

研究论文

工业结晶过程的多相流与粒数衡算的 CFD 耦合求解

武首香, 王学魁, 沙作良, 王彦飞

(天津科技大学天津市海洋资源与化学重点实验室, 天津 300457)

摘要: 考虑不同尺寸的晶体为不同的分散相, 通过有限体积法差分不同尺寸组的晶体求解粒数衡算方程, 建立了质量衡算与粒数衡算之间的联系, 在考虑晶体成核和生长的条件下, 建立了稳态结晶过程的粒数衡算方程与多相流方程的耦合求解方法, 得到了工业结晶过程的计算流体力学模拟模型。使用商业软件 ANSYS CFD, 采用该模型对 DTB 型工业结晶器中氯化钾-水体系的结晶过程进行了模拟, 最终获得不同尺寸晶体的流场和固体含量的分布信息, 从而实现结晶过程的仿真模拟。对部分模拟结果与实验值进行了比较, 结果表明模拟结果与实验结果吻合较好。

关键词: 多相流; 模型; 粒数衡算; 工业结晶

中图分类号: O 35

文献标识码: A

文章编号: 0438-1157 (2009) 03-0593-08

Solution of population balance in multiphase flow field for industrial crystallization process

WU Shouxiang, WANG Xuekui, SHA Zuoliang, WANG Yanfei

(Tianjin Key Laboratory of Marine Resource & Chemistry, Tianjin University of
Science & Technology, Tianjin 300457, China)

Abstract: A method for solving the population balance equation coupled with multiphase flow field was developed for a steady crystallization process by considering nucleation rate and crystal growth rate. A simulation model with computational fluid dynamics (CFD) method was established for the industrial crystallization process. In this method, the different sizes of crystals were considered as the different dispersed phases. The relationship between mass balance and population balance was built by discretizing the population equation into different size groups with the finite volume method. By using this model in commercial software of ANSYS CFD, the crystallization process of potassium chloride in the draft tube baffle (DTB) crystallizer was simulated, then the flow fields and the volume fraction distributions of different dispersed phases were obtained. The simulation results were compared with experimental result. It was demonstrated that the modeling in this work can reasonably predict the flow fields and the volume fraction distributions of different dispersed phases in the industrial crystallization process.

Key words: multiphase fluid; modeling; population balance; industrial crystallization

2008-07-14 收到初稿, 2008-12-02 收到修改稿。

联系人: 沙作良。第一作者: 武首香 (1978—), 女, 博士研究生。

基金项目: 天津市自然科学基金项目 (05YFJMJC13800); 教育部高等学校博士点基金项目 (20070057001)。

Received date: 2008-07-14.

Corresponding author: Prof. SHA Zuoliang. **E-mail:** zsha@tust.edu.cn

Foundation item: supported by the Natural Science Foundation of Tianjin (05YFJMJC13800) and the Doctoral Programs Foundation of Ministry of Education of China (20070057001).

引 言

工业结晶具有能量消耗低、产品纯度高的优点,在石油、化工、医药、生物技术及环境保护等领域中应用越来越广泛。结晶过程绝大部分在液体与固体共同流动状态下进行,因此流体的流动状态、晶体的悬浮状态,与晶体的成核、成长等过程共同决定产品的大小、形状及质量。国内外对结晶过程已有多年的研究,但研究工作大都基于完全混合悬浮模型进行,该理想模型不能考察晶体悬浮状态对结晶过程的影响,尤其在大型的工业结晶过程中,晶体的悬浮状态基本不能达到均匀混合,因此模型的准确度受到很大限制。Sha 等^[1]的研究证明固体悬浮状态对结晶过程有很大的影响。固体悬浮对于结晶过程的影响非常复杂,很难用一般的方法进行描述。因此,建立多相流场内结晶过程的计算流体力学(computational fluid dynamics, CFD)模拟模型,从而获得结晶过程的流场分布和固体悬浮状态等信息,被认为是唯一能够实现准确描述工业结晶过程的方法,受到结晶界的广泛重视。

CFD 通过数值计算的方法对多相流场进行模拟,成为进行结晶过程模拟的强有力工具。然而,模拟过程主要集中在反应结晶过程^[2-7],而很少涉及固体悬浮结晶过程,其主要原因在于没有较好的方法来解决结晶过程的粒数衡算与多相流场方程耦合求解方法,从而很难考察固体悬浮对于结晶过程的影响,也不能得到晶体产品的粒度分布等特征参数。为了简化粒数衡算方程,一些作者采用粒度分布阶矩式的方法^[5-10],用单相流体模型描述结晶过程,从而得到晶体产品的平均性质,然而该方法并不能获得产品的粒度分布信息。为模拟粒度分布信息,Lo 等^[11]最先使用多尺寸组模型(multi-size group model, MUSIG)用于气液体系模拟。由于模型中仅使用单一固体流场,即使将此模型用于固液体系,仍很难描述不同大小晶体的运动特征,从而不能准确地描述结晶过程。

