

ЛИТЕРАТУРА

- Кутателадзе С. С., Леонтьев А. И. Тurbulentный пограничный слой сжимаемого газа. СО АН СССР, Новосибирск, 1962.
- Тепломассобмен и трение в турбулентном пограничном слое. СО АН СССР, Новосибирск, Ин-т теплофизики, 1964.
- Леонтьев А. И., Миронов Б. П., Луговской П. П. Экспериментальное определение критического параметра вдува на пористой пластине. Инж.-физ. ж., 1966, т. 10, № 4.
- Луговской П. П., Миронов Б. П. Влияние продольного положительно-го градиента давления на критический параметр вдува. Инж.-физ. ж., 1967, т. 13, № 4.
- Мугалев В. П. Экспериментальное исследование дозвукового турбулентного пограничного слоя на пластине со вдувом. Изв. вузов, Авиационная техника, 1959, № 3.
- Hacker D. S. Interferometric investigation of the stability of a turbulent boundary layer with Mass addition. An ASME publication. Paper Number 58-A-249.
- Willis I. A. B. The correction of hot-wire readings for proximity to a solid boundary. J. Fluid Mech., 1962, vol. 12, pt. 3.

ИССЛЕДОВАНИЕ МАССООБМЕНА В СИСТЕМЕ ГАЗОВЫХ ПУЗЫРЕЙ И ЖИДКОСТИ

И. В. Белов, Е. В. Проколов

(Свердловск)

Экспериментально исследован процесс растворения системы пузырей CO_2 в воде и в водных растворах декстрозы. Расчетом оценена площадь межфазной поверхности и определен коэффициент массоотдачи β .

Установлена связь величины β с диаметром пузыря, физическими свойствами жидкости и интенсивностью продувки жидкости потоком газа.

Предложено критериальное уравнение для расчета β .

Общепризнанной теории массообмена между системой газовых пузырей и жидкостью нет [1]. Даже для единичного пузыря в жидкости при числах Рейнольдса $NRe > 1$ известные теоретические модели массообмена, как показано в работе [2], не соответствуют экспериментальным данным. Например, для растворения CO_2 из единичного пузыря в воде величина коэффициента массоотдачи β по уравнению В. Г. Левича [3, стр. 332] в 11-12 раз выше опытных значений, полученных в работах [2, 4]. Поэтому закономерности массообмена и величина β определяются на опыте.

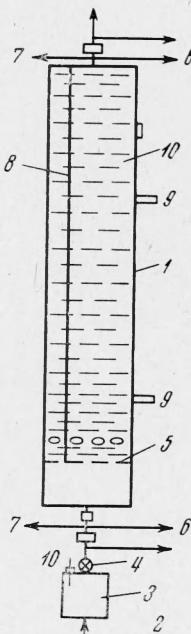
Обычно результаты экспериментальных исследований массообмена между системой пузырей и жидкостью даются в форме зависимости величины βF или ее аналогов от параметров процесса [5-7]. Такая форма представления экспериментальных данных не раскрывает механизма массообмена (связанного либо с ограничением межфазной поверхности F , либо с характеристикой переноса вещества β), исключает оценку влияния режимных параметров массообмена на его интенсивность и затрудняет использование опытных данных при анализе массообмена в иных условиях.

Ниже при расчете межфазной поверхности F используются закономерности движения и формоизменения единичных пузырей, описанные авторами в работе [8].

1). Опыты проводились в прозрачной колонне 1 высотой 2 м, поперечным сечением $S = 0.2 \times 0.2 \text{ м}^2$.

Схема установки представлена на фиг. 1, где 1 — экспериментальная колонна, 2 линия от баллона, 3 — промежуточная емкость, 4 — регулировочный вентиль, 5 — решетка, 6 — диафрагмовый реометр, 7 — манометр, 8 — перегородка, 9 — штуцер, 10 — термометр.

Углекислый газ чистотой 99.8% из баллона 2 через промежуточную емкость 3 с регулировочным вентилем 4 подавался в камеру под медную решетку 5 с 16 отверстия-



Фиг. 1

ми диаметром $d = 0.15 \cdot 10^{-2}$ м (живое сечение — 0.07%). Высота H наполнения колонны жидкостью изменялась от 0.7 до 2.0 м, а объем V^o жидкости в колонне — от 0.028 до 0.080 м³. Пусть удельный расход газа $\theta = Q_1 / V^o$ (0.30—1.60) · 10⁻³ м³/м³ сек; здесь Q_1 — объемный расход газа на входе в колонну.

