

气体喷射筛板萃取塔的滞液率和气含率

吕树祥^{1,2}, 王莅¹, 刘建国¹, 王亚权¹, 米镇涛¹

(1. 天津大学化工学院绿色合成与转化教育部重点实验室, 天津 300072; 2. 天津科技大学材料科学与化工学院, 天津 300222)

摘要:以水和蒽醌法生产过氧化氢的工作液为研究物系, 在内径为 50 mm 的筛板萃取塔内, 模拟工业操作条件, 研究了空气-水-蒽醌工作液三相物系的分散相滞液率和气含率. 讨论了气相、分散相和连续相流速对分散相滞液率和气含率的影响, 并提出了用于预测气-液-液三相萃取系统的分散相滞液率和气含率的关联式. 结果表明, 滞液率关联式的预测值与实验结果的平均相对偏差为 7.3%, 气含率关联式的预测值与实验结果的平均相对偏差为 7.1%.

关键词: 流体力学; 滞液率; 气含率; 气体喷射萃取; 蒽醌工作液

中图分类号: TQ123.6 **文献标识码:** A **文章编号:** 1009-606X(2004)03-0193-05

1 前言

溶剂萃取是一个应用领域广阔的化工分离过程, 它具有结构简单、处理能力大、分离效率高及操作费用低等优点而被广泛用于石油化工、湿法冶金、稀土提取和纯化、核燃料提取、废水处理和制药等工业^[1]. 为了提高相间接触面积和传质速率, 针对不同的萃取体系, 发展了机械搅拌和机械脉冲等外加能量的萃取设备和技术, 但机械结构复杂、能耗高. 近年来, 一些研究者^[2-4]开发了用惰性气体进行搅拌的萃取技术. 与机械搅拌、脉冲萃取塔相比, 气体搅动这种外加能量的萃取方法, 萃取塔内无运动构件, 结构简单, 能耗低, 克服了机械搅拌和脉冲萃取的缺点. 由于气体的搅动作用强化了液-液两相接触与传质过程, 萃取速率和萃取效率比普通的液-液萃取高得多.

文献报道的气体搅动萃取过程大多是在喷淋塔或填料塔中进行, 所用物系也都是水-煤油-苯甲酸、水-甲苯和水-煤油等模拟物系, 没有对实际工业生产物系的研究报道^[2-5]. 有关这种气-液-液三相逆流萃取过程的流体力学的研究很少, 只有 Sovilj 等^[5]研究了气体搅拌喷淋萃取塔的流体力学性质, 但只是对实验现象的观察和结果分析, 没有给出滞液率和气含率的关联式.

本实验以蒽醌法生产过氧化氢过程中的工作液为对象, 研究了在筛板萃取塔的底部引入喷射气体的空气-水-工作液三相物系的流体力学性质, 并对分散相滞液率和气含率进行了数据关联, 以期对气体搅拌萃取技术在过氧化氢生产过程中应用和其它相似过程的放大设计提供理论依据.

2 实验

2.1 原料

蒽醌工作液取自沧州大化集团过氧化氢分厂, 其主要组份为 2-乙基蒽醌、2-乙基四氢蒽醌、C₉ 混合芳烃和磷酸三辛酯, 其中蒽醌总量为 120 g/L, C₉ 混合芳烃和磷酸三辛酯的体积比为 3:1. 实验温度(40°C)下, 工作液密度为 911.7 kg/m³, 粘度为 1.1×10⁻³ Pa·s, 与水的界面张力为 3.5×10⁻² N/m.

2.2 实验装置及实验方法

实验装置如图 1 所示. 直径为 50 mm 的玻璃萃取塔内装有 7 块厚度为 2 mm 的不锈钢筛板,

收稿日期: 2003-08-04, 修回日期: 2003-09-29

基金项目: 国家重点基础研究发展规划基金资助项目(编号: 2000048005); 国家自然科学基金资助项目(编号: 20106011);

天津科技大学自然科学基金资助项目.

作者简介: 吕树祥(1972-), 男, 河北省隆化县人, 讲师, 博士, 从事绿色化学工艺研究; 米镇涛, 联系人, E-mail: zhtmi@tju.edu.cn.

