



Direct numerical simulation of mass transfer process of single free rising microbubbles under the influence of surface active materials

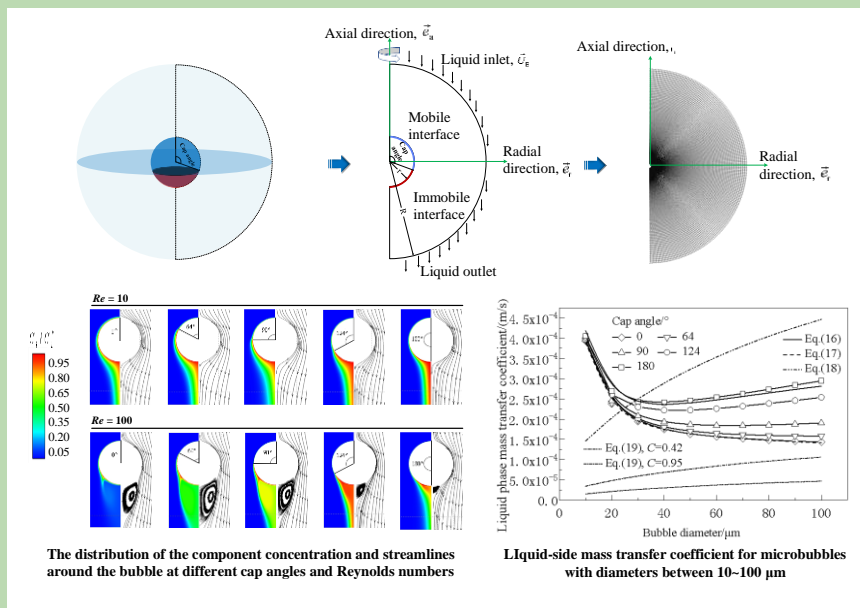
Chengxiang LI, Yizhou CUI, Xiaogang SHI, Jinsen GAO, Xingying LAN*

State Key Laboratory of Heavy Oil Processing, China University of Petroleum, Beijing 102249, China

Abstract: The international organization for standardization (ISO) has defined bubbles with the diameter between 1~100 μm as microbubbles in 2017. According to the above definition and the fact that microbubbles are easily affected by surface active materials, the mass transfer rate of single free rising microbubbles with various diameters under the influence of surface active materials was studied by direct numerical simulation. It was found that the velocity and mass transfer rate of the microbubbles were in good agreement with the theoretical

results of creeping flow recommended by Clift et al. The adsorption of surface active materials on the surface of microbubble reduced the liquid-side mass transfer coefficient. However, for microbubbles that were greatly affected by surface active materials, the liquid-side mass transfer coefficient increased with the decrease of bubble size, which was different from the trend of clean microbubbles that decreased first and then increased. Therefore, in the application where the effect of surface active materials cannot be excluded, further reduction of the initial size of microbubbles can not only increase the specific surface area of the gas phase but also further increase the liquid-side mass transfer coefficient of the bubble, and the mass transfer capacity can be further enhanced.

Key words: microbubble; direct numerical simulation; rising velocity; mass transfer analysis; surface active materials



收稿: 2020-07-24, 修回: 2020-08-25, 网络发表: 2020-10-19; Received: 2020-07-24, Revised: 2020-08-25, Published online: 2020-10-19

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(编号: 91834303), 中国石油大学(北京)科研基金项目(编号: 2462018BJC003)

作者简介: 李成祥(1991-), 男, 山东省烟台市人, 博士研究生, 化学工程与技术专业, E-mail: lichengxiang199211@163.com; 蓝兴英, 通讯联系人, E-mail: lanxy@cup.edu.cn.

引用格式: 李成祥, 崔怡洲, 石孝刚, 等. 表面活性物质影响下单个自由上升微气泡传质过程的直接数值模拟. 过程工程学报, 2021, 21(8): 877-886.
Li C X, Cui Y Z, Shi X G, et al. Direct numerical simulation of mass transfer process of single free rising microbubbles under the influence of surface active materials (in Chinese). Chin. J. Process Eng., 2021, 21(8): 877-886, DOI: 10.12034/j.issn.1009-606X.220240.

表面活性物质影响下单个自由上升微气泡传质过程的直接数值模拟

李成祥, 崔怡洲, 石孝刚, 高金森, 蓝兴英*

中国石油大学(北京)重质油国家重点实验室, 北京 102249

摘要: 2017年, 国际标准化组织将直径介于1~100 μm 之间的气泡定义为微气泡, 本研究参照上述定义, 针对微气泡容易受到表面活性物质影响的特点, 通过直接数值模拟对不同尺寸单个自由上升微气泡在表面活性物质影响下的传质速率进行研究。通过与模拟结果对比发现, 微气泡的运动速度及传质速率均可用Clift等总结的爬流范围内的理论进行较为准确的预测。表面活性物质在微气泡表面的吸附会降低气泡的液相传质系数, 但对于受表面活性物质影响程度较大的微气泡, 其液相传质系数随气泡尺寸减小呈持续增加趋势, 而与洁净微气泡先减小后增加的趋势有所不同。因此在无法排除表面活性物质影响的应用场合, 进一步缩小微气泡的初始尺寸, 不仅可以增加气相的比表面积, 微气泡的液相传质系数也会进一步增加, 其传质能力将得到进一步加强。

关键词: 微气泡; 直接数值模拟; 上升速度; 传质分析; 表面活性物质

中图分类号: TQ460.6+4

文献标识码: A

文章编号: 1009-606X(2021)08-0877-10

1 前言

气泡作为一种气相在多相流中的分布形式, 广泛存在于涉及气液、气固两相或者气液固三相的生产过程中。2017年, 国际标准化组织(ISO)根据气泡大小对气泡进行了详细分类, 把直径介于1~100 μm 的气泡定义为微气泡^[1], 以将其与其他尺寸的气泡区别开来。对于气液两相及气液固三相流中的微气泡, 与毫米尺寸的气泡相比(直径为2~5 mm^[2]), 其具有比表面积大、停留时间长、尺寸稳定可控等优点, 目前在医疗、污水处理、矿物浮选^[2-4]等领域已经有了一定的应用, 而在化工生产领域常见的多相反应器如鼓泡塔、浆态床中, 微气泡技术也具有广阔的应用前景^[5]。

