

超重力反应器内 MEA-乙醇溶液用于 沼气脱碳的优化传质模型

尹龙天¹, 李秀金¹, 张良^{1*}, 常燕青²

(1. 北京化工大学 化学工程学院, 北京 100029; 2. 维尔利环保科技集团股份有限公司, 江苏 常州 213125)

摘要: 对超重力反应器内 MEA-乙醇溶液吸收沼气中高浓度 CO₂ 的传质过程进行模型化研究。该传质过程属于伴随化学反应的高浓度气体吸收过程, 在传质过程中气液流量、气液相温度会有较大的变化。在实验部分进行了 MEA-乙醇溶液的 CO₂ 吸收能力测试实验, 为模型的建立提供了基础数据; 进行了超重力反应器内 4.92 mol·L⁻¹ 的 MEA-乙醇溶液用于沼气(成分为 50% CH₄、50% CO₂) 脱碳的传质实验, 为检测模型可靠性提供依据。在模型部分使用双膜理论建立了超重力反应器内的传质过程和传热过程的数学模型, 通过传质机理分析确定了数学模型中的模型参数, 引入双曲正切函数优化了有效传质表面积的关系式。利用优化的数学模型预测传质结果, 使用传质实验的实验值对预测值进行验证, 发现实验值与预测值之间的误差在 ±15% 以内。

关键词: 超重力反应器; MEA-乙醇溶液; 沼气脱碳; 数学模型

中图分类号: S216.4; X703 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-1166(2022)02-0039-08

DOI: 10.20022/j.cnki.1000-1166.2022020039

Optimized Mass Transfer Model of CO₂ Removal From Biogas by MEA-ethanol Solution in High Gravity Reactor / YIN Long-tian¹, LI Xiu-jin¹, ZHANG Liang^{1*}, CHANG Yan-qing² / (1. College of Chemical Engineering, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China; 2. WELLE Environmental Group Co Ltd, Changzhou 213125, China)

Abstract: The mass transfer model of MEA-ethanol removing CO₂ from biogas in a high gravity reactor (RPB) was studied. This process was a high concentration gas absorption process with chemical reaction. During this process, the gas-liquid flow rate and the gas-liquid temperature would vary greatly. The CO₂ absorption capacity of MEA-ethanol was tested to provide data for model establishment. The 4.92 mol·L⁻¹ MEA-ethanol was used to remove CO₂ from biogas (50% CH₄, 50% CO₂) in the RPB, providing a basis for testing the model. The mathematical model of mass transfer and heat transfer in the RPB were established by using the double-film theory. The model parameters were determined by analyzing the mass transfer mechanism, and the correlation formula of effective mass transfer surface area was optimized by using the hyperbolic tangent function. The optimized mathematical model was used to predict the mass transfer results, and the predicted values were verified by the experimental values. It was found that the errors between the experimental values and the predicted values were within ±15%.

Key words: RPB; MEA-ethanol; CO₂ removal from biogas; mathematical model

MEA 溶液化学吸收法脱除 CO₂ 具有脱碳程度高、操作压力低等优点, 因而获得了广泛的研究与应用^[1-3]。近年来超重力反应器用于 MEA 化学吸收法脱碳进一步降低了溶液循环量和投资成本, 有着极大的研究与应用前景^[4-6]。而以乙醇代替水为 MEA 溶剂的 MEA-乙醇溶液在吸收性能方面与 MEA-水溶液相当, 解吸性能方面远远优于 MEA-水

溶液, 也具有很大的研究与应用潜力^[7-8]。

超重力反应器是一种过程强化设备, 通过转子的高速旋转可以使超重力反应器产生比重力强数百倍的离心力场, 反应器中的流体在离心力场中可以被切割为液滴、液丝等微米级的微小颗粒, 极大的增加了传质面积、提高了传质效率。超重力反应器一般为逆流式, 其结构包括壳体、转子、填料、电机

收稿日期: 2021-07-07 修回日期: 2021-08-12

项目来源: “十三五”国家重点研发计划项目(2018YFC1900903)

作者简介: 尹龙天(1990-), 男, 汉族, 河北衡水人, 博士, 研究方向为固体废物资源化、沼气提纯, E-mail: ylt0505@sina.com

通信作者: 张良, E-mail: liangspace@126.com

等^[9-10]。

但目前超重力反应器与 MEA-乙醇溶液化学吸收法结合用于脱碳的研究主要集中在低含量 CO₂ 脱除,而且多为实验研究,理论及模型研究还相对较少,关于沼气脱碳这种典型的高含量 CO₂ 脱除的模型研究更是几乎没有。MEA 用于沼气脱碳是伴随化学反应的高含量气体吸收过程,传质过程中气相流量会产生较大变化,而且 MEA 与 CO₂ 的反应热较高,传质过程中的气液相温度也会产生较大变化,使传质过程变得极为复杂。传质模型的建立能够为工业设计提供指导,具有极为重要的意义,这方面的研究亟待加强。