板间距 210 mm, 直径 1.5 mm 的筛孔呈正三角形排列, 孔间距为 7 mm, 开孔率为 4.5%。上、下澄清段直径和高度分别为 100 和 400 mm。以压缩空气为喷射气体, 去离子水和蒽醌工作液分别为连续相和分散相。空气和蒽醌工作液经过塔底装有 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 3.5 \text{ mm}$ 不锈钢 θ 环的喷嘴预混后进入, 去离子水从塔顶分布器进入。分散相分布器为锥形, 上端面直径 50 mm, 上面的筛孔直径 1.5 mm, 呈正三角形分布, 分布器上端面与第 1 块塔板间距为 210 mm。经过溶解平衡的蒽醌工作液和去离子水分别由隔膜计量泵和柱塞计量泵控制流量, 利用转子流量计调节气体流量, 通过 π 型管调节上澄清段内的连续相和分散相界面。实验温度通过温控系统控制在 $(40 \pm 1)^\circ\text{C}$ 。每次实验时, 调整好空

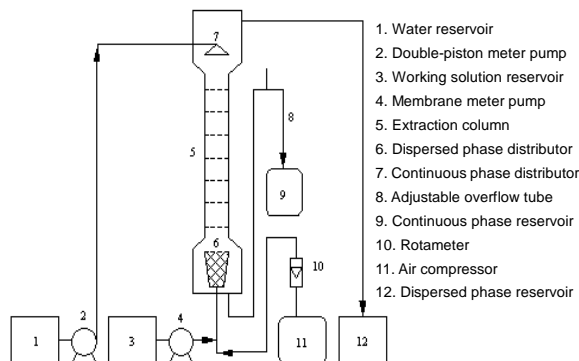


图 1 实验装置图

Fig.1 Schematic diagram of the experimental set-up

气、水和蒽醌工作液的流量, 达到稳定状态后, 采用同时关闭阀门的方法^[5], 测定分散相的滞液率和气含率, 测量值的平均偏差分别为 $\pm 3\%$ 和 $\pm 5\%$ 。实验操作范围为: 气相表观流速 $U_g = (1.0 \sim 3.5) \times 10^{-3} \text{ m/s}$, 分散相表观流速 $U_d = (1.2 \sim 2.0) \times 10^{-3} \text{ m/s}$, 连续相表观流速 $U_c = (0.25 \sim 1.3) \times 10^{-4} \text{ m/s}$, 均是基于空塔的表现流速。由于工业生产过氧化氢工艺过程中, 从蒽醌工作液中萃取过氧化氢时, 蒽醌工作液和水的流量比 U_d/U_c 一般为 20~50^[6], 故在实验中控制蒽醌工作液和水的流量比为 13~65。

3 实验结果与讨论

3.1 分散相滞液率

分散相滞液率是影响筛板塔处理能力和传质特性的重要参数。在筛板萃取塔中, 分散相的滞液率分为静滞液率 ϕ_s 和操作滞液率(或动滞液率) ϕ_{op} 。操作时, 在每块筛板下都有分散相的凝聚层, 这部分占的体积分数为 ϕ_s , 分散在筛板之间未凝聚的分散相液滴所占的体积分数为 ϕ_{op} ^[7]。静滞液率和操作滞液率之和为筛板塔的总滞液率 ϕ_t 。能够在实验中方便测量, 以下简称滞液率。

3.1.1 分散相表观流速对滞液率的影响

由图 2 可以看出, 在连续相和气相表观流速恒定的情况下, 分散相的滞液率 ϕ_t 随分散相表观流速的增加而增加。这是由于分散相表观流速增加, 在塔中分散相液滴的总数增加, 从而增加了

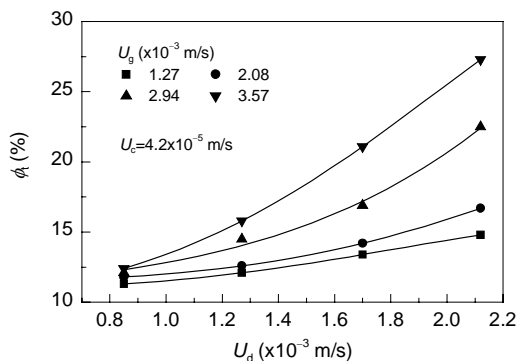


图 2 分散相和气相表观流速对滞液率的影响

Fig.2 Effects of superficial velocities of dispersed and gaseous phases on the total dispersed phase holdup

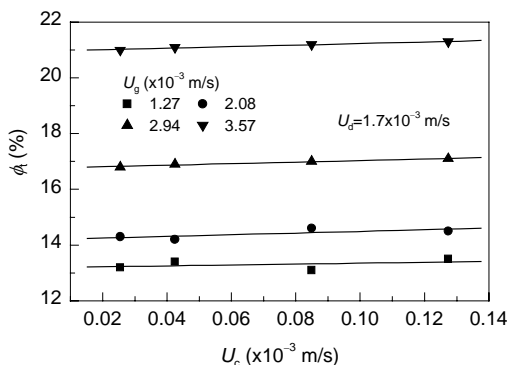


图 3 连续相和气相表观流速对滞液率的影响

Fig.3 Effects of superficial velocities of continuous and gaseous phases on the total dispersed phase holdup

分散相的滞液率. 从实验中观察到, 分散相表观流速增加, 筛板下的凝聚层变厚, 即静滞液量增加较明显.

