

入口压力对天然气超声速液化特性的影响*

边 江¹, 曹学文¹, 杨 文², 于洪喜³, 尹鹏博¹

(1. 中国石油大学(华东)储运与建筑工程学院, 山东 青岛 266580;

2. 中国石化销售有限公司华南分公司, 广东 广州 510620;

3. 中国石化新疆煤制气外输管道有限责任公司湖广分公司, 湖南 长沙 410016)

摘要:为研究入口压力对天然气混合物超声速液化特性的影响规律,建立了三维双组分天然气混合物超声速凝结流动数学模型,对 Laval 喷管内双组分混合物凝结流动进行了数值模拟,得出了沿 Laval 喷管轴向的参数分布,通过开展双可凝组分气体凝结相变实验,对比发现数值模拟与实验结果基本一致,说明了所建立的数学模型及计算方法的正确性。还研究了入口压力对甲烷-乙烷混合物超声速液化特性的影响,结果表明,保持 Laval 喷管入口温度及组成不变,增大入口压力,混合气体成核位置前移,成核率、平均液滴半径、液相质量分数均随之增大,即入口压力越大,混合气体在 Laval 喷管内越易发生凝结,在实际生产中可以通过调节入口压力来促进天然气的凝结,提高 Laval 喷管的液化效率。

关键词: Laval 喷管; 甲烷-乙烷; 入口压力; 液化; 成核

中图分类号: TE642

文献标识码: A

近年来随着液化天然气(LNG, Liquefied Natural Gas)产业在全球迅速发展,天然气的液化技术和设备也在不断发展完善、日渐成熟。我国 LNG 领域内的相关研究起步较晚,许多技术远远落后发达国家水平,在天然气液化工艺及装置的生产等方面缺乏自主知识产权。因此,开展天然气液化工艺及装置的研究,对于实现液化装置的国产化、高效化有十分重要的意义^[1-3]。

超声速旋流分离技术是一种新兴的天然气加工处理技术,被较为广泛地用于天然气脱水、脱重烃、脱酸等方面,近年来开始逐渐应用于天然气液化方面^[4-7]。天然气超声速液化的原理是:高压天然气混合物在 Laval 喷管内达到一定的温度、压力条件,开始凝结成核,最终凝结成液滴,在后续工艺中进行进一步气液分离。与传统的天然气液化技术相比,具有结构工艺简单、支持无人操作(适用于海底天然气处理)、对水合物抑制剂依赖性小、投资和运行成本低等优势^[8-9]。

为了探究入口复杂多变的压力条件对天然气超声速液化特性的影响,对甲烷-乙烷气体混合物的超声速凝结流动特性进行研究,在凝结成核与生长理论的基础上建立了适用于甲烷-乙烷双可凝气体混合物的凝结流动数学模型,重点研究了入口压力对天然气混合物在 Laval 喷管内主要流动与凝结参数的影响规律。

1 Laval 喷管结构设计

Laval 喷管结构主要包括入口段、渐缩段、喉部及扩张段 4 部分^[10-11]。各部分参数如表 1 所示, L_0 为入口长度, r_1 为渐缩段入口半径, L_1 为渐缩段长度, r_{cr} 为喉部截面半径, L_2 为渐扩段长度, r_2 为渐扩

* 收稿日期: 2017-09-09; 修回日期: 2017-10-25

基金项目: 国家重点研发计划专项(2016YFC0802301); 国家自然科学基金(51274232, 51406240); 山东省自然科学基金(ZR2014EEQ003)

作者简介: 边 江(1992—), 男, 博士研究生, 主要从事天然气处理与加工技术研究. E-mail: bianjiang868@163.com

通信作者: 曹学文(1966—), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事天然气处理与加工、油气水多相流理论及应用、海底管道完整性管理等研究. E-mail: caoxw@upc.edu.cn

段出口半径。为尽量减小流场涡流的影响,渐缩段采用双三次曲线设计,喉部采用一段平缓光滑的圆弧作为过渡曲线,渐扩段采用等膨胀率设计,膨胀率取为 10000 s^{-1} 。考虑到实验加工方便,保证曲面的精度,且能够更加直观地观察 Laval 喷管内部的流场分布情况,所设计 Laval 喷管截面采用矩形截面,三维结构如图 1 所示。

