

研究论文

DOI: 10.11949/0438-1157.

基于三维 CT 成像的乙烯环氧化固定床反应器结构重构与数值模拟研究

周继鹏^{1,2}, 贺来宾², 李应成^{1,2}, 李木金², 李丽媛², 何秀娟², 程振民¹

(¹ 化学工程与低碳技术全国重点实验室, 华东理工大学, 上海 200237; ² 中石化(上海)石油化工研究院有限公司, 上海 201208)

摘要: 本研究采用三维 X 射线 CT 成像技术对真实堆积四叶草催化剂颗粒群进行结构重构, 并结合颗粒分辨 CFD 方法研究乙烯环氧化固定床反应器内流动、反应、传质与传热耦合过程。CT 成像能够有效表征催化剂颗粒局部缺陷及复杂几何结构, 基于重构结构计算得到四叶草催化剂颗粒床层水力直径为 0.89 mm。研究表明, 流体绕过催化剂颗粒形成复杂局部流动结构, 反应器内浓度梯度在固体-流体界面处存在明显变化。由于内扩散阻力作用, 催化剂内部产生较大浓度梯度, 而温度分布相对均匀。轴向流动增强对流传热, 使反应器轴向温度梯度较小, 而靠近壁面区域的径向温度梯度明显增大。本研究可为固定床反应器中真实催化剂颗粒群结构重构及多孔材料固体-孔隙双域多物理场耦合过程研究提供重要参考。

关键词: 三维 CT 成像; 四叶草催化剂; 固定床反应器; 反应-传质-传热; 计算流体力学

中图分类号: TQ 021.4

文献标志码: A

文章编号: 0438-1157 (XXXX) XX-0001-16

Three-dimensional geometric reconstruction and CFD simulation of an ethylene epoxidation packed-bed reactor based on X-ray computed tomography

ZHOU Jipeng^{1,2}, HE Laibin², LI Yingcheng^{1,2}, LI Mujin², LI Liyuan², HE Xiujuan², CHENG Zhenmin¹

(¹ State Key Laboratory of Chemical Engineering and Low-Carbon Technology, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China; ² SINOPEC Shanghai Research Institute of Petrochemical Technology Co., Ltd., Shanghai 201208, China)

Abstract: In this study, three-dimensional X-ray computed tomography (CT) is employed to reconstruct the real packed bed of quadrilobe catalyst particles. Particle-resolved computational fluid dynamics (CFD) simulations are then conducted to investigate the coupled flow, reaction, mass transfer, and heat transfer processes in an ethylene epoxidation packed-bed reactor. CT imaging effectively captures local defects and complex geometrical features of the catalyst particles. Based on the reconstructed structure, the hydraulic diameter of the quadrilobe catalyst packed bed is determined to be 0.89 mm. The results show that the fluid bypasses catalyst particles, forming complex local flow structures. Pronounced concentration gradients of reactants and products develop near the solid - fluid interfaces. Due to intraparticle diffusion resistance, pronounced concentration gradients develop inside the catalyst

收稿日期: 2026-06-23 修回日期: 2026-07-09

通信作者: 李应成(1972—), 男, 博士, 教授, liyc.sshy@sinopec.com; 程振民(1967—), 男, 博士, 教授, zmcheng@ecust.edu.cn

第一作者: 周继鹏(1990—), 男, 博士研究生, zhoujp.sshy@sinopec.com

引用本文: 周继鹏, 贺来宾, 李应成, 李木金, 李丽媛, 何秀娟, 程振民. 基于三维 CT 成像的乙烯环氧化固定床反应器结构重构与数值模拟研究[J]. 化工学报, XXXX, XX(XX): 1–16

Citation: ZHOU Jipeng, HE Laibin, LI Yingcheng, LI Mujin, LI Liyuan, HE Xiujuan, CHENG Zhenmin. Three-dimensional geometric reconstruction and CFD simulation of an ethylene epoxidation packed-bed reactor based on X-ray computed tomography[J]. CIESC Journal, XXXX, XX(XX): 1–16

particles, whereas the temperature distribution remains relatively uniform. Axial convection enhances convective heat transfer, leading to a relatively small axial temperature gradient in the reactor, while a more pronounced radial temperature gradient is observed near the reactor wall. This work provides important insights into the geometric reconstruction of realistic catalyst particle assemblies in packed-bed reactors and the coupled multiphysics transport processes in solid - pore dual-domain porous media.

Keywords: three-dimensional X-ray computed tomography; quadrilobe catalyst; packed-bed reactor; reaction - mass - heat transfer; computational fluid dynamics

引 言

固定床反应器在石油化工、能源转化及环境催化等领域具有广泛应用。固定床内催化剂颗粒的堆积结构会显著影响流体流动、传质传热及反应行为,因此,建立真实的催化剂颗粒堆积模型对于研究固定床内复杂传递过程具有重要意义^[1]。早期研究多采用人为构建颗粒群模型的方法^[2,3],通过手动绘制少量颗粒建立床层结构。但由于颗粒数量有限,且颗粒空间位置由人为设定,与实际随机堆积床层存在较大差异,难以准确表征固定床内部复杂空隙结构及流动特性。随着三维建模技术的发展,采用计算机随机生成催化剂颗粒床层逐渐成为研究固定床结构与流动行为的重要方法^[4]。目前,基于刚体动力学的颗粒堆积方法主要包括离散元法(DEM)和Blender随机堆积法。EDEM等离散元软件可通过颗粒运动与碰撞过程生成随机床层^[5]。张亚新等^[6]采用DEM方法构建了七孔圆柱形催化剂颗粒床层,但该方法通常采用多个小球拟合复杂颗粒几何结构,模型精度仍存在一定不足。近年来,基于刚体动力学的Blender软件逐渐应用于固定床颗粒堆积研究^[7]。Boccardo等^[8,9]于2014年率先将Blender软件应用于三叶草催化剂颗粒床层的随机堆积模拟。相比于传统DEM多球组合方法,Blender能够更加真实地表征复杂颗粒几何结构,其生成的颗粒床层具有良好的随机性,且径向空隙率分布与实验结果^[10]吻合良好,为固定床反应器高保真数值模拟提供了可靠的结构基础。

近十年来,颗粒分辨固定床反应器的数值模拟得到了广泛研究,其催化剂颗粒床层大多采用Blender软件进行随机堆积建模^[11-16]。段学志等^[7]基于Blender与COMSOL构建了不同颗粒形状固定床反应器模型,揭示了颗粒形状对乙烯氧化过程中流动、传质传热及反应行为的影响规律。辛峰等^[17]研究了颗粒形状对固定床反应器性能的影响,结果表

明四叶草催化剂在芳烃异构化反应中具有较优的综合性能。Kutscherauer等^[18]发现,惰性颗粒稀释床层会显著影响强放热固定床反应器内的反应行为及热点分布。尽管Blender能够有效构建颗粒堆积床层的三维几何结构,但其适用范围主要局限于由离散颗粒随机堆积形成的体系。对于开孔泡沫催化剂等整体结构材料^[19,20],以及纳米至微米尺度多孔材料的真实三维结构,Blender几乎不能实现准确重构。相比之下,三维成像技术能够直接表征多孔材料的真实三维几何结构,为其三维重构及高保真数值模拟提供可靠的技术支撑^[21]。

三维成像技术主要包括光学三维扫描、计算机断层扫描(computed tomography, CT)、磁共振成像(MRI)和聚焦离子束-扫描电镜(FIB-SEM)成像等^[22,23]。其中,光学三维扫描仅能获取材料表面形貌信息,而CT、MRI和FIB-SEM均可实现内部结构的三维表征。相比之下,CT因兼具较高的成像精度、无损检测能力和适中的实验成本,在多孔材料三维结构表征领域得到了广泛应用。Ming等^[24]利用Micro-CT重构了珊瑚的真实三维孔隙结构,并研究了孔隙结构对渗流、氯离子扩散及力学性能的影响。Wang等^[25]基于X射线CT和孔隙网络模型研究了水合物分解过程中孔隙结构演化对沉积物渗透率及气液两相流动特性的影响。Ansah等^[26]利用Micro-CT研究了铜硫化矿孔隙结构演化对流体传输行为的影响。其中,后两者研究对象与固定床反应器尺度相近,但主要关注孔隙结构对流动与传输过程的影响,对于颗粒内部反应、传质与传热耦合行为的研究仍较为缺乏。

三维成像技术不仅能够无损表征材料内部结构,还可用于流场表征。Romijn等^[27]利用MRI技术测量了固定床反应器内的三维速度场,并结合计算流体力学(CFD)模拟分析了床层局部流动特性,验证了颗粒分辨CFD模拟在表征固定床流动行为方面的可靠性。Elgersma等^[28]利用MRI实现了非球形

颗粒固定床内三维速度场和湍流动能的原位测量,揭示了颗粒雷诺数对流动分布及湍流特性的影响规律。上述研究主要关注固定床内的流动行为,对于反应、传质与传热耦合过程的研究仍不够深入。

目前,基于三维CT成像技术的数值模拟研究主要通过重构材料内部孔隙结构,重点关注孔隙域内的流动与传输过程^[29,30],而同时考虑固体域与孔隙域反应、传质及传热耦合行为的研究仍较少。对于尺寸不均且存在局部缺陷的催化剂颗粒群,基于刚体动力学的随机堆积方法难以准确表征其真实堆积结构。本研究以乙烯环氧化强放热反应为研究对象,利用三维CT成像技术重构四叶草形催化剂床层结构,建立包含固体域和空隙域的颗粒分辨CFD模型,对床层内流动、反应、传质与传热耦合过程进行数值模拟研究,以揭示真实催化剂床层内多物理场耦合传递规律。研究流程对固定床反应器及复杂多孔材料的结构重构与数值模拟具有重要借鉴意义。

1 颗粒分辨固定床反应器数学模型

1.1 反应本征动力学模型

选取Ag/Al₂O₃催化剂上乙烯(ET)氧化制环氧乙烷(EO)反应作为研究体系。在动力学模型中,考虑了3个不可逆反应,以描述乙烯环氧化过程中的主要反应路径。选取ET和CO₂作为关键组分,其余组分浓度依据反应计量关系由关键组分浓度进行计算。

$2C_2H_4+O_2=2C_2H_4O$	(R-1)
$C_2H_4+3O_2=2CO_2+2H_2O$	(R-2)
$2C_2H_4O+5O_2=4CO_2+4H_2O$	(R-3)