3.1.2 连续相表观流速对滞液率的影响

连续相表观流速对分散相滞液率的影响如图 3 所示. 在恒定分散相和气相表观流速的情况下, 随连续相表观流速的增加, 分散相滞液率变化不大. 由于连续相和分散相逆流流动, 连续相对分散相液滴的上升有阻滞作用, 使分散相液滴在塔内停留时间增加, 因而分散相滞液率应该随连续相表观流速的增加而有明显的增加趋势. 图 3 的结果是由于在本实验中 U_d/U_c 为 13~65, 分散相流量远远大于连续相流量, 所以连续相对分散相液滴上升的阻滞作用不大.

3.1.3 喷射气体的气速对滞液率的影响

实验中发现, 在普通液-液两相萃取中引入气体后, 由于气体的搅动作用, 使分散相的液滴直径变小, 导致其上升速度减慢, 使液滴在塔内的平均停留时间延长, 从而使分散相滞液率增大, 并随气速的增加而增加(图 2, 3). 实验中发现, 由于气体的搅动作用, 导致操作滞液量增加较明显.

3.1.4 分散相滞液率的数据关联

液-液两相萃取过程中, 分散相滞液率一般由分散相的流速、连续相的流速和滑动速度 V_{slip} 的函数来表达^[7]:

$$V_{slip} = U_d/\phi + U_c/(1-\phi). \quad (1)$$

许多研究者^[8,9]提出了不同的关联式来关联滑动速度和分散相滞液率之间的关系. 但在这些关联式中, 很难直接得到分散相滞液率. Kumar 等^[10]在大量实验数据的基础上, 对不同萃取设备进行分析, 考虑了各相流体的密度、粘度、界面张力、流量和塔的结构对分散相滞液率的影响, 提出了一个统一的关联式, 可直接预测不同结构萃取设备中的分散相滞液率, 效果较好. 式(2)是适用于脉冲筛板萃取塔滞液率的关联式:

$$\phi = 153.2 \left\{ 0.27 + \left[\frac{\varepsilon}{g} \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{1/4} \right]^{0.78} \right\} \left[U_d \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{1/4} \right]^{0.87} \exp \left[3.34 U_c \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{1/4} \right] \left(\frac{\Delta\rho}{\rho_c} \right)^{-0.58} \left(\frac{\mu_d}{\mu_w} \right)^{0.18} \left[H_c \left(\frac{\rho_c g}{\gamma} \right)^{1/2} \right]^{-0.39}, \quad (2)$$

式中 ε 为单位质量上的能量输入, 对于不同的外加能量萃取设备有相应的关联式. 但文献中没有关于气-液-液三相气体搅动萃取过程的外加能量的关联式. 气体搅动萃取过程中外加能量来自气体, 为了简便, 以喷射气体表观气速的函数来表达 ε . 将图 2 和 3 中共 32 个实验数据和物系的物性数据按式(2)的形式进行回归, 得到气体喷射筛板萃取塔滞液率的关联式:

$$\phi = 9.41 \left[U_g \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{1/4} \right]^{0.38} \left[U_d \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{1/4} \right]^{0.52} \exp \left[-10.65 U_c \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{1/4} \right] \left(\frac{\Delta\rho}{\rho_c} \right)^{-0.58} \left(\frac{\mu_d}{\mu_w} \right)^{0.18} \left[H_c \left(\frac{\rho_c g}{\gamma} \right)^{1/2} \right]^{-0.39}. \quad (3)$$

图 4 是实验测定的滞液率与由式(3)计算的值的比较, 最大偏差为 20.2%, 平均绝对偏差为 7.3%.

3.2 气含率

3.2.1 各相流速对气含率的影响

从图 5 可以看出表观气速和分散相表观流速对气含率的影响. 气含率随表观气速的增加而增加, 随分散相流速的增加而降低. 这是因为气体和分散相并流流动, 对气泡的上升有促进作用, 使气泡在塔中的停留时间减小. 连续相与气体逆向流动, 对气泡的上升有阻碍作用, 使气含率增加. 本实验连续相的流速与气体流速相比较小, 以致连续相对气含率的影响不大, 见图 6.

