

三相逆流湍动床气液传质性能的研究

Gas-liquid Mass Transfer in Three-phase Inverse Turbulent Bed Reactor

金仁村, 郑平*, 陈建伟, 屠展

JIN Ren-Cun, ZHENG Ping*, CHEN Jian-Wei and TU Zhan

浙江大学环境工程系 杭州 310029

Department of Environmental Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310029, China

摘 要 由空气-水(清水/废水)中空玻璃珠构成三相体系,在表观气速 $0.53 \sim 10 \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$ 、固含率为 $0 \sim 0.3$ 、表观液速 $0 \sim 0.2 \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$ 的条件下,采用溶氧仪研究了三相逆流湍动床的气液传质性能,考察了操作参数和液体性质对液相容积传质系数 $k_L a$ 的影响。结果表明,在所试条件下, $k_L a$ 为 $0.0456 \sim 1.414 \text{min}^{-1}$ 。 $k_L a$ 随着表观气速和表观液速的增加而增加,随着固含率的增加先增加后减小。 $0.05 \sim 0.08$ 为反应器传质的最优固含率条件。液体性质对 $k_L a$ 有重大影响,高浓度模拟废水和工业废水中的 $k_L a$ 比清水中的 $k_L a$ 分别减小 39.0% 和 50.9% 。研究结果可为后续逆流湍动床废水生物处理过程分析与模拟提供传质基础数据。

关键词 液相容积传质系数,操作参数,逆流湍动床

中图分类号 X703 文献标识码 A 文章编号 1000-3061(2007)01-0122-05

Abstract The characteristics of gas-liquid mass transfer of three-phase system comprising air, tap water/wastewater, and hollow glass beads were studied in a laboratory-scale inverse turbulent bed reactor. The influence of operational factors and liquid property on volumetric liquid-phase mass transfer coefficient $k_L a$ was investigated under the conditions of superficial gas velocity ($0.53 \text{mm} \cdot \text{s}^{-1} \sim 10 \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$), solid hold-up ($0 \sim 0.3$), and superficial liquid velocity ($0 \sim 0.2 \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$). The results showed that the coefficient value was $0.0456 \sim 1.414 \text{min}^{-1}$, which increased with superficial gas velocity and liquid velocity. The coefficient attained the maximum value at solid hold-up of $0.05 \sim 0.08$. Compared with the coefficient value in tap water, that in synthetic wastewater and industrial wastewater is decreased by 39.0% and 50.9% , respectively. These data have provided a basis for the process analysis and mathematical simulation of inverse turbulent bed reactor.

Key words volumetric liquid-phase mass transfer coefficient, operational parameter, inverse turbulent bed reactor

目前,以微生物自然附着于悬浮小颗粒为特征的生物膜反应器(如流化床反应器、气升式反应器等)已广泛用于含有机物和含氮废水的处理^[1-5]。较之普通活性污泥系统,这类生物膜反应器中的生

物量明显较高,确保了污染物的高效去除。在反应器中功能菌群生长较慢(如脱氮系统中的氨氧化细菌的最大比生长速率 $\mu_{\max} = 0.14 \sim 0.092 \text{h}^{-1}$,亚硝酸氧化细菌 $\mu_{\max} = 0.006 \sim 0.06 \text{h}^{-1}$,厌氧系统中的乙酸

Received: August 3, 2006; Accepted: October 19, 2006.

This work was supported by the grants from the National Natural Science Foundation of China (No. 30070017) and the Science and Technology Foundation for Key Project of Zhejiang (No. 2003C13005).

* Corresponding author. Tel: + 86-571-86971709; E-mail: pzheng@zju.edu.cn

国家自然科学基金项目(No. 30070017)和浙江省重大科技攻关项目(2003C13005)资助。研究所期刊联合编辑部 <http://journals.im.ac.cn>

营养型产甲烷菌 (*Aceticlastic methanogens*) $\mu_{\max} = 0.003 \sim 0.014 \text{h}^{-1}$)的条件下,生物膜反应器的这种优势更为明显^[6,7]。

