

Daniel JANECKI¹, Grażyna BARTELMUS²

e-mail: zecjan@uni.opole.pl

¹ Instytut Nauk Technicznych, Wydział Przyrodniczo-Techniczny, Uniwersytet Opolski, Opole² Instytut Inżynierii Chemicznej, Polska Akademia Nauk, Gliwice

Analiza sposobów modelowania reaktora trójfazowego ze stałym złożem (TBR) z użyciem metod CFD

Wstęp

Pomimo osiągniętego w ostatnich latach postępu w zastosowaniu obliczeniowej mechaniki płynów (CFD) w modelowaniu pracy reaktora trójfazowego ze stałym złożem TBR (*Trickle-Bed Reactor*), w dalszym ciągu przewidywanie zgodnych z eksperymentem parametrów hydrodynamicznych i kinetycznych stwarza duże trudności. M.in. związane jest to z brakiem wiarygodnych relacji opisujących interakcje pomiędzy fazami dla układów wielofazowych, jak również ograniczoną liczbą danych eksperymentalnych, stosowanych przy weryfikacji wyestymowanych przestrzennych i czasowych zmian rozważanych parametrów. W literaturze spotkać można wiele prac związanych z zastosowaniem modeli jednowymiarowych do obliczeń hydrodynamiki współprądowego przepływu gazu i cieczy przez złoża stacjonarne. Są to zarówno fenomenologiczne modele mikroskopowe (obszarem modelowania są pojedyncze kanały w wypełnieniu) [Holub i in., 1992; Al-Dahhan i in., 1998; Iliuta i Larachi, 1999; Iliuta i in., 2000], jak i modele makroskopowe [Saez i Carbonell, 1985; Grosser i in., 1988; Attou i in., 1999], oparte na uśrednionych objętościowo równaniach bilansu masy i pędu obu faz płynących współprądowo przez wypełnienie. Jednakże ten sposób modelowania nie uwzględnia w obliczeniach właściwości statystycznych upakowanego złoża oraz zależności opisujących zmianę porowatości złoża wzdłuż promienia. Zastosowanie metod CFD w modelowaniu TBR umożliwia uwzględnienie tych zmian.

Zastosowanie CFD do modelowania współprądowego przepływu gazu i cieczy przez złożo stacjonarne w TBR

Istnieją różne sposoby klasyfikacji modeli przepływów wielofazowych, wśród których można wyróżnić podział na modele pseudohomogeniczne i heterogeniczne. Do modeli pseudohomogenicznych zalicza się model ciała porowatego i model objętości płynu VOF (*Volume of Fluid*), zaś do modeli heterogenicznych zalicza się model eulerowski (*Eulerian model*) oraz model eulerowsko-lagrange'owski (*Eulerian-Lagrangian model*) [Jaworski, 2005]. W jedynej pracy przeglądowej [Wang i in., 2011], dotyczącej modelowania CFD reaktorów trójfazowych ze złożem stacjonarnym (TBR), opisano zastosowania dwóch najczęściej stosowanych modeli przepływów wielofazowych: modelu VOF oraz modelu eulerowskiego.

W modelowaniu CFD reaktorów TBR, pod względem opisu geometrii, złoża można wyróżnić dwa różne podejścia. W pierwszym analizuje się przepływ płynu na poziomie pojedynczych elementów wypełnienia lub małych segmentów, składających się z takich elementów wypełnienia DNS (*Direct Numerical Simulation*). W drugim stosuje się opis uśrednionego objętościowo przepływu płynów przez złożo, którego porowatość opisana jest wzdłuż osi według statystycznego rozkładu, a po promieniu za pomocą korelacji dostępnych w literaturze. Pierwsze podejście stosują m. in.: Dixon i Nijemeisland [2001], Magnico [2003] oraz Guardo i in. [2005], którzy przeprowadzali symulację trójwymiarową dla kolumn o małych średnicach D , wypełnionych elementami kulistymi o średnicy d_p kilku centymetrów ($D/d_p < 10$). To podejście odzwierciedla rzeczywistą geometryczną złożoność upakowania złoża, ale nie daje, niestety, odpowiedzi na pytanie, jak przejść do większej skali. Nawet obecnie, gdy techniki obliczeniowe są mocno rozwinięte, nie jest możliwe przeprowadzenie obliczeń dla dużo większej liczby elementów złoża, dla większej wartości modułu D/d_p oraz dla więcej niż jednej płynącej fazy, co wynika z zależności mających swe fundamenty w tym podejściu.