针对上述问题,本文建立了超重力反应器内的 MEA-乙醇溶液脱除沼气中高浓度 CO₂ 的传质数学模型,利用改进的气液平衡常数来描述化学反应过程;通过双膜理论建立了传质数学模型和描述反应器内气液温度变化的传热数学模型;通过模型预测传质结果,并与实验值进行对比分析,进一步对模型进行优化。

1 实验部分

本研究的实验分为 MEA-乙醇溶液对 CO₂ 吸收能力测定实验和超重力反应器内 MEA-乙醇溶液用于沼气脱碳的传质实验。

1.1 实验材料

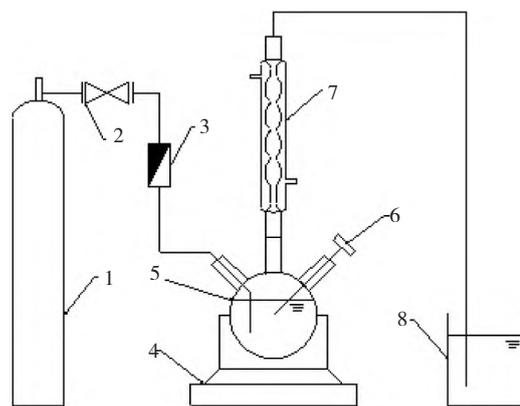
沼气采用 CH₄ 高压钢瓶气与 CO₂ 高压钢瓶气配制而成,纯度为 99.99%。MEA-乙醇溶液采用分析纯 MEA 与分析纯无水乙醇配制。

1.2 实验系统

MEA-乙醇溶液对 CO₂ 吸收能力测定实验的实验系统流程如图 1 所示,将装有一定量溶液的三口烧瓶置于天平上,向溶液中鼓入 CO₂,记录天平的示数变化,待示数稳定后计算溶液对 CO₂ 的吸收能力。

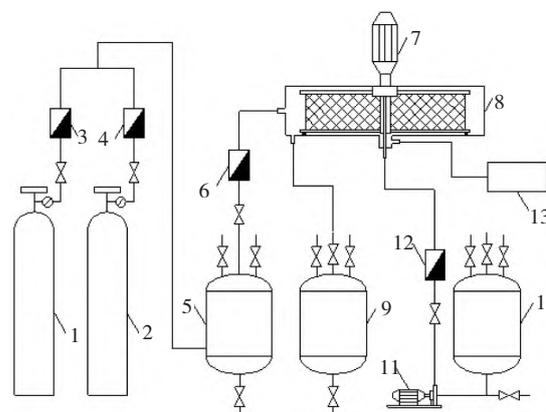
超重力反应器内 MEA-乙醇溶液沼气脱碳的实

验系统流程如图 2 所示,CO₂ 和 CH₄ 的钢瓶气通过调节阀进行流量调节,配制成一定 CO₂ 浓度的沼气,经过稳压罐流入反应器(超重力反应器填料层参数见表 1)。使用泵将 MEA-乙醇溶液由贫液罐打入超重力反应器中,与沼气进行逆流接触传质,完成传质的富液储存在富液罐中,气体流入在沼气分析仪测定成分。



1. CO₂ 钢瓶; 2. 减压阀; 3. 浮子流量计; 4. 天平; 5. 三口烧瓶; 6. 温度计; 7. 蛇形冷凝管; 8. 尾气吸收

图 1 CO₂ 吸收能力测定实验系统流程图



1. CO₂ 钢瓶; 2. CH₄ 钢瓶; 3. CO₂ 浮子流量计; 4. CH₄ 浮子流量计; 5. 稳压罐; 6. 进气流量计; 7. 变频电机; 8. 超重力反应器; 9. 富液罐; 10. 贫液罐; 11. 柱塞计量泵; 12. 进液流量计; 13. 沼气分析仪

图 2 超重力反应器内传质实验系统流程图

表 1 超重力反应器填料层参数

内径 m	外径 m	高度 m	填料种类	比表面积 1/m	孔隙率	丝径 mm	孔径 mm
0.05	0.23	0.05	不锈钢丝网	500	0.945	0.4	3

1.3 实验设计

CO₂ 吸收能力测定实验旨在确定 MEA-乙醇溶液的吸收能力,为建立模型提供基础数据。固定

CO₂ 鼓入速率,分别测定 MEA 质量分数为 10%、20%、30% 的溶液的吸收能力,吸收能力通过饱和和溶液的 CO₂ 负荷(单位摩尔量 MEA 吸收 CO₂ 的摩尔