采用高崇等^[31]提出的本征动力学模型,其动力学表达式如下:

$$r_1 = \frac{1000k_1 \cdot P_{O_2} \cdot P_{ET}}{3600(1 + K_1 \cdot P_{O_2} + K_2 \cdot P_{O_2}^{1/2} \cdot P_{H_2O})} \text{mol ET} \cdot \text{kgcat}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \quad (1)$$

$$r_2 = \frac{1000k_2 \cdot P_{O_2}^{1/2} \cdot P_{ET}}{3600(1 + K_1 \cdot P_{O_2} + K_2 \cdot P_{O_2}^{1/2} \cdot P_{H_2O})} \text{mol ET} \cdot \text{kgcat}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \quad (2)$$

$$r_3 = \frac{1000k_3 \cdot P_{O_2} \cdot P_{EO}}{3600(1 + K_1 \cdot P_{O_2} + K_2 \cdot P_{O_2}^{1/2} \cdot P_{H_2O})} \text{mol EO} \cdot \text{kgcat}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \quad (3)$$

式中, r_1 、 r_2 和 r_3 分别表示反应(R-1)、反应(R-2)中ET的消耗速率以及反应(R-3)中EO的生成速

率; P_i 为组分*i*的分压,MPa,其中*i*=O₂、ET、EO、H₂O; k_i 和 K_i 分别为反应速率常数和吸附平衡常数。

反应速率常数 k_i 由Arrhenius方程(4)计算,吸附平衡常数 K_i 则根据Van't Hoff方程(5)确定。

$$k_i = A_i \exp\left(-\frac{E_i}{R_g T}\right) (i=1, 2, 3) \quad (4)$$

$$K_i = A'_i \exp\left(\frac{E'_i}{R_g T}\right) (i=1, 2) \quad (5)$$

式(4)和式(5)所涉及的动力学参数见表1^[31], R_g 是理想气体常数,为8.314 J·mol⁻¹·K⁻¹; T 是温度,K。

表1 本征反应动力学参数

Table 1 Parameters applied in the intrinsic reaction kinetics

参数	<i>i</i> =1	<i>i</i> =2	<i>i</i> =3
A_i	1.2001×10 ⁵	5.5473×10 ⁷	8.0591×10 ⁷
E_i	4.5638×10 ⁴	8.1289×10 ⁴	1.0170×10 ⁵
A'_i	5.9137×10 ⁻²	3.9984×10 ⁻¹	N/A
E'_i	1.8322×10 ⁴	3.6828×10 ⁴	N/A

注:N/A表示“不适用”。

1.2 颗粒分辨计算流体力学模型

描述固定床反应器内流动、反应、传质与传热耦合过程的控制方程组如下:

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (6)$$

$$\rho(\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\nabla p + \nabla \cdot \left[\mu (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) - \frac{2}{3} \mu (\nabla \cdot \mathbf{u}) \mathbf{I} \right] + \mathbf{F} \quad (7)$$

$$\nabla \cdot (-D_i^{\text{eff}} \nabla c_i) + \mathbf{u} \cdot \nabla c_i = R_i \quad (8)$$

$$\rho c_p \mathbf{u} \cdot \nabla T + \nabla \cdot (-\lambda_{\text{eff}} \nabla T) = Q_r \quad (9)$$

式(6)和式(7)分别为连续性方程和动量守恒方程。式中, ρ 为流体密度,kg·m⁻³; $\mathbf{u}$ 为流体速度,m·s⁻¹; p 为压力,Pa; μ 为流体动力黏度,Pa·s; $\mathbf{I}$ 表示单位张量; $\mathbf{F}$ 为作用于流体的体积力,N·m⁻³。由于催化剂固体域内不存在流体流动,因此连续性方程和动量方程仅在流体域内求解。式(8)为反应-扩散方程,用于描述组分*i*的反应与传质过程,*i*=ET,CO₂。式中, D_i^{eff} 为有效扩散系数,m²·s⁻¹; c_i 表示组分*i*的摩尔浓度,mol·m⁻³。在流体域中, D_i^{eff} 表示流体相的有效扩散系数;在催化剂固体域中,则表示催化剂的有效扩散系数。 R_i 为催化剂内部组分*i*的体积反应速率,mol·m⁻³·s⁻¹。由于流体域内不发生化学反应,因此该项取0。式(9)为能量守恒方程。式中, T 为温度,K; c_p 为定压比热容,J·kg⁻¹·K⁻¹; λ_{eff} 为有

效导热系数, $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, 在流体域和固体域内分别对应流体和催化剂的导热系数。 Q_r 表示催化剂内部放热反应产生的体积热源项, $\text{W} \cdot \text{m}^{-3}$ 。由于反应只发生在固体催化剂内部, 在流体域中, Q_r 为 0。为实现固定床反应器内流动、反应、传质与传热耦合过程的描述, 反应-扩散方程和能量守恒方程同时在流体域与固体催化剂域内求解。

催化剂内部组分 i 的有效扩散系数 $D_{i,s}^{\text{eff}}, \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, 其与局部浓度、温度以及孔径有关, 由分子扩散和 Knudsen 扩散共同决定^[32]:

$$D_{i,s}^{\text{eff}} = (D_{m,i}^{\text{eff}-1} + D_{k,i}^{\text{eff}-1})^{-1} \quad (10)$$

分子扩散系数 $D_{m,i}^{\text{eff}}, \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, 采用下式进行计算:

$$D_{m,i}^{\text{eff}} = \frac{1 - y_i}{\sum_{j \neq i} \frac{y_j}{D_{ij,s}^{\text{eff}}}} \quad (11)$$

式中, $i = \text{ET}, \text{CO}_2, j = \text{ET}, \text{CO}_2, \text{EO}, \text{H}_2\text{O}, \text{O}_2, \text{N}_2$, $j \neq i$ 。 y_i 表示催化剂内部组分 i 的摩尔分数。

$D_{ij,s}^{\text{eff}}$ 表示催化剂内部组分 i 与组分 j 之间的二元扩散系数, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, 其计算采用下式:

$$D_{ij,s}^{\text{eff}} = \frac{\varepsilon}{\tau} \frac{0.00143T^{1.75}}{p_i M_i^{1/2} (V_i^{1/3} + V_j^{1/3})^2} \cdot 10^{-4} \quad (12)$$

式中, ε 和 τ 分别为催化剂的孔隙率和曲折因子; p_i 为体系总压, bar; M_i 表示组分 i 的摩尔质量, $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$; V_i 为组分 i 的扩散体积。

$D_{k,i}^{\text{eff}}$ 为组分 i 的 Knudsen 扩散系数, $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, 其计算采用下式:

$$D_{k,i}^{\text{eff}} = \frac{\varepsilon}{\tau} \cdot \frac{97}{2} d_{\text{pore}} \sqrt{\frac{T}{M_i}} \quad (13)$$

式中, d_{pore} 为催化剂纳米孔孔径, m 。

流体域有效扩散系数由下式计算:

$$D_{i,f}^{\text{eff}} = \frac{1 - y_i}{\sum_{j \neq i} \frac{y_j}{D_{ij,f}^{\text{eff}}}} \quad (14)$$

式中, $D_{ij,f}^{\text{eff}}$ 采用下式进行计算:

$$D_{ij,f}^{\text{eff}} = \frac{0.00143T^{1.75}}{p_i M_i^{1/2} (V_i^{1/3} + V_j^{1/3})^2} \cdot 10^{-4} \quad (15)$$

催化剂的有效导热系数受固体骨架本征导热系数、孔隙内气体导热系数、气体组成及孔隙率等因素影响, 其计算采用下式^[33]:

$$\lambda_{\text{eff},s} = \lambda_s \left[\left(\sum_{i=1}^N y_i \lambda_{g,i} M_i^{\frac{1}{3}} \right) / \left(\sum_{i=1}^N y_i M_i^{\frac{1}{3}} \right) \right] / \lambda_s^{\text{ce}} \quad (16)$$

式中, λ_s 为固体骨架本征导热系数, $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$; $\lambda_{g,i}$ 为孔隙内组分 i 气体的导热系数, $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, 其中 i 为 ET、CO₂、EO、H₂O、O₂ 和 N₂; 气体组分总数 $N=6$;

参数 c 为表征催化剂微观结构特征的经验系数。

流体域内的有效导热系数采用下式进行计算:

$$\lambda_{\text{eff},f} = \sum_{i=1}^N y_i \lambda_{g,i} M_i^{\frac{1}{3}} / \sum_{i=1}^N y_i M_i^{\frac{1}{3}} \quad (17)$$

1.3 三维 CT 成像实验与结构重构

图 1 展示了四叶草催化剂床层三维 X 射线微米 CT 成像及数字几何重构流程。图 1a 为反应管内装填四叶草催化剂颗粒的实物照片。图 1b 为本研究采用的 Micro-CT 测试系统 (nanoVoxel-4000, 三英精密仪器)。CT 实验通常在满足样品尺寸要求的前提下尽可能采用较高的空间分辨率, 以获取更丰富的微观结构细节, 为后续图像处理及定量分析提供可靠的数据基础。本实验获得的 CT 三维图像体素尺寸 (voxel size) 为 $15.5 \mu\text{m}$, 各方向体素数分别为 $800 \times 800 \times 2200$ ($x \times y \times z$), 原始 RAW 数据文件大小约为 2.6 GB。阈值分割过程中, 通常需要 2-3 个体素才能较为准确地区分某一区域为孔隙或固体相。因此, 本实验可分辨的最小孔或者固体尺寸为 $31 - 46.5 \mu\text{m}$ 。获得 CT 扫描数据后, 经图像重构得到床层截面的二维灰度图像, 如图 1c 所示。随后利用 Avizo 软件对灰度图像进行阈值分割, 提取得到催化剂固体结构。图 1d 为经过阈值分割及降噪处理后获得的四叶草催化剂床层三维重构结果, 不同颜色表示不同催化剂颗粒。

1.4 网格划分

图 2 展示了基于 CT 成像的四叶草催化剂颗粒群三维几何重构及网格划分过程。由于直接对 2.6 GB 的 RAW 数据创建 STL 表面网格时, 生成的表面三角形网格数量可超过 1 亿, 计算资源消耗极大, 甚至无法完成网格生成。因此, 在创建 STL 表面网格之前, 采用 Avizo 软件对 CT 数据进行重采样 (体素合并) 处理, 适当降低原始数据分辨率, 以减少表面网格数量并降低计算资源消耗。重采样过程会导致部分局部结构细节的损失, 但这些细节对整体几何结构及后续 CFD 计算结果的影响较小, 可以忽略不计。图 2a 为利用 Avizo 软件对 CT 图像进行阈值分割后获得的四叶草催化剂颗粒群表面网格模型, 并将其导出为 STL 格式文件。反应器直径为 6.06 mm, 催化剂床层高度为 29.1 mm。图 2a 局部放大区域显示, 部分四叶草催化剂颗粒存在局部结构缺陷。基于 CT 成像重构的三维几何模型能够准确保留催化剂颗粒的表面形貌及内部结构特征 (如局部缺陷和复杂曲率变化), 从而克服传统二维成像及人工几

