, 潘立卫¹, 王树东¹

(1. 中国科学院大连化学物理研究所, 辽宁 大连 116023; 2. 中国科学院研究生院, 北京 100039)

摘要:以氢氧化钠水溶液及纯二氧化碳气体为工质,研究了石英玻璃微通道中的气液两相流流型及两相界面面积。实验中可清晰分辨的流型为弹状流(Slug),弹状-环状流(Slug-annular)及搅拌流(Churn),由实验观测的结果建立了相应的流型图并与 Triplet 实验结果进行了比较,结果表明高液相表观流速对流型转换影响较大。在微通道中可以实现比较高的气液两相界面面积,实验范围内气液两相界面面积高达 5 070 m²/m³。两相界面面积随气相表观流速的增加而增加,而液相表观流速对两相界面面积的影响则不显著。相对于弹状流区域,在弹状-环状流及搅拌流区域可以实现比较高的传质界面面积。搅拌流区域气液两相界面面积可以采用气液表观雷诺数进行很好关联,其绝对平均偏差仅为 3.76%。

关键词:微通道;两相流;流型;流型图;界面面积

中图分类号:TQ021.4

文献标识码:A

文章编号:0253-4320(2009)05-0060-05

Flow pattern and gas-liquid interfacial area in a microchannel contactor

NIU Hai-ning^{1,2}, PAN Li-wei¹, WANG Shu-dong¹

(1. Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, China;

2. Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

Abstract: With aqueous solutions of sodium hydroxide and carbon dioxide as the working fluids, the flow patterns and the gas-liquid interface in a quartz microchannel contactor are investigated. The discernable flow patterns are slug, slug-annular and churn. Based on the experimental data, the flow pattern map is developed and compared with the Triplet's correlations. It shows that the flow pattern transition is affected by the mass transfer especially when the superficial liquid velocities are high. As high as 5 070 m²/m³, the microchannel contactor can provide a high gas-liquid interface area. The gas-liquid interface area increases with the increase of superficial gas velocities while the influence of superficial liquid velocities is not marked. Compared with the slug flow, a higher gas-liquid interface area can be achieved with a slug-annular and churn flow. The interface area can be well correlated with the superficial Reynolds number for churn flow and the absolute mean deviation is only 3.76%.

Key words: microchannel; two-phase flow; flow pattern; flow pattern regime; interfacial area

微化工技术是 20 世纪 90 年代初兴起的多学科交叉的科技前沿领域^[1-4]。随着特征尺度的减小,微通道反应器表现出一些独特的不同于常规反应器的优点,如高的热量及质量传递速率、内在安全性、高的面积体积比以及模块化放大等,将在化学、化工、能源、环境等领域得到广泛应用^[5-7]。

对于微通道反应器中的两相流,流型通常会影响到流体质量传递、动量传递、阻力降、含气率等^[8]。常见的气液两相流流型为泡状流(bubbly)、弹状流、弹状-环状流、搅拌流、环状流(annular)等。影响流型的因素较多,主要包括气液表观流速,微通道特征尺度,重力,以及流体属性如黏度、表面张力等。由于在微通道中表面张力作用相对增强,常规通道中可观测到的分层流(stratified)现象在微通道中不再出现。文献[9-12]中报道的流型研究中气相大多

采用空气或氮气,液相采用纯水,两相间质量传递基本可以忽略。由于本实验采用 CO₂ 与 NaOH 溶液,存在相际传质,因此传质是否会影响到以及在多大程度上影响流型转换值得研究。

微通道反应器高的质量传递速率,尤其适合于受传质控制的多相反应。Losey 等^[13]在微型多相填充床反应器中进行了环己烯加氢研究,液侧总体积传质系数($K_L a$)达 5~15 s⁻¹。Tomoya 等^[14]采用 H₂ 与 O₂ 在微型多相填充床反应器中直接合成 H₂O₂, $K_L a$ 高达 3.8 s⁻¹。乐军等^[15]在水力直径 0.667 mm 的矩形截面微通道反应器中用纯水及 NaHCO₃/Na₂CO₃ 进行了 CO₂ 吸收实验, $K_L a$ 最高达 21 s⁻¹。对于多相反应来说,气液两相界面面积是一个重要参数,有效地提高两相界面面积可以显著地提高传质速率,进而影响到整个反应。由于不能确定准确

