

Jacek STELMACH

e-mail: jacek.stelmach@p.lodz.pl

Katedra Aparatury Procesowej, Wydział Inżynierii Procesowej i Ochrony Środowiska, Politechnika Łódzka, Łódź

Porównanie doświadczalnych wartości współczynnika wnikania masy z obliczonymi na podstawie wybranych modeli procesu wymiany masy

Wstęp

Intensyfikacja procesu wnikania masy podczas mieszania z napowietrzaniem jest ważnym zagadnieniem procesowym. Współczynnik wnikania masy k_L zależy od hydrodynamiki układu, czyli od względnej prędkości pęcherzyków i cieczy. Dla małych pęcherzyków ($d_p < 1$ mm) lub pęcherzyków o powierzchni unieruchomionej w inny sposób otrzymano zależność [Alves i in., 2004, Linek i in., 2004, Alves i in., 2006]

$$k_L = c_W \sqrt{\frac{U_{wzg}}{d_p}} D_{AB}^{2/3} \nu^{-1/6} \quad (1)$$

gdzie:

 $c_W = 0,42 \div 0,95$ – stała o wartości wyznaczonej doświadczalnie, U_{wzg} – względna prędkość pęcherzyków gazu i cieczy, d_p – średnica pęcherzyka, D_{AB} – kinematyczny współczynnik dyfuzji, ν – kinematyczny współczynnik lepkości.

Zależność (1) określana jest jako model *Frösslinga*. Z kolei model penetracyjny (*Higbie'go*) prowadzi do zależności [Alves i in., 2004; Linek i in., 2004; Alves i in., 2006]

$$k_L = c_H \sqrt{\frac{U_{wzg}}{d_p}} \sqrt{D_{AB}} \quad (2)$$

w której stała $c_H = 1,13$.

Do obliczenia lokalnych wartości k_L z zależności (1) i (2) wymagana jest znajomość względnej prędkości pęcherzyków gazu i cieczy oraz rozmiarów pęcherzyków w punkcie pomiarowym. W przypadku równomiernego rozkładu wielkości pęcherzyków w mieszalniku jako rozmiar pęcherzyków można przyjąć średnicę *Sautera* d_{32} .

Celem niniejszej pracy jest porównanie uzyskanych doświadczalnie wartości k_L z wartościami obliczonymi z zależności (1) i (2) dla samozasysającego mieszadła tarczowego, aby określić możliwość określania lokalnych wartości k_L na podstawie doświadczalnie wyznaczonych wartości prędkości względnych i rozmiarów pęcherzyków.

Opis badań

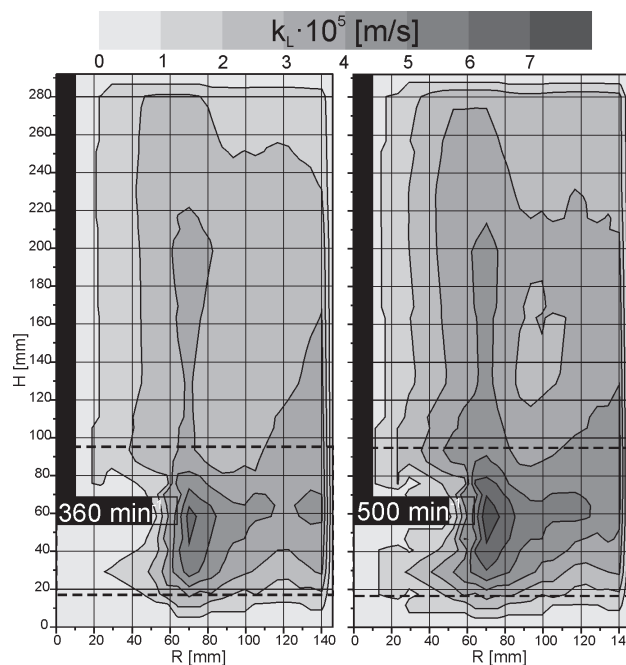
Lokalne wartości współczynników wnikania masy w mieszalniku z samozasysającym mieszadłem tarczowym o średnicy $D = 125$ mm określono metodą elektrochemiczną [Kurasinski, 2007] dla częstości obrotowych $N = 360, 400, 450$ i 500 min^{-1} . Elektroda pomiarowa była umieszczona na wysokościach $h = 30, 60, 90, 130, 200$ i 280 mm nad dnem i w odległościach $r = 50, 70, 90, 120$ i 140 mm od osi mieszalnika o średnicy $T = 292$ mm. Wysokość cieczy w mieszalniku H była równa średnicy zbiornika ($H = T$). Pomiarów dokonano w pionowym przekroju symetrycznie między przegrodami.