W drugim podejściu punktem wyjścia do symulacji współprądowego przepływu gazu i cieczy przez złożo stacjonarne jest model eulerowski, w którym uśrednione równania ciągłości i bilansu pędu wyrażone są za pomocą udziałów objętościowych zajmowanych przez każdą fazę i ich lokalnych prędkości. Fundamentalne są w tym względzie prace Jianga i in. [2002a, 2002b], Gunjala i in. [2003], Atty i in. [2007], Hamidipoura i in. [2013]. To podejście do modelowania TBR wymaga dużo mniejszej mocy obliczeniowej i pozwala zastosować je do całej objętości reaktora. Umożliwia również sprawdzenie wpływu na uzyskiwane wyniki obliczeń mechanizmów oddziaływania pomiędzy fazami oraz opisu struktury ciała stałego w reaktorze.

Modelowanie metodą CFD reaktora trójfazowego ze złożem stacjonarnym TBR

Uśrednione objętościowo równania bilansu masy i pędu, wyrażone za pomocą udziałów objętościowych zajmowanych przez każdą z faz i ich lokalnych prędkości (model eulerowski) mają postać

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_k \rho_k) + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \vec{u}_k) = 0 \quad k = L, g \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\alpha_k \rho_k \vec{u}_k) + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \vec{u}_k \vec{u}_k) = \\ = -\alpha_k \nabla p + \nabla \cdot \vec{\tau}_k + \alpha_k \rho_k \vec{g} + \vec{K}_k \end{aligned} \quad (2)$$

gdzie: α – udział objętościowy; u – rzeczywista prędkość, [m/s]; ρ – gęstość, [kg/m³]; p – ciśnienie, [Pa]; τ – tensor naprężeń, [N/m²]; g – przyspieszenie ziemskie, [m/s²]; K – siły wzajemnego oddziaływania między fazami, [kg/m²s²].

$$\vec{K}_k = 1 \sum_{j=1}^n F_{jk} (\vec{u}_j - \vec{u}_k) \quad (3)$$

gdzie: F_{jk} – współczynnik wymiany pędu pomiędzy fazami j i k , [kg/m³s]. Model ten traktuje wszystkie fazy jako płyny ciągłe, które mają różne prędkości, udziały objętościowe oraz właściwości fizykochemiczne.

Do odtworzenia obszaru zajmowanego przez złożo oraz przepływających przez nie płynów wygenerowano siatkę strukturalną. Siatkę utworzono za pomocą preprocesora GAMBIT. Równaniom modelowym przypisano następujące warunki brzegowe: symetrię względem osi reaktora, przy ścianie – warunek braku poślizgu płynu, na wlocie – płaski profil prędkości, a na wylocie zerowy gradient ciśnienia.

Symulację przeprowadzono przy użyciu pakietu obliczeniowego *Fluent*. Przez zastosowanie funkcji użytkownika (UDF), dostępnych w programie *Fluent*, przystosowano wielofazowy model *Eulera* do opisu współprądowego przepływu gazu i cieczy przez złożo stacjonarne TBR.

W celu otrzymania wiarygodnych rezultatów obliczeń numerycznych, przeprowadzono szereg symulacji, umożliwiających dobór odpowiedniej siatki oraz kroku czasowego dla tych obliczeń. Dla reaktora pracującego przy stałym zasilaniu, w wyniku obliczeń, uzyskano spadek ciśnienia gazu w reaktorze, rozkłady prędkości cieczy i gazu jako funkcje położenia w złożu, rozkłady udziałów objętościowych obu faz w złożu oraz ich wartości średnie w reaktorze.

Analizując równania modelu wyselekcjonowano parametry, które obliczane były w oparciu o dane dostępne w literaturze, a następnie przeprowadzono analizę czułości modelu na zmianę wartości wyselekcjonowanych parametrów. Przeanalizowano wpływ zmian zależności opisujących

siły wzajemnych oddziaływań pomiędzy fazami oraz promieniowej zmiany porowatości wypełnienia na wyniki obliczeń numerycznych.

Siły wzajemnego oddziaływania między przepływającymi fazami

Zastosowanie modelu wielofazowego gaz-ciecz-ciało stałe wymaga znajomości zależności determinujących interakcje pomiędzy fazami. Jest to bardzo istotny element niepewności w modelowaniu procesów. Siły te są znaczne i dominują w równaniach bilansu pędu. Wyrażane są one najczęściej za pomocą równań podobnych do równania Erguna.

Przeanalizowano dostępne dane literaturowe dotyczące procesu wymiany pędu między fazami i stwierdzono, że wyrażenia opisujące międzyfazowe współczynniki wymiany pędu stosowane są dość dowolnie [Janecki i in., 2014; 2016]. Nie tylko stosowane są różne wartości stałych Erguna, występujących w tych wyrażeniach, lecz również modyfikowane jest samo równanie, za pomocą którego obliczane są te współczynniki. Stąd można odnieść wrażenie, że jest pełna dowolność w stosowaniu tych równań, szczególnie, że autorzy prac najczęściej nie wyjaśniają przyczyn ich modyfikacji.