表 1 Laval 喷管各部分参数
Table 1 Parameters of Laval nozzle

L_0/mm	r_1/mm	L_1/mm	r_{cr}/mm	L_2/mm	r_2/mm
50.00	20.00	56.01	2.50	71.28	6.15

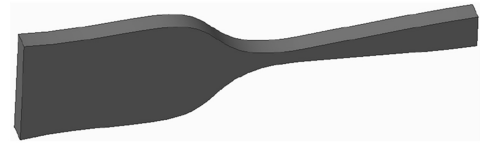


图 1 Laval 喷管三维结构

Fig. 1 Structure of Laval nozzle

2 超声速凝结流动数学模型及计算方法

2.1 数学模型

采用欧拉双流体模型开展数值计算,控制方程主要包括气相流动方程和液相流动方程。在无滑移假设及欧拉双流体模型的前提下分别建立气相及液相流动控制方程组,液滴数目守恒方程及液滴半径、数目、湿度关系式分别添加到对应源相方程中^[12-14]。

气相流动控制方程组

$$\frac{\partial \rho_v}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho_v u_j) = S_m \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho_{e2}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho_{e2} u_j) = S_{m,e2} \quad (2)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_v u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho_v u_j u_i) = -\frac{\partial p_v}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\mu \left(\frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \right) \right] + \frac{\partial}{\partial x_j} (-\rho_v \overline{u'_i u'_j}) + S_u \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_v E) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho_v u_j E + u_j p_v) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(k_{\text{eff}} \frac{\partial T}{\partial x_j} + u_i \tau_{\text{eff}} \right) + S_h \quad (4)$$

液相流动控制方程组

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho Y) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j Y) = S_Y \quad (5)$$

$$\frac{\partial \rho N}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho N u_j) = J \quad (6)$$

$$r_d = \sqrt[3]{3Y / (4\pi\rho_L N)} \quad (7)$$

式中: u_i, u_j 为时均速度分量, m/s ; ρ_v 为气相密度, kg/m^3 ; ρ 为气液混合相密度, kg/m^3 ; p_v 为时均压力, Pa ; μ 为黏度, $\text{kg}/(\text{m} \cdot \text{s})$; δ_{ij} 为 Kronecker delta 数; E 为总能量, J/kg ; k_{eff} 为有效导热系数, $\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$; τ_{eff} 为有效应力张量, 无量纲; Y 为液相质量分数, 无量纲; r_d 为液滴半径, m ; dr_d/dt 为液滴生长速率, m/s ; N 为液滴数目, kg^{-1} 。

成核模型采用文献[15-16]中提出的双组分气体自发凝结成核模型修正方法。液滴生长过程采用 Gyarmathy 液滴生长模型,模型中液滴与气体间的传热系数^[17-18]为

$$k_r = \frac{\lambda_v}{r_d} \frac{1}{1 + \frac{2\sqrt{8\pi}}{1.5 P_v} \frac{\gamma}{1 + \gamma} K_n} \quad (8)$$

依据传热、传质过程,可推导得到液滴生长速率计算模型

$$\frac{dr_d}{dt} = \frac{\lambda_v}{\rho_L h_{LV}} \frac{(T_s - T) \left(1 - \frac{r_c}{r_d} \right)}{r_d \left(1 + \frac{2\sqrt{8\pi}}{1.5 P_v} \frac{\gamma}{1 + \gamma} K_n \right)} \quad (9)$$

式中: λ_v 为气体导热系数, $W/(m \cdot K)$; P_v 为气体 Prandtl 数; γ 为气体比热比; h_{LV} 为凝结潜热, J/kg ; T_s 为气体压力对应的饱和温度, K ; K_n 表示 Knudsen 数。由于双组分气体不存在压力对应的饱和温度 T_s 这一概念, 将双组分相图中露点线类比于单组分中饱和曲线。

