

气体分布器对内循环三相生物流化床反应器动力学性能的影响

黄卫星,胡培根,岑 斌,沈 琪

(四川大学 化学工程学院,四川 成都 610065)

摘 要:通过实验手段,对3种不同分布器下内循环三相流化床反应器内的气含率 ε_g 、内循环液速 U_c 及体积氧传质系数 $K_L a$ 进行了研究。结果表明:除进气量这一直接因素外,分布器孔径及其分布密度是影响气含率的2个主要因素;相同气量下,微孔分布器有助于获得较高气含率,但气孔分布过于密集(陶瓷分布器)则会使气泡在脱离阶段发生聚并增大,导致气含率降低。循环液速 U_c 在低气量下($Q_g < 260$ L/h)主要由升降流区的气含率差 $\Delta\varepsilon_g$ 控制,高气量下则由 $\Delta\varepsilon_g$ 和回路阻力共同控制;相同气量下,不同分布器对应的循环液速 U_c 则主要取决于气含率差 $\Delta\varepsilon_g$,分布器对应的 $\Delta\varepsilon_g$ 较大,其 U_c 也相应较高。体积氧传质系数 $K_L a$ 随进气量增加而增大,其中主要贡献是气含率增大导致的比表面积 a 增大;相同气量下,分布器对应的气含率较高,其 $K_L a$ 也相应较高。

关键词:三相流化床反应器;气体分布器;气含率;循环液速;体积传质系数

中图分类号:X703.3

文献标志码:A

Effects of Gas Distributors on Hydrodynamics of Three-phase Biological Fluidized Bed Reactor with Internal Circulation

HUANG Weixing, HU Peigen, CEN Bin, SHEN Qi

(School of Chemical Eng., Sichuan Univ., Chengdu 610065, China)

Abstract: The gas hold-up, liquid circulation velocity and volumetric oxygen mass transfer coefficient were investigated by experiments in an internal circulation three-phase biological fluidized bed reactor with three different gas distributors. The results showed that, besides the gas flow rate Q_g , the gas hole diameter and the hole number per unit area of distributor are also important factors that affect gas holdup ε_g inside the reactor. Under a given Q_g , the distributor with smaller hole helps to achieve higher ε_g (as did the micropore distributor in this work), but the over-densely distributed holes on distributor will cause the small bubbles to merge into large bubbles, leading to decreased ε_g (as did the ceramic distributor in this work). For the cases of lower gas flow-rate ($Q_g < 260$ L/h), the liquid circulation velocity U_c mainly depends on the gas holdup difference $\Delta\varepsilon_g$ between riser and downcomer, while for the cases of higher gas flow-rate, both $\Delta\varepsilon_g$ and flow resistance are dominating factors. When Q_g keeps constant, the distributor which achieves a larger $\Delta\varepsilon_g$ leads to a higher circulation velocity. The volumetric oxygen mass transfer coefficient $K_L a$ increases with increasing Q_g , to which the increased specific surface area contributes mostly. Under a given Q_g , the distributor which achieves a higher gas holdup results in a higher mass transfer coefficient $K_L a$.

Key words: Three-phase fluidized bed reactor; gas distributor; gas hold-up; liquid circulation velocity; volumetric mass transfer coefficient

内循环三相生物流化床反应器结合了微生物固定化和颗粒流态化的技术优势,具有结构简单、能耗低、混合性能好及传质效率高等优点,已日益广泛应用于石油炼制、医疗卫生、食品加工等行业的废水处理及相关过程,并同时显示出替代某些传统悬浮微

生物生化过程的良好前景^[1]。

与此同时,国内外对内循环三相生物流化床反应器也开展了积极的研究,其中一类是以反应器应用开发为目标的不同行业废水处理效果与操作条件的试验研究^[2-4],另一类是以探索内部过程的行为