本文通过考虑不同尺寸的晶体为不同的分散相,在考虑晶体成长和成核的条件下,通过差分不同尺寸的晶体得到粒数衡算方程与多相流方程的耦合求解方法,将此方法应用于 CFD 环境,可以得到结晶过程中不同尺寸晶体的流场、固体悬浮、晶体粒度分布等信息,从而实现结晶过程的仿真模拟。

1 模 型

1.1 多相流基础方程

对于液固体系,欧拉-欧拉方法将每一相看成是充满整个流场的连续介质,其中颗粒相是与流体相互相渗透的拟流体,两相均在欧拉坐标系下用连续介质原理中的质量、动量和能量守恒方程进行描述。多相流场中各种参数的变化规律可用如下通用传递方程表示

$$\frac{\partial}{\partial t}(r_\alpha \rho_\alpha \Phi_\alpha) + \nabla \cdot [r_\alpha (\rho_\alpha U_\alpha \Phi_\alpha - \Gamma_\alpha \nabla \Phi_\alpha)] = r_\alpha S_\alpha + \sum_{\beta=1}^{N_p} c_{\alpha\beta} (\Phi_\beta - \Phi_\alpha) + \sum_{\beta=1}^{N_p} (\dot{m}_{\alpha\beta} \Phi_\beta - \dot{m}_{\beta\alpha} \Phi_\alpha) \quad (1)$$

式中 N_p 表示相的个数; r 为相的体积分数; ρ 为密度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$; Φ 是过程任意参数,可以是矢量也可以是标量; Γ_α 是扩散系数, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$; S_α 为传递方程的源项,表示除扩散传递外其他因素引起的参数变化; $c_{\alpha\beta} (\Phi_\beta - \Phi_\alpha)$ 描述参数 Φ 在 α 相和 β 相间的传递通量; $c_{\alpha\beta}$ 为相间传递系数; $\dot{m}_{\alpha\beta}$ 为从 β 相到 α 相的质量转移速率, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

多相流场中各相的动量方程为(以 α 相为例)

$$\frac{\partial}{\partial t}(r_\alpha \rho_\alpha U_\alpha) + \nabla \cdot \{r_\alpha [\rho_\alpha U_\alpha \otimes U_\alpha - \mu_{\text{eff},\alpha} (\nabla U_\alpha + (\nabla U_\alpha)^T)]\} = -r_\alpha \nabla P + \sum_{\beta=1}^{N_p} C_{\alpha\beta}^{(d)} (U_\beta - U_\alpha) + r_\alpha S_\alpha \quad (2)$$

式中 $\mu_{\text{eff},\alpha} (\nabla U_\alpha + (\nabla U_\alpha)^T)$ 表示流体受到的剪应力 ($\text{N} \cdot \text{m}^{-2}$), 主要由流体的有效黏度 μ_{eff} 和速度梯度 $(\nabla U_\alpha + (\nabla U_\alpha)^T)$ 决定, 且 $\mu_{\text{eff},\alpha} = \mu_\alpha + \mu_{t,\alpha}$, 其中, μ_α 为流体黏度 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$), $\mu_{t,\alpha}$ 为湍流黏度 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$); P 表示压力, Pa ; $C_{\alpha\beta}^{(d)} (U_\beta - U_\alpha)$ 表示 α 相与 β 相间的作用力 (N); $C_{\alpha\beta}^{(d)}$ 为相间动量传递系数。在 CFD 模拟中, 由于分散相与液相在同一体系中, 因此压力设定与液相相同。当分散相为固体时, 其黏度 μ 设定为无限小。

在多相流运动方程中, 动量传递主要特征为相间的动量传递, 主要由相间相互作用力产生。在多相流中有多种相间作用力, 例如湍流阻力、曳力和形体阻力等。本文的主要目的是解决多相流场与粒数衡算的求解方法, 因此仅考虑连续相与分散相间的形体阻力和曳力, 而分散相与分散相间的作用力暂不考虑。因为结晶体系中, 作为分散相的晶体间的作用力主要是由于晶体运动速度不同, 发生碰撞所产生的作用力, 对分散相流场有一定的影响, 但

对模型的建立影响不大。在此情况下, CFD 环境中相间动量传递系数 $C_{\alpha\beta}^{(d)}$ 可由相间曳力系数 C_D 估算^[12]

$$C_{\alpha\beta}^{(d)} = \frac{3}{4} \frac{C_D}{d} r_{\beta} \rho_{\alpha} |U_{\beta} - U_{\alpha}| \quad (3)$$