液相中运动的气泡容易对表面活性物质产生吸附作用, 在马拉高尼效应的作用下, 气泡表面将逐渐失去流动性^[6], 进而对气泡运动速度及传质速率产生影响^[7,8]。与传统大尺寸气泡相比, 微气泡则更易受到表面活性物质的影响^[9,10], 因此众多研究者通过实验手段针对表面活性物质对微气泡的影响展开了研究^[10-13]。Tanaka等^[11]用高速摄影机对水溶液中单个自由上升空气微气泡的速度及其在传质过程中的尺寸变化进行了测量, 发现微气泡在表面活性物质的影响下表面失去流动性, 其终端上升速度与适用于低速情况下固体颗粒终端速度预测的斯托克斯定律计算值较为相符, 而其传质特性也与固体颗粒类似。Swart等^[12]和Takahashi^[13]的研究表明, 受表面活性物质影响, 较低气含率情况下微气泡群的上升速度同样较为符合斯托克斯定律的预测。

由于微气泡易受表面活性物质影响, 对实验过程中所用材料及实验装置洁净度要求很高, 因此上述研究只对表面活性物质影响下微气泡表面完全失去流动性时的上升速度及传质速率进行了考察。Parkinson等^[10]将实验所用气液相介质及实验设备进行严格过滤和清洁, 对未受表面活性物质影响的完全洁净微气泡的上升速度进行了测量, 发现其大于斯托克斯定律的计算值而基本符合Hadamard-Rybczynski方程的预测结果, 其研究表明表面活性物质对微气泡的运动速度产生了影响, 但并未进行表面活性物质对微气泡传质速率影响的相关研究。通过上述实验工作可以发现, 受限于现有的实验手段, 目前针对表面活性物质对微气泡影响的实验研究, 多只能获得表面完全失去流动性微气泡的速度^[11-13]和传质速率^[11], 对于完全洁净微气泡的实验研究, 目前只有其运动速度的相关报道^[10], 而对于完全洁净微气泡和气泡污染程度介于两种极限情况之间微气泡的传质速率及表面活性物质对微气泡运动和传质过程的影响程度仍缺乏相关研究。

随着近些年计算机的发展与计算能力的提升, CFD (Computational Fluid Dynamics) 模拟越来越多地应用于科学研究中, 以获取更多细节与微观信息。“Stagnant Cap Model”作为一种直接数值模拟模型, 能够根据气泡表面情况及运动速度准确计算气泡受力大小及传质速率, 因而广泛应用于气泡在表面活性物质影响下运动及传质行为研究^[14-16]。Takemura等^[14]通过实验研究了二氧化碳气泡在水中的上升速度和溶解速率, 并使用“Stagnant Cap Model”模型对雷诺数小于100的二氧化

碳气泡的曳力系数和舍伍德数进行了计算,发现模拟结果与实验数据能够较好吻合,验证了“Stagnant Cap Model”模型对气泡受力及传质速率计算的准确性,并进一步将模拟结果用于解释气泡在表面活性物质影响下由流体向类似固体颗粒转变的瞬态过程机理。Saboni等^[15]使用“Stagnant Cap Model”模型在更大的雷诺数范围(200)内对包括气泡在内流体颗粒传质的舍伍德数进行了计算,发现表面活性物质对气泡的影响程度显著影响气泡的传质速率。Jia等^[16]使用“Stagnant Cap Model”模型对球形气泡在表面活性物质影响下的传质速率进行了系统的数值研究,发现传质速率受局部气液滑移速度影响。通过上述模拟工作可以发现,“Stagnant Cap Model”模型可以准确计算气泡在表面活性物质不同影响程度下的受力情况及传质速率,且可获取充分的气泡整体以及局部的传质信息,但上述模拟工作并未涉及尺寸100 μm 以下微气泡的研究,而微气泡在液相中的运动规律与传统大尺寸气泡有所区别^[17],适用于传统大尺寸气泡的传质理论是否能够准确预测微气泡的传质速率也有待进一步研究。因此在本工作中,将发挥数值模拟的优势,使用“Stagnant Cap Model”模型对尺寸介于10~100 μm 之间的微气泡在表面活性物质不同影响程度下的终端上升速度及在对应终端上升速度下的传质速率进行研究,通过与相关理论对比,验证不同传质理论在微气泡领域的适用性,并对微气泡在表面活性物质不同影响程度下的液相传质系数进行研究,发现表面活性物质的存在,不仅影响液相传质系数的大小,也对液相传质系数随气泡尺寸的变化趋势产生了影响。

2 模型简述

2.1 模型假设与构建

在诸如曝气等微气泡已经实际应用的过程中,微气泡在液相中自由上升并向液相传质,微气泡在运动过程中,气泡表面容易对表面活性物质产生吸附作用,被吸附的表面活性物质在气液两相曳力的作用下在气泡尾部聚集,进而在气泡表面产生表面活性物质的浓度梯度,在马拉高尼效应的作用下,气泡表面的流动性逐渐减弱,最终失去流动性,并对微气泡的上升速度及传质速率产生影响。

为了对上述过程进行模拟,在“Stagnant Cap Model”模型中,如图1所示,取半径为 r 的气泡边界及气泡周围与气泡中心距离为 R 的液相作为模拟对象,模拟过程中用液相相对气泡向下的运动来代表实际情况中自由上升气泡相对静止液相的运动。由于“Stagnant Cap Model”可以准确描述气泡周围液相与气泡表面的相互

作用,同时对于微气泡,由于其尺寸较小,气相扩散距离短,因此在模拟中可以忽略气相侧的传质阻力^[18],在这样的前提下,就可以只考虑气泡与其周围液相的相互作用而忽略气泡内部的流动与传质,将气泡作为“空穴”进行处理。为了在模拟过程中反映表面活性物质对气泡产生的影响,使用“Cap angle”这一参数代表气泡受表面活性物质影响的程度,如图1所示。“Cap angle”以内的气泡表面为滑移界面,以外的表面为无滑移界面,“Cap angle”为 0° 时,整个气泡表面全部为无滑移的表面,气泡受表面活性物质影响的程度最大,“Cap angle”为 180° 时,气泡表面全部为滑移表面,代表气泡未受表面活性物质影响的状态。模拟中,“Cap angle”的大小代表了滑移界面所占的比例,对气泡受力及传质的计算均具有显著影响^[16]。