机理、建立相应动力学模型为目标的应用基础研究,诸如气含率分布^[5-6],气含率与表观气速关联模型^[7],气泡尺寸及分布器影响^[8-9],反应器内的流动形态^[10-11],内循环对生物膜的剪切作用^[12],气-液相间的传质行为^[13-14]等。这些研究工作虽然极大地增进了人们对该类型反应器动力学行为的理解,但综合起来看,目前的成果还比较分散,从系统掌握动力学行为并由此建立定量模型的角度尚有距离,进一步的研究值得期待。

对于内循环三相好氧生物流化床反应器,气-液相之间的氧传递是其核心传质过程,升降流区之间的循环流动是其流体动力学特征,而气泡行为则是影响二者的重要因素:气泡形成的密度差促进了流体的内循环(从而促进流体组分的混合与扩散),而气泡比表面的大小则直接影响到气-液之间的传质速率。基于这一观点,气体分布器成为本文关注的目标,因为就气泡行为而言,除进气量这一直接因素外,分布器结构是控制气泡行为最重要的因素。目前关于内循环三相生物流化床中分布器影响的研究报道还比较分散^[8-9,15],结果缺乏对比性,尤其缺乏不同分布器下的气泡行为以及由此导致的流体及传质动力学行为对比的系统实验研究。

基于以上所述,作者通过实验测试,研究3种不同分布器(孔径和气孔分布密度两两对比)下,内循环三相生物流化床反应器中气含率、循环液速和体积氧传质系数,通过测试数据分析,揭示3个参数之间的相互关系及分布器结构参数的影响,以为进一步研究及分布器的设计提供有益参考。

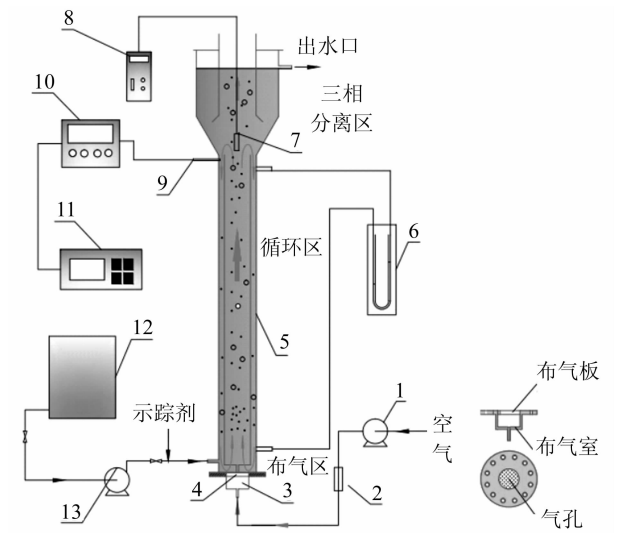
1 实验

1.1 实验装置和材料

内循环三相生物流化床反应器实验装置如图1所示。装置采用有机玻璃制成,反应器总体积 $V = 12.5\text{ L}$,总高 $H = 1\,250\text{ mm}$,循环段高度 $H_d = 850\text{ mm}$,反应器内径 $D = 100\text{ mm}$,导流筒内径 $d = 75\text{ mm}$,底隙高度 $h = 20\text{ mm}$ 。反应器分为顶部分离区、中部循环区、底部布气区。气体分布器主要由布气室和布气板构成,分布板参数如表1,其中微孔分布器与大孔分布器主要用于比较孔径的影响,微孔与陶瓷分布器主要在于比较气孔分布密度的影响。

实验采用中心曝气,进气量经转子流量计计量,通过分布器形成气泡进入反应器,大部分气泡由分离区逸出,少量气泡被液相带入循环段降流区参与循环,升、降流区气含率的差异,形成了液相循环的

推动力,固相随液相在循环段流化。



1. 气体压缩机; 2. 气体流量计; 3. 布气室; 4. 布气板;
5. 内循环反应器; 6. 压差计; 7. 溶氧探头; 8. 溶氧仪;
9. 电导探头; 10. 电导仪; 11. 无纸记录仪; 12. 储料桶; 13. 蠕动泵。