收稿日期:2008-12-30;修回日期:2009-03-19

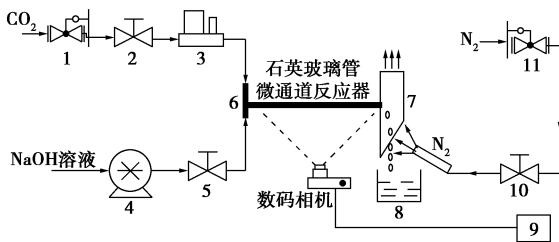
作者简介:牛海宁(1971-)男,博士生;王树东(1965-)男,博士,研究员,博士生导师,研究方向主要为燃料电池氢源和大气污染治理,通讯联系人,0411-84379052, wangsd@dicp.ac.cn。

的气液接触界面面积,上述实验中只能将界面面积与传质系数结合,通过体积传质系数来考察传质效应。虽然乐军等^[15]在实验中探讨了操作条件对气液界面面积的影响,但数据点有限。微通道中气液接触界面面积少有文献报导,有必要积累更多的数据,以加深对微通道中传递性质的理解。

1 实验部分

1.1 实验装置及方法

实验装置如图1所示。CO₂首先经过质量流量计进入到T型混合器的气相入口(见图1)。液相流量由量程为80 mL/min的平流泵控制,经过控制阀门后,被引入到T型混合器的液相入口。气液两相经T型混合器后,水平流过内径为1 mm的圆形截面石英玻璃微通道。气液混合物于出口端气液分离器内进行两相分离,气相直接排空,液相则被收集并分析其二氧化碳吸收量。为消除微通道出口端至吸收液储罐之间CO₂与NaOH溶液继续反应而影响实验结果准确性,出口端采用惰性气体N₂由下至上



1,11—减压表;2,5,10—阀门;3—质量流量计;4—平流泵;6—T型混合器;7—气液分离器;8—吸收液储罐;9—数据处理系统

图1 实验装置示意图

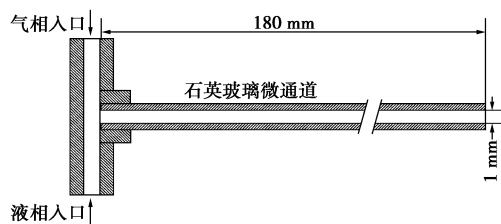


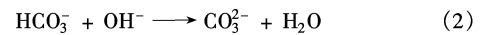
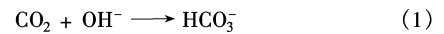
图2 气液T型混合器示意图

吹扫,空气中及出口端残余CO₂随N₂向上排空。图2为T型混合器示意图,采用不锈钢材料制作,其内径均为2 mm,接头分别连接气液两相入口及石英玻璃微通道入口。石英玻璃微通道内径1 mm,其外径为2 mm,长度为180 mm。

微通道内两相流型由高速数码相机拍摄,快门速度为1/1000~1/2000 s,相机通过数据线与计算机连接,所得照片导入计算机进行分析。出口液相中二氧化碳吸收量采用滴定的方法分析。首先配制大约1 mol/L的盐酸溶液和氢氧化钠溶液,并分别采用碳酸钠及邻苯二甲酸氢钾标定其准确浓度。通过移液管量取定量的吸收液,采用标定的盐酸溶液进行滴定,酚酞及甲基橙分别作为第一及第二等当点指示剂。

1.2 实验原理

实验中CO₂与NaOH溶液的反应如下:



反应(2)相对于反应(1)速度极快,因此反应(1)是整个反应的速率控制步骤。其二级反应速率方程可以表示为:

$$r = k_{\text{OH}^-} - C_{\text{OH}^-} - C_{\text{CO}_2} \quad (3)$$

根据danckwerts理论^[16],如果反应(1)满足下列表达式,则该反应可认为是快速拟一级反应:

$$\sqrt{\frac{D_{\text{CO}_2} k_{\text{OH}^-} C_{\text{OH}^-}}{k_L^2}} \ll \sqrt{\frac{D_{\text{CO}_2}}{D_{\text{OH}^-}} + \frac{C_{\text{OH}^-}}{2C^*}} \sqrt{\frac{D_{\text{OH}^-}}{D_{\text{CO}_2}}} \quad (4)$$

$$\sqrt{\frac{D_{\text{CO}_2} k_{\text{OH}^-} C_{\text{OH}^-}}{k_L^2}} \gg 3 \quad (5)$$