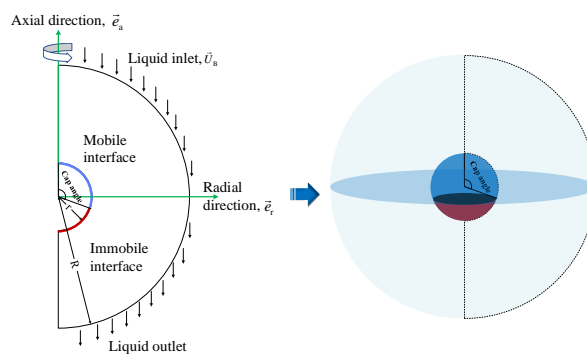


图1 计算区域概况图

Fig.1 Schematic diagram of simulation area

本研究中采用二维轴对称模拟,其轴向和径向方向如图1所示。Fukuta等^[6]采用三维模拟对表面活性物质在气泡表面的积累对气泡受到升力及曳力的影响进行了考察,发现针对曳力的计算结果,三维模拟和二维轴对称模拟获得的结果基本一致。Takemura等^[14]认为球形气泡在自由上升过程中周围流场保持轴对称,因而采用二维轴对称模拟对气泡在不同污染程度时受到的曳力及传质速率进行了研究,同样获得了较准确的计算结果。因此,在可以获得准确计算结果的前提下,为了减少计算用时,采用二维轴对称模拟对微气泡的运动及传质过程进行考察。

在本研究的模拟区域中,如图1所示,上下分别为液相入口和出口,中心区域为气泡边界,计算中设定 $R/r=50$,以保证液相流场的充分发展。模拟中,对稳态情况下计算区域内不可压缩液相的连续方程,动量平衡方程及组分的对流-扩散方程进行计算,如式(1)~(3)所示。

连续方程:

$$\nabla \cdot \vec{u} = 0 \quad (1)$$

动量平衡方程:

$$\vec{u} \cdot \nabla \vec{u} = -\frac{\nabla p}{\rho} + \nu \nabla^2 \vec{u} \quad (2)$$

组分对流-扩散方程:

$$\vec{u} \cdot \nabla C_i = D_i \nabla^2 C_i \quad (3)$$

式中, \vec{u} 为速度矢量(m/s), p 为流体压力(Pa), ρ 为流体密度(kg/m³), ν 为运动黏度(m²/s), C_i 为 i 组分的浓度(kg/m³), D_i 为 i 组分的扩散系数(m²/s)。

在“Cap angle”内的气泡界面, 对动量平衡方程使用滑移壁面边界条件求解, 在其外的气泡界面, 使用无滑移壁面边界条件。在组分对流-扩散方程的求解中, 在气泡表面使用亨利定律对边界浓度进行计算并作为浓度边界条件, 如式(4)所示:

$$C_i^* = p_i H_i \quad (4)$$

式中, C_i^* 为 i 组分在气泡表面处的平衡浓度(mol/m³), p_i 为 i 组分分压(Pa), H_i 为亨利系数[mol/(m³·Pa)], 模拟中根据亨利系数计算组分的摩尔平衡浓度, 并转换为质量浓度边界条件用于模拟计算。

2.2 气泡受力分析及传质速率的统计

在本研究中, 主要对气泡的终端上升速度进行预测, 并对气泡在终端上升速度下的传质速率进行统计。自由上升的气泡达到终端上升速度时, 气泡处于受力平衡状态, 此时气泡的轴向受力可以用式(5)表示:

$$0 = \vec{F}_g + \vec{F}_b + \vec{F}_d \quad (5)$$

$$\text{重力 } \vec{F}_g = \rho_g \frac{\pi}{6} d_B^3 g$$

$$\text{浮力 } \vec{F}_b = -\rho_L \frac{\pi}{6} d_B^3 g$$

式中, \vec{F}_g 为气泡所受重力(N), \vec{F}_b 为气泡所受浮力(N), \vec{F}_d 为气泡所受曳力(N), ρ_g 为气体密度(kg/m³), ρ_L 为液体密度(kg/m³), d_B 为气泡直径(m), g 为重力加速度(m/s²)。

本研究采用积分方法对气泡在一定速度下受到的曳力进行统计。气泡受到的曳力大小为:

$$|\vec{F}_d| = \vec{e}_a \cdot \int_S (-pI + \tau) \cdot \vec{n} dS \quad (6)$$

式中, \vec{n} 为气泡表面的单位法向量, \vec{e}_a 为轴向的单位向量, I 为单位矩阵, τ 为剪切应力张量(Pa), S 为气泡表面积(m²)。

对于气泡传质速率的统计, 同样使用直接积分的方法来进行, 式(7)用于计算气泡表面单位时间内向液相传递目标组分的质量。

$$m_i = \int_S D_i \nabla C_i \cdot \vec{n} dS \quad (7)$$

式中, m_i 为气泡表面单位时间内向液相传递目标组分的质量(kg/s)。

模拟过程中, 使用式(6)统计获得气泡受到的曳力大小以后, 使用式(8)对曳力系数进行计算。

$$C_D = \frac{|\vec{F}_d|}{\frac{\pi}{8} d_B^2 \rho_L |\vec{U}_B|^2} \quad (8)$$

式中, C_D 为曳力系数, \vec{U}_B 为气泡终端速度(m/s)。

用式(7)统计获得气泡传质速率后, 用式(9)对组分 i 对应的液相传质系数 k_L^i (m/s) 进行计算, 并用式(10)对气泡整体的舍伍德数 Sh 进行计算:

$$k_L^i = \frac{m_i}{\pi d_B^2 (C_i^* - C_i^\infty)} \quad (9)$$

式中, C_i^* 为组分在气泡表面处的平衡浓度, 使用式(4)进行计算, C_i^∞ 为液相来流中的组分浓度, 在本工作中设为0。

$$Sh_i = \frac{k_L^i d_B}{D_i} \quad (10)$$

本研究在气泡尺寸一定的情况下预测气泡的终端上升速度, 并统计气泡在终端上升速度下的传质速率, 因此采用稳态模拟, 收敛的残差标准为 10^{-9} 。模拟使用二阶迎风离散格式, 用 SIMPLE 算法耦合压力和速度的求解, 模拟所用软件平台为 ANSYS Fluent, 气泡所受曳力大小及传质速率的统计通过 Fluent 提供的用户自定义函数(User Defined Function, UDF)编程实现。