图1 实验装置示意图

Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus

表1 布气板主要参数

Tab.1 Parameters of gas distributor

分布器名称	材料	曝气面直径/mm	曝气面孔数量	平均孔径/ μm
微孔分布器	橡胶板	60	250(均布)	160
大孔分布器	橡胶板	60	100(均布)	950
陶瓷分布器	烧结陶瓷	60	~2 500	~200

实验采用空气-水-高分子颗粒作为三相体系。高分子多孔球形载体为人工合成,粒径为 $0.55 \sim 0.9\text{ mm}$,骨架密度为 $1\,320\text{ kg/m}^3$,湿堆积密度为 $1\,010\text{ kg/m}^3$ 。实验用水为常温自来水,实验用气为室温空气,进气量 $Q_g = 50 \sim 600\text{ L/h}$ 。

1.2 实验方法与流程

1.2.1 气含率的测定

总气含率 ε_{gt} 的测量采用排水法:在空气流量恒定的条件下,测量排出反应器的水量 ΔV ,反应器内流体总体积为 V ,则有:

$$\varepsilon_{gt} = \Delta V/V \tag{1}$$

降流区气含率 ε_{gd} 测量采用压差法:将U型压差计的两探头分别安装在降流区的上下端头,实验中记录压差计的液面差 Δh ,然后由压力平衡关系确定 ε_{gd} :

$$\varepsilon_{gd} = \frac{\rho_l - \rho_g}{\rho_l} \cdot \frac{\Delta h}{H_c} \tag{2}$$

其中, H_c 为两测量点之间的距离, ρ_l 和 ρ_g 分别是液

相和气相密度。

升流区气含率 ε_{gr} 可根据总气含率 ε_{gt} 和降流区气含率 ε_{gd} 结合质量衡算得到。

1.2.2 循环液速的测量

循环液速的测量采用电导示踪法。反应器稳定运行时,从底部进料口瞬间注入示踪剂(示踪剂采用浓度 2 g/L 的 KCl 溶液),通过无纸记录仪采集电导仪测定的反应器中示踪剂浓度响应曲线,并由曲线波峰间距确定循环时间,然后确定循环液速。图 2 为测得的典型响应曲线,为减少流体循环波动的影响,以曲线可见峰的时间距离的平均值作为平均循环时间 t_c ,则循环速率 U_c 为:

$$U_c = 2H_d/t_c \quad (3)$$

其中, H_d 为流化床循环段的高度, m。

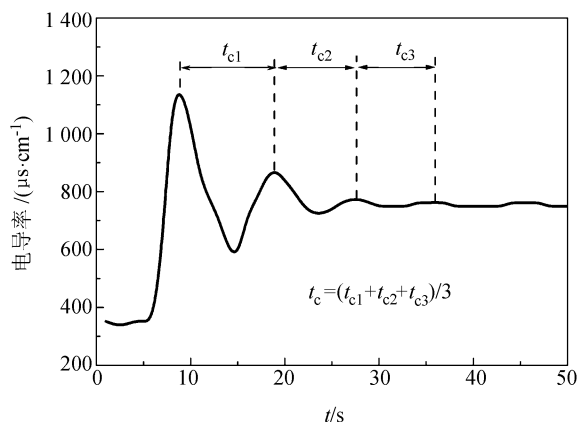


图 2 示踪法测定液体循环时间示意图

Fig. 2 Sketch map for the measurement of liquid circulation time using tracer method

1.2.3 体积氧传质系数测定

体积氧传质系数采用亚硫酸钠空气氧化法测定。在反应器中注满水并加入生物膜颗粒载体,并首先根据反应器中的溶氧值加入一定量的亚硫酸钠和氯化钴溶液,待反应器中溶氧值降为零后,将探头置于测量位置;然后空气以一定流量进入反应器,每间隔 10 s 记录测量点液相溶氧值,直至溶氧值稳定无变化时结束。体积氧传质系数 $K_L a$ 可根据测试溶氧浓度 $C(t)$ 利用作图法得到。