		$\rho \cdot 10^{-3}$	$v \cdot 10^4$	$D \cdot 10^6$	$\varphi_{10132.5}^0$	$\sigma \cdot 10^3$
Вода	1	0.998	0.009	1.9	3.50	72.75
Водные растворы	2	1.095	0.015	1.37	2.92	73.01
	3	1.150	0.035	1.07	2.45	74.89
декстрозы	4	1.175	0.054	0.94	2.18	75.51

В опытах использовалась дистиллированная вода (1) и водные растворы декстрозы различной плотности (строки 2, 3, 4 таблицы). Плотность растворов ρ (кг/м³) измерялась денситметрами с ценой деления 1 кг/м³. Коэффициент кинематической вязкости жидкостей v (м²/сек) определялся на вискозиметре ВПЖ-1 с диаметром капилляра 0.86 мм. Коэффициенты диффузии CO₂ в воде и в водных растворах декстрозы D (м²/сек) и константы растворимости φ_0 (кмоль/мкн) для соответствующих значений плотности растворов ρ принимались по данным работы [2]. Коэффициент поверхностного натяжения воды σ (н/м) принят по данным [9, стр. 1010]. Для водных растворов декстрозы величина σ оценена через величину парахора [10]. Все характеристики жидкости определены при температуре проведения опытов 20° С.

Основное сопротивление растворению CO₂ в воде и в водных растворах декстрозы сосредоточено в жидкой фазе [2,4], и коэффициент массоотдачи β определяется уравнением

$$\langle\beta\rangle = \frac{q}{\langle F \rangle (C_0 - \langle C \rangle)} \quad (1.1)$$

Здесь q — скорость массопереноса, кмоль/сек; F — площадь межфазной поверхности, м²; C_0 — концентрация газа в жидкости, равновесная концентрации в объеме газовой фазы, кмоль/м³; $\langle C \rangle$ — средняя за время массообмена концентрация газа в жидкости, кмоль/м³.

Реакция CO₂ + H₂O ⇌ H₂CO₃ протекает очень медленно (константа скорости 0.025 л/моль сек при 25° С [11]) и оказывает пренебрежимо малое влияние на скорость растворения.

При установившемся режиме скорость массообмена определяется как разность молярных расходов газа на входе ($Q_{1,0}C_1$) и выходе ($Q_{2,0}C_2$) системы, приведенных к температуре 293°К и давлению 101.325 кн/м²

$$q = Q_{1,0}C_1 - Q_{2,0}C_2 \quad (1.2)$$

Здесь Q — объемный расход газа, C — молярная концентрация CO₂ в газе.

В опытах исходный газ на входе в колонну считался сухим, а выходящий из колонны — полностью насыщенным парами воды. Расходы газа на входе в колонну Q_1 и на выходе из нее Q_2 измерялись диафрагмовыми реометрами б с точностью 2.5%, а давление газа перед диафрагмами — жидкостными манометрами 7.

Для труднорастворимых газов разность $C_0 - \langle C \rangle$ определяется преимущественно величиной C_0 и поэтому уравнение (1.1) величину $\langle C \rangle$ с достаточной точностью можно определить как среднеарифметическую значения концентраций CO₂ в жидкости до опыта C' и после опыта C''

$$\langle C \rangle = 0.5 (C' + C'') \quad (1.3)$$

Величины C' и C'' определялись как средние по данным щелочного титрования двух проб жидкости, отобранных в 100 мл пикнометры с разных уровней колонны через штуцера 9. Относительная погрешность анализа составляла 6%.

Растворимость CO₂ в воде и в водных растворах декстрозы достаточно хорошо [2,4] подчиняется закону Генри

$$C_0 = \varphi_0 \langle p \rangle \quad (1.4)$$

где φ_0 — постоянная Генри, кмоль/нм; $\langle p \rangle$ — среднее по высоте жидкости парциальное давление CO₂ в пузырях, н/м².

Для системы равномерно распределенных в жидкости больших пузырей

$$\langle p \rangle = y (p + 0.5 Hg\rho) \quad (1.5)$$

Здесь y — мольная доля CO₂ в газовой фазе, p — абсолютное давление над жидкостью, ρ — плотность жидкости, g — ускорение силы тяжести.