3 结果与讨论

为了对表面活性物质影响下自由上升微气泡的运动速度及传质速率进行准确模拟, 将先对模拟所用网格进行网格无关性考察, 以确保边界层网格尺寸及网格数量能够满足模拟要求。而后, 为进一步检查通过 UDF 加载的气泡受力及传质速率统计方法的准确性, 将在文献[14-16,19]相同条件下模拟获得的气泡曳力系数及舍伍德数和文献[14-16,19]结果进行对比, 以进一步验证模型使用的准确性。最后, 在确保模型能够获得准确模拟结果的前提下, 分别对表面活性物质影响下自由上升微气泡的运动速度及传质速率进行研究和考察。

3.1 网格无关性考察

模拟使用的网格如图2所示, 其中 δ 为边界层网格厚度。为了实现对气泡传质速率的准确统计, 边界层网格厚度应小于传质边界层厚度, Levich^[20]在其研究中提出了传质边界层厚度的计算方法, 如式(11)所示:

$$\frac{\delta_B}{d_B} \approx \sqrt{\frac{1}{2Pe}} \quad (11)$$

式中, $Pe = \frac{|\vec{U}_B| d_B}{D_i}$ 为派克来数, δ_B 为传质边界层厚度(m)。

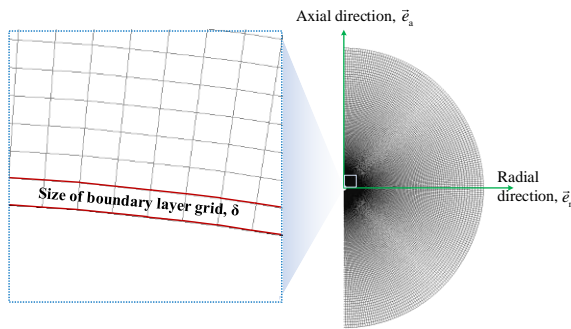


图2 计算所用网格
Fig.2 Mesh used in simulation

为获取准确的模拟结果,需要边界层网格满足尺寸要求,以准确计算气泡受到的曳力及传质速率。根据式(11),边界层随气泡速度增加而变薄^[10],因此使用本次模拟中涉及的速度最快的气泡,即尺寸 100 μm 且表面全部为滑移界面的洁净气泡,对其进行网格无关性考察,结果如图3所示。用图3所示几种不同尺寸的边界层网格获得的气泡速度均为 8.52 mm/s,通过对比终端速度下气泡传质的舍伍德数可以发现,当边界层网格尺寸小于 3 μm 时,模拟获得的舍伍德数基本不再发生变化,已经满足传质边界层的要求。为了获取更准确的模拟结果,同时满足更小尺寸气泡的网格分辨率要求,最终采用 0.5 μm 的边界层网格进行计算。

上述对边界层网格尺寸的考察使用的网格数量为 113360,为进一步考察这一网格数量能否满足计算要求,在边界层网格尺寸为 0.5 μm 的情况下,用不同数量的网格对直径为 100 μm 的洁净气泡进行模拟,获得其

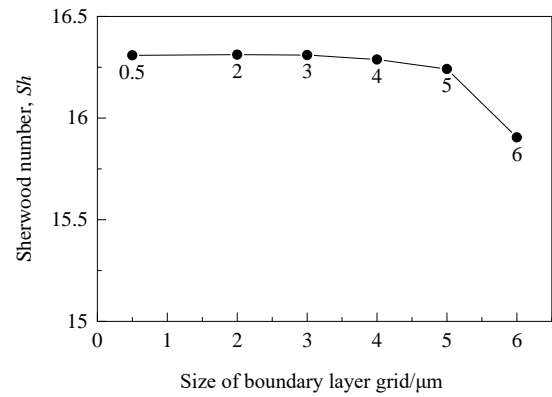


图3 使用不同尺寸边界层网格获得的气泡舍伍德数对比

Fig.3 Calculated Sherwood number using boundary layer grid with different sizes

上升速度及传质舍伍德数并进行对比,结果如图4所示。可以发现,网格数量为 113360 时可满足计算要求。

3.2 模型验证

在使用模型进行研究之前,为验证模拟准确性,将本研究中的计算结果与文献[14–16,19]计算结果进行对比。为保证验证的有效性,使用与文献[14–16,19]一致的气液相介质(气相:二氧化碳,液相:水),并保持与文献[14–16,19]中一致的温度和压力条件,该温度压力条件及对应的物性条件列于表1中,用表1中物性计算得到的施密特数 Sc 为 500 [$Sc = \mu_L / (\rho_L D_i)$],其中 μ_L 为液相动力黏度($\text{Pa} \cdot \text{s}$),与文献[14–16,19]一致。分别对雷诺数为 10 和 100 两种速度条件时气泡在表面活性物质不同影响程度下受到的曳力大小和传质速率情况进行计算,获得不同情况下的曳力系数 C_D 和舍伍德数 Sh ,并与文献计算结果进行对比,结果见表2,模拟获得的气泡周围液相中组分浓度分布情况和气泡周围流场情况如图5所示。