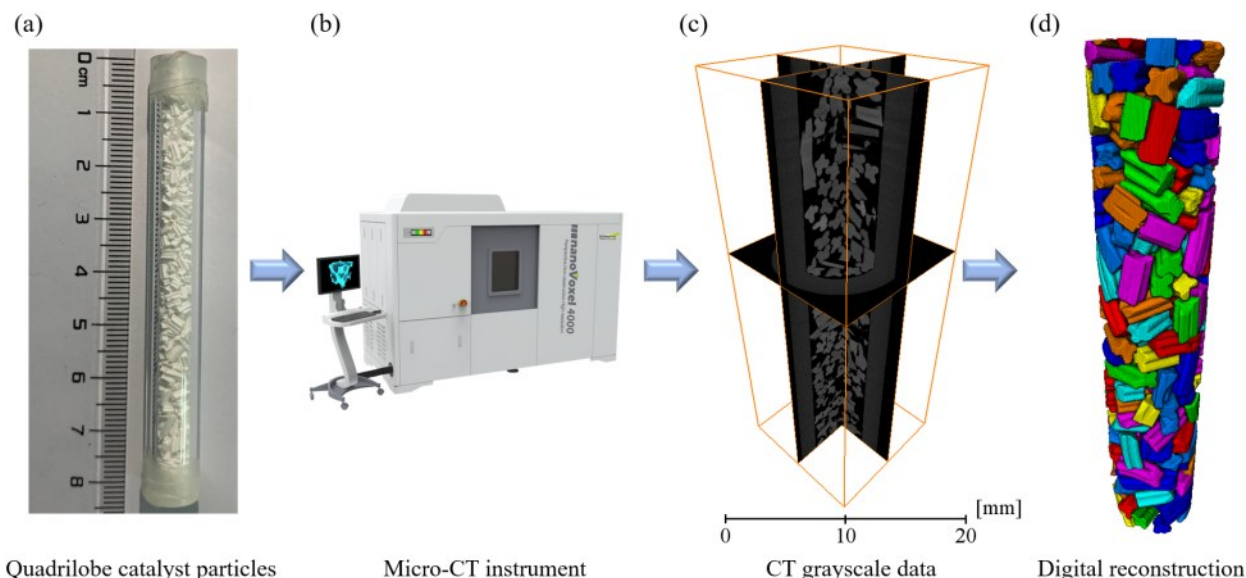


图1 三维CT成像实验流程(a)四叶草催化剂实物图,(b)Micro-CT仪器,(c)CT实验灰度图片,(d)颗粒群三维几何重构结果

Fig.1 Experimental workflow of three-dimensional CT imaging: (a) photograph of the quadrilobe catalyst; (b) micro-CT system; (c) grayscale image obtained from CT scanning; (d) reconstructed three-dimensional geometry of the catalyst particles

何构建方法难以真实表征颗粒三维结构的问题。将重构后的催化剂颗粒STL模型导入COMSOL软件,并构建圆柱形计算区域以模拟实际反应器结构。其中,固体催化剂区域与圆柱区域之间的空隙部分定义为流体域。随后,对固体催化剂域和流体域进行同时剖分网格。图2b展示了反应器中部区域的网格分布情况。反应物由反应器底部进入,并从顶部流出。由图2b局部放大图可见,在催化剂-流体界面以及反应器壁面附近均设置了3层边界层网格,以准确捕捉界面区域的浓度和温度梯度变化。重采样后的CT数据在进行阈值分割时,相邻催化剂颗粒局部区域会出现轻微粘连现象,如图2b局部放大图右上角所示。该局部粘连对颗粒群整体几何结构影响较小,同时可有效避免相邻颗粒间过窄间隙导致网格数量急剧增加。图2c为固体催化剂域与流体域交界面的网格划分结果,其为图2b中红色圆圈区域的局部放大图。其中,绿色和蓝色分别表示固体域与流体域网格,红色虚线表示固-流交界面。图2d为网格无关性验证结果。综合计算精度与计算效率,本研究最终采用1106万网格进行数值计算。

1.5 边界条件及求解方法

反应器操作压力为2.2 MPa,入口气体温度与反应器壁面温度为483.15 K。入口混合气组成(摩尔分数)为:ET 3.3%、O₂ 18.5%、H₂O 0.05%、N₂ 78.15%。入口气体流速设定为0.02 m·s⁻¹。在该操

作条件下,固定床反应器的空速为2472 h⁻¹,颗粒雷诺数 Re_p 为16。根据文献报道,随机装填固体催化剂颗粒的固定床反应器内,流动状态由层流向湍流转变的临界颗粒雷诺数范围约为200~700^[34]。因此,本研究条件下床层内流体处于层流状态,动量守恒方程采用层流模型进行求解。基于COMSOL软件的有限元方法(FEM),对式(6)~式(9)采用分离式求解器同时进行求解,计算过程表现出良好的收敛特性。本研究的CT数据后处理与CFD计算均在配备Intel i5-9300H处理器和16 GB运行内存的计算机上完成。采用1106万网格的颗粒分辨CFD模型,单次计算耗时约5 h。

2 结果与讨论

2.1 模型验证

Kolaczowski等^[35]研究了装填球形催化剂颗粒的反应器内丙烷催化燃烧过程中的流动、反应、传质和传热耦合过程。图3对比了本研究基于COMSOL模拟获得的球形催化剂颗粒内丙烷浓度分布与文献报道数据。图3a展示了反应器内浓度分布。由于对流传质作用,流体域内反应物浓度较高且分布较为均匀;而球形催化剂颗粒内部由于化学反应消耗,反应物浓度明显降低。图3a中的圆形等值线表示浓度分布。由图可知,浓度梯度在催化剂外表面附近达到最大。图3b展示了图3a中红色直

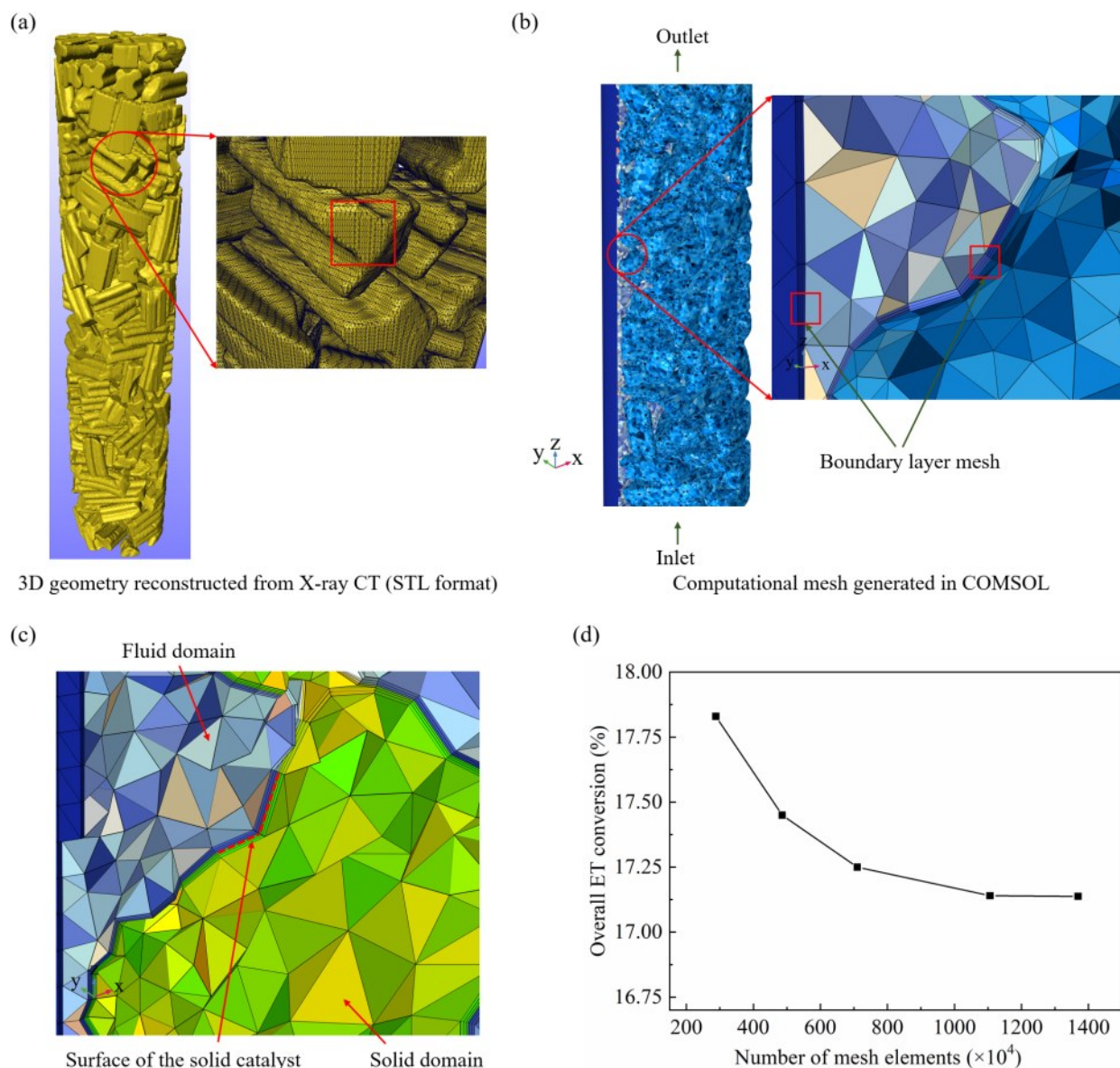


图2 四叶草催化剂颗粒群三维结构重构与网格划分(a)催化剂颗粒群STL表面网格,(b)反应器计算域网格,(c)固体域与流体域交界面处网格,(d)网格无关性验证

Fig.2 Three-dimensional reconstruction and mesh generation of the quadrilobe catalyst particles: (a) STL surface mesh of the catalyst particles; (b) computational domain mesh of the reactor; (c) mesh at the interface between the solid catalyst domain and the fluid domain, (d) mesh independence verification

线所对应路径上的丙烷浓度分布,即球形催化剂颗粒径向方向上的浓度分布。其中实线表示本研究模拟结果,三角形符号表示文献数据。可以看出,本研究模拟获得的丙烷浓度分布与文献结果保持较好一致性,表明本研究所建立的数值模型及求解方法能够有效预测固定床反应器内多物理场耦合传递行为。