Do określenia – dla tych samych częstości obrotowych – prędkości i rozmiarów pęcherzyków użyto układu pomiarowego PIV firmy *LaVision*. Prędkości cieczy w układzie ciecz-gaz mierzono z użyciem cząstek traserów z barwnikiem fluorescencyjnym [Bröder i Sommerfeld, 2000]. Metoda ta jest szybsza i dokładniejsza od metody opartej na cyfrowej obróbce obrazu [Stelmach i Kuncewicz, 2011]. Do określenia rozmiarów pęcherzyków użyto obrazów uzyskanych z systemu PIV i oprogramowania własnego wykorzystującego transformację *Hougha* [Kuncewicz i Stelmach, 2009; Stelmach i Pietrzykowski, 2009]. Kamera o rozdzielczości 4 Mpx ustawiona była pod dnem mieszalnika, a pole pomiarowe obejmowało nieco ponad $\frac{1}{4}$ jego przekroju poprzecznego (z widocznymi dwoma sąsiednimi przegrodami) na wysokościach $h = 18, 30, 45, 52, 62, 72, 80$ i 95 mm nad dnem mieszalnika (przy

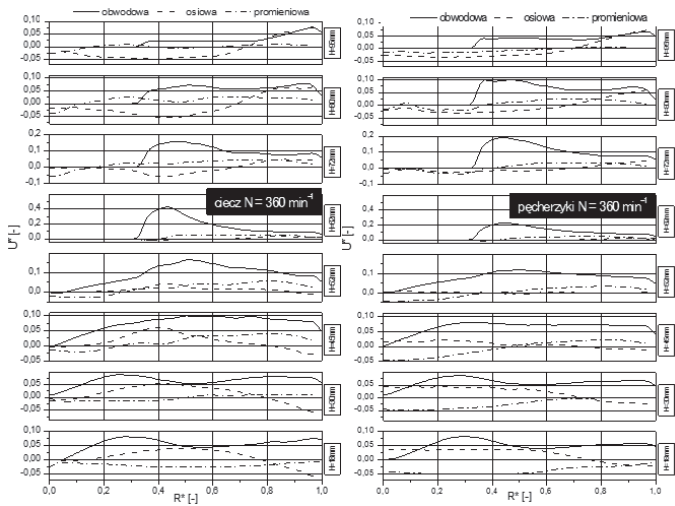
większych wysokościach rozpraszanie światła przez powierzchnię międzyfazową uniemożliwiało pomiary). Na każdej wysokości i dla każdej częstości obrotowej wykonywano po 100 pomiarów prędkości chwilowych cieczy i 100 pomiarów prędkości chwilowych pęcherzyków. Jest to wystarczająca liczebność do poprawnego określenia średnich prędkości [Heim i Stelmach, 2011]. Pomiary te posłużyły do wyznaczenia prędkości obwodowych i promieniowych. Cieczą badawczą był wodny roztwór NaCl o stężeniu molowym odpowiadającym stężeniu roztworu użytego w pomiarach k_L . Prędkości cieczy i gazu określano używając oprogramowania firmowego dla pól pomiarowych o rozmiarach 32×32 px, czyli ok. $2,3$ mm \times $2,3$ mm. Również dla takich pól uśredniano rozmiary pęcherzyków z 10 zdjęć przyjmując położenie środka obrazu pęcherzyka jako kryterium przynależności do danego obszaru.