量, mol CO₂·mol⁻¹ MEA) 来评价。

超重力反应器内的传质实验旨在收集实验数据检测数学模型的可靠性。实验中的沼气成分为 50% CH₄、50% CO₂, MEA-乙醇溶液浓度为 4.92 mol·L⁻¹。实验参数设计见表 2。

表 2 实验参数设计

进气量 (L·h ⁻¹)	进液量 (L·h ⁻¹)	转速 (r·min ⁻¹)
2000 ~ 4000	50	1000
4000	30 ~ 50	1000
4000	50	400 ~ 1200

1.4 实验结果与讨论

CO₂ 吸收能力测定的实验结果如图 3 所示, 传质实验的实验结果如图 4 ~ 图 6 所示。

不同 MEA 浓度吸收剂的 CO₂ 吸收能力如图 3

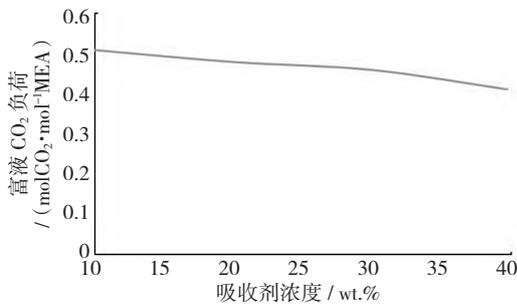


图 3 CO₂ 吸收能力随 MEA 浓度的变化

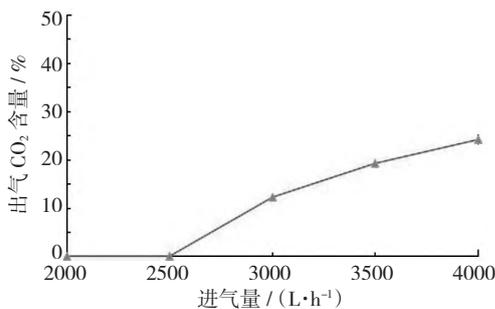


图 4 不同进气量下的传质结果

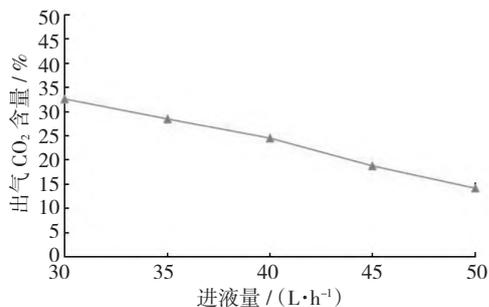


图 5 不同进液量下的传质结果

所示, 可见随着 MEA 浓度的上升富液负荷有所下降, 这主要是由于吸收剂粘度增加而导致的。

进气量、进液量、转子转速对传质的影响如图 4 ~ 图 6 所示, 可见出气 CO₂ 含量随进气量的升高而升高, 随进液量的升高而降低, 随转速的升高则是先变化不大, 进而降低, 最终稳定。

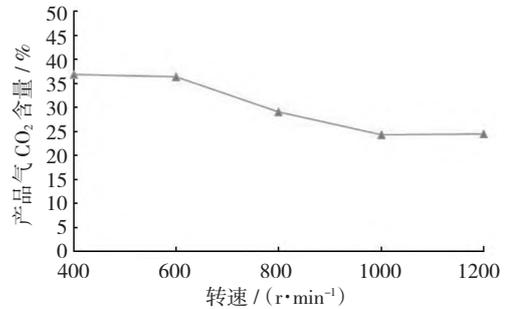


图 6 不同超重力反应器转子转速下的传质结果

2 模型部分

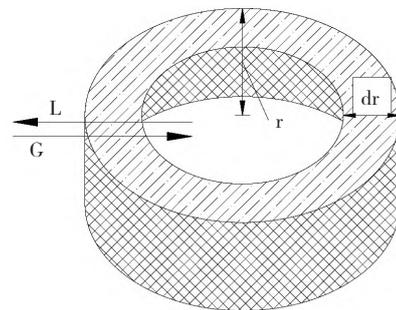
2.1 模型假设

- (1) 根据相关文献资料^[11-12], 超重力反应器内的大部分液体以液膜的形式存在;
- (2) 液体流动过程中没有轴向和径向上的返混;
- (3) 忽略端效应的影响;
- (4) 对填料微元, 气液相流量为常量;
- (5) 对填料微元, 传质系数为常量;

2.2 数学模型的建立

2.2.1 传质过程的数学模型

取超重力反应器填料层的填料微元作为研究对象, 研究对象如图 7 所示。



L. 液相流; G. 气相流; r. 微元环外半径; dr. 微元环半径差

图 7 超重力反应器填料层填料微元

对于上述填料微元, 其传质面积 A 可用公式 (1) 表示。

$$A = a_e \pi [r^2 - (r - dr)^2] h \quad (1)$$

式中: A 为填料微元传质面积, m^2 ; a_e 为有效传质比表面积, $\text{m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$; h 为填料层高度, m , 本研究为 0.05 m ;