基于双膜理论,气-液两相之间氧传质速率方程^[16]用下式表示:

$$\frac{dC}{dt} = K_L a (C^* - C) \quad (4)$$

其中, C^* 为该温度和压力下的水的饱和溶氧浓度, mg/L; C 为 t 时刻反应器内液相的溶氧浓度, mg/L。考虑 $t = 0$ 时刻液相氧浓度为零,对上式积分得:

$$\ln(C^* - C) = -K_L a \cdot t + \ln C^* \quad (5)$$

根据式(5),由实验测得的各时刻下的 C 作出 $\ln(C^* - C)$ 直线关系图,再直线斜率确定体积氧传质系数 $K_L a$ 。图 3 为其中一组典型实验曲线,图中直线斜率即为实验温度 T 下的体积氧传质系数 $(K_L a)_T$ 。

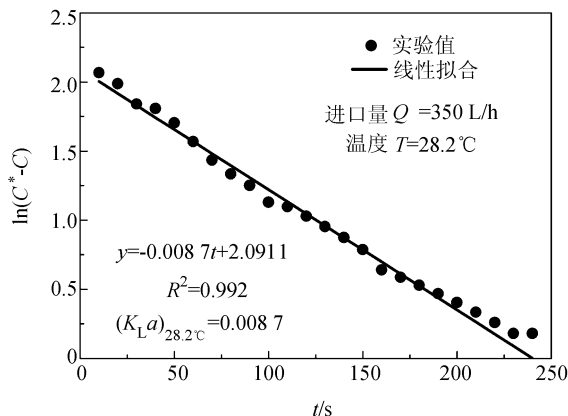


图 3 作图法求取 $K_L a$

Fig. 3 Determination of $K_L a$ by plotting method

然后根据式(6)可将 $(K_L a)_T$ 转换为标准状态(1 atm, 20 °C)下的氧体积传质系数 $(K_L a)_{20}$:

$$(K_L a)_{20} = (K_L a)_T \times 1.024^{20-T} \quad (6)$$

以下讨论中将 $(K_L a)_{20}$ 记作 $K_L a$ 。

上述气含率、循环液速、体积氧传质系数测量实验中,每个工况进行 3 次测试,以其平均值作为测试结果。

2 结果与讨论

2.1 气含率实验结果

图 4 表示不同分布器下反应器中的气含率与进气量的关系。由图可见,对于 3 种分布器,提高进气量反应器升流区的气含率总是增加的,因为气含率是进气量的直接反映;但降流区的情况有所不同:进气量较小时($Q_g < 260$ L/h),降流区无气泡或仅有少量气泡但不参与循环(气含率 $\varepsilon_g \approx 0$),此时对应的升流区内气泡尺寸小且分布均匀,气泡直线上升,相互间作用较小,从流动形态的角度,文献[11]中将其称为均相流区;高气量下($Q_g > 260$ L/h)降流区开始出现较多气泡,并穿透整个降流区参与循环,其气含率随进气量增加缓慢提高,此时对应的升流区内气泡间相互作用增强,气泡堆积、聚并,形成气泡链,气含率增加的速率有所减缓,从流动形态上文献[11]中将其称为非均相流区。图 4 的结果表明,降流区气含率的变化可较明确地区分流动形态上的均相流区和非均相流区。

由图 4 中不同分布器对应气含率的比较可见,

相同进气量条件下,微孔分布器对应的升流区气含率显著高于大孔分布器。由这一结果可以推知,微孔分布器形成的气泡数量多、直径小,因为进气量恒定的条件下,只有在反应器中形成了大量分散的小气泡,才有可能减缓气相上升速率、增长停留时间,获得更高的气含率。此外,由于小尺寸气泡更容易被循环流带入降流区,因此微孔分布器对应的降流区气含率也高于大孔分布器,但两者之间的差异明显小于升流区。