在文献中曳力系数 C_D 可有很多种模型, 本文使用 Schiller 等^[13] 的模型

$$C_D = \max \left[\frac{24}{Re} (1 + 0.15 Re^{0.687}), 0.44 \right] \quad (4)$$

式中 Re 为颗粒 Reynolds 数。

$$Re = \frac{\rho_{\alpha} |U_{\beta} - U_{\alpha}| d_{\beta}}{\mu_{\alpha}} \quad (5)$$

在绝大多数的情况下, 工业结晶器内的流动状态是湍流, 要解决湍流状态下的动量传递方程, 必须选择适宜的湍流模型, 常见的湍流模型有 $\kappa\epsilon$ 、 $k\omega$ 模型以及雷诺剪应力模型。标准 $\kappa\epsilon$ 模型, 因其简单、精确, 且适合高 Reynolds 数的均质流体, 广泛应用于工业过程的模拟中。因此本文液相使用标准 $\kappa\epsilon$ 模型, 模型中湍流黏度定义为 $\mu_t = \rho C_{\mu} \kappa^2 / \epsilon$, 其中 C_{μ} 为常数。标准 $\kappa\epsilon$ 模型在 CFD 环境中的求解方法与参数的设定见文献 [14]。分散相的湍流模型采用零参数模型 (zero equation model)^[12], 模型中定义

$$\mu_t = \rho f_{\mu} U_i I_i$$

其中, f_{μ} 为常数, 取值 0.01; U_i 采用流场中的最大流速; $I_i = (V_D)^{1/3} / 7$, V_D 为结晶器的体积, m^3 。

1.2 粒数平衡方程与多相流方程的耦合

在工业结晶系统中, 存在着不同尺寸的晶体颗粒。颗粒尺寸不同, 其运动的流场也将不同。为获得不同尺寸晶体的流场, 多相流体系考虑由一个连续相和多个分散相组成。设定液体为连续相, 用 α 表示; 晶体颗粒为分散相, 用 β 表示, 其中不同的颗粒尺寸为不同的分散相。对于单一尺寸的晶体, 连续性方程可表达为

$$\frac{\partial \rho_{\beta i} r_{\beta i}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_{\beta i} r_{\beta i} U_{\beta i}) = S_{\beta i} \quad (i = 1, 2, \dots, N_g) \quad (6)$$

式中 $S_{\beta i}$ 为源项, 表示由于分散相的破碎、聚并、生长等因素引起的晶体质量变化; $r_{\beta i}$ 为分散相的体积分数。

为获得结晶过程中结晶器内和产品的晶体粒度分布, 必须求解结晶过程的粒数衡算方程。在运动流场内, 结晶过程的粒数衡算方程为^[15]

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \nabla \cdot (U_e n) + \nabla \cdot (U_i n) + D - B = 0 \quad (7)$$

式中 n 为粒数密度, 表示单位体积晶浆内某一定粒度范围内晶体粒子的个数^[16], 因此 n 是晶体粒度 L 的函数, 本文中取晶浆体积的单位为 m^3 , 晶体的粒度单位为 m , 因此粒数密度的单位为 m^{-4} ; D 为晶体的死亡速率函数, 表示由于聚并和破碎引起的相应粒度晶体的消失速率; B 为晶体的出生速率函数, 表示由于聚并和破碎引起相应粒度晶体的生成速率。由于在结晶过程中, 聚并和破碎所引起的晶体死亡速率函数 D 和出生速率函数 B 均比较复杂, 为了简化多相流与粒数衡算方程耦合求解方法的推导, 暂不考虑聚并和破碎引起的粒数密度变化。 U_e 为晶体的外部速率, 表示晶体的空间运动速率, 可用其沿着外部坐标 x 、 y 、 z 3 个方向的运动速度来描述; U_i 为晶体的内部变化速率, 可用晶体尺寸 L 的变化速率, 即成长速率 G 来表示, 因此粒数衡算方程可写为

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (U_x n) + \frac{\partial}{\partial y} (U_y n) + \frac{\partial}{\partial z} (U_z n) + \frac{\partial}{\partial L} (Gn) = 0 \quad (8)$$

式 (8) 中晶体的外部流场可由 CFD 模拟中的多相流方程求得。如果解决式 (8) 中带有内部变量 L 的相关项, 此方程可作为一般标量的传递方程在 CFD 环境下求解。式 (8) 中 $\frac{\partial}{\partial L} (Gn)$ 项表示由于晶体的成长所引起的晶体粒数密度变化。因此, 在多相流场内, 解决粒数衡算方程的关键是解决粒数密度 n 与内部坐标 L 的变化关系。