Контроль в опытах величин q и $\langle C \rangle$ позволяет определить величину $\langle \beta F \rangle$. Для определения $\langle \beta \rangle$ величина межфазной поверхности $\langle F \rangle$ оценивается расчетом.

В общем случае суммарная поверхность пузырей

$$\langle F \rangle = N \int_0^H P(h) F(h) dh \quad (1.6)$$

Здесь N — число одновременно находящихся в жидкости пузырей, $F(h)$ — площадь поверхности единичного пузыря на высоте h , $P(h)$ — дифференциальная функция распределения пузырей по высоте.

Практически скорость всплыния пузыря $u \approx \text{const}$ ¹ и поэтому

$$P(h) = \frac{1}{H}, \quad \langle F \rangle = \frac{N}{H} \int_0^H F(h) dh \quad (1.7)$$

Выраженная через объем V , поверхность пузыря, рассматриваемого как сплющеный сфериод

$$F(h) = \varphi V^{2/3}(h), \quad \varphi = 3.42 \frac{(m^2 + 1)^{1/2}}{m^{1/3}}, \quad m = \frac{a}{b} \quad (1.8)$$

Здесь a — фронтальный диаметр пузыря, b — высота пузыря. Параметр m является функцией начальной деформации пузыря m^* и времени от начала всплыния (сек) [8]. Так для воды

$$m = m^* - 0.08\tau \quad (\tau < 7.5 \text{ сек}) \quad (1.9)$$

Для растворов декстrozы численный коэффициент при τ в этой зависимости оценивался расчетом и лежал в пределах 0.12—0.43.

При $\tau < 15$ сек изменение φ в пределах H не превышает 12% и в формуле (1.8) можно принять среднеарифметическое $\langle \varphi \rangle$ из значений φ в начале и в конце движения пузыря. Текущий объем пузыря

$$V(h) = V^* (1 - Kh) \frac{B}{B - h}, \quad B = H + \frac{p}{\sigma^2} \quad (1.10)$$

Здесь V^* — отрывной объем пузыря; K — коэффициент, учитывающий уменьшение массы пузыря за время всплыния.

Значение K подсчитывалось по количеству абсорбированного в опыте газа

$$K = \frac{1}{H} \left(1 - \frac{Q_2}{Q_1} \frac{B - H}{B} \right) \quad (1.11)$$

Подстановка в уравнение (1.7) уравнений (1.8) и (1.10) дает

$$\langle F \rangle = \frac{N}{H} \langle \varphi \rangle V^{2/3} B^{2/3} \int_0^H \left(\frac{1 - Kh}{B - h} \right)^{2/3} dh \quad (1.12)$$

Интеграл в уравнении (1.12) вычислялся численно. Величины N и V^* связаны очевидным соотношением

$$N = \frac{Q_1 T}{V^*} \quad (1.13)$$

где T — время всплыния пузыря на высоту H .

Число одновременно находящихся в колонне пузырей подсчитывалось по фотографиям ее продольного сечения, выделенного вдоль одного ряда отверстий тонкой непрозрачной перегородкой γ (фиг. 1).

При всех расходах газа не наблюдалось сколь-нибудь заметных перемещений пузырей в поперечном сечении колонны или их циркуляции в ее объеме.

При небольших расходах газа (для объемного газосодержания)

$$\psi = \frac{Q_1}{\langle u \rangle S} \leq 1.7 \cdot 10^{-3} \text{ м}^3/\text{м}^3$$

¹ По данным [8] при всплытии пузыря $d = 0.65 \cdot 10^{-2}$ м на высоту 2 м диаметр его увеличивается до $0.78 \cdot 10^{-2}$ м, а скорость всплытия уменьшается от 23.1 до 22.7 м/сек.

действительное количество пузырей близко совпадает с расчетным, если отрывной объем пузыря в уравнении (1.13) определяется из условия равновесия подъемных сил и сил поверхностного натяжения

$$V^* = \frac{\pi d_* \sigma}{g (\rho - \rho')} \quad (1.14)$$

где ρ' — плотность газа.

С увеличением расхода газа ($\phi = 1.7 \cdot 10^{-3} - 7.7 \cdot 10^{-3} \text{ м}^3/\text{м}^3$) отклонение между расчетным (кривая 1) и действительным числом пузырей (точки 2) возрастает (фиг. 2).