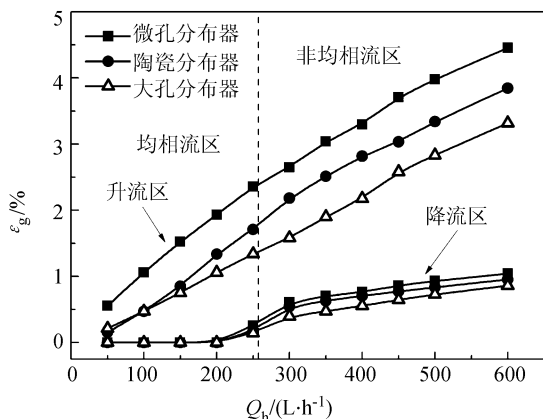


图4 反应器升降流区气含率随进气量的变化

Fig.4 Variations of gas holdups with gas flow rate in riser and downcomer

另一方面,由图4还可发现,尽管陶瓷板分布器孔径($\sim 200\ \mu\text{m}$)也相对较小,但由于孔的分布密集(曝气面积内孔数约2 500),气泡在生长、脱离阶段易于发生聚并,导致进入反应器的气泡尺寸增大、停留时间缩短,因此其气含率也明显小于微孔分布器(相同曝气面积内孔数仅250)。

以上结果分析表明,分布器气孔直径和气孔分布密度是决定反应器内气泡行为两个主要因素。

2.2 循环液速实验结果

图5表示不同气体分布器条件下循环液速 U_c 与进气量 Q_g 的关系。由图可知,进气量对反应器内循环速率有直接的影响。对于每一种分布器,低进气量下(均相流区)对应的循环液速 U_c 都表现出随进气量的增大而快速增大,但随进气量 Q_g 的进一步增大进入非均相流区后($Q_g > 260\ \text{L/h}$),部分气泡同时参与循环,循环液速 U_c 的增加显著减缓。

从动力学的角度,内循环三相生物流化床反应器的内循环速率 U_c 受2个因素控制,升降流区的流体密度差和流动阻力(包括生物膜颗粒的阻力),其中升降流区流体密度差的决定因素是两区之间的气含率差 $\Delta\epsilon_g (= \epsilon_{gr} - \epsilon_{gd})$ 。低进气量下,流体的湍动和气-液-固之间的相互作用均较小,流动阻力

小,内循环速率主要受气含率差 $\Delta\epsilon_g$ 控制,随进气量提高, $\Delta\epsilon_g$ 显著增大(如图6所示),因而循环速率显著提高;高气量下(进入非均相流区),此时提高进气量,虽然 $\Delta\epsilon_g$ 仍然增大,但流动阻力也随之增大,但故内循环液速增长显著减缓。为减小湍流内循环的循环阻力,有人曾在循环区底部设置挡板实现有序流态,取得了一定的节能效果^[17]。

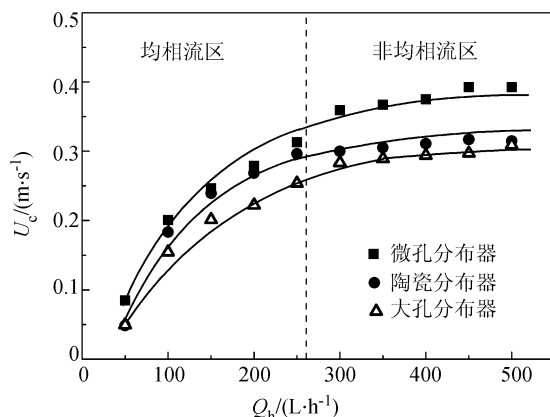


图5 不同分布器下进气量对循环速率的影响

Fig.5 Effect of air flow rate on liquid circulation velocity for different gas distributors