2.2 孔隙网络模型

利用 Avizo 软件对四叶草催化剂颗粒间空隙结

构进行孔隙网络模型(Pore Network Model, PNM)分析,结果如图4所示。图4a为孔隙网络球棍模型,其中球体表示孔隙,连接相邻孔隙的圆柱体表示孔喉。图4b展示了嵌入催化剂三维实体结构中的孔隙网络模型。图4c给出了孔隙网络配位数分布,配位数定义为与单个孔隙相连的孔喉数量,较高的配位数表明孔隙具有更好的连通性。由图4c可知,催化剂内部不存在配位数为0的孔隙,表明床层内部未形成孤立孔结构。其中,配位数为8和17的孔隙

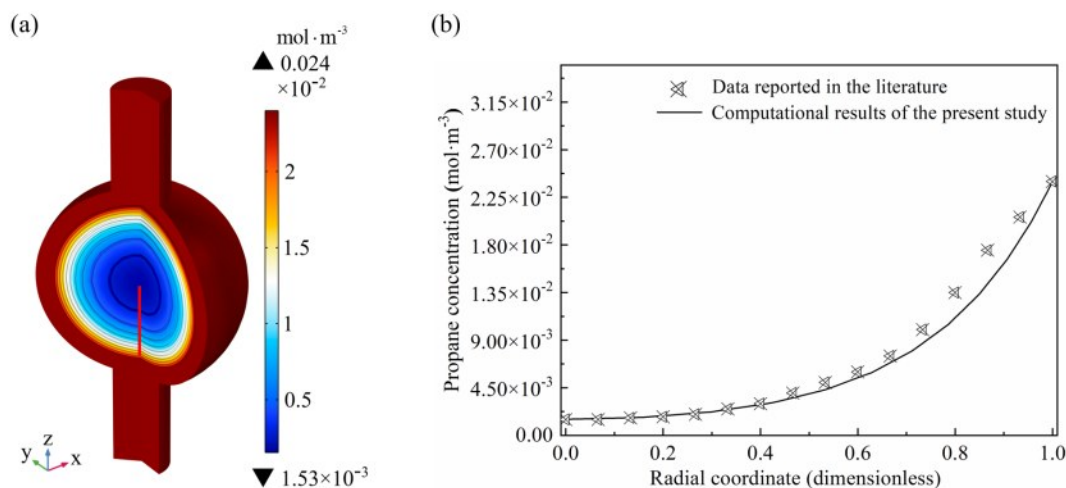


图3 催化剂颗粒内丙烷浓度分布的COMSOL模拟结果与文献数据对比(a)反应器内浓度三维分布,(b)球形催化剂颗粒径向浓度分布

Fig.3 Comparison between COMSOL simulation results and literature data for propane concentration distribution: (a) Three-dimensional concentration distribution in the reactor; (b) radial concentration distribution within the spherical catalyst particle

体积分数分别达到10.5%和9.1%,说明催化剂床层具有良好的孔隙连通性,与实际堆积结构特征一致。图4d为催化剂床层径向空隙率分布,可以观察

到空隙率沿径向方向呈现周期性波动特征,该分布趋势与文献实验结果^[10]一致。

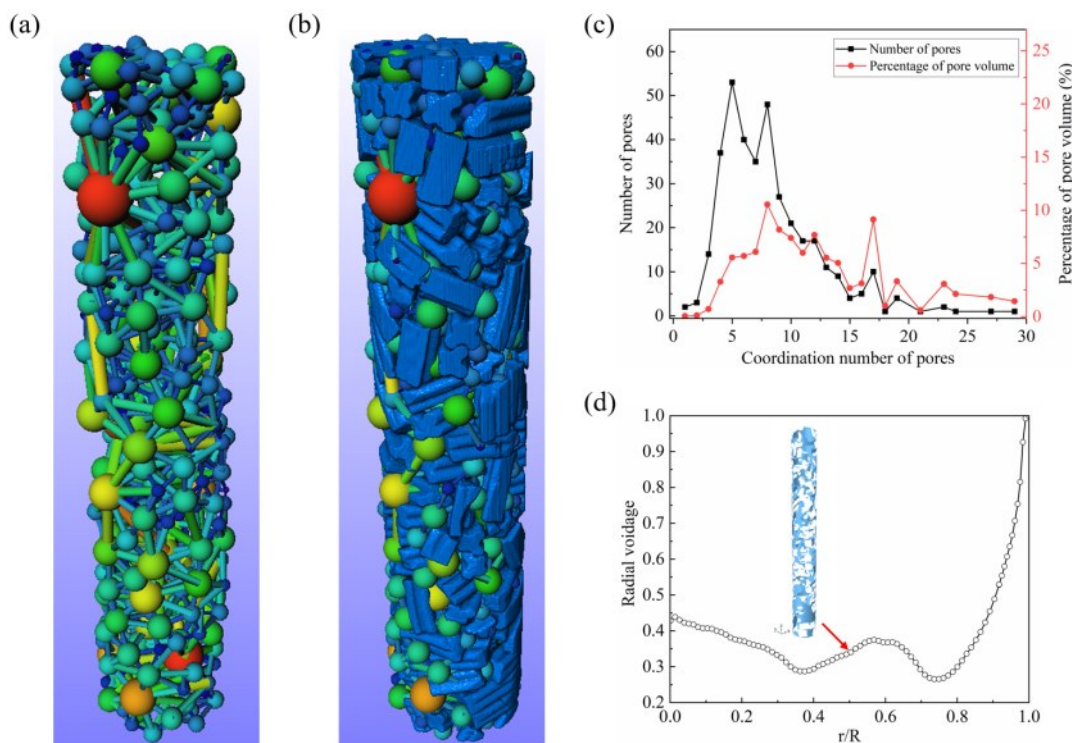


图4 孔隙网络模型(a)球棍模型,(b)孔隙网络模型与催化剂床层结构嵌套,(c)配位数分布,(d)催化剂床层径向空隙率分布
Fig.4 Pore network model: (a) ball-and-stick representation; (b) integration of the pore network model with the catalyst bed structure; (c) coordination number distribution; (d) radial voidage distribution of the catalyst bed

该四叶草催化剂四个叶瓣外接圆直径主要分布在1.2 mm左右,颗粒长度分布范围为1.5–4.2 mm。由于催化剂颗粒尺寸存在较大差异,单一颗粒

特征尺寸难以准确表征整个颗粒床层的流动特征。相比之下,水力学直径能够有效描述流体在催化剂颗粒间空隙中的流动尺度^[36]。通过对催化剂颗粒群

三维几何结构进行积分计算,得到颗粒群总外表面积为 $1.89 \times 10^{-3} \text{ m}^2$,颗粒总体积为 $4.18 \times 10^{-7} \text{ m}^3$,催化剂床层(不包含反应器入口段和出口段)空隙体积为 $4.22 \times 10^{-7} \text{ m}^3$ 。根据下式可计算得到催化剂床层的水力学直径:

$$d_h = \frac{4 \times \text{void volume}}{\text{surface area}} = \frac{4 \times 4.22 \times 10^{-7} \text{ m}^3}{1.89 \times 10^{-3} \text{ m}^2} = 0.89 \text{ mm} (18)$$

X射线CT成像技术能够高精度获取催化剂颗粒群真实三维结构,为颗粒尺度反应器模拟提供可靠的几何基础。相比之下,Blender和EDEM等基于理想化单颗粒模型的随机堆积方法难以表征真实催化剂颗粒的局部缺陷及复杂几何特征。对于具有微米至纳米尺度孔结构的多孔材料,基于刚体动力学的颗粒堆积方法不能重构其内部复杂孔隙结

构,而微米CT及纳米CT等高分辨率三维成像技术为复杂多孔材料真实结构重构提供了有效途径。

2.3 压力、流线和温度三维计算结果

图5展示了基于CT成像重构的颗粒分辨固定床反应器模拟计算结果。图5a为催化剂外表面及反应器壁面的压力分布。可以看出,反应器入口处压力较高,沿流动方向逐渐降低,并在出口区域达到最低值,反应器整体压降为6.99 Pa。图5b为反应器内部流线分布,颜色表示局部流速大小。由局部放大图可见,当流体流经固体催化剂颗粒时,由于固体结构的阻碍作用,流体绕流催化剂颗粒并形成复杂的局部流动特征。图5c给出了反应器内xy、xz截面的温度分布。

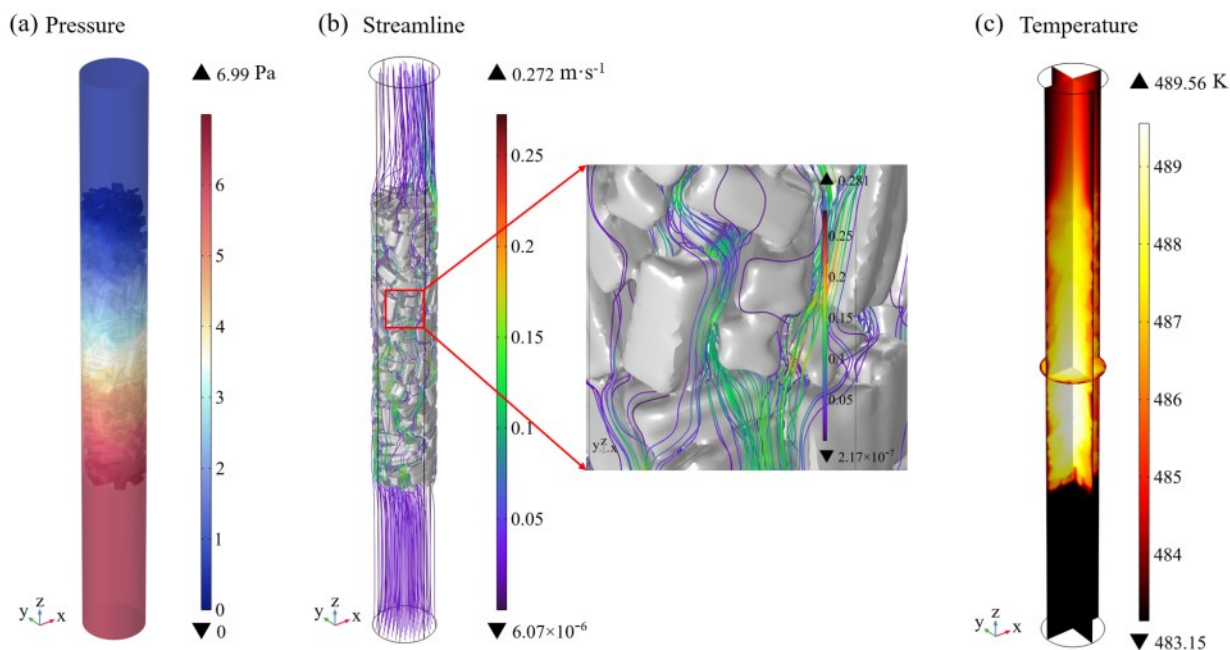


图5 基于CT成像的颗粒分辨固定床反应器模型计算结果(a)压力分布,(b)流线,(c)温度分布

Fig.5 Simulation results of the CT-based particle-resolved packed-bed reactor model: (a) pressure distribution; (b) streamlines; (c) temperature distribution