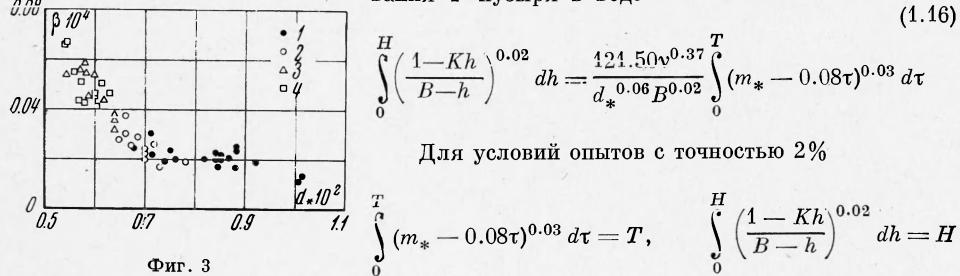
Это обусловлено, по-видимому, изменением отрывного объема пузырей при повышенных расходах газа [12] и их слиянием в объеме жидкости, заметном на фотографиях по резко выраженной несопоставимости объемов пузырей в одном и том же сечении колонны.

Поэтому расчет $\langle F \rangle$ производился по условному отрывному объему пузыря V_* , вычисленного из уравнения (1.13) при найденных в опыте значениях N . Тем самым очень сложная действительная картина движения системы пузырей сводится к приближенной модели, в которой отсутствует слияние отдельных пузырей, а их скорость всплыния, форма и поверхность могут быть рассчитаны по формулам для единичного пузыря. Применение такой модели оправдывается очень слабой зависимостью скорости всплыивания пузыря от его диаметра. Абсолютные значения такого расчетного «отрывного» диаметра пузыря d_* лежали в пределах $(0.5 - 1.0) \cdot 10^{-2} \text{ м}$.

Текущая скорость всплыния пузыря [8]

$$u = 121.50 \nu^{0.37} \frac{m^{0.03}}{d^{0.06}} \quad (1.15)$$

Подставим $u = dh/d\tau$ в уравнение (1.15), а m и d из соотношений (1.9) и (1.10). После интегрирования в результате получим уравнение для вычисления времени всплыния T пузыря в воде



Для условий опытов с точностью 2%

$$\int_0^H \left(\frac{1 - Kh}{B - h} \right)^{0.02} dh = \frac{121.50 \nu^{0.37}}{d_*^{0.06} B^{0.02}} \int_0^T (m_* - 0.08\tau)^{0.03} d\tau \quad (1.16)$$

Поэтому

$$T = \frac{H d_*^{0.06} B^{0.02}}{121.50 \nu^{0.37}} \quad (1.17)$$

Объединение уравнений (1.17) и (1.13) дает приближенное выражение

$$V_* = \frac{1.013 H B^{0.02} Q_1}{121.50 \nu^{0.37} N} \quad (1.18)$$

По найденному значению d_* определяется m_* , затем $\langle \phi \rangle$. Метод расчета m_* рассмотрен в работе [8]. Для растворов декстрозы величины T и V_* рассчитывались аналогичным способом.

Предельная относительная ошибка определения величины β составляет 15%.

2. Исследование динамики растворения CO_2 в воде при постоянном расходе газа Q_1 показало, что величина βF в широких пределах изменения продолжительности опыта (45—300 сек) остается постоянной¹.

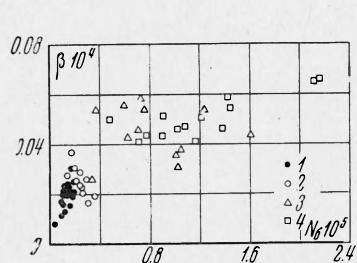
В опытах обнаружено, что при $d_* < 0.7 \cdot 10^{-2} \text{ м}$ величина β резко убывает с ростом d_* , а при $d_* > 0.7 \cdot 10^{-2} \text{ м}$ остается практически постоянной (фиг. 3). Здесь

¹ Это подтверждает допустимость определения величины βF по средней за время опыта концентрации CO_2 в жидкости (уравнение (1.3)).

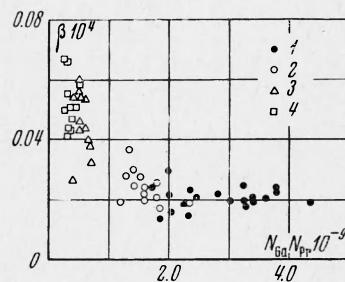
и дальние номера точек на фигурах соответствуют строчкам табл. 1. Установленный характер зависимости β от d_* связан, по-видимому, с режимом движения жидкости в окрестности пузыря: так, по Бэрду [4] уменьшение и постепенная стабилизация β с ростом d объясняется развитием и стабилизацией турбулентного следа за пузырем; в турбулентном следе происходит выравнивание концентраций и поверхность пузыря в этой области исключается из массообмена.