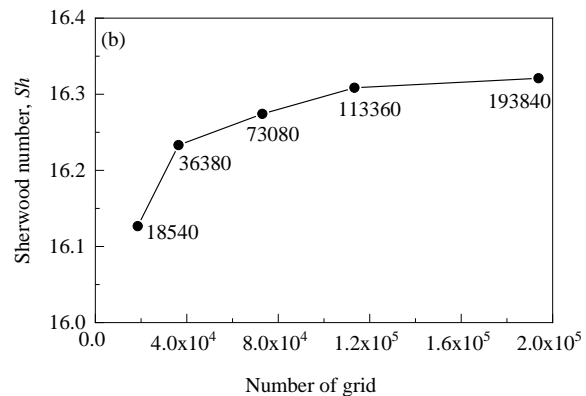
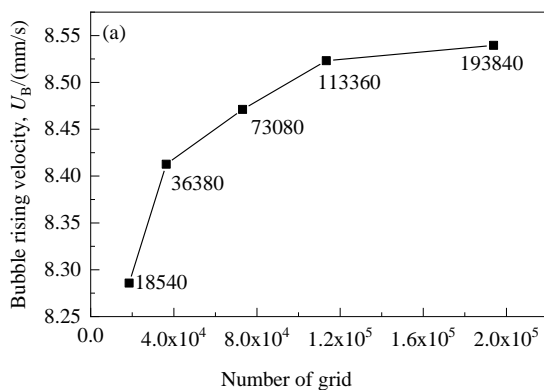


图4 不同网格数量情况下模拟获得的气泡上升速度及舍伍德数对比

Fig.4 Simulation results of bubble rising velocity and Sherwood number with different number of grids

表 1 模拟中使用的条件及对应物性信息^[16,21]
Table 1 The conditions and physical property used in simulation^[16,21]

Temperature /°C	Pressure /kPa	Component	Physical property	Value
23.5	101.0	H ₂ O	$\rho_L/(\text{kg}/\text{m}^3)$	997
			$\mu_L/(\text{Pa}\cdot\text{s})$	9.27×10^{-4}
			$\sigma/(\text{N}/\text{m})$	0.072
		CO ₂	$H_i/[\text{mol}/(\text{m}^3\cdot\text{Pa})]$	3.40×10^{-4}
			$D_i/(\text{m}^2/\text{s})$	1.86×10^{-9}

通过与文献中的数值进行对比可以发现,本研究中的模拟结果与文献报道的值相差很小,可以保证模型使用的准确性,模型可以准确地计算气泡运动及气泡传质情况,能够用于下一步考察微气泡运动及传质特性。

3.3 表面活性物质影响下微气泡上升速度考察

与大尺寸气泡相比,微气泡的上升速度较小,因此在反应器内停留时间更长。对于尺寸小于 100 μm 的微气泡,其运动接近或处于爬流范围内。Hadamard 和 Rybczynski 推导出爬流范围内适用于洁净气泡终端上升速度的计算公式^[22],如式(12)所示,而相关实验研究也表明对于尺寸小于 100 μm 的微气泡,当气泡表面为滑移界面时,其终端上升速度符合 Hadamard–Rybczynski 方程[式(12)]的计算结果^[10],当微气泡表面完全失去流动性时,其终端速度与斯托克斯定律[式(13)]较相符^[11–13]。

$$\left| \vec{U}_B \right| = \frac{1}{12} \frac{gd_B^2(\rho_L - \rho_g)}{\mu_L} \tag{12}$$

$$\left| \vec{U}_B \right| = \frac{1}{18} \frac{gd_B^2(\rho_L - \rho_g)}{\mu_L} \tag{13}$$

相应地,表面完全失去流动性的气泡和洁净气泡在较低速度情况下的曳力系数可以分别用式(14)和(15)^[22]进行计算:

$$C_D = \frac{24}{Re} \tag{14}$$

$$C_D = \frac{16}{Re} \tag{15}$$

为了对不同尺寸气泡的终端速度进行研究与比较,用二氧化碳作为气相介质、水作为液相介质,具体物性列于表 1 中,对尺寸介于 10~100 μm 之间的微气泡在表面活性物质不同程度影响下(Cap angle=0°, 64°, 90°, 124°, 180°)的运动情况进行模拟,根据受力平衡获取其对应的终端上升速度,模拟中获得的气泡终端速度及曳力系数绘制于图 6 中。通过上述模拟结果可以发现,对于尺寸在 10~100 μm 范围内的洁净微气泡,由于其尺寸较小,在静止水中上升速度较慢,其上升速度基本符合 Hadamard–Rybczynski 方程[式(12)]的预测结果,当受到表面活性物质影响时,微气泡速度会进一步下降,当气泡表面完全失去流动性时,其上升速度基本符合斯托克斯定律[式(13)]的预测结果。与速度模拟结果类似,表面完全失去流动性及完全洁净微气泡的曳力系数的模拟结果分别与式(14)和(15)的计算结果较相符,受表面活性物质影响大小介于两者之间微气泡曳力系数的模拟结果介于式(14)和(15)之间。

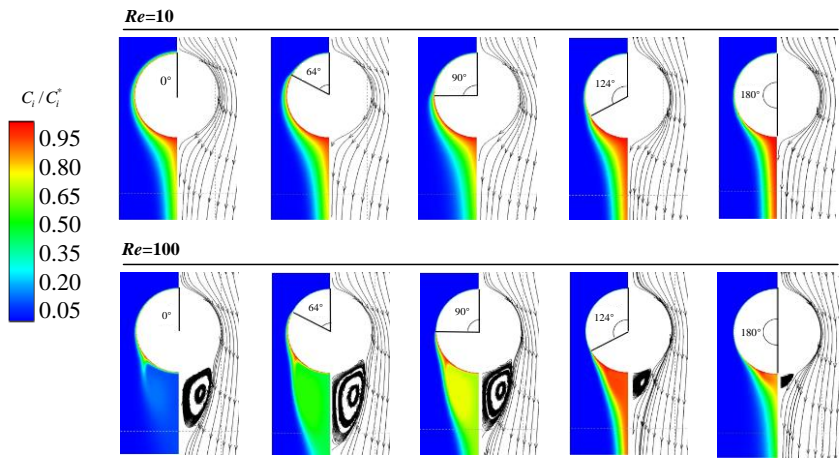


图 5 不同污染程度气泡在不同速度情况下组分浓度分布情况和气泡周围流线图
Fig.5 The distributions of the component concentration and streamlines around the bubble at different cap angles and Reynolds numbers