W pracy Janeckiego i in. [2016] ujednotwiono formę równań, opisujących siły wzajemnego oddziaływania pomiędzy fazami, a następnie, stosując je jako równania zamknięcia, sprawdzono ich wpływ na uzyskiwane wartości spadków ciśnień gazu w złożu oraz zawieszonych cieczowych. Wyniki obliczeń porównano z wartościami eksperymentalnymi, zaczerpniętymi z własnej bazy danych. Stwierdzono, że zastosowanie w modelu CFD równań modelu Attou i in. [1999], bez żadnych modyfikacji, pozwala uzyskać najmniejsze różnice pomiędzy obliczonymi i uzyskanymi z doświadczenia wartościami obliczanych parametrów hydrodynamicznych.

Opis struktury złoża

Drugim czynnikiem, który ma zasadniczy wpływ na wyniki obliczeń jest zmiana porowatości złoża po promieniu reaktora. Decyduje ona o tym, jaka jest rzeczywista wartość udziału objętościowego fazy stałej w warstwie przyściennej, a tym samym o wartości tego parametru dla fazy ciekłej i gazowej. W literaturze można znaleźć różne korelacje opisujące zmianę porowatości wypełnienia wzdłuż promienia aparatu.

Przeprowadzono analizę wpływu zmian zależności opisujących profil porowatości złoża wzdłuż promienia reaktora na uzyskiwane z obliczeń wartości parametrów hydrodynamicznych [Janecki i in., 2014]. Najmniejsze błędy oszacowania spadku ciśnienia gazu w złożu uzyskano wprowadzając do modelu CFD korelację Martina [1978] oraz Hunta i Tiena [1990], dla stałej $N = 6$, przy równoczesnym zastosowaniu w siłach wzajemnego oddziaływania między fazami stałych Erguna wyznaczonych z sieci neuronowych [Iliuta i in., 1998]; dla złoża zastosowanego w badaniach eksperymentalnych były to: $E_1 = 235,53$ i $E_2 = 1,59$. W przypadku stosowania stałej porowatości w całym przekroju poprzecznym reaktora, należy stosować wartości stałych Erguna wyznaczone eksperymentalnie. Dla testowanego złoża stałe te wynosiły: $E_1 = 150$ i $E_2 = 1,8$.

Przeprowadzona analiza pozwoliła na sformułowanie wniosku, że korelacje na promieniową zmianę porowatości złoża mają bardzo duży wpływ na dystrybucję przepływu płynu w przekroju poprzecznym złoża. W związku z tym należy podkreślić, że użycie odpowiedniej korelacji, opisującej promieniową zmianę porowatości złoża, ma zasadnicze znaczenie dla uzyskania poprawnych wartości spadków ciśnienia gazu w złożu oraz wartości średniej zawieszności cieczowego, zwłaszcza dla reaktorów o małej wartości stosunku średnicy reaktora do średnicy wypełnienia (reaktory laboratoryjne). Zwiększenie wartości tego stosunku zmniejsza udział obszaru przyściennego w stosunku do całego przekroju reaktora. Z tego powodu, dla $D/d_p > 18$ korelacje na zmianę promieniowej porowatości będą mieć mniejszy wpływ na wyniki obliczeń parametrów hydrodynamicznych z modelu CFD. Nie będzie wtedy miało znaczenia czy w obliczeniach zastosuje się stałą porowatość, czy też uwzględni zmianę porowatości wzdłuż promienia.

Wnioski

Analiza sposobów modelowania TBR za pomocą modelu wielofazowego Eulera wykazała, że nie można bezkrytycznie podchodzić do do-

tychczas stosowanych w tym modelu parametrów, które mają największy wpływ na uzyskiwane wyniki obliczeń, czyli sił wzajemnych oddziaływań oraz sposobu opisu struktury złoża porowatego.

W wyniku analizy wpływu tych parametrów na uzyskiwane rezultaty, stwierdzono, że w modelu CFD powinno się stosować siły wzajemnego oddziaływania wyprowadzone bez żadnych modyfikacji z modelu Attou i in. [1999], ze stałymi Erguna $E_1 = 235,53$ i $E_2 = 1,59$, zaś zmianę porowatości złoża względem promienia reaktora z korelacji Martina [1978] lub Hunta i Tiena [1990], dla stałej $N = 6$.