Wyniki i ich omówienie

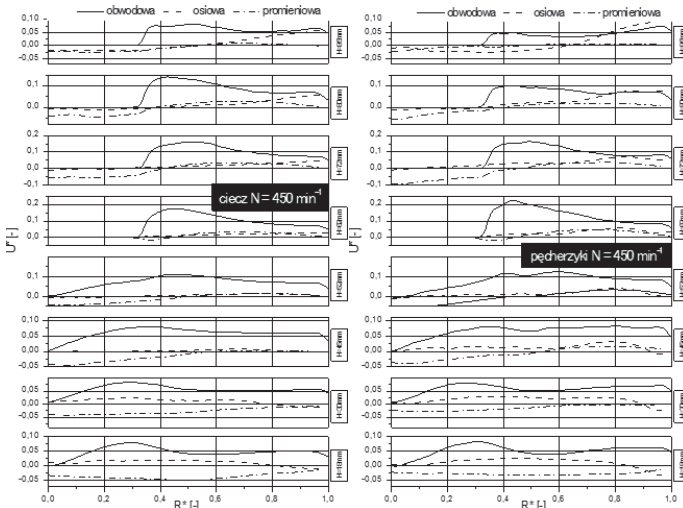
Na rys. 1 przedstawiono rozkłady wyznaczonych doświadczalnie wartości współczynnika wnikania masy dla najmniejszej i największej z użytych częstości obrotowych mieszadła (mapy uzyskano w programie *OriginPro 8.5* na podstawie wartości w punktach pomiarowych). Z analizy rys. 1 wynika, że największe wartości k_L występują tuż za łopatką mieszadła. Obserwuje się również zwiększanie wartości k_L wraz ze zwiększaniem częstości obrotowej mieszadła.

Rys. 1. Mapy rozkładów k_L między przegrodami

Na podstawie uśrednionych wartości prędkości w obszarach pomiarowych przez interpolację określono wartości prędkości na dwusiecznej kąta między przegrodami. Uzyskane profile bezwymiarowe (po podzieleniu przez prędkość obwodową końca łopatki) prędkości obwodowych, promieniowych i osiowych cieczy w układzie dwufazowym i pęcherzyków gazu dla częstości obrotowych $N = 360$ i 450 min^{-1} przedstawiono na rys. 2 i 3. Z analizy tych rysunków wynika, że kierunki przepływu cieczy i pęcherzyków są zgodne, ale występują różnice prędkości faz. Pod mieszadłem różnice te są małe, z wyjątkiem



Rys. 2. Profile bezwymiarowych prędkości cieczy i pęcherzyków dla $N = 360 \text{ min}^{-1}$



Rys. 3. Profile bezwymiarowych prędkości cieczy i pęcherzyków dla $N = 450 \text{ min}^{-1}$

składowej promieniowej. Obserwuje się również duże różnice prędkości obwodowych na wysokości mieszadła, gdzie chmura pęcherzyków wpływających z otworów mieszadła silnie oddziałuje na ruch cieczy.

Dla częstości obrotowej $N = 450 \text{ min}^{-1}$ rozkład prędkości pod mieszadłem nie ulega zmianie, z wyjątkiem prędkości obwodowych, które zmniejszają się ze wzrostem wysokości. Największe zmniejszenie tej składowej występuje na wysokości mieszadła.