3.4 表面活性物质影响下微气泡传质速率考察

通过与爬流范围内的气泡速度理论对比可以发现,

模拟获得的气泡速度较为准确,在这一前提下,继续对气泡在对应速度下的传质速率进行考察,将模拟获得的

表2 曳力系数及舍伍德数模拟结果与文献值对比											
Table 2 Comparisons of the simulation results for drag coefficient and Sherwood number in this work with the results in literature											
C_D	Cap angle/ $^{\circ}$					Sh	Cap angle/ $^{\circ}$				
	0	64	90	124	180		0	64	90	124	180
$Re=10, Sc=500$						$Re=10, Sc=500$					
Takemura et al ^[14]	4.22	4.19	3.76	2.88	2.37	Takemura et al ^[14]	20.0	30	40	51	56
Saboni et al ^[19]	4.42	4.33	3.86	2.92	2.47	Saboni et al ^[15]	21.0	30	42	55	60
Jia et al ^[16]	4.444	4.315	3.845	2.924	2.471	Jia et al ^[16]	21.2	30.5	41.6	53.6	57.3
This work	4.439	4.308	3.850	2.887	2.394	This work	21.2	29.9	43.0	53.9	58.5
$Re=100, Sc=500$						$Re=100, Sc=500$					
Takemura et al ^[14]	1.09	1.02	0.83	0.51	0.38	Takemura et al ^[14]	58	110	155	197	214
Saboni et al ^[19]	1.09	1.07	0.88	0.50	0.37	Saboni et al ^[15]	60	108	163	206	220
Jia et al ^[16]	1.106	1.076	0.878	0.505	0.376	Jia et al ^[16]	58.1	111.2	159.2	205.1	218.8
This work	1.106	1.078	0.874	0.516	0.378	This work	57.7	108.7	158.0	199.5	216.3

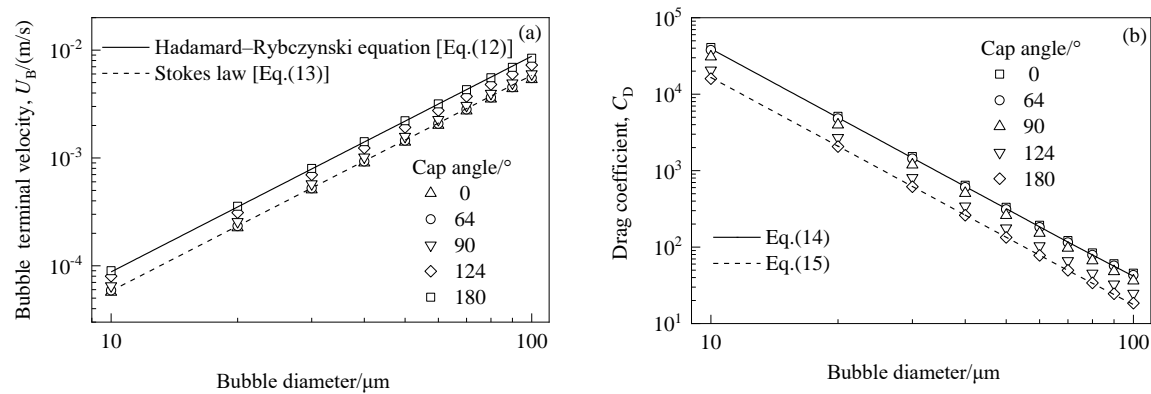


图6 10~100 μm 气泡终端速度和曳力系数模拟结果与理论结果对比

Fig.6 Comparison between simulation results and theoretical results of bubble terminal velocity and drag coefficient for microbubbles with diameters between 10~100 μm

10~100 μm 尺寸范围内不同污染程度微气泡在对应终端速度下的舍伍德数 Sh 及液相传质系数 k_L 与理论计算结果进行对比,并对其随气泡尺寸的变化趋势进行分析。

对于雷诺数小于1时的洁净气泡及表面完全失去流动性的气泡,Clift 等^[22]给出了对应的传质速率计算方法,分别如式(16)和(17)所示:

$$Sh = 1 + (1 + 0.564Pe^{2/3})^{3/4}$$

(16)

$$Sh = 1 + (1 + Pe)^{1/3}$$

(17)

将用二氧化碳作为气相介质、水作为液相介质(物性见表1)模拟得到的气泡传质舍伍德数与上述理论推导结果进行对比,结果绘制于图7中。从图7可以发现,对于直径在10~100 μm 之间的洁净气泡,模拟得到的舍伍德数与式(16)的计算结果基本一致。随着表面活性物质影响程度的增加,相同尺寸气泡的舍伍德数逐渐减小,传质能力下降,当气泡表面全部转变为无滑移界面时,气泡传质速率最小,其舍伍德数与式(17)的计算结果一致。

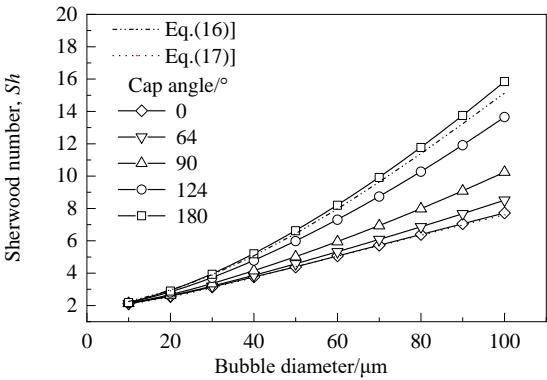


图7 10~100 μm 气泡舍伍德数模拟结果与理论结果对比

Fig.7 Comparison between simulation results and theoretical results of Sherwood number for microbubbles with diameters between 10~100 μm

Higbie^[23]认为气泡的液相传质系数与气泡表面和液相的接触时间有关,而给出了关于气泡直径及气泡上升速度的液相传质系数计算方法,如式(18)所示,一般认为

该理论适用于洁净气泡液相传质系数的计算^[24]。

$$k_L^i = 2 \sqrt{\frac{D_i |\vec{U}_B|}{\pi d_B}} \quad (18)$$

Frössling^[25]给出了适用于固体颗粒传质系数的计算方法,如式(19)所示,该方法同样适用于表面全部为无滑移界面气泡液相传质系数的计算^[24],式(19)中的常数 c 介于 0.42 和 0.95 之间^[26,27]。

$$k_L^i = c \sqrt{\frac{|\vec{U}_B|}{d_B}} D_i^{(2/3)} \nu_L^{(-1/6)} \quad (19)$$