针对气体状态方程的选择, 由于低温气体已偏离理想气体假设, 本研究采用了 NIST 真实气体模型进行计算。

2.2 湍流模型

湍流发生时会导致流体之间相互交换动量、能量, 也会造成浓度的改变。本研究建模时忽略相间速度的滑移, 即液滴产生不影响湍流, 因此只考虑气相的湍流方程。FLUENT 中提供了以下几种湍流模型: S-A 模型、标准 $k-\epsilon$ 模型、RNG $k-\epsilon$ 模型、Realizable $k-\epsilon$ 模型、 $k-\omega$ 模型以及雷诺应力模型。S-A 模型主要应用流动分离区附近模拟, 标准 $k-\epsilon$ 模型、RNG $k-\epsilon$ 模型一般用于各向同性的均匀湍流, $k-\omega$ 模型可用于带压梯度的流动模拟和跨声速激波模拟, 雷诺应力模型主要用于龙卷风、燃烧室等强烈旋转流动的模拟。对 Laval 喷管内跨声速流动, 采用 $k-\omega$ 模型可以获得较为理想的计算精度和计算速度, 故本研究采用该模型进行数值计算。

2.3 计算方法

气体在 Laval 喷管中的流动属于高速可压缩流动, 采用密度基进行求解, 流动控制方程组、湍流动能方程、湍流耗散率方程均采用二阶迎风格式进行离散。

根据双组分气体在 Laval 喷管内的高速可压缩的流动特性, 入口和出口边界设置为压力入口边界和压力出口边界条件, 对于气体在 Laval 喷管内的超声速流动, 由于所有的流动参数都可从 Laval 喷管内部外推得到, 故在出口处不进行相应设置, 固体壁面边界设置为无滑移、无渗流、绝热边界条件。

在数学模型中, 由于气相方程添加了源项方程, 液相方程定义了标量以及引入的真实气体方程, 这些仅靠在 FLUENT 自带的模型和材料物性无法满足要求, 需要编写相应的用户自定义函数 (UDF)。本研究编写 UDF 时, 分别定义 DEFINE AJUST、DEFINE SOURCE 和 DEFINE PROPERTY 3 个宏函数。DEFINE AJUST 宏用来定义过饱和度、过冷度、成核速率、液滴生长率、液滴半径、液滴质量以及液滴表面张力等参数, DEFINE SOURCE 宏用来定义控制方程中的质量、动量和能量源项, DEFINE PROPERTY 用来定义数值计算中用到的真实气体的热力学参数如黏度系数、导热系数等。

3 实验验证

为验证所建立的双组分气体凝结数学模型及数值计算方法的准确性, 采用本研究所设计的 Laval 喷管结构, 在中国石油大学 (华东) 超声速气体凝结流动实验系统开展了水-乙醇双可凝组分气体凝结相变实验研究。实验条件为: Laval 喷管入口压力 0.586 MPa, 入口温度 288.05 K, 气体湿度 98.1%, 水与乙醇摩尔体积比 84:16, 气体流量为 323.78 标方每小时, 实验测得的 Laval 喷管沿程压力分布如图 2 所示, 可以看出, 压力分布实验结果与数值计算结果吻合较好, 说明本研究所建立的双组分气体超声速凝结流动特性数学模型及数值计算方法具有一定的准确性和可靠性。

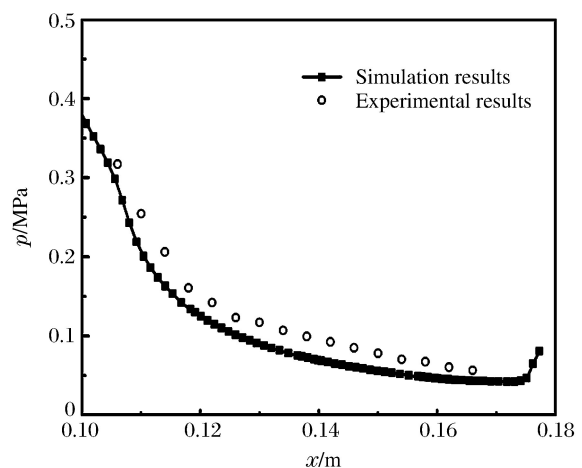


图 2 Laval 喷管沿程压力分布数据对比
Fig. 2 Comparison of pressure distribution data in Laval nozzle