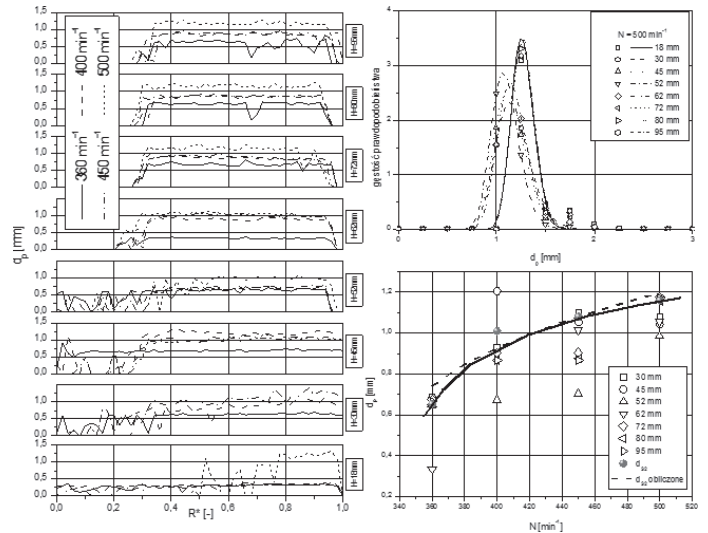
Znajomość prędkości obu faz pozwala na obliczenie prędkości względnej, tzn. prędkości z jaką poruszają się pęcherzyki gazu w mieszanym ośrodku

$$U_{wzg} = \sqrt{(U_{IC} - U_{IG})^2 + (U_{rC} - U_{rG})^2 + (U_{zC} - U_{zG})^2} \quad (3)$$

gdzie indeksy oznaczają: t – składową obwodową prędkości, r – promieniową, z – osiową, natomiast C i G odpowiednio fazę ciekłą i gazową.

Na rys. 4 przedstawiono uśrednione rozmiary pęcherzyków gazu w płaszczyźnie pomiarowej jak dla współczynnika wnikania masy. Ponieważ rozmiary pęcherzyków zależą przede wszystkim od częstości obrotowej mieszadła, a tylko nieznacznie od położenia w mieszalniku przedstawiono również zależność uśrednionych dla całego mieszalnika rozmiarów pęcherzyków od częstości obrotowej mieszadła. Na rys. 4 umieszczono również punkty przedstawiające średnice Sautera (powierzchniowo-objętościowe) d_{32} obliczone z danych doświadczalnych i z zależności [Stelmach, 2000]

$$\frac{d_{32}^2 \rho g}{\sigma} = 0,28 (Fr' - Fr'_{kr})^{0,50} \left(\frac{\eta_w}{\eta} \right)^{0,52} \left(\frac{T}{D} \right)^{0,34} \quad (4)$$

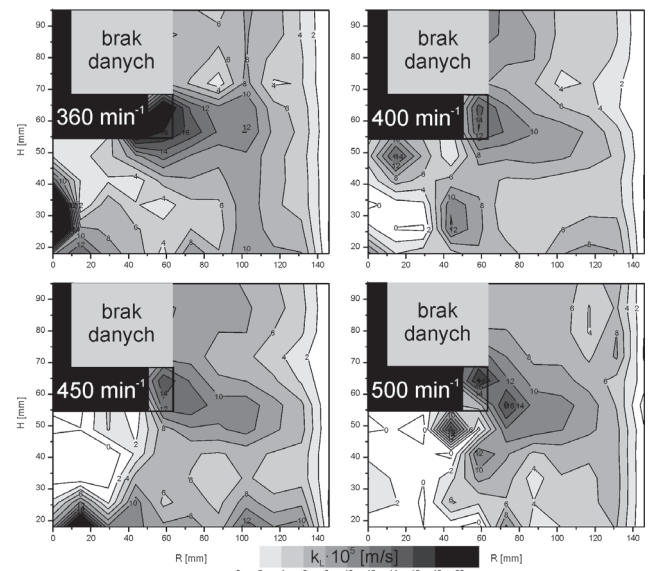


Rys. 4. Rozmiary pęcherzyków

w której: $Fr' = N^2 D^2 [g(H-h)]$ – zmodyfikowana liczba Froude'a, Fr'_{kr} – wartość liczby Froude'a, przy której rozpoczyna się dyspergowanie gazu ($Fr'_{kr} = 0,210$ [Stelmach, 2000]), η – dynamiczny współczynnik lepkości, ρ – gęstość cieczy, σ – napięcie powierzchniowe.