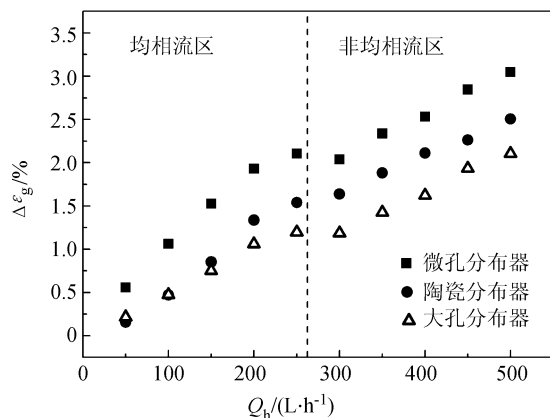


图6 不同气体分布器下升降流区的气含率差

Fig.6 Gas holdup differences between the riser and the downcomer for different gas distributors

此外,由图中结果对比可见,同一进气量下微孔分布器对应的循环速率高于其他两种分布器,结合前面各分布器对应气含率测试结果的讨论不难理解这一结果:同一气量下,微孔分布器对应的升流区气含率显著高于其他两种分布器,而3种分布器对应的降流区气含率差异缩小,故同一气量下微孔分布器对应的升降流区气含率差 $\Delta\epsilon_g$ 最大(见图6),因而其对应的循环液速最高。同一气量下3种分布器对应循环速率的不同,本质上反映了气含率作为三相生物流化床反应器的主要参数,将从流体动力学

方面对反应器产生显著影响。

2.3 体积氧传质系数实验结果

不同气体分布器条件下的体积氧传质系数 $K_L a$ 与进气量关系如图 7 所示。

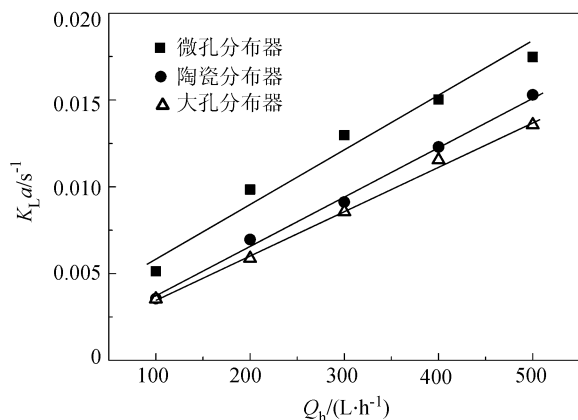


图 7 不同分布器下体积氧传质系数随进气量的变化
Fig.7 Variations of volumetric oxygen transfer coefficient with gas flow rate for different gas distributors

从图 7 中可以看出,对于每一种分布器,对应的体积氧传质系数 $K_L a$ 在实验范围内均随进气量增加呈近似线性增长关系,与气含率随进气量的变化有较显著的对应关系(见图 4)。一般讲,体积传质系数 $K_L a$ 的增加有两方面的原因,一是因为总气含率随进气量增加而增大,使得气液传质比表面积 a 随之增加;二是因为进气量的增大,提高了反应器内部流体的循环速率和湍动强度,从而使得传质系数 K_L 增大^[14]。但从体积传质系数 $K_L a$ 与总气含率随进气量增加均呈近似线性增长的关系看,气含率增大导致的比表面积 a 增加是影响体积传质系数 $K_L a$ 的主要因素。

分布器之间的比较可见,在相同进气量的情况下,微孔分布器对应的 $K_L a$ 最大,陶瓷分布器次之,大孔分布器最小。由气含率的讨论可知(见图 4),在相同进气量的情况下,对应微孔分布器的反应器内气含率最高,且气泡尺寸较小,因此气液传质的比表面积 a 较大;另一方面,微孔分布器对应的循环液速也最高(见图 5),因此液相湍动激烈,气液传质边界层厚度变薄,从而减小了传质阻力,提高了传质系数 K_L 。两者的共同作用导致了设置微孔分布器的反应器具有较高的体积氧传质系数。同一气量下 3 种分布器对应体积传质系数的不同,本质上反映了气含率作为三相生物流化床反应器的主要参数,将从传质动力学方面对反应器产生显著影响。