传质面积表达式可简化为公式(2)。

$$A = 2a_e h \pi r dr \quad (2)$$

填料微元内的单位时间传质通量 N_a 以公式(3)表示。

$$N_a = G dy = L dx = 2J_A a_e h \pi r dr \quad (3)$$

式中: N_a 为填料微元内单位时间的传质通量, $\text{kmol} \cdot \text{s}^{-1}$; G 、 L 分别为气、液相流量, $\text{kmol} \cdot \text{s}^{-1}$; J_A 为局部传质速率, $\text{kmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; x 、 y 分别为液、气相摩尔分数, %。

局部传质速率 J_A 计算式以公式(4)表示。

$$J_A = K_y (y - y_e) = K_x (x_e - x) \quad (4)$$

式中: K_x 、 K_y 分别为液、气相总传质系数(推动力以摩尔分数差表示), $\text{kmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; x_e 、 y_e 分别为液、气相平衡摩尔分数, %。

对填料微元进行物料衡算, 可得公式(5)。

$$G(y - y_o) = L(x - x_i) \quad (5)$$

联立公式(3)和式(4)引入气液平衡关系并积分, 结合公式(5)可得公式(6)。

$$\begin{cases} r_2^2 - r_1^2 = \frac{G}{K_y a_e h \pi} \frac{1}{1 - \frac{mG}{L}} \ln \left[\left(1 - \frac{mG}{L}\right) \frac{y_i - mx_i}{y_o - mx_i} + \frac{mG}{L} \right] \\ r_2^2 - r_1^2 = \frac{L}{K_x a_e h \pi} \frac{1}{1 - \frac{L}{mG}} \ln \left[\left(1 - \frac{L}{mG}\right) \frac{y_i - mx_i}{y_i - mx_o} + \frac{L}{mG} \right] \end{cases} \quad (6)$$

式中: x_i 、 x_o 分别为流入、流出填料微元的液相溶质摩尔分数, %; y_i 、 y_o 分别表示流入、流出填料微元的气相溶质摩尔分数, %; m 表示气液平衡关系。

以上各式中的 a_e 为有效传质比表面积, 根据文献资料^[13], 以公式(7)计算。

$$\left(\frac{a_e}{a_p}\right) = 15.17 \left(\frac{G d_p}{2\pi r h v_c}\right)^{0.16} \left(\frac{L d_p}{2\pi r h v_L}\right)^{-0.38} \left[\frac{L^2}{r w^2 (2\pi r h)^2 d_p}\right]^{-0.13} \left[\frac{L^2 p_L d_p}{(2\pi r h)^2 \sigma}\right]^{0.45} \left(\frac{\phi^2}{\phi + d_0^2}\right)^{-0.29} \quad (7)$$

式中: d_p 为填料名义尺寸, $d_p = 6(1 - \varepsilon)/a_p$, m ; ϕ 为不锈钢丝网的丝径, mm ; d_0 为不锈钢丝网的孔径, mm ; v_c 为气体的运动粘度, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$; v_L 为液体

的运动粘度, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$; ρ_L 为液体密度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$; ω 为超重力反应器转子旋转的角速度, $1 \cdot \text{s}^{-1}$ 。

本研究通过气液平衡关系来描述化学反应带来的影响, 气液平衡关系可以理解为气体在液体中的溶解能力, 通过前文 CO_2 吸收能力测定实验的结果来确定气液平衡常数。

对于质量分数为 w 的 MEA-乙醇溶液, 其摩尔浓度可以用公式(8)表示、摩尔分数可以用公式(9)表示。

$$c_{\text{MEA}} = \frac{\frac{w}{M_{\text{MEA}}}}{\frac{w}{\rho_{\text{MEA}}} + \frac{1-w}{\rho_{\text{ethanol}}}} \quad (8)$$

$$x_{\text{MEA}} = \frac{\frac{w}{M_{\text{MEA}}}}{\frac{w}{M_{\text{MEA}}} + \frac{1-w}{M_{\text{ethanol}}}} \quad (9)$$

式中: M_{MEA} 、 M_{ethanol} 分别为 MEA、乙醇的摩尔质量, $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$; ρ_{MEA} 、 ρ_{ethanol} 分别为 MEA、乙醇的密度, $\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