则吸收速率可以表示为

$$R = C^* \sqrt{D_{\text{CO}_2} k_{\text{OH}^-} C_{\text{OH}^-}} \quad (6)$$

通过对微通道截取微元体积做质量衡算,得到

$$-Q_L dC_{\text{OH}^-} = aC^* \sqrt{D_{\text{CO}_2} k_{\text{OH}^-} C_{\text{OH}^-}} dV \quad (7)$$

积分式(7)可得到气液界面面积表达式为:

$$a = \frac{Q_L (\sqrt{C_{\text{OH}^-}} - \sqrt{C_{\text{OH}_2^-}})}{C^* V \sqrt{D_{\text{CO}_2} k_{\text{OH}^-}}} \quad (8)$$

(上接第59页)

[15] 李波,刘海鹰,李季,等.污泥资源化利用及生产高效有机复合肥成套技术与装置[C]//污泥处理处置技术与装备国际研讨会,2003-03-22.
[16] 桂轶,孙世群.城市生活污水污泥处理方法研究:以合肥市为例[J].安徽农学通报,2007,13(23):57-59.
[17] 张莉,陆晓华.超临界水氧化法处理有机污染物[J].化工环保,

2002,22:115-118.

[18] 黄汉生.处理城市污水污泥的超临界水氧化法[J].工业用水与废水,2001,32(6):38-42.
[19] 吴克宏,张居正.超临界水氧化技术及其在废水处理中的应用[J].云南环境科学,2003,22(4):35-38.
[20] 环境技术网.污泥焚烧处理技术及工程实例[EB/OL].http://www.cnjlc.com/plus/view.php?aid=81274&pageno=4,2008-06-19. ■

上述方程中所用到二级反应速率常数、亨利常数以及 CO_2 于氢氧化钠溶液中的扩散系数可参见文献[17]。

2 结果与讨论

2.1 流型与流型图

流型测定实验中的气液表观流速分别为 $0.91 \sim 14.51 \text{ m/s}$ 及 $0.1 \sim 0.7 \text{ m/s}$ 。实验中可观测到的典型流型如图 3 所示。

由图 3(a) 可看到, 在较低的气液表观流速下, 气液两相分别以气泡和液泡的形式连续流过通道。气泡的长度通常大于微通道直径, 气泡的周围被一层均匀的液膜包围, 为典型的弹状流。随着气相表观流速的增加, 气泡长度逐渐增大, 液泡长度减小, 液相中偶尔出现小的不规则的气泡, 其直径等于或小于微通道直径, 如图 3(b) 所示。进一步增加气相表观流速, 将会导致气泡之间的合并, 弹状-环状流出现, 如图 3(c)。在较高的气液表观流速下, 可以观测到搅拌流出现, 如图 3(d) 所示。由于气液两相表观流速均较大, 两相湍动增加, 在长的气泡中间可以观察到气液剧烈混合的现象。在常规通道中能够观测到的气液两相分层流动 (stratified flow) 的现象^[10] 在本实验中没有观测到。

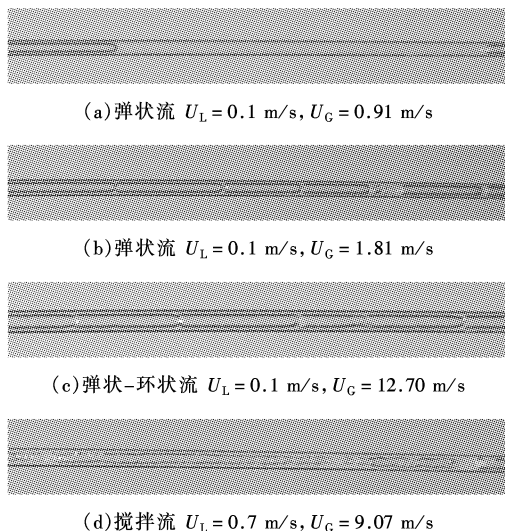


图 3 实验中典型流型

不同表观气液流速下微通道内气液两相流型的变化可以用图 4 所示的流型图来表示, 图中实线所示为流型转换线。在本实验的范围内, 流型转换线将整个流型图分为 3 个区域。流型图的左侧为弹状流区域, 右上部分为搅拌流区域, 右下部分则为弹状-环状流区域。通常认为, 弹状流区域是表面张