3 结 论

对 3 种不同分布器下内循环三相好氧生物流化床反应器内的气含率、内循环速率及体积氧传质系数及进气量的影响进行了实验研究,结果表明:

1) 进气量 Q_g 是决定气含率 ε_g 的直接因素。 Q_g 提高,升流区气含率 ε_{gr} 随之增加;降流区气含率 ε_{gd} 变化可分为两个阶段:低气量下($Q_g < 260$ L/h),气含率 $\varepsilon_{gd} \approx 0$ (此阶段降流区无气泡或仅有少量气泡,升流区气泡较为分散,称为均相流区);高气量下, ε_{gd} 随 Q_g 提高缓慢增加,但 $\varepsilon_{gd} \ll \varepsilon_{gr}$ (此阶段降流区有较多气泡并参与循环,升流区气泡出现堆积并聚,称为非均相流区)。

2) 分布器气孔直径和气孔分布密度对反应器内的气含率有显著影响。相同进气量下,微孔分布器对应的升流区气含率显著高于大孔分布器,表明微孔有助于形成大量小气泡;而微孔分布器对应的气含率明显高于陶瓷分布器则进一步表明,即使孔径较小,若气孔分布过于密集则会使气泡在生长脱离阶段发生聚并增大,导致反应器内气含率降低。

3) 循环液速 U_c 由升降流区气含率差 $\Delta\varepsilon_g$ 及循环阻力确定。在低气量范围($Q_g < 260$ L/h), $\Delta\varepsilon_g$ 是控制因素,此时 Q_g 增加 $\Delta\varepsilon_g$ 随之增加,故 U_c 迅速增加;在高气量范围,虽然 $\Delta\varepsilon_g$ 随 Q_g 增加继续增大,但流动阻力也随之增大,故 U_c 增长缓慢;同一进气量下,不同分布器对循环液速 U_c 的影响则由其导致的气含率差 $\Delta\varepsilon_g$ 所决定,对应 $\Delta\varepsilon_g$ 较大的分布器(如本实验中的微孔分布器), U_c 相应较高。

4) 体积氧传质系数 $K_L a$ 在实验范围内随进气量增加呈近似线性增长关系,与总气含率随进气量的变化关系类似,表明气含率增大导致的比表面积 a 增加是体积传质系数增大的主要因素。同一进气量下,不同分布器对体积传质系数的影响则由分布器导致的气含率 ε_g 所决定,对 ε_g 较高的分布器(如本实验中的微孔分布器), $K_L a$ 相应较高。

参考文献:

- [1] Qin T F, Shen B X, Zhou Q X, et al. Biodegradation performance of an inner-loop three-phase fluidized-bed bioreactor to treat petrochemical wastewater[J]. Petroleum Science and Technology, 2014, 32(7): 848-855.
- [2] Xianling L, Jianping W, Qing Y, et al. The pilot study for oil refinery wastewater treatment using a gas-liquid-solid three-phase flow airlift loop bioreactor[J]. Biochemical