Na rys. 4 przedstawiono również rozkład gęstości prawdopodobieństwa rozmiarów pęcherzyków d_p oraz jego aproksymację rozkładem logarymiczno-normalnym [Stelmach, 2007] dla $N = 500 \text{ min}^{-1}$. Ze względu na niewielką zmienność rozmiarów pęcherzyków ich średnie średnice są zbliżone do średnic Sautera. Uzyskano również zgodność z wynikami wcześniejszych badań [Stelmach, 2000].

Na podstawie obliczonych prędkości względnych i rozmiarów pęcherzyków oraz określonej na podstawie danych literaturowych [Ju i Ho, 1985] wartości współczynnika dyfuzji (ze względu na niezmiennosc stężenia podczas pomiarów można było przyjąć stałą wartość $D_{AB} = 1,5 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$) obliczono z zależności (1) wartości współczynników wnikania masy dla wartości stałej $c_W = 0,42$. Na rys. 5 przedstawiono uzyskane rozkłady wartości współczynnika wnikania masy (dla obszaru nad mieszadłem nie było możliwe określenie rozmiarów pęcherzyków).



Rys. 5. Mapy rozkładów k_L między przegrodami na podstawie zależności (1)

Analiza porównawcza rys. 1 (obszar zaznaczony linią kreskową) i rys. 5 prowadzi do wniosku, że wartości obliczone z modelu Frösslinga są około dwukrotnie większe od zmierzonych. Największe rozbieżności występują w obszarze załatkowym. Zarówno dla danych doświadczalnych, jak i pochodzących z obliczeń modelowych, maksymalne wartości k_L występują na wysokości mieszadła w odległości około 5 mm

od końca łopatk. Jednak dla danych doświadczalnych zarejestrowano w tym punkcie wzrost wartości k_L przy zwiększaniu częstości obrotowej mieszadła, podczas gdy z obliczeń wynika, że taki wzrost nie następuje. Można sądzić, że obserwowana niezgodność rozkładów współczynnika wnikania masy wynika z powstawania za łopatkami chmur gazowych [Stelmach i Rzycki, 2003]. Są to obiekty trudne do badań doświadczalnych mających na celu określenie powierzchni międzyfazowej oraz prędkości względne faz. Natomiast dla obszaru poza mieszadłem linie jednakowych wartości k_L dla zwiększających się częstości obrotowych mieszadła przesuwają się znacząco w kierunku ścianki mieszalnika i w znacznie mniejszym stopniu w kierunku dna oraz powierzchni swobodnej cieczy, tak jak to wynika z danych doświadczalnych.

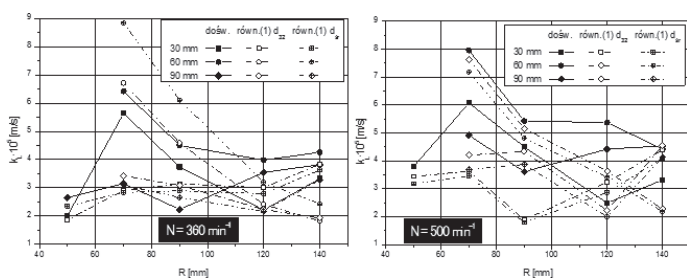
Analiza zależności (1) i (2) prowadzi do wniosku, że dla określonej cieczy rozkłady k_L obliczone z teorii Higbie'go będą się różnić od rozkładów uzyskanych na podstawie teorii Frösslinga jedynie wartościami liczbowymi. W przypadku modelu Higbie'go otrzymano wartości około dziesięciokrotnie większe od doświadczalnych.