图6展示了颗粒分辨固定床反应器内速度场分布特征。图6a为反应器轴向yz截面上的速度分布,流体由反应器底部进入并从顶部流出。可以看出,流体通过催化剂颗粒间隙时受到固体结构阻碍,并在催化剂下游区域形成局部尾流。图6b给出了催化剂床层入口、中部和出口位置处径向截面的速度分布。图6c为沿反应器中心轴线方向的速度变化规律。由于入口段流动边界层的发展,靠近管壁区域的流速逐渐降低,而中心区域流速相应增加。在进入催化剂床层前,中心轴线流速由入口速度 0.02

$\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 增加至 $0.037 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。进入催化剂床层后,固体催化剂颗粒占据部分流通空间,使局部有效流通面积减小,从而导致流速进一步提高。当流体靠近催化剂颗粒表面时,受固体边界约束作用,局部速度逐渐降低,并在固体表面附近趋近于零。因此,催化剂床层内中心轴线速度呈现明显波动特征。图6d为沿反应器轴向方向各xy截面的平均速度分布。反应器入口和出口区域的平均速度均保持为 $0.02 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$,而在催化剂床层区域,由于固体颗粒降低了有效流通面积,截面平均速度明显升高。

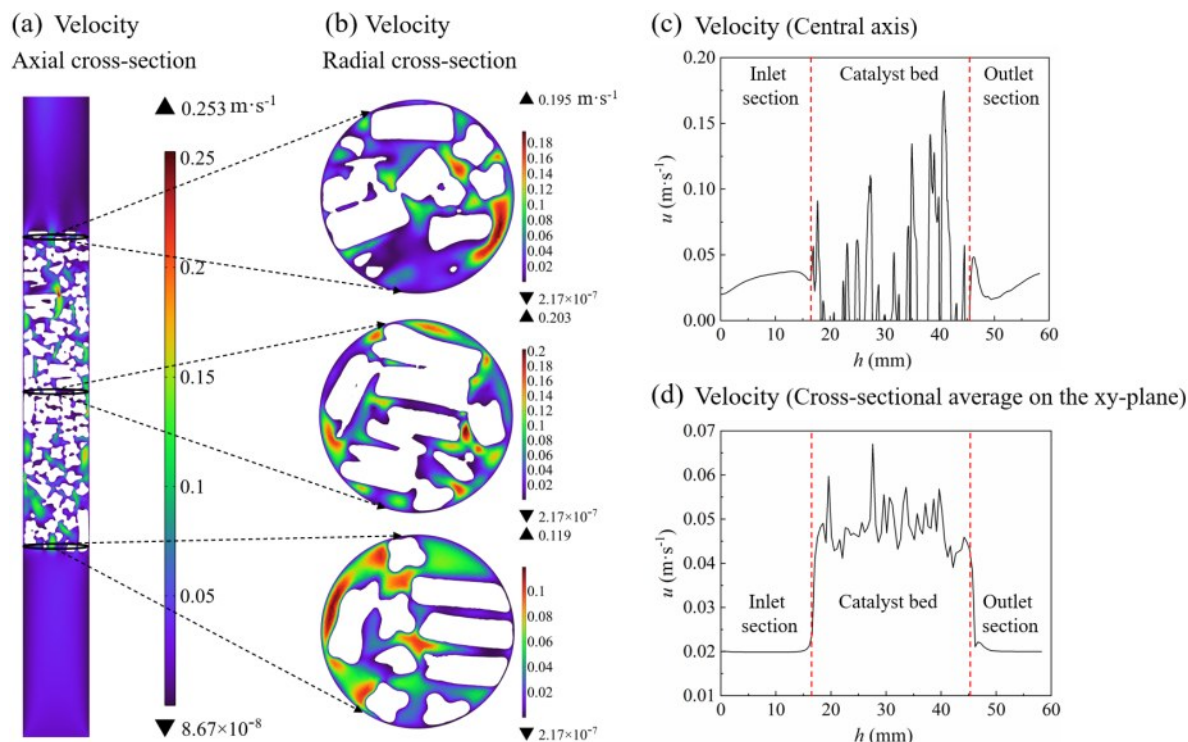


图6 速度分布(a)yz截面速度,(b)xy截面速度,(c)中心轴上速度,(d)xy截面上平均速度

Fig.6 Velocity distribution: (a) velocity contour on the yz plane; (b) velocity contour on the xy plane; (c) velocity profile along the central axis; (d) cross-sectional averaged velocity on the xy plane

2.4 有效扩散系数和有效导热系数

图7给出了反应器yz截面上有效扩散系数和有效导热系数的分布。图7a和图7b分别为ET和CO₂的有效扩散系数分布。计算得到,ET在催化剂固体域和流体域中的体积平均有效扩散系数分别为 $1.83 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $1.67 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$,CO₂对应数值分别为 $1.77 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $1.74 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 。可以看出,两种组分在流体域中的有效扩散系数均明显高于催化剂固体域,表明催化剂内部孔隙结构对组分扩散传递产生了显著阻碍作用。图7c为有效导热系数分布,催化剂固体域和流体域的体积平均有效导热系数分别为 $0.579 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 和 $0.0389 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 。相比流体域,催化剂固体骨架具有更高的导热能力,有利于催化剂内部热量传递。

2.5 反应速率分布

图8展示了反应器内主反应速率 r_1 及副反应速率 r_2 、 r_3 的空间分布。图8a-c分别为催化剂颗粒群外表面上 r_1 、 r_2 和 r_3 的分布,图8d-f则对应其在yz截面上的分布。由于反应速率对温度具有显著依赖性,且反应器热点区域位于催化剂颗粒群靠近流体入口侧(见图11温度分布),因此 r_1 和 r_2 的高值区域主要集中于该区域,如图8a和图8b所示。 r_1 和 r_2 分

别对应反应物ET参与的主反应及副反应过程。由于ET在催化剂内部扩散过程中受到孔结构限制,其在流体域中的浓度高于催化剂内部。因此,如图8d和图8e所示 r_1 与 r_2 在催化剂外表面附近达到较高值,并随着向催化剂内部扩散距离增加而逐渐降低。而 r_3 对应反应产物EO的进一步氧化过程。由于EO主要在催化剂内部生成,其在固体催化剂内部的浓度高于催化剂外表面,因此图8f中 r_3 的高值区域主要分布于催化剂内部,而外表面附近的反应速率相对较低。

2.6 浓度分布

图9为反应物ET在反应器内的浓度分布。图9a为催化剂外表面ET浓度分布。沿流体流动方向(由下至上),ET浓度逐渐降低,并在催化剂床层顶部附近达到最低值。图9b给出了yz截面上的ET浓度分布。由于ET为反应物,其在流体域中的浓度高于催化剂内部。图9c自下而上依次为催化剂床层的入口、中部及出口xy截面上的ET浓度分布。图9d为反应器中心轴线上的ET浓度变化规律。可以观察到,中心轴线上ET浓度并非单调下降,而是出现多个局部“V”形区域,该区域对应中心轴线穿过固体催化剂颗粒的位置。由于流体区域内对流传

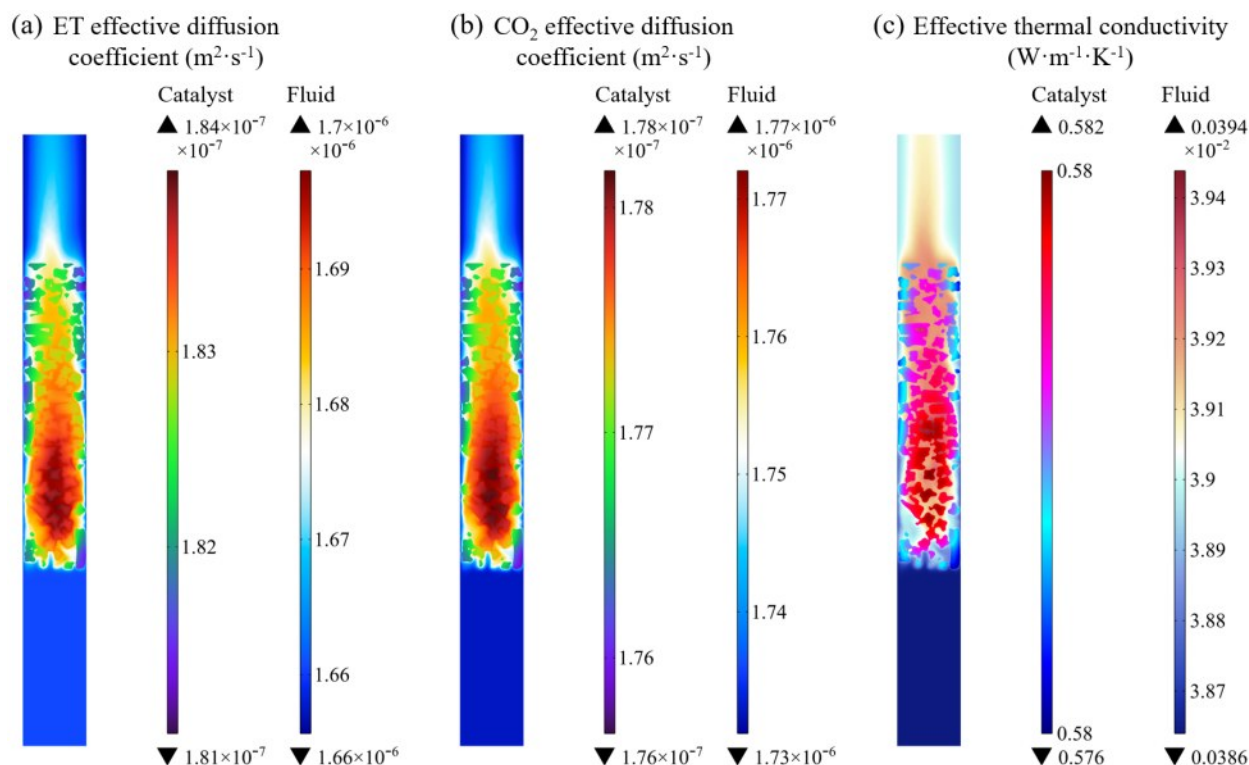


图7 有效扩散系数和有效导热系数分布(a)ET有效扩散系数,(b)CO₂有效扩散系数,(c)有效导热系数

Fig.7 Distributions of effective diffusion coefficient and effective thermal conductivity: (a) effective diffusion coefficient of ET, (b) effective diffusion coefficient of CO₂, (c) effective thermal conductivity