CO_2 饱和的 MEA-乙醇溶液的 CO_2 负荷 D ($\text{mol} \text{CO}_2 \cdot \text{mol}^{-1} \text{MEA}$) 反映了溶液对 CO_2 的溶解度, CO_2 摩尔分数与 MEA 摩尔分数的关系如公式(10)所示。

$$X_{\text{CO}_2} = D x_{\text{MEA}} \quad (10)$$

在本研究的实验条件下, 气相 CO_2 摩尔分数为 1, 所以平衡常数的表达式为公式(11)。

$$m = \frac{1}{D x_{\text{MEA}}} \quad (11)$$

根据吸收能力测定实验的实验结果可以由 MEA-乙醇溶液的浓度确定饱和富液负荷 D , 进一步可以确定平衡常数。

由费克第二定律推导出 CO_2 在液膜中的质量守恒式, 如公式(12)。

$$\frac{\partial c}{\partial t_0} = D_L \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - r_A \quad (12)$$

式中: D_L 为 CO_2 在溶液中的扩散系数, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$; c 为液膜中 CO_2 的摩尔浓度, $\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$; t_0 为扩散时间, s ; r_A 为 CO_2 的消耗速率(即 MEA 与 CO_2 的反应速率), $\text{kmol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$; z 为扩散距离, m 。

双膜理论认为分子扩散为稳态, 即浓度随时间是没有变化的, 所以式(12)可写作公式(13)。

$$0 = D_c \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - k_1 c c_{\text{MEA}} \quad (13)$$

式中: k_1 为 MEA 与 CO_2 的反应速率常数, $\text{m}^3 \cdot \text{kmol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$; c_{MEA} 为液膜中 MEA 的摩尔浓度, $\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

由双膜理论可知, 传质发生在液膜中, 气液界面浓度为 c_i , 液相主体浓度为 c , 且不发生传质, 无浓度梯度, 设液膜厚度为 $\delta(\text{m})$, 那么公式(13)的积分边界条件为:

$$\begin{cases} c = c_i, z = \delta \\ \frac{\partial c}{\partial z} = 0, z = 0 \end{cases} \quad (13)$$

液膜内的局部传质速率定义式为公式(14):

$$J_A = D_L \frac{dc}{dz} = k_1(c_i - c) \quad (14)$$

对公式(13)进行积分并联立公式(14), 可得液相传质系数表达式公式(15):

$$k_1 = \frac{\sqrt{D_L k_1 c_{\text{MEA}}}}{\tanh \sqrt{\frac{k_1 c_{\text{MEA}}}{D_L}} \delta} (1 - \text{sech} \sqrt{\frac{k_1 c_{\text{MEA}}}{D_L}} \delta) \quad (15)$$

根据文献资料^[14-15], k_1 通过公式(16)计算, 液膜厚度通过公式(17)计算:

$$\text{Log}_{10} k_1 = 10.99 - \frac{2152}{T} \quad (16)$$

$$\delta = 4.2 \times 10^8 \frac{v_L L_v}{a_p \omega^2 r} \quad (17)$$

式中: T 为液相温度, $^{\circ}\text{C}$; L_v 为液相流速, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

根据文献资料, 采用 Onda 等^[16] 提出的关联式计算气相传质系数, 关联式如公式(18)。

$$\frac{k_g R_t}{a_p D_G} = C \left(\frac{G_m}{a_p \mu_G} \right)^{0.7} \left(\frac{\mu_G}{\rho_G D_G} \right)^{1/3} \left(\frac{a_p}{d_p} \right)^{-2} \quad (18)$$

式中: t 为气相温度, $^{\circ}\text{C}$; a_p 为填料比表面积, $1 \cdot \text{m}^{-1}$; D_G 为 CO_2 在气相中扩散系数, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$; μ_G 为气体粘度, $\text{Pa} \cdot \text{s}$; ρ_G 为气体密度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$; G_m 为气相质量流速, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

总传质系数用公式(19)表示。

$$\begin{cases} \frac{1}{K_L a_e} = \frac{1}{k_g a_e H} + \frac{1}{k_l a_e} \\ \frac{1}{K_G a_e} = \frac{1}{k_g a_e} + \frac{H}{k_l a_e} \end{cases} \quad (19)$$

式中: 气液平衡关系 H 由公式(20)求取。

$$H = \frac{mP}{c_M} \quad (20)$$

CO_2 在气、液相中的扩散系数由公式(21)计算。

$$\begin{cases} D_L = \frac{7.4 \times 10^{-8} (kM_B)^{1/2} T}{\mu V_A^{0.6}} \\ D_G = \frac{1.517 t^{1.81} \left(\frac{1}{M_A} + \frac{1}{M_B} \right)^{0.5}}{p (T_{CA} T_{CB})^{0.1405} (V_{CA}^{0.4} + V_{CB}^{0.4})^2} \end{cases} \quad (21)$$

式中: M_A 、 M_B 分别为组分 A、B 的分子量, $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$; V_A 为 CO_2 的摩尔体积, $\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$; T_{CA} 、 T_{CB} 为组分 A、B 的临界温度, K ; V_{CA} 、 V_{CB} 为组分 A、B 的临界容积, $\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ 。