Obliczone dla punktów pomiarowych (dla wszystkich częstości obrotowych mieszadła) średnie błędy względne zestawiono w tab. 1. Jak wynika z analizy danych zawartych w tej tabeli lepsze rezultaty daje model oparty o teorię warstwy granicznej. Ze względu na duże wartości błędów podjęto próbę określenia wartości współczynników w równaniach modelowych, tak aby zminimalizować wartość średniego błędu względnego. Określone iteracyjnie wartości współczynników liczbowych wynoszą: $c_W = 0,239$ dla średnicy Sautera i $c_W = 0,213$ dla rozkładu średnic, $c_H = 0,0810$ dla średnicy Sautera i $c_H = 0,0810$ dla rozkładu średnic. Wartości średnich błędów względnych (odniesionych do wartości doświadczalnych) zestawiono również w tab. 1. Dla skorygowanych wartości współczynników liczbowych błędy dla modeli Frösslinga i Higbie'go są na poziomie 30%,

Tab. 1. Średnie błędy względne k_L obliczonych z zależności (1) i (2)

Model	Średni błąd względny		Średni błąd względny po korekcie współczynników liczbowych	
	d_{32}	rozkład d_{sr}	d_{32}	rozkład d_{sr}
Whitmana	65,8%	80,1%	29,0%	30,3%
Higbiego	1174,6%	1298,1%	29,1%	30,3%

Porównanie wartości doświadczalnych i modelowych dla skorygowanych wartości stałych przedstawiono na rys. 6.



Rys. 6. Porównanie doświadczalnych i obliczonych dla skorygowanych stałych wartości współczynnika wnikania masy dla wybranych wysokości

Zmieniając wartość stałej c_H można uzyskać dobrą zgodność zależności (2) z danymi doświadczalnymi. Jednak bardzo duży błąd początkowy oraz informacje literaturowe [Zlokarnik, 2001], że model Higbie'go znajduje zastosowanie w przypadku pęcherzyków o średnicach większych od 2 mm, powodują, że w omawianym przypadku właściwsze jest stosowanie równania (1). Jednak i w tym przypadku konieczna była korekta wartości stałej c_W . Dalsza analiza problemu wykazuje, że może to wynikać z zaniżonych doświadczalnych wartości k_L . Co prawda odnośnie procesu wnikania masy podczas mieszania z napowietrzaniem większość danych literaturowych dotyczy objętościowego współczynnika wnikania masy, ale Zlokarnik [2001] za Graßhoffem podaje następującą zależność dla mieszań samozasysających:

$$k_L \text{ [mm/s]} = 0,26d_p \text{ [mm]} \quad (5)$$

Zatem dla pęcherzyków o średnicach z zakresu $0,65 \pm 1,18$ mm współczynnik wnikania masy powinien przyjmować wartości od $16,9 \cdot 10^{-5}$ m/s

do $30,6 \cdot 10^{-5}$ m/s, czyli kilka razy większe od otrzymanych. Podobne wartości uzyskano w badaniach wnikania masy do pojedynczych pęcherzyków [Deindoerfer i Humphrey, 1961]. Nie można jednak oszacować błędu metody elektrochemicznej, co uniemożliwia jednoznaczne wskazanie lepszego modelu wnikania masy dla omawianego przypadku.

Wnioski

W niniejszej pracy do wyznaczenia lokalnych wartości współczynnika wnikania masy zastosowano metodę elektrochemiczną. Ze względu na fakt, że nie można określić dokładności tej metody, porównania dokonane w pracy mają głównie charakter jakościowy, a nie ilościowy.

System pomiarowy PIV umożliwia określenie prędkości względnej pęcherzyków gazu w cieczy przez bezpośrednie pomiary prędkości faz w układzie ciecz-gaz przy zatrzymaniu fazy gazowej nie większym niż kilka procent. Materiał zdjęciowy otrzymany metodą PIV może służyć do określenia rozmiarów pęcherzyków. Dzięki temu można określać rozkłady wartości współczynnika wnikania w mieszalniku na podstawie zależności wyprowadzonych z różnych teorii transportu masy między fazą gazową i ciekłą.