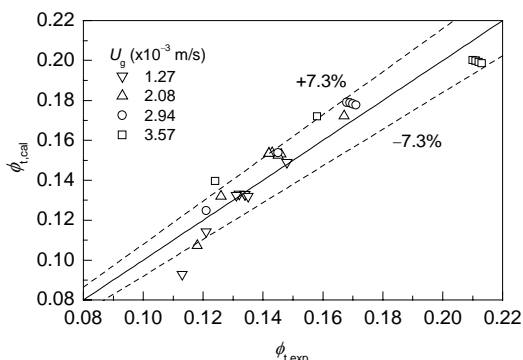


图4 滞液率计算值和实验值的比较
Fig.4 Comparison of predicted and experimental data of total dispersed phase holdup

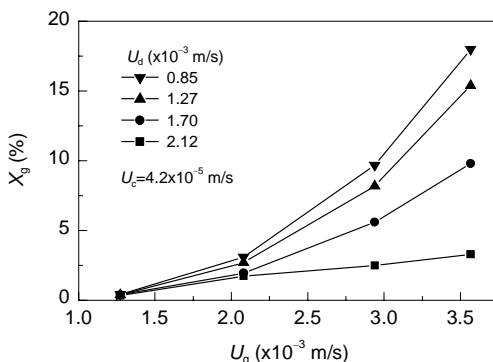


图5 气相表观气速对气含率的影响
Fig.5 Effect of superficial velocity of the gaseous phase on the gaseous phase holdup

3.2.2 气含率的关联

文献用于预测气-液两相反应设备中气含率的关联式很多,适用于气-液-液三相萃取过程的却很少见. Hikita 等^[11]总结了用来预测气-液鼓泡塔中气含率的不同关联式,在实验基础上提出了新的关联式:

$$X_g = 0.672 \left(\frac{U_g \mu_L}{\sigma} \right)^{0.578} \left(\frac{\mu_L^4 g}{\rho_L \sigma^3} \right)^{-0.131} \left(\frac{\rho_g}{\rho_L} \right)^{0.062} \left(\frac{\mu_g}{\mu_L} \right)^{0.107} \quad (4)$$

气-液两相反应与气-液-液三相萃取过程的主要差别在于,后者比前者多了一个分散相,分散相对气含率具有负面影响(图5). 如果将分散相的影响考虑进去,对式(4)进行修正可以用于对气-液-液三相萃取过程气含率的预测. 将图5和6中的实验数据和实验物系的物性数据按式(4)的形式进行回归得到式(5),即为气体喷射筛板萃取塔中气-液-液三相气含率关联式. 在式(5)中分散相对气含率的影响以分散相流速的指数函数形式表达,其优点在于,如果 $U_d=0$ 时,该过程即为气-液两相. 因而式(5)更具广泛性.

$$X_g = 0.215 \left(\frac{U_g \mu_c}{\sigma} \right)^{3.104} \left(\frac{\mu_c^4 g}{\rho_c \sigma^3} \right)^{-0.131} \left(\frac{\rho_g}{\rho_c} \right)^{0.062} \left(\frac{\mu_g}{\mu_c} \right)^{0.107} \exp \left(-0.0071 \frac{U_d}{U_c} \right) \quad (5)$$

用式(5)计算的气含率与实验值的比较如图7所示. 平均偏差为7.1%.

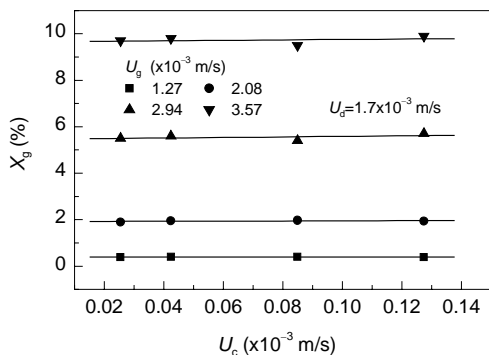


图6 连续相表观流速对气含率的影响
Fig.6 Effect of superficial velocity of the continuous phase on the gaseous phase holdup

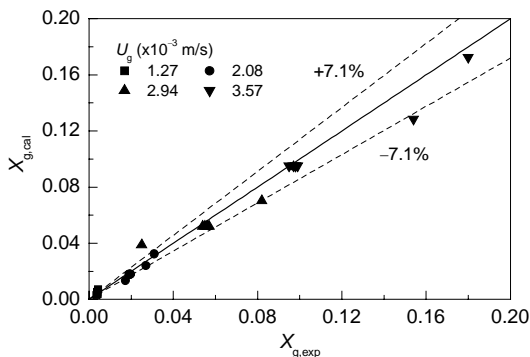


图7 气含率计算值与实验值比较
Fig.7 Comparison of predicted and experimental data of gaseous phase holdup