上世纪90年代,出现了一种新型生物膜反应器——逆流湍动床(ITB)反应器,最初用于厌氧生物处理^[8]。在该反应器底部引入厌氧反应所产生的沼气(CH_4 和 CO_2),可实现床层膨胀。用空气取代沼气,ITB即可用于废水好氧生物处理^[9]。ITB具有许多优点,较之两相流化床和两相逆流化床,ITB无需液体回流。较之三相流化床和气升式反应器,ITB因载体密度和粒径较小,所需表观气速和能耗也相应较小。

三相逆流湍动床反应器中的宏观反应过程包括气-液间及液-固间的传质。由于采用细颗粒载体及形成薄生物膜,液-固比表面积很大,液-固界面处传质阻力可不计。气-液间传质过程包括气相传质和液相传质。大多数三相反应体系的气体组分(如氧气)在液相介质中的溶解度很小,气相传质可以忽略,但必须考虑液相传质^[10]。

有关研究已涉及ITB的流体力学特性^[11,12],主要考察不同表观气速和液速条件下的床层膨胀和液相返混特性。但有关ITB传质特性的研究则少见报道。在其它三相反应器中,已有诸多文献涉及气液传质特性^[13-15],但不同研究中,各种因素对气液传质系数的影响不同,甚至相互矛盾,有待深入研究。

作为三相反应器,可能影响ITB中液相容积传质系数 $k_L a$ 的因素有(1)物性因素:如密度、黏度和表面张力等液体性质以及颗粒粒径、颗粒密度等固体性质;(2)操作因素:如表观气速、表观液速和固体浓度等;(3)结构因素:如高径比、气体和液体分布器设计等。

目前,关于这些因素对ITB传质的影响研究尚不多见。本文不考虑ITB反应器结构因素,重点考察了操作因素、液体性质对 $k_L a$ 的影响,为进一步分析ITB反应器工作过程提供传质基础数据。

1 试验部分

1.1 反应器

供试逆流湍动床如图1所示。反应器由有机玻璃管制成,内径0.09m,有效体积6L。流态化区4介于曝气头和液面之间,高度0.58m,体积3.7L。曝气头3以下区域5为沉淀区。

液体和空气分别由反应器顶部和中部引入,气

液上升流引起反应器顶部部分液体向下流动,并导致混合液密度下降,悬浮载体(密度较水轻)随混合液向下运动实现流态化。载体运动范围被控制在曝气头以上的区域(流态化区)。在处理废水过程中,生物膜附着生长在载体上,部分脱落的生物膜在沉淀区与出水分离,可实现反应器与沉淀池的一体化。

1.2 试验条件

试验介质用空气、清水、模拟废水、实际工业废水。载体为中空玻璃珠,主要成分为 SiO_2 和 Al_2O_3 ,粒径0.15mm,密度 $460 \text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ 。试验操作条件:表观气速 $0.53 \sim 10 \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$;表观液速 $0 \sim 0.2 \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$;固含率(载体体积与流态化区体积之比) $0 \sim 0.3$ 。模拟废水无机盐成分见文献[16],模拟废水和实际工业废水(味精废水)水质如表1所示,其水质特征主要体现在氨氮和COD浓度上。其中,味精废水1和2分别为某味精废水处理厂的出水和进水。

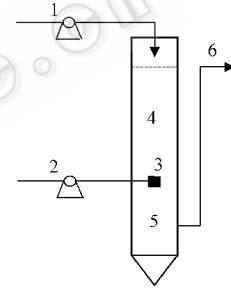


图1 逆流湍动床反应器

Fig.1 Inverse turbulent bed reactor and its flow diagram

1: peristaltic pump; 2: air pump; 3: aerator; 4: fluidization section; 5: settling section; 6: liquid outlet.

表1 废水水质($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, pH除外)

	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	COD	Alkalinity (as CaCO_3)	pH
Synthetic wastewater 1	0	0	/	5.77
Synthetic wastewater 2	500	0	3570	9.57
Synthetic wastewater 3	1000	0	7140	9.76
Raw industrial wastewater 1	22.5	53	/	7.20
Raw industrial wastewater 2	485	1670	1280	9.40

1.3 试验流程

利用溶氧电极动态法测定 $k_L a$ 。反应器上部插入溶氧电极以测定液相内实时氧含量。溶氧仪为上海雷磁仪器厂制造的JPB-607型溶氧仪。溶解氧探头响应时间 t_E 小于30s,满足 $t_E < 1/k_L a$,无需校正。