为获得粒数密度与内部变量的变化关系, 将式 (8) 中的变量 L 进行差分, 各差分点用 L_i 表示其特征颗粒尺寸。因此各晶体尺寸的粒数密度随内部变量 L 的变化量仅取决于晶体的成长速率。因此, 某一特征尺寸粒数衡算方程可表示为下述差分方程

$$\frac{\partial n_{\beta i}}{\partial t} + \nabla \cdot (U_{\beta i} n_{\beta i}) = - \frac{\partial}{\partial L} (G n_{\beta i}) = S_{\eta \beta i} \quad (i = 1, 2, \dots, N_g) \quad (9)$$

对某一特征尺寸的晶体, 粒数密度随内部变量 L 的变化可由尺寸控制单元的粒数衡算获得。如图 1 所示, 晶体尺寸控制单元的特征尺寸为 L_i , 粒数密度表示为 n_i , 控制单元的长度为 ΔL_i 。

考虑晶体尺寸为 L_i 的控制单元, 在单元两侧的粒数密度可由中心差分方法估计, 因此在控制单元左侧控制面的粒数密度为 $(n_i + n_{i-1}) / 2$, 单元右侧控制面的粒数密度为 $(n_i + n_{i+1}) / 2$ 。如果差分中各控制单元长度相等, 那么控制单元内的粒

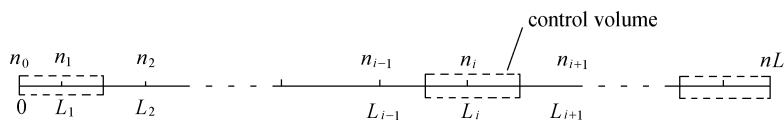


图 1 基于晶体尺寸的粒数密度差分图

Fig. 1 Discretizing population density difference based on crystal size

数密度变化率可以表示为

$$\frac{\partial n_{\beta i}}{\partial L} = \frac{\frac{n_i + n_{i+1}}{2} - \frac{n_i + n_{i-1}}{2}}{\Delta L} \quad (i = 1, 2, \dots, N_g) \quad (10)$$

将式 (10) 带入式 (9), 得到被离散的粒数衡算方程的源项

$$S_{n\beta i} = -G \frac{\frac{n_i + n_{i+1}}{2} - \frac{n_i + n_{i-1}}{2}}{\Delta L} = G \frac{\frac{n_i + n_{i-1}}{2} - \frac{n_i + n_{i+1}}{2}}{\Delta L} \quad (i = 1, 2, \dots, N_g) \quad (11)$$

为确定粒数衡算方程的边界条件, 考察粒度差分最左侧控制单元的左侧控制面。此控制面的晶体尺寸为零, 相应的粒数密度可由零尺寸的成核速率 B_0 和成长速率 G 计算得到^[10]

$$n_0 = \frac{B_0}{G} \quad (12)$$

如果在离散的粒数密度方程中考虑晶体尺寸足够大, 则最大尺寸组控制单元右侧控制面的粒数密度可以假设为零, 即 $n_L = 0$ 。

对特征尺寸为 L_i 的晶体颗粒, 其粒数密度与其在多相流中体积分数的关系可表示为

$$n_{\beta i} = \frac{r_{\beta i}}{k_v L_{\beta i}^3 \Delta L} \quad (13)$$

式中 k_v 为晶体的体积形状系数。将式 (13) 代入式 (9), 同时两边乘以 $k_v L_{\beta i}^3 \Delta L \rho_{\beta i}$, 得到

$$\frac{\partial}{\partial t} (r_{\beta i} \rho_{\beta i}) + \nabla \cdot (r_{\beta i} \rho_{\beta i} U_{\beta i}) = S_{n\beta i} k_v L_{\beta i}^3 \Delta L \rho_{\beta i} \quad (i = 1, 2, \dots, N_g) \quad (14)$$

比较式 (6) 与式 (14), 如果两方程为同一特征尺寸, 则分散相的连续性方程式 (6) 的源项可表示为

$$S_{\beta i} = S_{n\beta i} k_v L_{\beta i}^3 \Delta L \rho_{\beta i} = G \frac{\frac{n_i + n_{i-1}}{2} - \frac{n_i + n_{i+1}}{2}}{\Delta L} k_v L_{\beta i}^3 \Delta L \rho_{\beta i} \quad (15)$$

由此可见, 分散相的连续性方程可视为粒数衡算方程的变化形式。各不同尺寸颗粒连续性方程的源项可由粒数衡算方程中的晶体成长引起的变化而获得, 从而实现粒数衡算方程与连续性方程的耦合。