力控制区域, 弹状-环状流及搅拌流区域为惯性力控制区域^[18]。图 4 中虚线框线内所示区域则为气液接触界面面积测试区域。

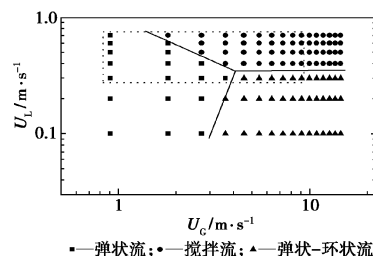


图 4 流型图与流型转换线

K. A. Triplett 在 1998 年采用空气与水作为工质, 在内径分别为 1.10 、 1.45 mm 的耐热玻璃通道中进行了流型、阻力降实验。其采用内径 1.1 mm 通道所得到的流型图与本实验的结果比较如图 5 所示, 图 5 中虚线即为 Triplett 实验结果中的流型转换线。本实验与 Triplett 实验的一个明显差别在于实验体系的不同, 采用 CO_2 与 NaOH 溶液作为工质存在相际质量传递, 而 Triplett 实验中溶解于水中的空气基本可以忽略。

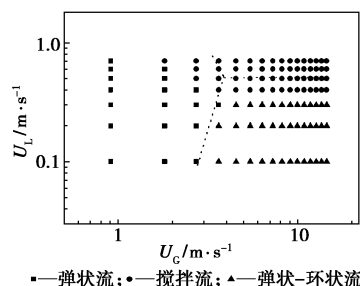


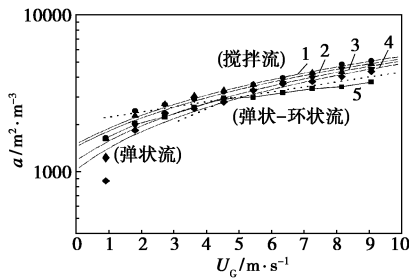
图 5 本实验流型转换与 Triplett^[11] 实验结果比较

如图 5 所示, 从弹状流到弹状-环状流的转换与 Triplett 的结果比较吻合。这主要是由于在弹状流到弹状-环状流的转换区域处气相表观流速显著高于液相表观流速, 在微通道入口端很短区域内吸收效应比较明显, 在流型稳定区域, 传质效应减弱, 吸收对流型影响已经不是很明显。而从弹状-环状流到搅拌流的转换由图 5 可见, 在较低的液相表观流速下就出现了搅拌流, 这主要是因为在此流型转换区域, 气液两相表观流速均比较大, 传质效应明显, 吸收导致的两相湍动使搅拌流在较低液相表观流速下出现。类似, 从弹状流到搅拌流转换区域由于液相表观流速也比较高, 传质效应导致的两相湍动也使搅拌流在较低的气相表观流速下出现。

2.2 气液两相界面面积

图 6 所示为实验范围内测定的气液接触界面面积

积。对比图4所示的流型图,图6所示的图形可用虚线分为3个区域,分别对应于弹状流区域,弹状-环状流区域和搅拌流区域。可以看出,在弹状流区域,液相表观流速对气液两相界面面积影响规律不是很明显,而气相表观流速对两相界面面积影响比较显著,气相表观流速每增加1 m/s,气液接触界面面积几乎增加1倍。在弹状-环状流区域,气液两相界面面积随气相表观速率的增加而基本呈线性增加,其增加趋势比较平缓。在搅拌流区域,气液两相界面面积随气相表观速率的增加而增加,但增加幅度明显高于弹状-环状流区域。液相表观流速对两相界面的影响由图6拟合曲线可以看出,随液相表观流速的增加,界面面积反而有减小的趋势,这主要是由于液相表观流速的增加,使得环绕在气泡周围的液膜厚度增加导致。对比搅拌流与弹状-环状流区域可以看出,在相同表观气速下,在搅拌流区域界面面积明显高于弹状-环状流区域界面面积,这是由于在搅拌流区域,气液表观流速都比较大,两相湍动程度明显高于弹状-环状流区域图3(c)、3(d)。相似操作条件下滴流床气液两相界面面积范围为200~800 m²/m³[19],并流操作的填料塔内气液两相界面面积最高不超过1700 m²/m³[20],而本实验传质比表面积最高可达到5070 m²/m³,明显优于传统气液接触设备。