4 不同压力条件下天然气超声速液化特性

保持入口温度及组成(甲烷体积分数 90%、乙烷体积分数 10%)不变,研究不同的入口压力对 Laval 喷管内甲烷-乙烷双组分气体凝结过程中压力、温度、成核率、液滴生长率、液滴半径、液相质量分数的影响。在数值计算中设定的入口温度为 270 K,设定入口压力分别为 5.5、6.0 和 6.5 MPa。Laval 喷管内双组分气体凝结参数的变化趋势及对比如图 3~图 8 所示。

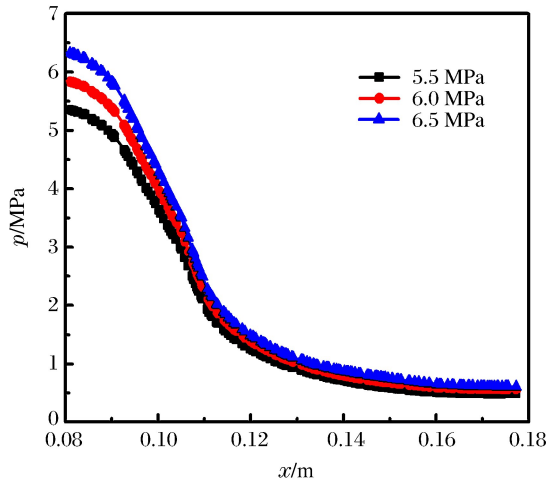


图 3 Laval 喷管内气体压力分布

Fig. 3 Gas pressure distribution in Laval nozzle

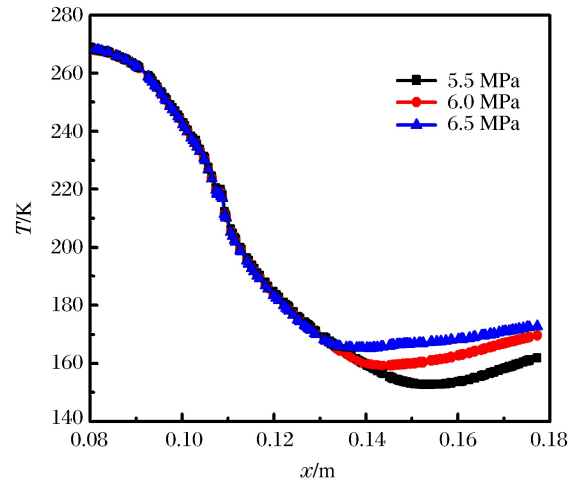


图 4 Laval 喷管内气体温度分布

Fig. 4 Gas temperature distribution in Laval nozzle

从压力与温度分布可以看出,气体进入 Laval 喷管后压力、温度不断降低,当达到一定过冷度时,气体发生凝结并释放潜热,但凝结突跃现象对压力造成的影响并不显著,压力在 Laval 喷管渐扩段减小到了一个比较稳定状态,温度在减小到最小值后又略微上升,这主要是由于液滴凝结释放潜热引起的。随着入口压力的增大,出口压力略微升高,温升位置有所提前,出口温度也越高,这是因为,随着入口压力的增大,液滴成核与凝结量也随之增多,释放的潜热也就越多。