- Engineering Journal, 2005, 27(1): 40 - 44.
- [3] Hu Kun, Jing Changyi, Guo Yong, et al. Experimental study on an inner-loop three-phase biological fluidized reactor for treatment of wastewater from sugar industry[J]. Journal of Sichuan University: Engineering Science Edition, 2011, 43(5): 185 - 190. [胡堃, 金长义, 郭勇, 等. 内循环三相好氧生物流化床处理糖业废水实验研究[J]. 四川大学学报: 工程科学版, 2011, 43(5): 185 - 190.]
- [4] Wei Chaohai, Huang Huijing, Ren Yuan, et al. Analysis of novel style biological fluidized bed A/O combined process in dyeing wastewater treatment [J]. Environmental Science, 2011, 32(4): 1048 - 1054. [韦朝海, 黄会静, 任源, 等. 印染废水处理工程的新型生物流化床组合工艺技术分析[J]. 环境科学, 2011, 32(4): 1048 - 1054.]
- [5] Luo H P, Al-Dahhan M H. Local characteristics of hydrodynamics in draft tube airlift bioreactor[J]. Chemical Engineering Science, 2008, 63(11): 3057 - 3068.
- [6] Liu Mengxi, Lu Chunxi, Chu Ling, et al. Theoretical analysis of gas holdup in a novel air loop reactor[J]. Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities, 2005, 19(3): 332 - 337. [刘梦溪, 卢春喜, 储凌, 等. 中心气升式三相强化环流反应器内气含率分布的理论分析[J]. 高校化学工程学报, 2005, 19(3): 332 - 337.]
- [7] Wang Wenhua, Shen Juan, Xu Zhigang, et al. Study on hydrodynamics of internal airlift loop reactor [J]. Modern Chemical Industry, 2008(S1): 325 - 328. [王文华, 沈娟, 徐志刚, 等. 气升式内环流反应器的气含率研究[J]. 现代化工, 2008(S1): 325 - 328.]
- [8] Schäfer R, Merten C, Eigenberger G. Bubble size distributions in a bubble column reactor under industrial conditions[J]. Experimental Thermal and Fluid Science, 2002, 26(6): 595 - 604.
- [9] Wongsuchoto P, Charinpanitkul T, Pavasant P. Bubble size distribution and gas-liquid mass transfer in airlift contactors[J]. Chemical Engineering Journal, 2003, 92(1): 81 - 90.
- [10] Heijnen J J, Hols J, Van Der Lans R, et al. A simple hydrodynamic model for the liquid circulation velocity in a full-scale two-and three-phase internal airlift reactor operating in the gas recirculation regime[J]. Chemical Engineering Science, 1997, 52(15): 2527 - 2540.
- [11] Vial C, Poncin S, Wild G, et al. A simple method for regime identification and flow characterisation in bubble columns and airlift reactors[J]. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 2001, 40(2): 135 - 151.
- [12] Cao Y S, Alaerts G J. Influence of reactor type and shear stress on aerobic biofilm morphology, population and kinetics[J]. Water Research, 1995, 29(1): 107 - 118.
- [13] Nicolella C, Van Loosdrecht M C M, Van der Lans R, et al. Hydrodynamic characteristics and gas-liquid mass transfer in a biofilm airlift suspension reactor[J]. Biotechnology and Bioengineering, 1998, 60(5): 627 - 635.
- [14] Hwang S J, Lu W J. Gas-liquid mass transfer in an internal loop airlift reactor with low density particles[J]. Chemical Engineering Science, 1997, 52(5): 853 - 857.
- [15] Liu Youzhi, Luo Wenhao, Shang Hai, et al. Gas liquid mass transfer specific area in microporous membrane gas distributor[J]. Chemical Industry and Engineering Progress, 2009, 28(9): 1536 - 1539. [刘有智, 罗文浩, 尚海茹, 等. 微孔膜气体分布器气液传质比表面积的研究[J]. 化工进展, 2009, 28(9): 1536 - 1539.]
- [16] Onken U, Sick R, Weiland P. Determination of gas-liquid mass transfer by oxidation of hydrazine[J]. Chemical Engineering Science, 1985, 40(10): 1990 - 1993.
- [17] Wei Chaohai, Li Lei. Hydraulic characteristics of internal loop fluidized bed with baffle setting on bottom[J]. Journal of Chemical Industry and Engineering-China, 2007, 58(10): 2480 - 2484. [韦朝海, 李磊. 底隙设置挡板内循环流化床水力特性分析[J]. 化工学报, 2007, 58(10): 2480 - 2484.]