4 结论

以水和蒽醌法生产过氧化氢的工作液为研究物系, 在工业操作范围内, 测定了空气-水-蒽醌工作液三相物系在喷射筛板萃取塔的滞液率和气含率。

提出了用于预测气-液-液三相系统的滞液率和气含率的关联式, 关联式预测值与实验结果符合较好。

符号表:

g	重力加速度 (m/s^2)	μ	粘度 ($\text{Pa}\cdot\text{s}$)	ϕ	总分散相滞液率 (%)
H_c	板间距 (m)	ρ	密度 (kg/m^3)		下标
U	表观流速 (m/s)	$\Delta\rho$	密度差 (kg/m^3)	c	连续相
V_{slip}	滑动速度 (m/s)	σ	表面张力 (N/m)	d	分散相
X_g	气含率 (%)	ϕ	分散相滞液率 (%)	g	气相
γ	界面张力 (N/m)	ϕ_{op}	操作滞液率 (%)	L	液相
ε	单位质量能量分配 (W/kg)	ϕ_s	静滞液率 (%)		

参考文献:

- [1] 汪家鼎, 陈家镛. 溶剂萃取手册 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2001. 180.
- [2] Sohn H Y, Doungeethaveeratana D. Novel Solvent Extraction Process with Bottom Gas Injection without Moving Parts [J]. Sep. Purif. Technol., 1998, 13(3): 227-235.
- [3] Doundeethaveeratana D, Sohn H Y. The Kinetics of Extraction in a Novel Solvent Extraction Process with Bottom Gas Injection without Moving Parts [J]. Hydrometallurgy, 1998, 49(3): 229-254.
- [4] 熊杰明, 宋永吉, 任晓光, 等. 空气搅动的填料萃取塔性能实验研究 [J]. 化工学报, 2002, 53(1): 100-102.
- [5] Sovilj M, Knezović G. Gas-agitated Liquid-Liquid Extraction in a Spray Column [J]. Collect. Czech. Chem. Commun., 1994, 59(10): 2235-2243.
- [6] Goor G, Kunkel W. Ulmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry [M]. New York: Wiley, 1988. A13: 443-446.
- [7] Lo T C, Baird M H I, Hanson C. Handbook of Solvent Extraction [M]. New York: John Wiley & Sons, 1983. 332-336.
- [8] Godfrey J C, Slater M J. Slip Velocity Relationships for Liquid-Liquid Extraction Columns [J]. Trans. IChemE, 1991, 69: 130-141.
- [9] Chun B S, Wilkinson G T. Drop Size and Hold-up in Countercurrent Extraction with Supercritical CO_2 in a Spray Column [J]. Ind. Eng. Chem. Res., 2000, 39(12): 4673-4677.
- [10] Kumar A, Hartland S. A Unified Correlation for the Prediction of Dispersed-phase Hold-up in Liquid-Liquid Extraction Columns [J]. Ind. Eng. Chem. Res., 1995, 34(11): 3925-3940.
- [11] Hikita H, Asai S, Segawa K, et al. Gas Hold-up in Bubble Columns [J]. Chem. Eng. J., 1980, 20(1): 59-67.

Holdups of Dispersed and Gas Phases in a Gas-agitated Sieve Plate Extraction Column

LU Shu-xiang^{1,2}, WANG Li¹, LIU Jian-guo¹, WANG Ya-quan¹, MI Zhen-tao¹

(1. Key Lab. Green Chem. Technol., School of Chemical Engineering and Technology, Tianjin University, Tianjin 300072, China;

2. School of Material Science and Chemical Engineering, Tianjin University of Science and Technology, Tianjin 300222, China)

Abstract: The hydrodynamic characteristics of the air-water-working solution (a mixture of anthraquinone derivatives, TOP and C_9 aromatics, used for industrial production of hydrogen peroxide) three-phase system in a gas-agitated sieve plate extraction column were investigated. The holdups of the dispersed and gaseous phases were measured by the shut-off method, respectively. The effects of the superficial velocities of air, dispersed and continuous phases on the holdups of dispersed and gaseous phases were studied. Correlations for the prediction of holdups of dispersed and gaseous phases in the air-water-working solution three-phase system have been proposed. The comparison of the predicted data with correlations and experimental data shows quite satisfactory agreement and the average relative deviations are 7.3% for the dispersed phase holdup and 7.1% for the gas phase holdup, respectively.

Key words: hydrodynamic; dispersed holdup; gas holdup; gas-agitated extraction; working solution