液体表观流速/m·s⁻¹:1—0.4;2—0.5;3—0.6;4—0.7;5—0.3

图6 气液表观流速对气液界面面积影响

2.3 搅拌流区域气液接触界面面积与表观雷诺数关联

气液接触界面面积与微通道内气液接触的形态紧密相关,而微通道内气液接触形态则与气液表观流速及两相的物理属性等因素相关。由于在搅拌流区域气液湍动剧烈,可以获得较大的界面面积,传质速率较高,是工艺生产中比较感兴趣的操作区间。在搅拌流区域,采用最小二乘法对两相界面面积与气液表观雷诺数进行关联可得到:

$$a = 388.31 \text{Re}_c^{0.55} \text{Re}_L^{-0.23} \quad (9)$$

从式(9)也可看出,在搅拌流区域两相界面面积跟表观气相速率0.55次方成正比,而与表观液相速率的-0.23次方成正比。采用式(9)预测的比表面积与实验值比较如图7所示,实验结果与经验关联结果的平均偏差在±10%之间,实验结果与经验关联结果吻合较好,绝对平均偏差仅为3.76%,绝对平均偏差可表示为:

$$\text{绝对平均偏差} = \frac{\sum_{i=1}^N \text{ABS}[a_{\text{exp},i} - a_{\text{corre},i}]/a_{\text{exp},i}}{N} \quad (10)$$

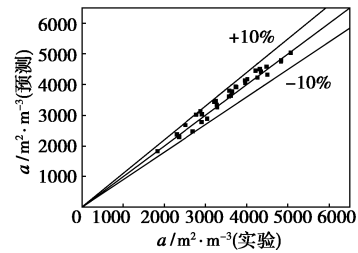


图7 两相界面面积预测值与实验值比较

2.4 实验条件校核

由微通道界面面积计算公式可知,式(8)的成立须满足不等式(4)及(5)。上述2不等式中的k_L可由文献[15]取得。不同操作条件下微通道进、出口须满足的条件计算结果见表2。由表1可以看出,计算所需要满足的条件在整个计算区域中基本符合,因此所选择实验方法正确,得到的结果可靠。

表1 典型实验条件下界面面积测定必要不等式校核 [不等式(4)及(5)]

U _c /m·s ⁻¹	U _L /m·s ⁻¹	$\sqrt{\frac{D_{\text{CO}_2} k_{\text{OH}^-} C_{\text{OH}^-}}{k_L^2}}$	$\sqrt{\frac{D_{\text{CO}_2}}{D_{\text{OH}^-}} + \frac{C_{\text{OH}^-}}{2C^*}} \sqrt{\frac{D_{\text{OH}^-}}{D_{\text{CO}_2}}}$	a/m ² ·m ⁻³
		微通道入口	微通道出口	
0.91	0.3	7.88	6.92	1615.25
9.07	0.3	7.88	5.67	3717.11
0.91	0.4	6.67	6.05	1635.88
9.07	0.4	6.67	4.76	5070.02
0.91	0.5	5.78	5.45	1249.04
9.07	0.5	5.78	4.51	4836.22
0.91	0.6	5.42	5.17	1198.02
9.07	0.6	5.42	4.50	4487.58
0.91	0.7	5.10	4.96	870.76
9.07	0.7	5.10	4.38	4353.22

3 结语

分别采用CO₂与NaOH溶液为工质,在室温、常压下对气液两相流流型及气液接触界面面积进行实验,结论如下:

(1) 实验中可清晰分辨的两相流型为弹状流, 弹状-环状流以及搅拌流, 分层流在本实验中没有观测到。依据本实验中观测到的流型建立了相应的流型图, 并与 Triplett 的实验结果进行了比较, 实验结果表明, 气液两相间的质量传递对于两相流型转换有影响, 特别是在液相表观流速较高的区域, 如弹状-环状流至搅拌流以及弹状流至搅拌流的转换区域。

(2) 本实验的石英玻璃微通道中气液两相接触界面面积最高达 $5\ 070\ \text{m}^2/\text{m}^3$, 远高于常规气液接触设备。整个实验范围内气液接触界面面积随气相表观流速的增加而增加, 液相表观流速对界面面积影响不是很显著。搅拌流及弹状-环状流可以提供较高的气液接触界面面积。在搅拌流区域, 两相接触界面面积可以采用公式 $a = 388.31\text{Re}_G^{0.55}\text{Re}_L^{-0.23}$, 以气液表观雷诺数进行很好的关联, 绝对误差仅为 3.76%。