1.3 结晶动力学模型及结晶过程的质量衡算

如上所述, 要实现结晶过程中的多相流场与粒

数衡算方程的耦合求解, 晶体成长速率和成核速率是关键参数, 根据具体的结晶过程而定。然而, 在大型结晶器内, 由于各相流体的流场不同, 不同尺寸晶体的悬浮状态不同, 形成一定的浓度分布, 进而导致过饱和度的分布。而晶体成长速率与成核速率取决于溶液的过饱和度, 因此在结晶器内不同位置的晶体成长速率和成核速率不完全相同。假设晶体的成长速率仅是溶液过饱和度的函数, 在结晶器空间单元体积 j 内的晶体成长速率可以由式 (16) 表达

$$G_j = k_g \Delta c_j^n \quad (16)$$

其中, Δc_j 表示空间单元体积 j 内溶液的过饱和度, 取决于此单元内溶质浓度和对应此单元溶液的饱和度, $\Delta c = c - c^*$ 。在稳态条件下, 结晶器内将存在一定的温度分布, 因此溶液的饱和浓度 c^* 可由溶液的溶解度曲线而定。溶液的局部溶质浓度取决于晶体的局部成长速率和可供晶体成长的表面积。晶体的成长速率依赖于溶液的局部过饱和度, 而过饱和度又依赖于溶液的局部浓度。这一动态的平衡关系通过溶液与晶体相间的质量衡算确定, 可用溶液中溶质的浓度方程表示

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (cU) = S_c \quad (17)$$

源项 S_c 表示连续相和分散相的质量传递速率, 其取决于晶体的成长速率和存在晶体的表面积。

考虑流动区域的一个空间控制单元, 当结晶过程处于稳态时, 晶体的粒数密度分布是不随时间而变的, 因此单位体积内某特征尺寸晶体的个数可根据粒数密度分布方程获得, 为 $n_{\beta i} \Delta L$, 从而可计算出该特征尺寸晶体的总表面积为 $n_{\beta i} \Delta L k_a L_{\beta i}^2$, 其中 k_a 为晶体的面积形状系数。局部晶体成长速率可由式 (16) 计算, 那么该特征尺寸晶体的体积增加速率为 $n_{\beta i} \Delta L k_a L_{\beta i}^2 G_j$ 。因此, 溶质从液相转移到固相的质量传递速率为全部晶体的质量增加速率之和, 即

$$S_c = - \sum n_{\beta i} \Delta L k_a L_{\beta i}^2 G_j \rho_{\beta i} \quad (i = 1, 2, \dots, N_g) \quad (18)$$

因此, 式 (17) 可与多相流场方程一起求解, 从而获得结晶器内溶液的浓度分布, 确定过饱和度

的分布，进而确定晶体的局部成长速率和成核速率。

在结晶过程中，固液相之间应存在质量平衡，液相的质量减少速率应等于固相的质量增加速率。因此在进行运动流场的模拟过程中，液相连续性方程表示为

$$\frac{\partial}{\partial t}(r_a \rho_a) + \nabla \cdot (r_a \rho_a U_a) = S_a \tag{19}$$

S_a 为结晶过程中液相与固相的传质速率，可由晶体的成长速率确定，应等于所有分散相的质量增加速率之和，即溶质从液相转移到固相的质量传递速率，因此液相的连续性方程源项为

$$S_a = - \sum n_{\beta i} \Delta L k_a L_{\beta i}^2 G_i \rho_{\beta i} \quad (i = 1, 2, \dots, N_g) \tag{20}$$

在 CFD 环境下，对上述所列的方程联合求解，可得到结晶器内各相流场、过饱和度、产品粒度分布和其他参数等信息。

2 模拟和验证

2.1 模拟条件

为验证上述模型的准确度，将上述模型嵌入在 ANSYS 10 的商业 CFD 软件上，并以 10 L 体积的 DTB 结晶器为基础，对 KCl-H₂O 体系的结晶过程进行模拟。结晶器结构为：圆柱高 0.25 m，直径 0.235 m，圆弧形底部；导流桶高 0.105 m，直径 0.136 m；搅拌桨叶 3 个，平直倾斜 45°，长 0.06 m，宽 0.02 m；设进料口位于结晶器顶部，直径 0.01 m；出料口位于结晶器底部偏上，直径 0.01 m；器壁处的 4 个挡流板宽度为 0.02 m。溶液定义为连续相，黏度 10⁻³ Pa·s，密度 1000 kg·m⁻³。晶体定义为分散相，密度 1980 kg·m⁻³。为减少计算量，模拟中使用 5 个晶体特征尺寸，因此定义 5 个分散相。结晶过程考虑为连续冷却结晶，喂料液为高温饱和溶液。为简化计算，假设结晶器内液相混合较好，进口的高温饱和液体在结晶器里瞬间降为结晶器的温度，由此发生的流动为等温结晶过程。在不考虑相变热和传热过程的情况下，模拟中可以忽略能量方程。这种假设在结晶器的体积不是太大、混合状态较好的情况下，所带来的误差不大。这意味着局部过饱和度仅仅与晶体的成长速率相关，即仅与由晶体成长引起的液相溶质转到晶体相的质量传递速率有关。模拟设定结晶器内的溶液温度为 20℃，而进口溶液温度为 26℃。因模拟过程假设为等温过程，因此将进料溶液的浓度设为