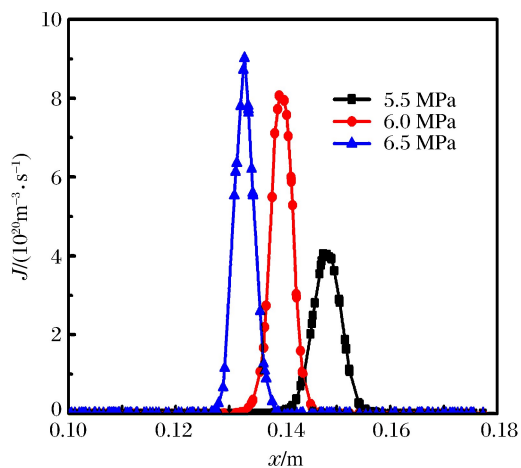


图 5 Laval 喷管内成核率分布

Fig. 5 Nucleation rate distribution in Laval nozzle

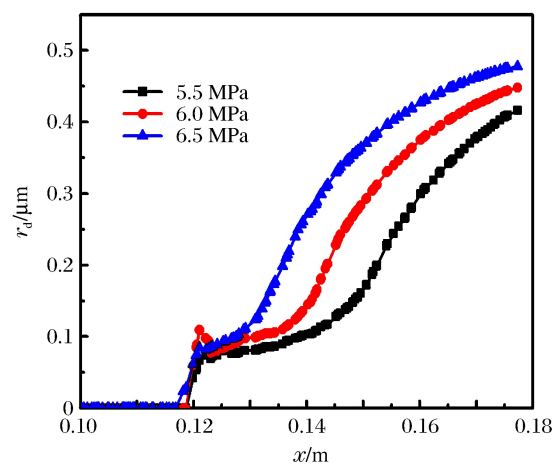


图 6 Laval 喷管内液滴半径分布

Fig. 6 Droplet radius distribution in Laval nozzle

从成核率分布可以看出,保持其他条件一致,当压力发生变化时,成核速率的变化趋势几乎相同,在刚进入 Laval 喷管的一段距离内为零,在某一位位置处开始,成核率从零开始突跃一直增大到峰值后迅速减小至零。随着入口压力从 5.5 MPa 增大到 6.5 MPa,成核的发生位置(Wilson 点)不断向前移动,

逐渐向 Laval 喷管喉部靠拢,且成核率的最值逐渐增大。当压力为 5.5 MPa 时,成核发生位置为 $x=0.1206$ m,且在 $x=0.1475$ m 处达到极限成核,为 $4.044 \times 10^{20} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$;当压力为 6 MPa 时,成核发生位置较 5.5 MPa 时向前移动,为 $x=0.1199$ m,极限成核位置也随压力的增大而前移,在 $x=0.1393$ m 处达到 $8.062 \times 10^{20} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$;当压力继续增大为 6.5 MPa 时,成核发生位置较 6 MPa 时更加靠近喉部,为 $x=0.1182$ m,极限成核位置在 $x=0.1328$ m 处,为 $9.015 \times 10^{20} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

从液滴半径分布可以看出,随着入口压力的增大,Laval 喷管内平均液滴半径越大,出口液滴半径也随之增大,当压力为 5.5、6.0、6.5 MPa 时,对应最大液滴半径尺寸分别为 415.86、447.88 和 477.44 nm。由此可知,压力的升高有利于液滴的生长。