Как для воды, так и для водных растворов декстрозы изменение экспериментальной величины $\langle \beta F \rangle$ практически прямо пропорционально изменению расхода газа Q_1 . Это объясняется тем, что скорость увеличения $\langle F \rangle$ значительно превышает скорость уменьшения β при увеличении среднего диаметра пузыря.

При растворении CO_2 в воде численные значения β (0.010—0.030 см/сек) хорошо соответствуют сводке экспериментальных данных для единичных пузырей [13]. Значения β для растворов декстрозы (0.020—0.065 см/сек) близки к данным [2].



Фиг. 4



Фиг. 5

Для рассматриваемого процесса анализом размерностей получена следующая система определяющих критериев:

$$N_\delta = \frac{\nu Q_1}{gd_*^2 S}, \quad N_{Ga} N_{Pr} = \frac{gd_*^3}{\nu D}, \quad N_{We} = \frac{\sigma}{gd_*^2 (\rho - \rho')}, \quad N_r = \frac{H}{d_*}$$

Здесь N_δ — критерий барботирования, N_{Ga} — критерий Галлилея, N_{Pr} — диффузионный критерий Прандтля; N_{We} — критерий Вебера, N_r — критерий геометрического подобия.

Обнаружено (фиг. 4, 5), что, начиная с $N_\delta = (0.4-0.6) 10^{-5}$ и $N_{Ga} N_{Pr} = 2.0 \times 10^9$, практически наступает стабилизация значений β . Независимость β от N_δ и $N_{Ga} N_{Pr}$ в рассматриваемой области может быть объяснена следующим: с увеличением интенсивности барботирования объем части пузырей вследствие их слияния увеличивается, а β (в соответствии с фиг. 3) уменьшается; это компенсирует увеличение β за счет турбулизации жидкости.

Результаты опытов хорошо описываются критериальным уравнением

$$\frac{\beta d_*}{D} = 2.0256 \cdot 10^{10} N_\delta^{0.10} N_r^{0.16} (N_{Ga} N_{Pr})^{-0.88} N_{We}^{-1.16} \quad (2.1)$$

справедливым в области значений $N_\delta = (0.03-2.10) \cdot 10^{-5}$, $N_{Ga} N_{Pr} = (0.27-4.30) 10^9$, $N_r = 96-260$, $N_{We} = 0.065-0.226$.

Анализ уравнения (2.1) показывает, что при увеличении расхода газа Q_1 (но сохранении постоянным диаметром пузырей) скорость массообмена q определяется преимущественно развитием межфазной поверхности (увеличение числа пузырей в системе) и лишь в небольшой степени интенсифицируется за счет турбулизации жидкости. Так, при увеличении расхода газа в шесть раз (увеличение межфазной поверхности $\langle F \rangle$ в 3.3 раза) величина $\langle \beta \rangle$ увеличивается лишь в 1.18 раза, а $\langle \beta F \rangle$ — в 3.8 раза. Это говорит о том, что перенос вещества определяется главным образом режимом течения жидкости в окрестности пузыря и слабо зависит от степени турбулизации жидкости в объеме.

Наиболее сильное влияние на величину β оказывает изменение диаметра пузыря d_* . Например, при постоянном расходе газа Q_1 при уменьшении d_* в 1.42 раза (увеличение поверхности в том же отношении) β увеличивается в 1.78 раза, а βF — в 2.53 раза. Следовательно, увеличение дисперсности фаз ускоряет процессы массообмена за счет увеличения межфазной поверхности и коэффициента массоотдачи β . Роль последнего фактора для таких систем ранее не учитывалась.

В работе [14] на основе теории массопередачи Данквертса и модели движения пузырей В. Г. Левича получено расчетное соотношение для описания скорости массообмена q при барботаже жидкости потоком труднорастворимого газа

$$q \approx 1.72 \frac{H\theta}{\langle d \rangle} \xi^{0.5} N_{We}^{-0.9} N_{Pe}^{-0.5} (C_0 - C) \quad \left(N_{Pe} = \frac{ud}{D} \right) \quad (2.2)$$

Здесь N_{Pe} — диффузионный критерий Пекле, ξ — коэффициент сопротивления пузыря.