2.2.2 传热过程的数学模型

本研究中的传质过程为高浓度 CO_2 的脱除, MEA 吸收 CO_2 产生的反应热较高, 会带来气液较为明显的温升, 传质模型中的许多参数都与温度有着密切的关系, 因此建立传热过程的数学模型非常重要。

传质过程中, MEA 与 CO_2 的反应热先造成溶液的升温, 进而将热量传递给气体, 因此传热的方向非常明确, 是液相传递到气相。

传热过程中, 假设气液界面温度等于液相温度, 那么传热速率可以由公式(22)计算。

$$q = \alpha(T - t) \quad (22)$$

式中: q 为传热速率, $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2}$; α 为气相对流给热系数, $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^{\circ}\text{C}$;

以 0°C 作为焓的基本状态, 那么气体的焓 I 可以由公式(23)计算。

$$I = C_g t \quad (23)$$

式中: C_g 为气体比热容, $\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot ^{\circ}\text{C}$ 。

上述内容为传热模型中的基本参数。仍以填料微元为研究对象, 填料微元中的溶液蒸发量可以忽略, 气液相流量看作恒定, 第 n 层填料微元的热量衡算可以用公式(24)表示。

$$G(I_n - I_{n-1}) = LC_l(T_n - T_{n-1}) \quad (24)$$

式中: C_l 为液体比热容, $\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot ^{\circ}\text{C}$ 。

热量衡算微分方程式为公式(25)。

$$GC_g dt = \alpha(T - t) 2a_e h \pi r dr \quad (25)$$

将上述式子积分, 可以得到传热过程的数学模型: 热量衡算式为公式(24), 传热速率式为公式(26)。

$$GC_g(t_n - t_{n-1}) = \alpha a_e h \pi (r_n^2 - r_{n-1}^2) (T_{n-1} - t_{n-1}) \quad (26)$$

2.2.3 数学模型的计算

将超重力反应器填料层径向等分 100 份, 由填料内沿至外沿为第 1 到第 100 层, 利用前文建立的填料微元模型从第 1 层逐层开始进行计算, 第 1 层

的有关未知参数先使用试差法进行赋值,算到第100层填料得到入口处的操作参数值,与实际操作值比较,如不同则重新赋值,直至得到的参数值与实际值相近。在固定沼气成分为50% CH₄、50% CO₂,溶液 MEA 浓度 4.92 mol·L⁻¹的条件下,利用上述计算方法分别对不同进气量、进液量和超重力反应器转速的传质结果(产品气 CO₂ 含量)进行预测。

2.3 模型的验证与改进

通过前文传质实验的实验结果对模型预测值进行验证,在进液量 50 L·h⁻¹、超重力反应器转速 1000 r·min⁻¹的条件下,不同进气量下的模型预测值与实验值的对比如图 8 所示。可见模型预测值与实验值较为吻合。

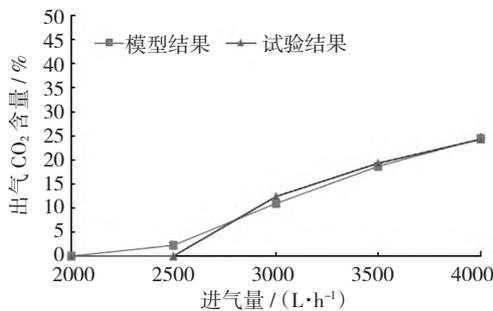


图 8 不同进气量的模型预测值与实验值对比

在进气量 4000 L·h⁻¹、超重力反应器转速 1000 r·min⁻¹的条件下,不同进液量下的模型预测值与实验值的对比如图 9 所示。可见模型预测值与实验值非常接近。

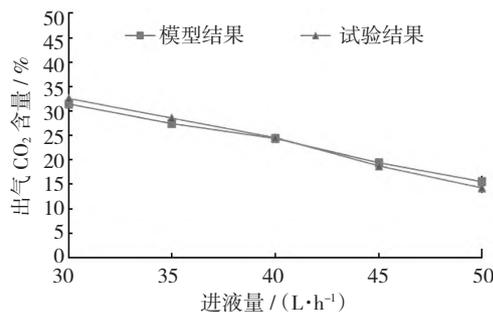


图 9 不同进液量的模型预测值与实验值对比

在进气量 4000 L·h⁻¹、进液量 50 L·h⁻¹的条件下,不同超重力反应器转速的模型预测值与实验值的对比如图 10 所示。可见转子转速的改变对模型结果基本没有影响,这是不符合实际的,说明本模型还存在一些问题。