质作用较强,催化剂迎流面与背流面的ET浓度差异较小。当ET由催化剂外表面向内部扩散时,由于持续参与反应并被消耗,其浓度逐渐降低,从而形成局部“V”形浓度分布特征,且“V”形呈现一定的对称性。图9d中红色圆圈对应图9b中标出的局部放大点,该位置处中心轴线穿过固体催化剂颗粒,穿透长度为0.88 mm。图9d局部放大图表明,ET浓度梯度在催化剂-流体界面处存在明显变化。流体侧由于受到较强对流传质作用,浓度梯度相对较小;而进入固体催化剂内部后,由于化学反应消耗ET,其浓度梯度明显增大。在接近颗粒中心区域时,ET浓度梯度降低至零。图9e给出了沿流动方向反应器xy截面上ET的平均浓度变化规律。在催化剂床层区域内,截面上ET的平均浓度持续下降。反应器入口和出口截面ET的平均浓度分别为18.07 mol·m⁻³和14.98 mol·m⁻³,可知反应器内ET的整体转化率为17.1%。

图10为CO₂浓度分布。图10a为催化剂表面CO₂浓度分布,图10b为yz截面上CO₂浓度分布,图10c为xy截面上CO₂浓度分布,其中自下而上分别对应催化剂床层入口、中部和出口位置。图10d为反应器中心轴线上CO₂浓度分布。由图10d局部放大

图可知,CO₂浓度梯度在催化剂与流体界面处存在明显的变化。图10e为xy截面CO₂平均浓度沿流动方向的变化曲线。由于CO₂为反应产物,其浓度变化趋势与ET相反。

2.7 温度分布

图11为反应器内温度分布。图11a为催化剂外表面温度分布。可以看出,热点区域位于催化剂床层靠近入口位置。图11b为yz截面上的温度分布云图及温度等值线分布图,相邻两条等值线之间的温差为0.5 K。由于乙烯环氧化反应为放热反应,催化剂内部温度高于其外表面温度。在流体对流传热作用下,热量沿流动方向向下游传递,并在催化剂尾部形成明显的热尾迹。由图11b局部放大图可知,在靠近反应器壁面的径向区域,温度梯度较大。其原因在于流体主要沿轴向流动,径向速度较小,对流传热作用较弱,因此径向热量传递主要依靠热传导过程。图11c自下而上依次为催化剂床层入口、中部及出口位置xy截面上的温度等值面分布,相邻两个等值面的温差为0.5 K。图11d展示了反应器中心轴线上温度变化规律。由图11d局部放大图可知,在0.88 mm固体区域内,最大温差仅为0.07 K。对比图11d与图9d、图10d的局部放大图可

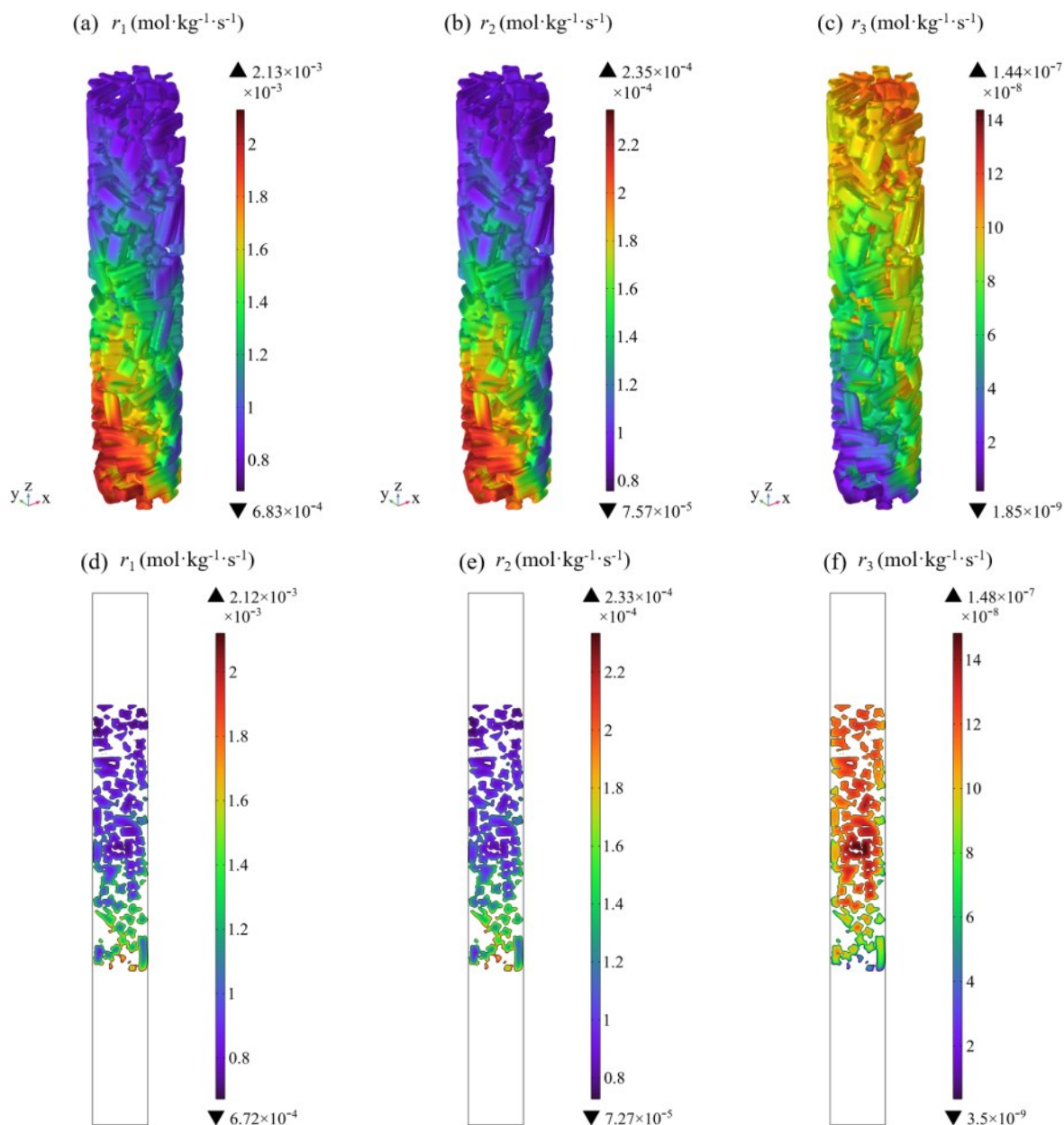


图8 反应速率(a)催化剂表面 r_1 分布,(b)催化剂表面 r_2 分布,(c)催化剂表面 r_3 分布,(d)yz截面上 r_1 分布,(e)yz截面上 r_2 分布,(f)yz截面上 r_3 分布

Fig.8 Reaction rate distribution: (a) r_1 distribution on the catalyst surface; (b) r_2 distribution on the catalyst surface; (c) r_3 distribution on the catalyst surface; (d) r_1 distribution on the yz-plane cross-section; (e) r_2 distribution on the yz-plane cross-section; (f) r_3 distribution on the yz-plane cross-section

以发现,尽管催化剂内部存在明显的浓度变化,但温度变化较小。图11e给出了沿流动方向xy截面平均温度的变化规律。平均温度在催化剂床层区域内先升高后降低,反应器最高温度为489.56 K,对应热点温升为6.41 K。

3 结论

(1)利用三维X射线CT成像技术对具有不同粒径及局部结构缺陷的真实堆积四叶草催化剂颗粒群进行了几何重构,并基于颗粒分辨CFD方法对固定床反应器内固体催化剂域和流体域中的反应-传递过程进行耦合求解。对于非颗粒随机堆积的三维几何结构,离散元方法几乎不能重构其真实三维