26℃时 KCl 饱和溶液的浓度值，以提供溶液的过饱和度。模拟中所使用的物理现象模型如下所示，其中饱和浓度 c^* 为 342 kg·m⁻³。

成长速率^[17]

$$G = 2.32 \times 10^{-5} (\Delta c / c^*)^{0.91}$$

成核速率^[17]

$$B = 4.65 \times 10^{22} G^{2.78} M_T^{1.21} V_t^{3.79}$$

模拟设定出口处为稳定的压力，相对压力为 0，其他参数的设定见表 1。

表 1 模拟参数设定

Table 1 Simulation parameters setup

Phase	Parameter	Value
continuity phase	concentration/kg·m ⁻³	343
	volume fraction	0.9924
	inlet concentration/kg·m ⁻³	360
	inlet velocity/m·s ⁻¹	0.5
dispersed phase	diameter(volume fraction)/mm	0.08(0.0007)
		0.24(0.0047)
		0.40(0.0019)
		0.56(0.0002)
		0.72(0.0001)

氯化钾的结晶动力学已被广泛研究，本文使用的结晶动力学模型是根据 Qian 等^[17]的研究结果在本文的搅拌桨顶端速度等条件下的成长速率和成核速率模型。其中， M_T 为晶体的悬浮密度，表示单位体积溶液内晶体颗粒的质量。成核速率 B 表示单位体积溶液内单位时间生成晶核的数量。

为使模拟的收敛速度加快，模拟过程中结晶器内的初始粒度分布的设定尽量接近实际的产品粒度分布。在考虑实际生产中的粒度分布范围内，根据 MSMPR 模型^[16]估算来确定粒度分布值。实际模拟过程发现，用此方法设定的初始条件，可得到较好的收敛结果。

2.2 模拟结果与讨论

流场分布情况是结晶的外部条件，是固体悬浮和结晶过程的基础。在搅拌速率为 600 r·min⁻¹ 时模拟的液相流场及搅拌桨区域局部放大见图 2。由于不同尺寸分散相的流场与液相流场除速度值不同外，其相对分布相似，因此这里仅分析液相流场分布。由图 2 可见，在搅拌桨附近区域湍流程度较强，流体流速大于结晶器底部。在结晶器内，流体的循环情况明显，这表明在结晶器内有足够的混合强度。

模拟所获得的不同尺寸晶体的体积分数分布如

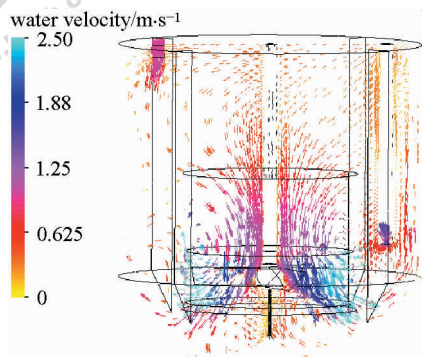


图 2 液相流场分布情况

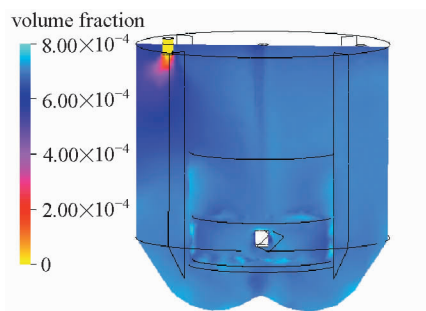
Fig. 2 Velocity distributions of liquid phases

图 3 所示 (体积分数分布可视为固体悬浮密度和粒子数密度分布)。从图 3 可明显看出, 在结晶器中小尺寸晶体的体积分数分布比较均匀。然而较大尺寸晶体的体积分数在结晶器底部比上部高, 主要循环区域比外部区域高。为了显示悬浮密度随结晶器高度的变化, 沿结晶器高度的水平面的悬浮密度分布情况见图 4。结晶器内悬浮密度的分布情况与过饱和度的分布情况直接相关, 进而影响结晶过程。