针对模型出现的问题,对影响模型参数的因素进行分析,各模型参数的影响因素见表 4。

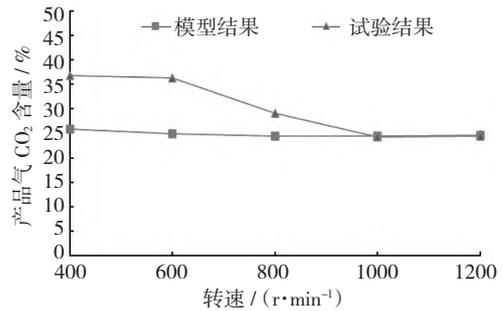


图 10 不同转速的模型预测值与实验值对比

表 4 各模型参数对应的影响因素

模型参数	影响因素
超重力反应器传热速率	进气量、进液量、超重力反应器转速
超重力反应器温度分布	进气量、进液量
超重力反应器流量、浓度分布	进气量、进液量
总传质系数	进气量、进液量、超重力反应器转速
分传质系数	进气量、进液量、超重力反应器转速
有效传质表面积	进气量、进液量、超重力反应器转速
液膜厚度	进液量、超重力反应器转速
气体扩散系数	进气量、进液量、超重力反应器转速
MEA-CO ₂ 反应速率常数	进气量、进液量、超重力反应器转速
气液平衡关系	本研究条件下恒定

模型参数中受转速影响的有超重力反应器传热速率、总传质系数、有效传质表面积、气体扩散系数、液膜厚度、MEA-CO₂ 反应速率常数。但直接受转速影响的仅有效传质表面积和液膜厚度。根据相平衡常数,本过程属气膜控制的传质,液相传质系数的影响可以忽略,而液膜厚度主要影响液相传质系数,因此能影响到传质结果且受反应器转速影响的模型参数仅有效传质表面积。

根据前文的实验研究,超重力反应器转速对传质结果的影响是阶段性的,由实验数据可以看出,分界点在 600、1000 r·min⁻¹。低于 600 r·min⁻¹时传质结果较差且变化不大,高于 1000 r·min⁻¹时传质结果较好且变化不大。双曲正切函数可以正确地描述此现象,双曲正切函数(tanhx)的表达式如公式(27)所示。

$$\tanh x = \frac{e^x - e^{-x}}{e^x + e^{-x}} \quad (27)$$

其函数图像如图 11 所示,函数的值域为(-1,1)。

引入双曲正切函数后的有效传质表面积表达式为公式(28)。

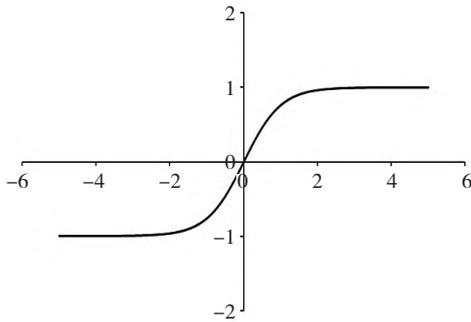


图 11 双曲正切函数图像

$$\left(\frac{a_e}{a_p}\right) = 15.06 \left[\tanh(0.75\omega - 62.8) + 2 \right]$$

$$\left(\frac{Gd_p}{2\pi rh\nu_c}\right)^{0.16} \left(\frac{Ld_p}{2\pi rh\nu_L}\right)^{-0.38}$$

$$\left(\frac{L^2}{r\omega^2(2\pi rh)^2 d_p}\right)^{-0.13} \left(\frac{L^2 \rho_L d_p}{(2\pi rh)^2 \sigma}\right)^{0.45}$$

$$\left(\frac{m^2}{m+d_0^2}\right)^{-0.29} \quad (28)$$

式中： d_p 为填料名义尺寸， $d_p = 6(1 - \varepsilon)/a_p$ ， m ； φ 为不锈钢网网的丝径，mm； d_0 为不锈钢网网的孔径，mm； ν_c 为气体的运动粘度， $m^2 \cdot s^{-1}$ ； ν_L 为液体的运动粘度， $m^2 \cdot s^{-1}$ ； ρ_L 为液体密度， $kg \cdot m^{-3}$ ； ω 为超重力反应器转子旋转的角速度， $1 \cdot s^{-1}$ 。