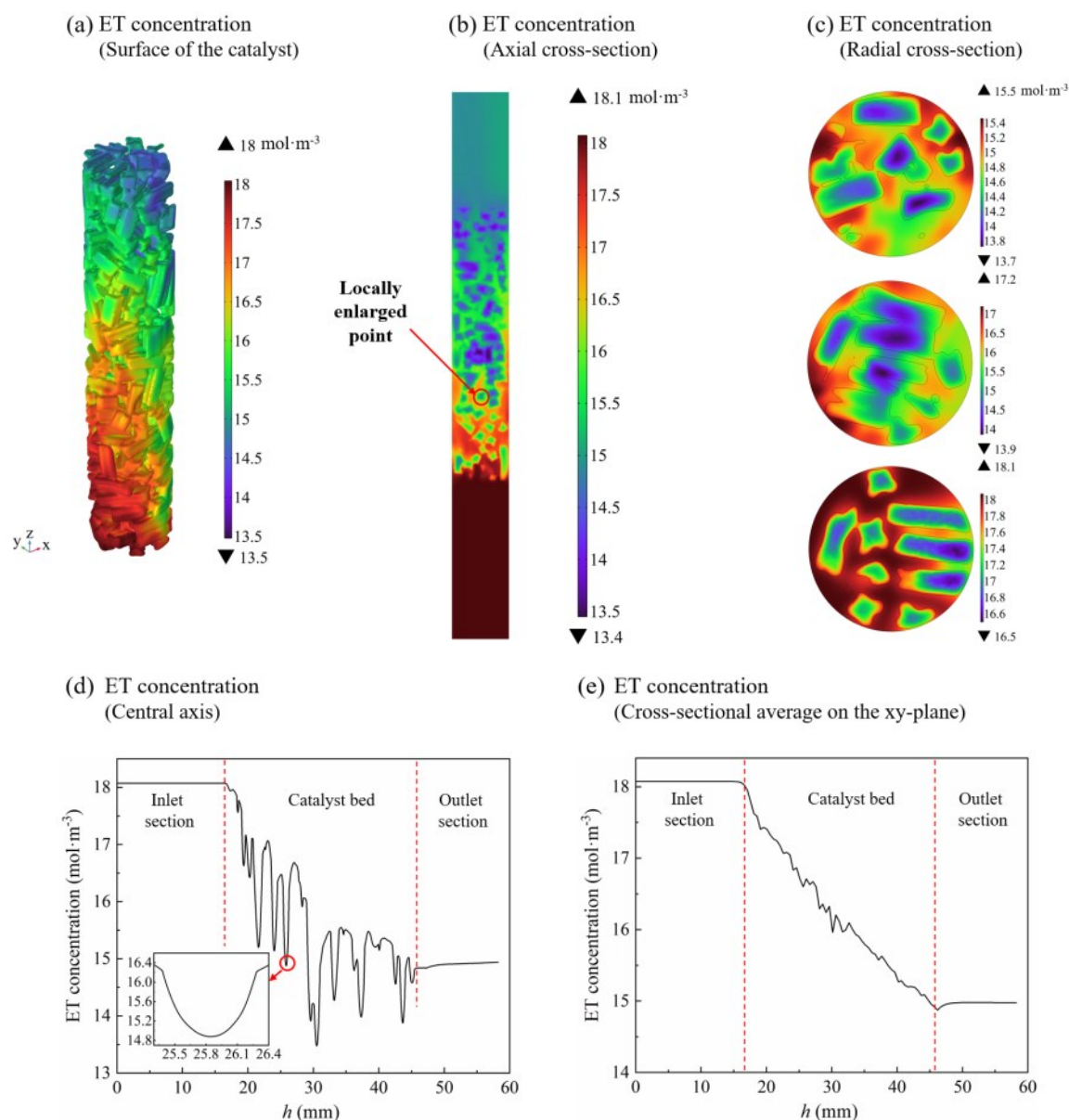


图9 ET浓度分布(a)催化剂颗粒群表面,(b)yz截面,(c)xy径向截面,(d)中心轴线,(e)xy截面上的平均值

Fig.9 ET concentration distribution: (a) surface of catalyst particles; (b) yz-plane cross-section; (c) radial distribution on the xy-plane; (d) central axis; (e) cross-sectional averaged value on the xy-plane

几何形貌,而CT成像技术能够实现对其三维结构的直接表征,因此其具有更为广泛的适用性。本研究方法可为多孔材料固体-孔隙双域多物理场耦合过程的研究提供参考与借鉴。

(2)基于CT成像重构结果确定了四叶草催化剂颗粒群的水力学直径为0.89 mm,而采用传统实验方法难以准确获得该参数。CT重构得到的催化剂床层径向空隙率分布与实验结果变化规律一致。孔隙网络模型分析表明,固体催化剂之间的空隙结构具有较高配位数,表明其连通性很好,与实际堆

积特征相符。

(3)反应器内浓度与温度梯度在固体-流体界面处均存在明显的变化。固体催化剂内部存在较大的浓度梯度,而温度分布相对均匀。由于轴向流动作用下较强的对流传热,反应器轴向温度梯度较小;而在径向方向,尤其是靠近反应器壁面区域,温度梯度明显增大。

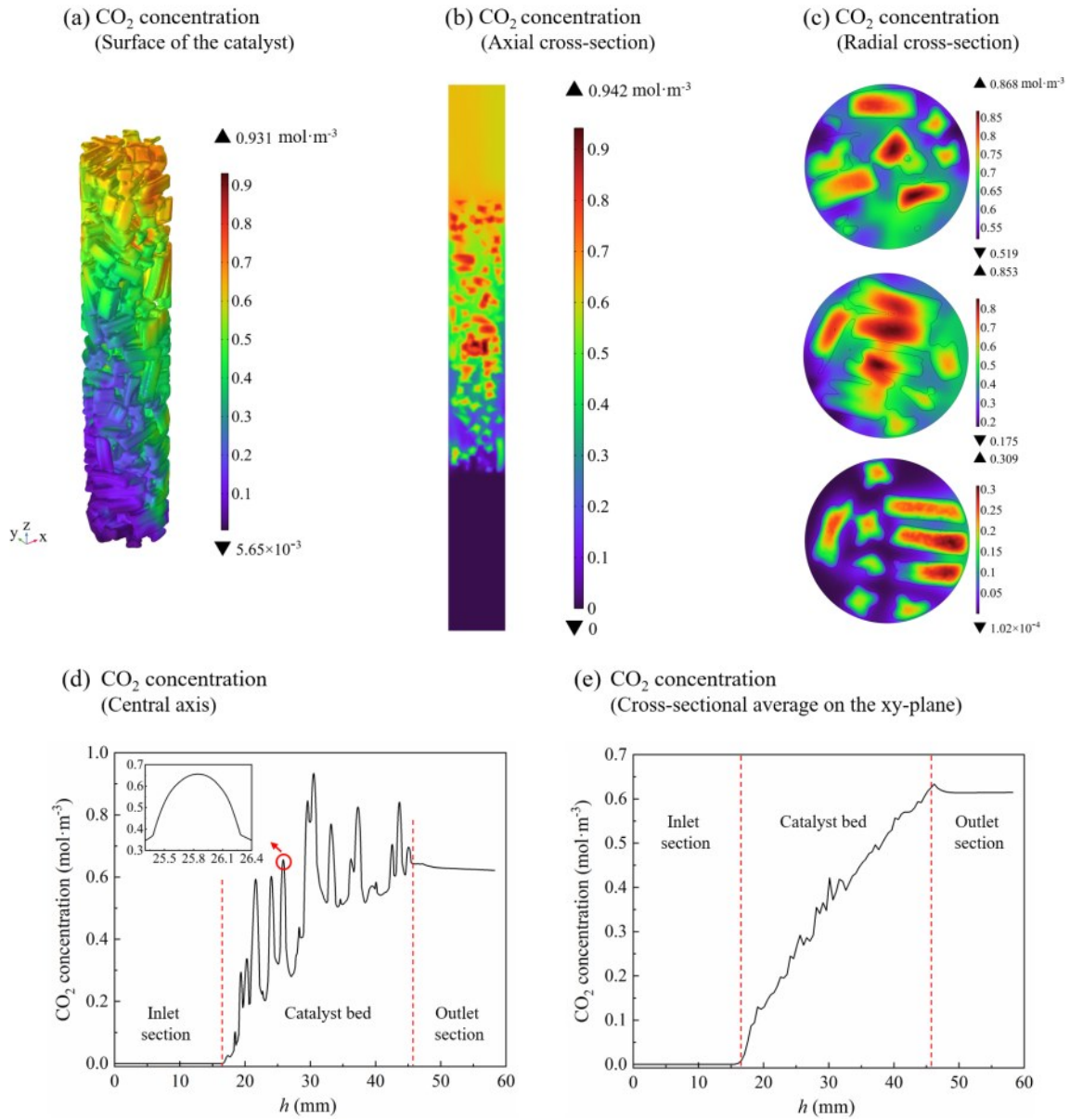


图10 CO₂浓度分布(a)催化剂颗粒群表面,(b)yz截面,(c)xy径向截面,(d)中心轴线,(e)xy截面上的平均值

Fig.10 CO₂ concentration distribution: (a) surface of catalyst particles; (b) yz-plane cross-section; (c) radial distribution on the xy-plane; (d) central axis; (e) cross-sectional averaged value on the xy-plane

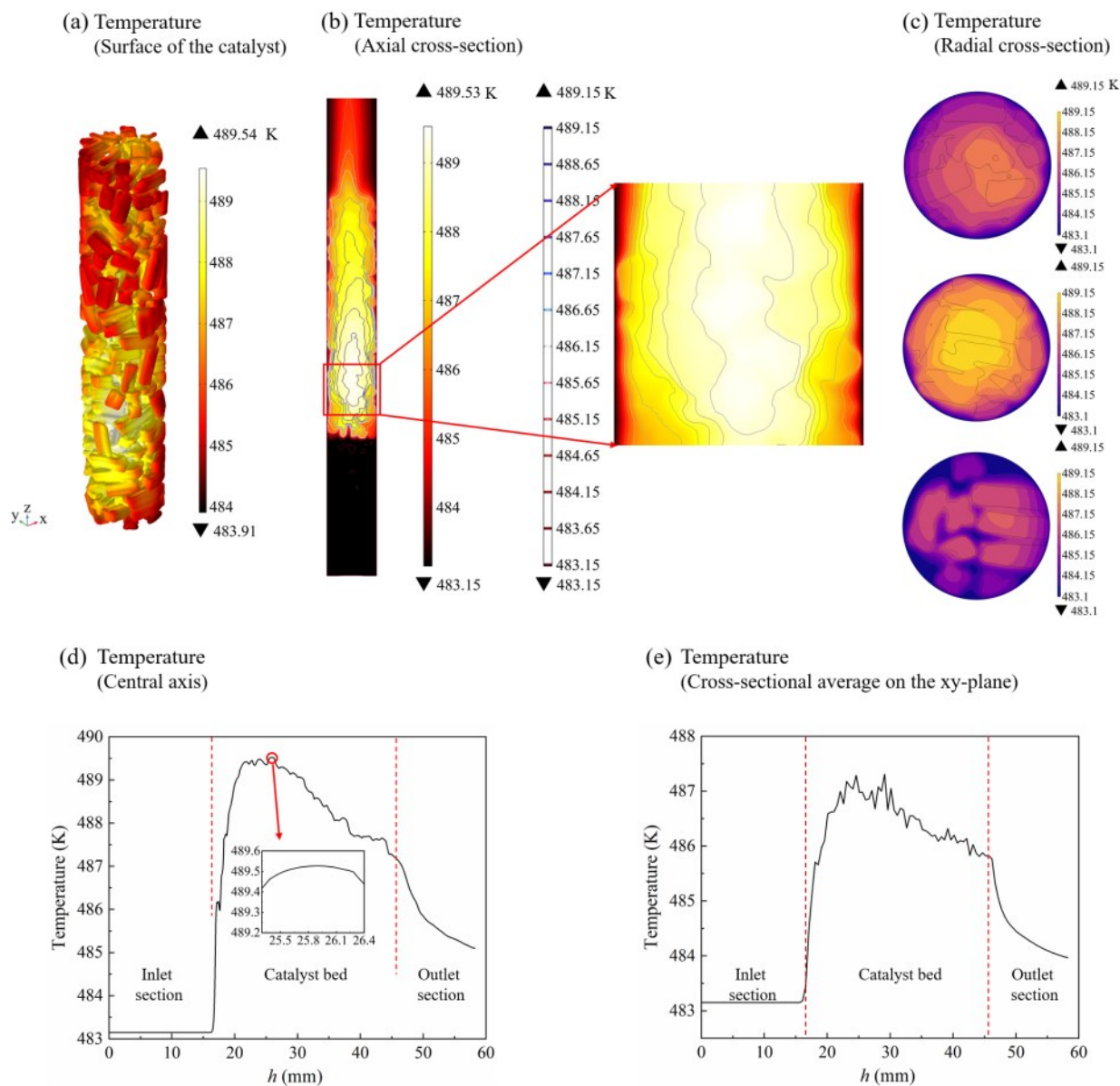


图 11 温度分布(a)催化剂颗粒群表面,(b)yz截面,(c)xy径向截面,(d)中心轴线,(e)xy截面上的平均值

Fig.11 Temperature distributions: (a) surface of catalyst particles; (b) yz-plane cross-section; (c) radial distribution on the xy-plane; (d) central axis; (e) cross-sectional averaged value on the xy-plane

参考文献

- [1] Fleischlen S, Turek T, Wehinger G D. Local structure effects on hydrodynamics in slender fixed bed reactors: Spheres and rings[J]. Chemical Engineering Journal, 2023, **475**: 146342.
- [2] Behnam M, Dixon A G, Nijemeisland M, et al. Catalyst deactivation in 3D CFD resolved particle simulations of propane dehydrogenation[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2010, **49**(21): 10641–10650.
- [3] Dixon A G, Boudreau J, Rocheleau A, et al. Flow, transport, and reaction interactions in shaped cylindrical particles for steam methane reforming[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2012, **51**(49): 15839–15854.
- [4] Moghaddam E M, Foumeny E A, Stankiewicz A I, et al. Rigid body dynamics algorithm for modeling random packing structures of nonspherical and nonconvex pellets[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2018, **57**(44): 14988–15007.
- [5] 宋江, 张亚新. 小管径比固定床中圆柱颗粒床层内气体流动特性[J]. 化学反应工程与工艺, 2018, **34**(4): 317–324.
- [6] 王凯莉, 张亚新. 基于CFD-DEM的柱形颗粒固定床反应器流场特性数值模拟[J]. 化学反应工程与工艺, 2017, **33**(5): 474–480.