W rozpatrywanym w niniejszej pracy przypadku małych pęcherzyków wyniki uzyskane na podstawie teorii Frösslinga lepiej zgadzają się z danymi doświadczalnymi aniżeli wyniki uzyskane z użyciem teorii penetracji (Higbie'go). Jest to zgodne z nielicznymi danymi literaturowymi [Zlokarnik, 2001; Deindoerfer i Humphrey, 1961]. Jednak przez doświadczalne wyznaczenie wartości współczynników w zależnościach modelowych można uzyskać jednakowe błędy względne dla obu modeli. W przypadku modelu Higbie'go zmiana wartości współczynnika jest tak duża, że nie może to być spowodowane błędami pomiarowymi, także po uwzględnieniu pierwszego z niniejszych wniosków.

LITERATURA

Alves S.S., Maia C.I., Vasconcelos J.M.T., 2004. Gas-liquid mass transfer coefficient in stirred tanks interpreted through bubble contamination kinetics. *Chem. Eng. & Proc.* **43**, 823-830. DOI: 10.1016/S0255-2701(03)00100-4

Alves S.S., Vasconcelos J.M.T., Orvalho S.P., 2006. Mass transfer to clean bubbles at low turbulent energy dissipation. *Chem. Eng. Sci.* **61**, 1334-1337. DOI: 10.1016/j.ces.2005.08.001

Bröder D., Sommerfeld M., 2000. *A PIV/PTV system for analysing turbulent bubbly flows*. 10th International Symposium on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics. Lisboa (01.2013): http://ltees.dem.ist.utl.pt/lxaser/lxaser2000/papers/pdf/10_1.pdf

Deindoerfer F.H., Humphrey A.E., 1961. Mass transfer from individual gas bubbles. *Ind. Eng. Chem.* **53**, nr 9, 755-759

Heim A., Stelmach J., 2011. Porównanie prędkości na wysokości samozasysającego mieszadła tarczowego. *Przem. Chem.* **90**, nr 9, 1642-1646

Ju L.-K., Ho Ch.S., 1985. Measuring oxygen diffusion coefficients with polarographic oxygen electrodes: I. Electrolyte solutions. *Biotech. & Bioeng.* **26**, 1495-1499

Kunczewicz Cz., Stelmach J., 2009. Wykrywanie krawędzi obrazów pęcherzyków. *Inż. Ap. Chem.* **48**, nr 6, 113-114

Kurasiński T., 2007. *Wpływ parametrów pola turbulentnego na szybkość transportu masy dla mieszań samozasysających*. Praca doktorska, Politechnika Łódzka, Łódź

Linek V., Kordač M., Fugasová M., Moucha T., 2004. Gas-liquid mass transfer coefficient in stirred tanks interpreted through models of idealized eddy structure of turbulence in the bubble vicinity. *Chem. Eng. & Proc.* **43**, 1511-1517. DOI:10.016/j.cep.2004.02.009

Stelmach J., 2000. *Badanie pracy samozasysającego mieszadła tarczowego*. Praca doktorska, Politechnika Łódzka, Łódź

Stelmach J., 2007. Rozkłady wielkości pęcherzyków gazu w początkowej fazie samozasysania. *Inż. Ap. Chem.* **46**, nr 4-5, 117-119

Stelmach J., Kunczewicz Cz., 2011. Prędkości cieczy i pęcherzyków gazu na wysokości samozasysającego mieszadła tarczowego. *Przem. Chem.* **90**, nr 9, 1680-1685

Stelmach J., Pietrzykowski M., 2009. Użycie transformacji Hougha do określania rozmiarów pęcherzyków gazu w wodzie. *Inż. Ap. Chem.* **48**, nr 6, 180-181

Stelmach J., Rzycki E., 2003. Wpływ pęcherzyków gazu z mieszadła samozasysającego. *Inż. Ap. Chem.* **42**, nr 5s, 192-194

Zlokarnik M., 2001. *Stirring. Theory and Practice*. Wiley-VCH, Weinheim

Praca została wykonana w ramach działalności statutowej W 10/1/2013/Dz.St.