符号说明

a —界面面积(m^2/m^3)
 C^* — CO_2 于 NaOH 溶液中物理溶解度(mol/m^3)
 D —扩散系数(m^2/s)
 H —亨利系数($\text{kmol}/\text{m}^3 \cdot \text{atm}$)
 I —溶液离子强度(mol/m^3)
 K —二级反应速率常数($\text{m}^3/\text{kmol} \cdot \text{s}$)或液侧传质系数(m/s)
 P —系统压力(atm)
 Q —体积流量(m^3/s)
 R —化学反应速率($\text{mol}/\text{m}^3 \cdot \text{s}$)
 R —吸收速率($\text{mol}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$)
 Re —雷诺数
 T —温度(K)
 U —表观速率(m/s)
 V —通道体积(m^3)
 下标:
 G —气相
 L —液相
 W —水
 1—进口
 2—出口
 exp —实验值
 corre —关联值

参考文献

- [1] Ehrfeld W, Hessel V, Lowe H. Microreactors: New Technology for Modern Chemistry[M]. Weinheim: Wiley-VCH, 2000.
- [2] Ehrfeld W, Hartmann H J, Hessel V, et al. Microreaction technology for process intensification and high throughput screening[C]//Micro Total Analysis Systems 2000, Proceedings, Enschede Netherlands: Springer, 2000, 33 - 40.
- [3] 陈光文, 袁权. 微化工技术[J]. 化工学报, 2003, 54(4): 427 - 439.
- [4] 陈光文. 微化工技术研究进展[J]. 现代化工, 2007, 27(10): 8 - 13.
- [5] JENSEN K F. Microreaction engineering: Is small better? [J]. Chemical Engineering Science, 2001, 56(2): 293 - 303.
- [6] MAE K. Advanced chemical processing using microspace[J]. Chemical Engineering Science, 2007, 62(18/19/20): 4842 - 4851.
- [7] Ehrfeld W, Ehrfeld U. Micro fabrication for process intensification [C]//Proceedings of the 5th International Conference on Microreaction Technology (IMRET 5), Strasbourg: Springer-Verlag Berlin, 2001: 27 - 30.
- [8] Wongwises S, Pipathattakul M. Flow pattern, pressure drop and void fraction of two-phase gas-liquid flow in an inclined narrow annular channel[J]. Experimental Thermal and Fluid Science, 2006, 30(4): 345 - 354.
- [9] Bi Q C, Zhao T S, Cheng P. An experimental study of co-current two-phase flow patterns in small triangular channels[C]//Proceedings of the 4th International Symposium on Multiphase Flow and Heat Transfer, Xian: Xian Jiaotong Univ Press, 1999.
- [10] Coleman J W, Garimella S. Characterization of two-phase flow patterns in small diameter round and rectangular tubes[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 1999, 42(15): 2869 - 2881.
- [11] Triplett K A, Ghiaasiaan S M, Abdel-Khalik S I, et al. Gas-liquid two-phase flow in microchannels. Part I: Two-phase flow patterns[J]. International Journal of Multiphase Flow, 1999, 25(3): 377 - 394.
- [12] Kawahara A, Chung P M Y, Kawaji M. Investigation of two-phase flow pattern, void fraction and pressure drop in a microchannel[J]. International Journal of Multiphase Flow, 2002, 28(9): 1411 - 1435.
- [13] Losey M W, Schmidt M A, Jensen K F. Microfabricated multiphase packed-bed reactors: Characterization of mass transfer and reactions[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2001, 40(12): 2555 - 2562.
- [14] Inoue T, Schmidt M A, Jensen K F. Microfabricated multiphase reactors for the direct synthesis of hydrogen peroxide from hydrogen and oxygen [J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2007, 46(4): 1153 - 1160.
- [15] Yue J, Chen G W, Yuan Q, et al. Hydrodynamics and mass transfer characteristics in gas-liquid flow through a rectangular microchannel [J]. Chemical Engineering Science, 2007, 62(7): 2096 - 2108.
- [16] Danckwerts P V, Reactions G L. Gas-Liquid Reactions[M]. New York: McGraw-Hill Book Company, 1970.
- [17] Pohorecki R, Moniuk W. Kinetics of reaction between carbon dioxide and hydroxyl ions in aqueous electrolyte solutions[J]. Chemical Engineering Science, 1988, 43(7): 1677 - 1684.
- [18] Akbar M K, Plummer D A, Ghiaasiaan S M. On gas-liquid two-phase flow regimes in microchannels[J]. International Journal of Multiphase Flow, 2003, 29(5): 855 - 865.
- [19] Aldhahan M H, Larachi F, Dudukovic M P, et al. High-pressure trickle-bed reactors: A review[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 1997, 36(8): 3292 - 3314.
- [20] Charpentier J C. Mass-transfer rates in gas-liquid absorbers and reactors [J]. Advances in Chemical Engineering, 1981, 11(1): 133. ■