Wang K L, Zhang Y X. A coupled CFD-DEM numerical

- simulation of flow field characteristics in a randomly packed fixed bed with columnar-shaped particle[J]. Chemical Reaction Engineering and Technology, 2017, **33**(5): 474–480.
- [7] Shi Y, Chen H, Chen W Y, et al. Effects of particle shape and packing style on ethylene oxidation reaction using particle-resolved CFD simulation[J]. Particuology, 2023, **82**: 87–97.
- [8] Boccardo G, Del Plato L, Marchisio D, et al. Pore-scale simulation of fluid flow in packed-bed reactors via rigid-body simulations and CFD[C]// Proceedings of the 10th International Conference on CFD in Oil & Gas, Metallurgical and process Industries SINTEF, Trondheim, Norway, 2014.
- [9] Boccardo G, Augier F, Haroun Y, et al. Validation of a novel open-source work-flow for the simulation of packed-bed reactors[J]. Chemical Engineering Journal, 2015, **279**: 809–820.
- [10] Giese M, Rottschäfer K, Vortmeyer D. Measured and modeled superficial flow profiles in packed beds with liquid flow[J]. AIChE Journal, 1998, **44**(2): 484–490.
- [11] Guo Z X, Xin S Y, Du D C, et al. Acetylene hydrogenation processes studied using CFD in a packed bed reactor[J]. Chemical Engineering & Technology, 2024, **47**(10): e202300436.
- [12] George G R, Bockelmann M, Schmalhorst L, et al. Radial heat transport in a fixed-bed reactor made of metallic foam pellets: Experiment and particle-resolved computational fluid dynamics[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2022, **197**: 123376.
- [13] 李泓宇, 刘祥坤, 施尧, 等. 颗粒分辨的乙炔选择性加氢固定床反应器数值模拟[J]. 化工学报, 2024, **75**(10): 3610–3622.
- Li H Y, Liu X K, Shi Y, et al. Numerical simulation of particle-resolved fixed-bed reactor for selective acetylene hydrogenation process[J]. CIESC Journal, 2024, **75**(10): 3610–3622.
- [14] 翁俊旗, 刘鑫磊, 余佳豪, 等. 蜂窝状催化剂中空结构对固定床反应器压降的影响[J]. 化工学报, 2022, **73**(1): 266–274.
- Weng J Q, Liu X L, Yu J H, et al. Influence of hollow structure of honeycomb catalysts on the pressure drop in packed bed reactors[J]. CIESC Journal, 2022, **73**(1): 266–274.
- [15] 贺逸健, 刘祥坤, 施尧, 等. 乙烷氧化脱氢制乙烯催化剂颗粒外形设计[J]. 化工进展, 2025, **44**(6): 3497–3508.
- He Y J, Liu X K, Shi Y, et al. Catalyst particle shape design for ethane oxidative dehydrogenation to ethylene[J]. Chemical Industry and Engineering Progress, 2025, **44**(6): 3497–3508.
- [16] 解勤勤, 翁俊旗, 林振利, 等. 固定床反应器中甲醇制芳烃工业催化剂结构影响的研究[J]. 化工学报, 2025, **76**(9): 4487–4498.
- Xie Q Q, Weng J Q, Lin Z L, et al. Effects of industrial catalyst structure on methanol to aromatics in a packed bed reactor[J]. CIESC Journal, 2025, **76**(9): 4487–4498.
- [17] Wang Z P, Kang C L, Hao J, et al. Simulating gas-solid phase isomerization of C8 aromatics affected by catalyst shapes in fixed bed reactors with particle-resolved CFD approach[J]. Chemical Engineering Science, 2024, **295**: 120181.
- [18] Kutscherauer M, Wehinger G D. Particle-resolved CFD simulation of diluted catalytic fixed bed reactors for formaldehyde production[J]. ACS Engineering Au, 2025, **5**(3): 284–297.
- [19] Tan B R, Jiang Z C, Liao H W, et al. Hydrodynamic and mass transfer characteristics of ceramic foam packing in liquid-liquid extraction[J]. Chemical Engineering Science, 2026, **328**: 123763.
- [20] 双舒炎, 张伟, 王家乐, 等. 基于多孔镍电极的液相放电等离子体分解甲醇制氢实验研究[J]. 化工学报, 2025, **76**(11): 5753–5763.
- Shuang S Y, Zhang W, Wang J L, et al. Experimental study on hydrogen production from methanol decomposition by liquid-phase discharge using porous nickel electrodes[J]. CIESC Journal, 2025, **76**(11): 5753–5763.
- [21] 周明熙, 周昊, 马鹏楠, 等. 基于CT显微图像的烧结矿孔隙特征分析及有效热导率预测[J]. 化工学报, 2018, **69**(2): 633–641.
- Zhou M X, Zhou H, Ma P N, et al. Characterization of pore structure and effective thermal conductivity of iron ore sinter using micro CT images[J]. CIESC Journal, 2018, **69**(2): 633–641.
- [22] Gabbett C, Doolan L, Synnatschke K, et al. Quantitative analysis of printed nanostructured networks using high-resolution 3D FIB-SEM nanotomography[J]. Nature Communications, 2024, **15**: 278.
- [23] Zhai T Y, Zhao Z, Zhou X P. A review of 3D reconstruction methods for complex microstructures of porous media: imaging devices, techniques and applications[J]. Rock Mechanics and Rock Engineering, 2025, **58**(7): 7879–7922.
- [24] Ming Y, Liang Q Q, Chen X D. Insights on the microstructure and physical properties of coral aggregates at the pore scale: from experiments to numerical simulations[J]. Construction and Building Materials, 2024, **451**: 138711.
- [25] Wang H J, Li Y H, Huang L, et al. A pore-scale study on microstructure and permeability evolution of hydrate-bearing sediment during dissociation by depressurization[J]. Fuel, 2024, **358**: 130124.
- [26] Ansah E O, Black J R, Haese R R. Impact of mineral dissolution-precipitation on pore geometry during copper sulphide heap leaching[J]. Minerals Engineering, 2025, **230**: 109379.
- [27] Romijn N, Eghbalmanesh A, Hoogendoorn M W, et al. Hydrodynamics in a randomly packed bed of cylindrical particles: a comparison between PR-CFD simulations and MRI experiments[J]. Chemical Engineering Science, 2024, **299**: 120429.
- [28] Elgersma S V, Sederman A J, Mantle M D, et al. Magnetic resonance velocity imaging of turbulent gas flow in a packed bed of catalyst support pellets[J]. Chemical Engineering Journal, 2023, **475**: 145445.
- [29] 黄笑乐, 杨甫, 韩磊, 等. 富油煤(长焰煤)孔隙结构三维表征及渗流模拟[J]. 化工学报, 2022, **73**(11): 5078–5087.
- Huang X L, Yang F, Han L, et al. 3D characterization of pore structure and seepage simulation of tar-rich coal(long flame coal)[J]. CIESC Journal, 2022, **73**(11): 5078–5087.
- [30] Li G, Qin Y, Yao H P, et al. 3D pore structure characterization and permeability anisotropy visualization simulation of fusain[J]. Energy, 2024, **291**: 130422.
- [31] 高崇, 潘银珍, 朱炳辰. 环柱状催化剂内强放热复合反应-传质-传热耦合过程研究(II)本征反应动力学及反应-传质-传热耦合过程数学模型[J]. 化工学报, 1998, **49**(5): 610–616.
- Gao C, Pan Y Z, Zhu B C. Study on coupling process of multiple reactions-mass transfer-heat transfer in hollow cylindrical catalysts with strong heat effect(II)intrinsic kinetics and mathematical model of coupling process of reaction-mass transfer-heat transfer[J]. CIESC Journal, 1998, **49**(5): 610–616.
- [32] Fogler H S. Essentials of Chemical Reaction Engineering [M]. 2nd ed. New York: Pearson Education, 2010.
- [33] 高崇, 朱英, 李树森, 等. 环柱状催化剂内强放热复合反应-传质-传热耦合过程研究(I)催化剂曲折因子、有效导热系数的测定[J]. 化工学报, 1998, **49**(5): 601–609.

- Gao C, Zhu Y, Li S S, et al. Study on coupling process of multiple reactions-mass transfer-heat transfer in hollow cylindrical catalysts with strong heat effect(I)experimental measurement of tortuosity factors and effective thermal conductivity of catalyst pellets[J]. CIESC Journal, 1998, **49**(5): 601-609.
- [34] Ambekar A S, Schwarzmeier C, Rude U, et al. Particle-resolved turbulent flow in a packed bed: RANS, LES, and DNS simulations [J]. AIChE Journal, 2023, **69**(1): e17615.
- [35] Kolaczowski S T, Chao R, Awdry S, et al. Application of a CFD code (FLUENT) to formulate models of catalytic gas phase reactions in porous catalyst pellets[J]. Chemical Engineering Research and Design, 2007, **85**(11): 1539-1552.
- [36] Hawken M B, Reid S, Clarke D A, et al. Characterization of pressure drop through Schwarz-Diamond triply periodic minimal surface porous media[J]. Chemical Engineering Science, 2023, **280**: 119039.