LITERATURA

- Al-Dahhan M.H., Khadilkar M.R., Wu Y., Dudukovic M.P., (1998). Prediction of pressure drop and liquid holdup in high-pressure trickle-bed reactors. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 37, 793-798. DOI: 10.1021/ie970460+
- Atta A., Shantanu R., Nigam K.D.P., (2007). Prediction of pressure drop and liquid holdup in trickle bed reactor using relative permeability concept in CFD. *Chem. Eng. Sci.*, 62, 5870-5879. DOI: 10.1016/j.ces.2007.06.008
- Attou A., Boyer C., Ferschneider G., (1999). Modeling of the hydrodynamics of the cocurrent gas-liquid trickle flow through a trickle-bed reactor. *Chem. Eng. Sci.*, 54, 785-802. DOI: 10.1016/S0009-2509(98)00285-1
- Dixon A.G., Nijemeisland M., (2001). CFD as a design tool for fixed-bed reactors. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 40, 5246-5254. DOI: 10.1021/ie001035a
- Holub R.A., Dudukovic P.A., Ramachandran A., (1992). A phenomenological model for pressure drop, liquid holdup and flow regime transition in gas-liquid trickle flow. *Chem. Eng. Sci.*, 47, 2343-2348. DOI: 10.1016/0009-2509(92)87058-X
- Grosser K., Carbonell R.G., Sundaresan S., (1988). Onset of pulsing in two-phase cocurrent downflow through a packed bed. *AIChE J.*, 34, 1850-1860. DOI: 10.1002/aic.690341111
- Guardo A., Coussrat M., Larrayoz M.A., Recasens F., Egusqiza E., (2005). Influence of the turbulence model in CFD modelling of wall-to-fluid heat transfer in packed beds. *Chem. Eng. Sci.*, 60, 1733-1742. DOI: 10.1016/j.ces.2004.10.034
- Gunjal P.R., Ranade V.V., Chaudhari R.V., (2003). Liquid distribution and RTD in trickle bed reactors: Experiments and CFD simulations. *Can. J. Chem. Eng.*, 81, 821-830. DOI: 10.1002/cjce.5450810365
- Hamidipour M., Chen J., Larachi F., (2013). CFD study and experimental validation of trickle bed hydrodynamics under gas, liquid and gas/liquid alternating cyclic operations. *Chem. Eng. Sci.*, 89, 158-170. DOI: 10.1016/j.ces.2012.11.041
- Hunt M.L., Tien C.L., (1990). Non-Darcian flow, heat and mass transfer in catalytic packed-bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 45, 55-63. DOI: 10.1016/0009-2509(90)87080-C
- Iliuta I., Larachi F., Grandjean B.P.A., (1998). Pressure drop and liquid holdup in trickle flow reactors: improved Ergun constants and slip correlations for the slit model. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 37, 4542-4550. DOI: 10.1021/ie980394r
- Iliuta I., Larachi F., (1999). The generalized slit model: pressure gradient, liquid holdup & wetting efficiency in gas-liquid trickle flow. *Chem. Eng. Sci.*, 54, 5039-5045. DOI: 10.1016/S0009-2509(99)00228-6
- Iliuta I., Larachi F., Al-Dahhan M.H., (2000). Double slit model for partially wetted trickle flow hydrodynamics. *AIChE J.*, 46, 597-609. DOI: 10.1002/aic.690460318
- Janecki D., Burghardt A., Bartelmus G., (2014). Influence of the porosity profile and sets of Ergun constants on the main hydrodynamic parameters in the trickle-bed reactors. *Chem. Eng. J.*, 237, 176-188. DOI: 10.1016/j.cej.2013.09.102
- Janecki D., Burghardt A., Bartelmus G., (2016). Parametric sensitivity of CFD model concerning the hydrodynamics of trickle-bed reactor (TBR). *Chem. Proc. Eng.*, 37, 97-107. DOI: 10.1515/cpe-2016-0010
- Jaworski Z., (2005). Numeryczna mechanika płynów w inżynierii chemicznej i procesowej. Akademicka Oficyna Wydawnicza EXIT, Warszawa
- Jiang Y., Khadilkar M.R., Al-dahhan M.H., Dudukovic M.P., (2002a). CFD of multiphase flow in packed-bed reactors: I. K-fluid modelling issues. *AIChE J.*, 48, 701-715. DOI: 10.1002/aic.690480406
- Jiang Y., Khadilkar M.R., Al-dahhan M.H., Dudukovic M.P., (2002b). CFD of multiphase flow in packed-bed reactors: II. Results and applications. *AIChE J.*, 48, 716-730. DOI: 10.1002/aic.690480407
- Magnico P., (2003). Hydrodynamic and transport properties of packed beds in small tube-to-sphere diameter ratio: pore scale simulation using an Eulerian and a Lagrangian approach. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 5005-5024. DOI: 10.1016/S0009-2509(03)00282-3
- Martin H., (1978). Low Peclet number particle to fluid heat and mass transfer in packed beds. *Chem. Eng. Sci.*, 33, 913-919. DOI: 10.1016/0009-2509(78)85181-1
- Wang Y., Chen J., Larachi F., (2011). Modelling and simulation of trickle-bed reactors using computational fluid dynamics: A state-of-the-art review. *Can. J. Chem. Eng.*, 91, 136-180. DOI: 10.1002/cjce.20702