将模拟获得的气泡液相传质系数与式(16)~(19)计算获得的液相传质系数进行对比并绘制于图 8 中。由图 8 可以看出,Clift 等^[22]给出的较低雷诺数下($Re < 1$)气泡液相传质系数公式[式(16)和(17)]的计算结果与模拟结果较符合,但 Higbie 和 Frössling 传质理论计算得到的液相传质系数与模拟结果相差较大,且上述两种理论预测获得的气泡液相传质系数随气泡尺寸的变化规律也与模拟结果有所出入。

对于模拟涉及的全部尺寸的气泡,尺寸一定的情况下,洁净气泡的液相传质系数均比受到表面活性物质影响的气泡大。对于相同尺寸的气泡,受表面活性物质影响程度越大,其液相传质系数越小。当气泡有一半表面失去流动性时(Cap angle=90°),如图 8 所示,在气泡尺寸介于 50~100 μm 之间时,其液相传质系数随气泡尺寸基本不发生变化,当气泡尺寸小于 50 μm 时其液相传质系数随气泡尺寸的减小开始增加,而对于受表面活性物质影响程度较小(Cap angle=124°)或者未受到表面活性物质影响的洁净气泡(Cap angle=180°),在 40~100 μm 的尺寸范围内,液相传质系数随气泡尺寸的减小而减小,当气泡尺寸小于 40 μm 时,随着气泡尺寸的减小,液相传质系数开始增加。当气泡在表面活性物质的影响下表面完全失去流动性时,在模拟的全部气泡尺寸范围内,气泡液相传质系数随气泡尺寸减小逐渐增加,这一趋势与 Tanaka 等^[11]获得的实验结论一致,而 Frössling 传质理论预测得到的趋势与模拟结果和文献[11]的实验结论相反,因此在对微气泡的传质速率进行预测时,在未获取微气泡准确滑移速度的情况下,需慎重将适用于大尺寸气泡的传质理论进行推广使用。

对于水中的微气泡,其极易受到表面活性物质的影响而使气泡表面完全失去流动性,在 Tanaka 等^[11]实验中,即使将实验用水严格过滤,在总有机碳(TOC)小于 0.25 mg/L 条件下,尺寸小于 100 μm 的微气泡的上升速度仍与斯托克斯定律较相符,即此时气泡表面已完全失去流动性。因此在一般工业应用中,对于无法避免气泡

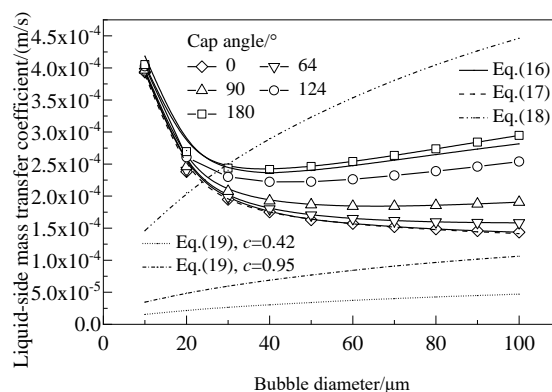


图 8 10~100 μm 气泡液相传质系数模拟结果与理论结果对比

Fig.8 Comparison between simulation results and theoretical results of liquid-side mass transfer coefficient for microbubbles with diameters between 10~100 μm

与表面活性物质接触的场所,在气泡尺寸小于 100 μm 的范围内进一步减小气泡的初始尺寸,不仅可以提高气相的比表面积,同时其液相传质系数也会相应增大,单位体积气相的传质能力得到进一步加强。

通过以上模拟研究可以发现,对于尺寸一定的自由上升微气泡,在表面活性物质的影响下,随着微气泡表面逐渐失去流动性,其上升速度逐渐减小,传质速率逐渐减慢,当气泡表面完全失去流动性时,展现出类似固体颗粒的运动与传质状态。而针对湍流状态下微气泡在液相中运动规律的研究也表明,湍流情况下表面活性物质对微气泡的影响同样不可忽略。Chen 等^[28]用欧拉-拉格朗日方法对溶气浮池中的气液两相流动情况进行了模拟,水为连续相,处于湍流状态,微气泡为离散相,模拟中认为气泡表面不具有流动性而采用 Morsi 等^[29]总结的适用于固体颗粒曳力计算的公式对微气泡所受曳力进行计算。Mutharasu 等^[17]采用欧拉-欧拉方法(双流体方法)对湍流状态下鼓泡塔内包含微气泡的气液两相流进行模拟,通过将表面活性物质的影响及气泡群效应纳入考虑对 Schiller-Naumann 曳力模型进行修正,同样取得了较为准确的模拟结果。而对于湍流状态下微气泡传质过程的研究,目前多为微气泡与传统大尺寸气泡传质速率的比较^[30,31]及适于微气泡传质系数经验公式的总结^[5],适合传统大尺寸气泡的传质理论在湍流状态下对微气泡传质速率预测是否准确以及表面活性物质在湍流情况下对微气泡传质速率的影响仍有待进一步研究。

4 结论

本研究采用直接数值模拟的方法,对尺寸介于 10~

100 μm 之间的单个自由上升微气泡在表面活性物质不同影响程度情况下的终端上升速度及对应的传质速率进行了考察,通过模拟结果与传质理论的对比,验证了不同传质理论在微气泡领域的适用性,并对微气泡液相传质系数随气泡尺寸的变化规律进行了研究,得到以下结论:

(1) 对于尺寸在10~100 μm 之间的洁净微气泡或表面完全失去流动性的微气泡,其终端上升速度及液相传质系数与Clift等给出或总结的较低雷诺数下的理论公式较为相符,但Higbie和Frössling传质理论计算得到的液相传质系数与模拟结果相差较大,且上述两种理论预测得到的气泡液相传质系数随气泡尺寸的变化规律也与模拟结果有所不同。

(2) 在表面活性物质的影响下,微气泡在静止液相中的上升速度以及传质速率都有所下降,下降幅度随表面活性物质影响程度的增加而增大。表面活性物质不仅影响微气泡液相传质系数大小,同时也影响其随气泡尺寸的变化规律。对于受表面活性物质影响程度较大的微气泡,其液相传质系数随气泡尺寸的减小持续增加,因此在无法排除表面活性物质影响的应用场合,进一步缩小微气泡的初始尺寸,将从液相传质系数及比表面积两方面对气液传质起到强化作用。