空气压缩后经减压阀减压,缓冲罐稳压,转子流量计计量,通过反应器进气管引入。测定时首先用三通阀通入氮气一定时间,使溶氧仪显示液相氧含量下降到 $0.1 \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 左右,记录初始氧含量 C_0 ,然后停止通入氮气,将三通阀切换到通入空气,见空气泡

开始进入反应器后计时,同时记录用溶氧仪测定的实时液相中氧浓度 C 。

1.4 液相容积传质系数 $k_L a$ 的测取

$\lg(C^* - C)(C^* - C_0)$ 与时间 t 呈线性关系, $k_L a$ 由下式计算^[17]

$$k_L a = -\frac{2.303}{t} \lg \frac{C^* - C}{C^* - C_0} \quad (1)$$

式中, C_0 、 C^* 分别为溶解氧初始、饱和浓度($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), t 为时间(min)。

$k_L a$ 与温度有关,以温度 20°C 时的 $k_L a_{20}$ 为标准,对试验温度 T ($^\circ\text{C}$) 下的 $k_L a_T$ 值进行修正^[18]:

$$k_L a_{20} = k_L a_T 1.024^{20-T} \quad (2)$$

式中, T 为水温 ($^\circ\text{C}$)。

2 试验结果与讨论

分别以清水和废水为液相,采用单因素法安排试验点,考察操作因素和液体性质对液相容积传质系数 $k_L a$ 的影响,在上述试验条件范围内测定了 $k_L a$ 数据。

2.1 表观气速与固含率的影响

图 2、5、6 表示了间歇(表观液速为 0)试验条件下,表观气速对 $k_L a$ 的影响。可以看出:不论空气-水-中空玻璃珠体系或空气-废水-中空玻璃珠体系,在固含率一定的条件下,随着表观气速增大, $k_L a$ 也随之增大。表观气速增大,液体中气泡数量增多,体系的气含率明显提高,气液比表面积随之增大,使 $k_L a$ 得到明显提高^[17]。此外,表观气速增大可导致湍动床液固混合体系平均密度减小,有利于气泡在反应器内的充分停留和传质。

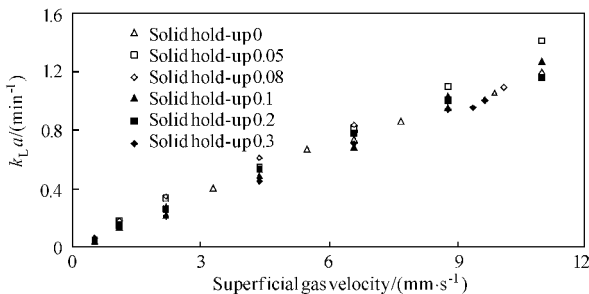


图 2 表观气速对 $k_L a$ 的影响
(空气-清水-中空玻璃珠体系)

Fig.2 Effect of superficial gas velocity on $k_L a$
(air-tap water- hollow glass bead system)

图 3 表示了固含率对 $k_L a$ 的影响,从中可知: $k_L a$ 值先随固含率的增加而增加,其最大值出现在

固含率为 0.05 ~ 0.08 左右,固含率继续增加, $k_L a$ 值保持稳定或反而降低。该结果与文献 19-21 的结果类似。吕效平等^[19]在有内置机械搅拌桨的内循环反应器中研究了低固体浓度对三相体系传质性能的影响, $k_L a$ 值最大值出现在固体浓度为 2% 左右。Smith 和 Skidmore^[20]在气升式反应器中发现,当固体浓度为 5% 时, $k_L a$ 值最大。

在三相体系中,固体浓度对 $k_L a$ 的影响比较复杂。一方面,固体颗粒有其负面影响:1)加入固体造成气液两相所占的空间减小,从而气液比表面积减小,阻碍传质过程;2)若发酵液的表观黏性因固体物的存在而明显增大,则固体浓度增大时,体系密度及摩擦增加,使液体流动阻力增大,在相同的输入功率下(由相同的气速和液速决定),液相的湍流强度和气体的分散程度都减弱,气泡合并加速,气液表面的更新速率降低,从而使气液比表面积减小,这两方面的原因造成 $k_L a$ 随固含率增加而下降。且这种负面影响随着固含率的增加而增大。