Сопоставление экспериментальных значений величины $\langle \beta F \rangle$, отнесенной к объему жидкости V^o , с расчетной по уравнению (2.2) дает расхождение, превышающее погрешность опытов. При этом, если следовать полностью схеме расчета [14] ($D = 1.9 \cdot 10^{-9}$, $\sigma = 73 \cdot 10^{-3}$, $\rho = 10^3$, $\mu = 1.0$, $\langle d \rangle = 3.6 \cdot 10^{-2}$, $\xi = 0.5$, $u = 0.34$), то средняя относительная ошибка (по 20 опытам) $\langle \delta \rangle = 45\%$.

Подстановка в уравнение (2.2) найденных [8] при $d = 0.8 \cdot 10^{-2}$ экспериментальных значений $\langle u \rangle = 0.23$, $\xi = 0.8$ увеличивает среднюю относительную ошибку расчета в пять раз ($\langle \delta \rangle = 225\%$). В настоящее время для расчетов массообмена в сплошном барботажном слое применимы, по-видимому, лишь экспериментальные уравнения в критериальном виде типа (2.1).

Для реакции $C + O \rightarrow CO$, протекающей на поверхности пузырей CO в жидкой стали, величина β , рассчитанная по уравнению (2.1) и по исходным данным [15], оказалась равной 0.043 см/сек. Это значение в 22 раза меньше величины, полученной в [15] и близко соответствует оценке этой величины (0.05 см/сек) данной Ричардсоном [16].

Поступила 13 VIII 1968

ЛИТЕРАТУРА

1. Розен А. М., Крылов В. С. Проблемы теории массопередачи. Хим. пром-сть, 1966, № 1, стр. 51—57.
2. Redfield J. A., Houghton G. Mass transfer and drag coefficients for single bubbles at Reynolds numbers of 0.02—5000. Chem. Engng. Sci., 1965, vol. 20, No. 2, pp. 131—139.
3. Левич В. Г. Физико-химическая гидродинамика. Изд-во АН СССР, 1952.
4. Baird M. H. L., Davidsen J. F. Gas absorption by large rising bubbles. Chem. Engng. Sci., 1962, vol. 17, Febr., pp. 87—93.
5. Агарев Л. И., Шабалин К. Н. Интенсивность абсорбции хорошо и мало растворимых газов в условиях массового барботажа. Хим. пром-сть, 1952, № 5, стр. 8—12.
6. Johnson A. I., Bowman C. W. Mass transfer in a bubble column. Canad. J. Chem. Engng., 1958, vol. 36, No. 6, pp. 253—261.
7. Shulman H. L., Molstad M. C. Gas-bubble columns for gas-liquid contacting. Ind. Engng. Chem., 1950, vol. 42, No. 6, pp. 1058—1070.
8. Белов И. В., Проколов Е. В. Скорость движения и форма воздушных пузырей в воде. ПМТФ, 1968, № 3.
9. Справочник химика, М.—Л., Госхимиздат, 1962, т. 1.
10. Бретшинейдер С. Свойства газов и жидкостей. М.—Л., «Химия», 1966.
11. Pinsent B. R. W., Pearson L., Roughton F. The kinetics of combination of carbon dioxide with hydroxide ions. Trans. Faraday Soc., 1956, vol. 52, No. 11, pp. 1512—1516.
12. Kumar A., Kulloor N. R. Blasenbildung in Flüssigkeiten niedriger Viskosität (mit Oberflächenspannung) unter Konstanten Strömungsbedingungen. Chem. Techn., 1967. Bd. 19, Nr. 2, S. 78—82.
13. Nata T., Hammelblau D. M. Mass transfer from large single bubbles at high Reynolds numbers. AJChE Journal, 1967, vol. 13, No. 4, pp. 697—702.
14. Брагинский Л. Н., Евилевич М. А., Павлушкин И. С. О массопередаче при барботажной аэрации. В сб.: «Процессы химической технологии». Гидродинамика, тепло- и массопередача. М.—Л., «Наука», 1965, стр. 304—308.
15. Павлов В. В., Попель С. И. Кинетические особенности реакции $C + O = CO$, развивающейся на поверхности пузырьков кипящей ванны. Изв. вузов, Черная металлургия, 1964, № 6, стр. 5—10.
16. Richardson F. D. Rates of slag—metal reactions and steelmaking processes. Iron and Coal, 1961, vol. 183, No. 4871, pp. 1105—1116.