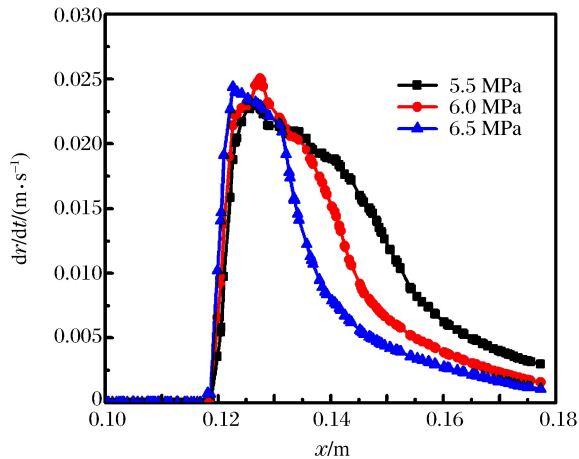


图 7 Laval 喷管内液滴生长率分布

Fig. 7 Droplet growth rate distribution in Laval nozzle

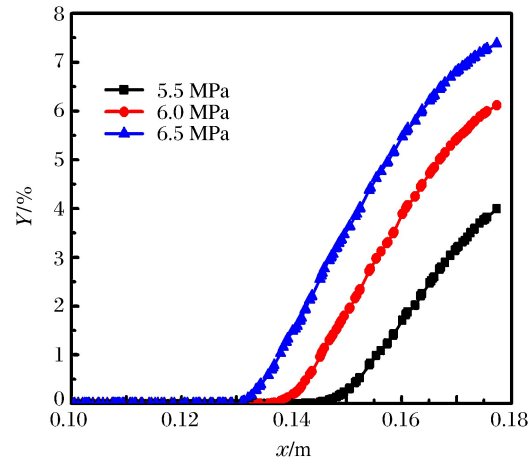


图 8 Laval 喷管内液相质量分数分布

Fig. 8 Liquid mass fraction distribution in Laval nozzle

从液滴生长率分布可以看出,液滴生长率在气体刚进入 Laval 喷管时一直为零,当液滴开始发生成核凝结时液滴生长率开始突增,变化到最大值后又迅速减小,最终减小为零。综合图 6 和图 7 还可以看出,随着入口压力的升高,在成核开始时液滴生长率较大,液滴半径增长速度较快,但一段距离后液滴生长率下降更大,液滴半径增长速度也明显放缓。

从液相质量分数分布可以看出,伴随着混合气体的凝结成核,液相质量分数也不断增大,且随着入口压力的升高,Laval 喷管出口处的湿度值随之增大,当压力为 5.5 MPa 时,湿度的最大值为 3.9892%,当压力增大到 6.5 MPa 时湿度最终增大到 7.3820%。

5 结 论

(1) 建立了三维双组分天然气混合物超声速凝结流动数学模型,对 Laval 喷管内双组分混合物凝结流动进行了数值模拟,得出沿 Laval 喷管轴向的参数分布,通过开展双可凝组分气体凝结相变实验,对比发现数值模拟与实验结果基本一致,说明了所建立数学模型及计算方法的正确性。

(2) 利用数值模型研究了入口参数对天然气混合物超声速液化特性的影响,结果表明,保持 Laval 喷管入口温度及组成不变,增大入口压力,混合气体成核位置前移,成核率、平均液滴半径、液相质量分数均随之增大,即入口压力越大,混合气体在 Laval 喷管内越易发生凝结。在实际生产中,可以通过调节入口压力来促进天然气的凝结,提高 Laval 喷管的液化效率。

参考文献:

- [1] SHI G H, JING Y Y, WANG S L, et al. Development status of liquefied natural gas industry in China [J]. Energy Policy, 2010, 38(11): 7457-7465.