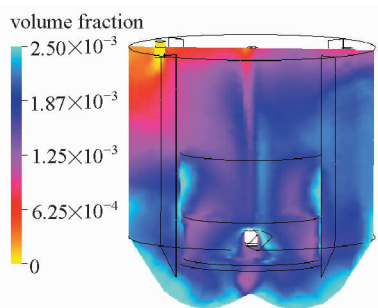
结晶器内过饱和度分布情况对于结晶过程非常重要。过饱和度分布情况的模拟结果见图 5。从模拟结果可以看出, 在喂料区域具有相对较高的过饱和度, 并且在结晶器上部比底部的过饱和度要高。这是由于在结晶器的底部有更多的晶体颗粒, 从而过饱和度的消耗速率较高。

2.3 实验验证

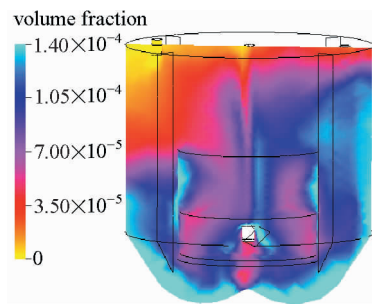
实验所用结晶器结构与模拟结构类似。结晶过程为连续冷却结晶。结晶过程中保持结晶器内的温度为 20°C , 喂料液为 26°C 的 KCl 饱和溶液。为使结晶系统内的晶体粒度达到稳定状态, 实验连续运行 8 倍的停留时间后, 从出料口取样, 使用 LS-13320 型激光粒度分析仪对晶体粒度分布进行分析。为了更好地比较实验和模拟结果, 产品粒度分布的分析结果根据模拟所分的尺寸组进行重新计



(a) crystal size 0.08 mm



(b) crystal size 0.40 mm



(c) crystal size 0.72 mm

图 3 不同尺寸晶体的体积分数分布情况

Fig. 3 Volume fraction distributions of different size crystals

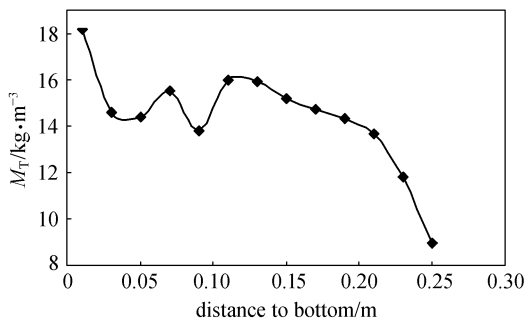


图 4 沿结晶器高度的面积平均悬浮密度变化情况

Fig. 4 Variation of area average suspension density along height of crystallizer

算, 实验和模拟的晶体粒度分布如图 6 所示。由于晶体在结晶器内不是完全均匀分布, 模拟的结果分别给出产品排除口的晶体分布 (product) 和结晶器内的平均粒度分布 (average)。由图 6 可知模拟

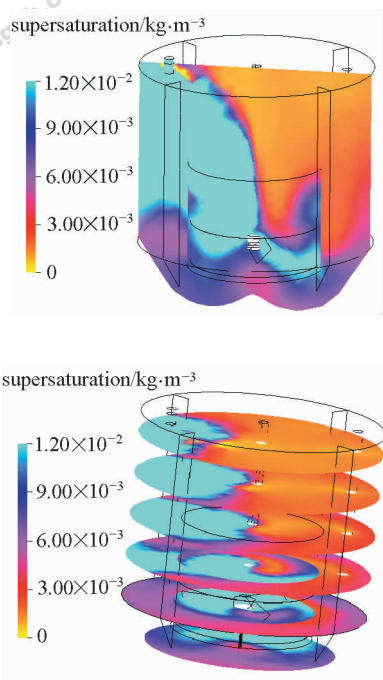


图5 结晶器内的过饱和度分布情况

Fig. 5 Supersaturation distribution in crystallizer

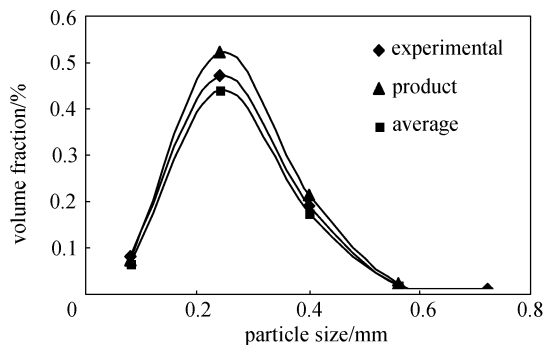


图6 晶体粒度分布情况

Fig. 6 Variation of crystal size distribution

结果与实验结果有较好的一致性。从模拟得到的产品粒度分布和结晶器内平均粒度分布的结果表明, 模拟的结晶过程为不完全混合悬浮的结晶过程, 不符合常用的完全混合悬浮完全混合产品排除模型所描述的理想状态, 而符合一般工业结晶过程的实际情况, 因此该模型可以应用于大型的工业结晶器。