参考文献

- [1] International Organization for Standardization. Fine bubble technology—general principles for usage and measurement of fine bubbles—part 1: terminology: ISO 20480-1 [S]. 2017: 1.
- [2] Khuntia S, Majumder S K, Ghosh P. Microbubble-aided water and wastewater purification: a review [J]. Reviews in Chemical Engineering, 2012, 28(4/5/6): 191–221.
- [3] Barak M, Katz Y. Microbubbles—pathophysiology and clinical implications [J]. Chest, 2005, 128(4): 2918–2932.
- [4] Koh P T L, Schwarz M P. CFD modelling of bubble-particle attachments in flotation cells [J]. Minerals Engineering, 2006, 19 (6/7/8): 619–626.
- [5] Han Y, Liu Y F, Jiang H, et al. Large scale preparation of microbubbles by multi-channel ceramic membranes: hydrodynamics and mass transfer characteristics [J]. Canadian Journal of Chemical Engineering, 2017, 95(11): 2176–2185.
- [6] Fukuta M, Takagi S, Matsumoto Y. Numerical study on the shear-induced lift force acting on a spherical bubble in aqueous surfactant solutions [J]. Physics of Fluids, 2008, 20(4): 040704.
- [7] Nock W J, Heaven S, Banks C J. Mass transfer and gas-liquid interface properties of single CO_2 bubbles rising in tap water [J]. Chemical Engineering Science, 2016, 140: 171–178.
- [8] Maceiras R, Santana R, Alves S S. Rise velocities and gas-liquid mass transfer of bubbles in organic solutions [J]. Chemical Engineering Science, 2007, 62(23): 6747–6753.
- [9] 张志炳, 田洪舟, 周政, 等. 多相反应体系的相界面强化研究 [C]//中国化工学会年会论文集. 北京: 中国学术期刊电子出版社, 2015: 1–7.
- [10] Zhang Z B, Tian H Z, Zhou Z, et al. Interfacial intensification in multiphase reaction system [C]//Proceedings of CIESC Annual Meeting. Beijing: China Academic Journal Electronic Publishing House, 2015: 1–7.
- [11] Parkinson L, Sedev R, Fornasiero D, et al. The terminal rise velocity of 10~100 μm diameter bubbles in water [J]. Journal of Colloid & Interface Science, 2008, 322(1): 168–172.
- [12] Tanaka S, Kastens S, Fujioka S, et al. Mass transfer from freely rising microbubbles in aqueous solutions of surfactant or salt [J]. Chemical Engineering Journal, 2020, 387: 121246.
- [13] Swart B, Zhao Y B, Khaku M, et al. *In situ* characterisation of size distribution and rise velocity of microbubbles by high-speed photography [J]. Chemical Engineering Science, 2020, 225: 115836.
- [14] Takahashi M. ζ potential of microbubbles in aqueous solutions: electrical properties of the gas-water interface [J]. Journal of Physical Chemistry B, 2005, 109: 21858–21864.
- [15] Takemura F, Yabe A. Rising speed and dissolution rate of a carbon dioxide bubble in slightly contaminated water [J]. Journal of Fluid Mechanics, 1999, 378: 319–334.
- [16] Saboni A, Alexandrova S, Karsheva M, et al. Mass transfer from a contaminated fluid sphere [J]. AIChE Journal, 2011, 57(7): 1684–1692.
- [17] Jia H W, Zhang P. Mass transfer of a rising spherical bubble in the contaminated solution with chemical reaction and volume change [J]. International Journal of Heat & Mass Transfer, 2017, 110: 43–57.
- [18] Mutharasu L C, Kalaga D V, Sathe M, et al. Experimental study and CFD simulation of the multiphase flow conditions encountered in a novel down-flow bubble column [J]. Chemical Engineering Science, 2018, 350: 507–522.
- [19] Motarjemi M, Jameson G J. Mass transfer from very small bubbles—the optimum bubble size for aeration [J]. Chemical Engineering Science, 1978, 33(11): 1415–1423.
- [20] Saboni A, Alexandrova S, Mory M. Flow around a contaminated fluid sphere [J]. International Journal of Multiphase Flow, 2010, 36: 503–512.
- [21] Levich V G. Physicochemical Hydrodynamics [M]. Englewood Cliffs: Prentice Hall, 1962: 700.
- [22] Sander R. Compilation of Henry's law constants (version 4.0) for water as solvent [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, 15: 4399–4981.
- [23] Clift R, Grace J R, Weber M E. Bubbles, drops, and particles [M]. New York: Academic Press, 1978: 30–66.
- [24] Higbie R. The rate of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure [J]. Transactions of the American Institution of Chemical Engineers, 1935, 31: 365–389.
- [25] Alves S S, Orvalho S P, Vasconcelos J M T. Effect of bubble contamination on rise velocity and mass transfer [J]. Chemical Engineering Science, 2005, 60(1): 1–9.
- [26] Frössling N. Über die verdunstung fallender tropfen (on the evaporation of falling drops) [J]. Gerlands Beiträge Geophys, 1938, 52: 170–215.
- [27] Griffith R M. Mass transfer from drops and bubbles [J]. Chemical Engineering Science, 1960, 12(3): 198–213.
- [28] Lochiel A C, Calderbank P H. Mass transfer in the continuous phase around axisymmetric bodies of revolution [J]. Chemical Engineering Science, 1964, 19(7): 471–484.
- [29] Chen A Q, Wang Z B, Yang J J. Influence of bubble size on the fluid dynamic behavior of a DAF tank: a 3D numerical

- investigation [J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2016, 495: 200–207.
- [29] Morsi S A, Alexander A J. An investigation of particle trajectories in two-phase flow systems [J]. Journal of Fluid Mechanics, 1972, 55(2): 193–208.
- [30] Bredwell M D, Worden R M. Mass-transfer properties of microbubbles. 1. experimental studies [J]. Biotechnology Progress, 1998, 14(1): 31–38.
- [31] Bando Y, Yoshimatsu T, Luo W J, et al. Flow characteristics in cocurrent upflow bubble column dispersed with micro-bubbles [J]. Journal of Chemical Engineering of Japan, 2008, 41(7): 562–567.