- [2] LIN W,ZHANG N,GU A. LNG (liquefied natural gas): a necessary part in China's future energy infrastructure [J]. *Energy*,2010,35(11):4383-4391.
- [3] 杨文,曹学文,孙丽,等. 天然气液化技术研究现状及进展 [J]. *天然气化工(C₁化学与化工)*,2015,40(3):88-93.
YANG W,CAO X W,SUN L,et al. Natural gas liquefaction technology research status and progress [J]. *Natural Gas Chemical Industry*,2015,40(3):88-93.
- [4] YANG Y,WALTHER J H,YAN Y,et al. CFD modelling of condensation process of water vapor in supersonic flows [J]. *Applied Thermal Engineering*,2017,115:1357-1362.
- [5] SUN W J,CAO X,YANG W,et al. Numerical simulation of CO₂ condensation process from CH₄-CO₂ binary gas mixture in supersonic nozzles [J]. *Separation and Purification Technology*,2017,118(29):458-470.
- [6] WEN C,CAO X,YANG Y,et al. Numerical simulation of natural gas flows in diffusers for supersonic separators [J]. *Energy*,2012,37(1):195-200.
- [7] 杨文,曹学文. Laval 喷管设计及在天然气液化中的应用研究 [J]. *西安石油大学学报(自然科学版)*,2015,30(2):75-79.
YANG W,CAO X W. Design of Laval nozzle and its application in liquefaction of natural gas [J]. *Journal of Xi'an Shiyou University (Natural Science Edition)*,2015,30(2):75-79.
- [8] CAO X,YANG W. Numerical simulation of binary-gas condensation characteristics in supersonic nozzles [J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*,2015,25(4):197-206.
- [9] BIAN J,JIANG W M,TENG L,et al. Structure improvements and numerical simulation of supersonic separators [J]. *Chemical Engineering & Processing*,2016,110:214-219.
- [10] LI Z C,SUN H,GUO B L,et al. A design method of supersonic separator used in natural gas liquefaction process [J]. *Advanced Materials Research*,2013,609:1309-1313.
- [11] 刘杨,边江,郭晓明,等. Laval 喷管结构对流动特性和制冷性能的影响 [J]. *低温与超导*,2016,44(12):67-71,76.
LIU Y,BIAN J,GUO X M,et al. Effect of Laval nozzle structure on the flow characteristic and refrigeration performance [J]. *Cryogenics & Superconductivity*,2016,44(12):67-71,76.
- [12] 杨文,曹学文,徐晓婷,等. 高速膨胀天然气凝结流动特性 [J]. *石油学报(石油加工)*,2016,32(1):73-81.
YANG W,CAO X W,XU X T,et al. Flow and condensation characteristics of natural gas with high speed expansion [J]. *Acta Petrolei Sinica (Petroleum Processing Section)*,2016,32(1):73-81.
- [13] JASSIM E,ABDI M A,MUZYCHKA Y. Computational fluid dynamics study for flow of natural gas through high-pressure supersonic nozzles (Part 1): real gas effects and shockwave [J]. *Petroleum Science and Technology*,2008,26(15):1757-1772.
- [14] JASSIM E,ABDI M A,MUZYCHKA Y. Computational fluid dynamics study for flow of natural gas through high-pressure supersonic nozzles (Part 2): nozzle geometry and vorticity [J]. *Petroleum Science and Technology*,2008,26(15):1773-1785.
- [15] 杨文,侯志强,陈鹏,等. 双组分气体自发凝结成核模型修正 [J]. *石油学报(石油加工)*,2017,33(2):273-280.
YANG W,HOU Z Q,CHEN P,et al. Modification of models for binary component vapor spontaneous nucleation [J]. *Acta Petrolei Sinica (Petroleum Processing Section)*,2017,33(2):273-280.
- [16] JIANG W M,BIAN J,LIU Y,et al. Investigation of flow characteristics and the condensation mechanism of ternary mixture in a supersonic nozzle [J]. *Journal of Natural Gas Science & Engineering*,2016,34:1054-1061.
- [17] JIANG W M,LIU Z L,LIU H W,et al. Influences of friction drag on spontaneous condensation in water vapor supersonic flows [J]. *Science in China Series E: Technological Sciences*,2009,52(9):2653-2659.
- [18] SHOOSHTARI S H R,SHAHSAVAND A. Reliable prediction of condensation rates for purification of natural gas via supersonic separators [J]. *Separation and Purification Technology*,2013,116(37):458-470.

Influence of Inlet Pressure on Supersonic Liquefaction of Natural Gas Mixtures

BIAN Jiang¹, CAO Xuwen¹, YANG Wen²,
YU Hongxi³, YIN Pengbo¹

(1. *College of Pipeline and Civil Engineering, China University
of Petroleum, Qingdao 266580, China;*

2. *South China Branch, Sinopec Sales Co., Ltd., Guangzhou 510620, China;*

3. *Huguang Branch, Sinopec Xinjiang Coal Gas Pipeline Co., Ltd., Changsha 410016, China)*

Abstract: In this paper, to find out about how the inlet pressure influences the supersonic liquefaction of natural gas mixtures, we established a three-dimensional mathematical model for the supersonic condensation flow of the methane-ethane mixture gas, obtained the axial parameters along the Laval nozzle, and conducted experiments to verify the gas condensate phase transition of double condensable components. It was found that the numerical simulation is in good agreement with the experimental results, thereby proving the mathematical model and the calculation method as correct. We also investigated the influences of the inlet pressure on the supersonic liquefaction of methane-ethane mixtures. The results indicate that, when the temperature and composition of the Laval nozzle inlet remain the same, the nucleation position of the mixed gas moves forward, the nucleation rate, the mean droplet radius and the liquid mass fraction all increase with the increase of the inlet pressure. The greater the inlet pressure, the more apt for the condensation of the gas mixture in the Laval nozzle to occur. In the actual production, the condensation of natural gas mixtures can be promoted by adjusting the inlet pressure, and the liquefaction efficiency of the Laval nozzle will be improved.

Keywords: Laval nozzle; methane-ethane; inlet pressure; liquefaction; nucleation