3 结 论

本文建立了粒数衡算方程和多相流方程的耦合求解方法。在粒数衡算方程中考虑了晶体成长速率, 并且考虑成核速率作为粒数衡算方程的边界条件。模拟了连续结晶过程产品的粒度分布, 模拟结果与实验结果具有较好的一致性, 证明了上述耦合

求解方法的可行性, 通过选择适当的参数, 采用该方法模型进行 CFD 模拟, 能够给出合理的结果, 具有一定的工程实用性。

符 号 说 明

- B_0 ——0 尺寸晶体的成核速率, $\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$
 c ——溶液浓度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
 c^* ——溶液饱和浓度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
 Δc ——溶液过饱和浓度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
 d ——晶体的中值粒径, m
 G ——晶体成长速率, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$
 G_j ——单元 j 内的晶体成长速率, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$
 k_g ——式 (16) 中的成长速率系数
 $L_{\beta i}$ ——第 i 组晶体的平均尺寸, m
 ΔL ——晶体尺寸组的间隔宽度, m
 M_T ——溶液的悬浮密度, $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
 N_g ——分散相的数目
 n_0 ——0 尺寸晶体的粒数密度, m^{-4}
 S_n ——粒数传递方程的源项, $\text{m}^{-4} \cdot \text{s}^{-1}$
 U ——流速, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$
 V_t ——搅拌桨的顶端速度, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$

下角标

- α ——连续相
 β ——分散相
 i ——第 i 个晶体尺寸组

References

- [1] Sha Z, Palosaari S. Modeling and simulation of crystal size distribution in imperfectly mixed suspension crystallization. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 2002, **35** (11): 1188-1195
- [2] Wei H, Garside J. Application of CFD modeling to precipitation systems. *Trans. IChemE*, 1997, **75**: 219-227
- [3] Marchisio D L, Barresi A A. CFD simulation of mixing and reaction: the relevance of the micro-mixing model. *Chemical Engineering Science*, 2003, **58**: 3579-3587
- [4] Jaworski Z, Nienow A W. CFD simulation of continuous precipitation of barium sulphate in a stirred tank. *Chemical Engineering Journal*, 2003, **91**: 167-174
- [5] Wei H, Zhou W, Garside J. Computational fluid dynamics modeling of the precipitation process in a semi-batch crystallizer. *Ind. Eng. Res.*, 2001, **40**: 5525-5261
- [6] Wang L, Fox R O. Application of *in situ* adaptive tabulation to CFD simulation of nano-crystal formation by reactive precipitation. *Chemical Engineering Science*, 2003, **58**: 4387-4401
- [7] Vicum L, Ottinger S, Mazzotti M, Makowski L, Baldyga J. Multi-scale modeling of a reactive mixing process in a

- semibatch stirred tank. *Chemical Engineering Science*, 2004, **59**: 1767-1781
- [8] Yang G, Louhi-kultanen M, Kallas J. The CFD simulation of programmed batch cooling crystallization. *Chemical Engineering Transactions*, 2002, **1**: 83-88
- [9] Hounslow M J, Ryall R L, Marshall V R. A discretized population balance for nucleation, growth, and aggregation. *AIChE Journal*, 1988, **34** (11): 1821-1832
- [10] Hounslow M J. A discretized population balance for continuous systems at steady state. *AIChE Journal*, 1990, **36** (1): 106-116
- [11] Lo S. Application of population balance to CFD modeling of bubbly flows *via* the MUSIG model [R]. UK: AEAT-1096, CFX international, AEA Technology, 1998
- [12] Wilcox D C. Turbulence Modeling for CFD. CA: DCW Industries, 2000: 314
- [13] Schiller L, Naumann A. Fundamental calculations in gravitational processing. *Zeitschrift des Vereines Deutscher Ingenieure*, 1933, **77**: 318-320
- [14] Versteeg H K, Malalasekeraw. An Introduction to Computational Fluid Dynamics; The Finite Volume Method. New York: John Wiley & Sons Inc., 1995: 71
- [15] Randolph A D, Larson M A. Theory of Particulate Processes: Analysis and Techniques of Continuous Crystallization. 2nd ed. San Diego : Academic Press, Inc., 1988
- [16] Ding Xuhuai (丁绪淮), Tan Qiu (谈遒). Industry Crystallization (工业结晶). Beijing: Chemical Industry Press, 1985: 18-19
- [17] Qian R Y, Fang X S, Wang Z K. Supersaturation and crystallization kinetics of potassium chloride. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 1989, **28**: 844-850