利用修正后的模型重新进行计算，预测值与实验值的对比如图 12 所示。

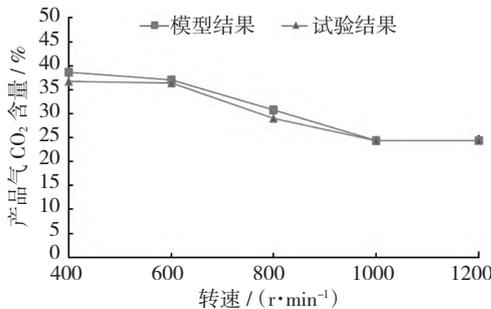


图 12 不同转速的修正模型预测值与实验值对比

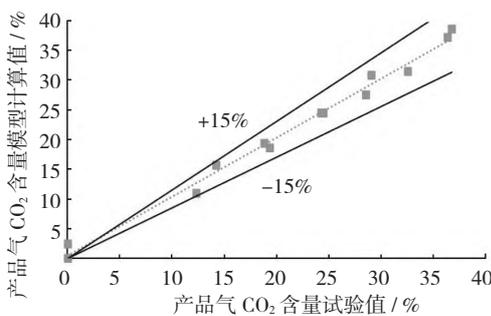


图 13 实验值与修正模型计算值的比较

修正模型预测值与实验值的整体对比如图 13 所示，可见本文建立的模型的预测值与实际值误差在 15% 以内。

3 结论

本文依据双膜理论建立了超重力反应器内 MEA-乙醇溶液用于高含量 CO₂ 脱除传质过程的数学模型，以气液平衡常数来描述传质过程中发生的化学反应对传质带来的影响；并引入双曲正切函数对有效传质比表面积的关联式进行了优化。利用该模型对 MEA-乙醇溶液在超重力反应器内用于沼气脱碳的脱碳效果进行了预测，通过实验结果验证了模型的预测值，发现模型值与实验值之间的误差在 ±15% 以内，说明优化传质模型可以有效地预测传质结果，可以在一定程度上为工程设计起到指导作用。

参考文献：

- [1] Patricia Luis. Use of monoethanolamine (MEA) for CO₂ capture in a global scenario: Consequences and alternatives [J]. Desalination, 2016, 380: 93–99.
- [2] Eni Oko, Meihong Wang, Atuman S Joel. Current status and future development of solvent-based carbon capture [J]. International Journal of Coal Science Technology, 2017, 4: 5–14.
- [3] Francis Bougie, Daniel Pokras, Xianfeng Fan, Novel non-aqueous MEA solutions for CO₂ capture [J]. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2019, 86: 34–42.
- [4] Zhang L L, Wang J X, Xiang Y. Absorption of carbon dioxide with ionic liquid in a rotating packed bed contactor: mass transfer study [J]. Industrial Engineering Chemistry Research, 2011, 50, 11: 6957–6964.
- [5] Sun B C, Zou H K, Chu G W. Determination of mass-transfer coefficient of CO₂ in NH₃ and CO₂ absorption by materials balance in a rotating packed bed [J]. Industrial Engineering Chemistry Research, 2012, 51, 33: 10949–10954.
- [6] Zhang L L, Wang J X, Liu Z P. Efficient capture of carbon dioxide with novel mass-transfer intensification device using ionic liquids [J]. AIChE Journal, 2013, 59, 8: 2957–2965.
- [7] Heldebrand D J, Koech P K, Glezakou V A. Water-lean solvents for post-combustion CO₂ capture: fundamentals, uncertainties, opportunities and outlook [J]. Chemical

- Reviews, 2017, 117, 14: 9594 – 9624.
- [8] Kang M K, Jeon S B, Cho J H, et al. Characterization and comparison of the CO₂ absorption performance into aqueous and non-aqueous MEA solutions [J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2017, 63: 281 – 288.
- [9] Fang X, Li G, Li D. An experimental study of R134a flow boiling heat transfer in a 4.07mm tube under Earth's gravity and hypergravity [J]. *International Journal of Heat Mass Transfer*, 2015, 87: 399 – 408.
- [10] Yanagida R, Ogaway Y, Ueda K. Sustained mild hypergravity reduces spontaneous cardiac baroreflex sensitivity [J]. *Auton Neurosci*, 2014, 185, 15: 123 – 128.
- [11] Basic A, Dudukovic M P. Liquid holdup in rotating packed bed: examination of the film flow assumption [J]. *AIChE J*, 1995, 41: 301 – 316.
- [12] 郭 锴. 超重力机转子填料内液体流动的观测与研究 [D]. 北京:北京化工大学, 1996.
- [13] Luo Y, Luo J Z, Chu G W, et al. Investigation of effective interfacial area in a rotating packed bed with structured stainless steel wire mesh packing [J]. *Chem Eng Sci*, 2017, 170:347 – 354.
- [14] Guo F, Chong Z, Kai G. Hydrodynamics and transfer in cross-flow rotating packed bed [J]. *Chemical Engineering Science*, 1997, 52: 3853 – 3859.
- [15] Blauwhoff P M M, Versteeg G F, Van Swaaij W P M. A study on the reaction between CO₂ and alkanolamines in aqueous solutions [J]. *Chemical Engineering Science*, 1984, 39, 2: 207 – 225.
- [16] Onda K, Takeuchi H, Okumoto Y. Mass transfer coefficients between gas and liquid phases in packed columns [J]. *J Chem Eng Jpn*, 1968, 1: 56 – 62.