另一方面,固体颗粒对气液传质也有正面影响:1)固体颗粒存在于每个气泡的静止液膜中,可降低液体表面张力,有利于气泡的破碎并有效地抑制气泡的聚并^[22];2)细颗粒能破坏围绕气泡的静态液膜,减小传质扩散长度;3)气、液、固体间的速度差产生了相界面的剪切应力,有助于气体分散和气泡分裂,提高气液比表面积^[23]。各个因素相互作用,取决于哪个影响占主体。在本文的试验条件下,当低固含率时,颗粒的正面影响居主导地位,而当固含率相对较高时,颗粒对传质的负面影响占优势或正负作用大致相当。从强化气液传质角度看,0.05 ~ 0.08 为固含率的优选范围,但确定固含率仍要综合考虑系统的其他因素,如生物量和生物活性等。

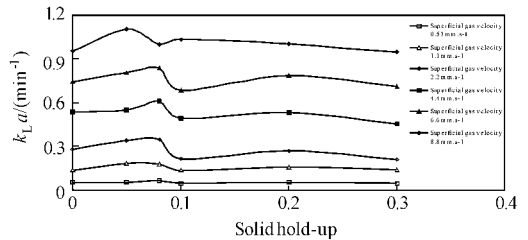


图 3 固含率对 $k_L a$ 的影响
(空气-清水-中空玻璃珠体系)

Fig.3 Effect of solid hold-up on $k_L a$
(air-tap water- hollow glass bead system)

2.2 表观液速的影响

当表观气速为 $1.1 \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$,表观液速对 $k_L a$ 的

影响见图4。其中,表观液速为 $0 \sim 0.2 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$,对应的水力停留时间(HRT)大于48min,为废水处理反应器的常见操作范围。由图4可以看出,在供试固含率条件下, $k_L a$ 都随表观液速的增加而增大,且固含率较大时,增幅越大。这是因为:随着表观液速增大,系统输入能也越大,三相系统的混合程度得以强化,液体湍动越强烈,可有效地破碎气泡,扩大气液比表面积,从而促进传质,使 $k_L a$ 得到明显提高。

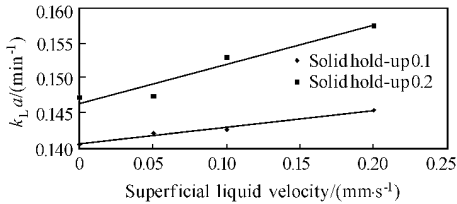


图4 表观液速对 $k_L a$ 的影响(表观气速 $1.1 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$)
(空气-清水-中空玻璃珠体系)

Fig.4 Effect of superficial liquid velocity on $k_L a$
(air-tap water-hollow glass bead system)

2.3 液体性质的影响

废水中含有多种杂质,其性质与清水差异较大。这些物质不仅影响氧在其中的溶解度,也改变了液体的黏度、密度、扩散系数和表面张力等物理特性,使得在相同的操作条件下,废水中的氧传质效果与清水中的不同。

分别采用清水和废水作为水相,研究了不同液体性质对 $k_L a$ 的影响,测定结果见图5和图6。

由图5可知,无机盐基本培养基成分对 $k_L a$ 影响不大。氨氮和碳酸钠浓度分别小于 $500 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $3790 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,模拟废水对 $k_L a$ 影响不大;而氨氮和碳酸钠浓度分别达 $1000 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $7580 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, $k_L a$ 明显减小,平均减幅达39.0%。传质性能的这种弱化可归因于高浓度的 NH_4^+ 和 CO_3^{2-} ,其中, CO_3^{2-} 的可能性更大,加入 CO_3^{2-} 后液体表面张力增大,气泡尺寸也明显变大。较大的气泡使气液相界面面积减小,阻碍了气液传质。

由图6可以看出,以味精废水处理厂出水为介质时, $k_L a$ 与清水条件下的接近,说明废水中的某些惰性成分(如无机盐等)对传质过程影响不大。而废水厂进水导致 $k_L a$ 明显减小,平均减幅为50.9%,大于模拟废水的影响。由于味精废水2和模拟废水2的 NH_4^+ 浓度接近,因此可以推测,工业废水对 $k_L a$ 的影响作用与 NH_4^+ 关系不大,更有可能与有机物有关。味精废水中的有机物主要有糖类、有机酸

等^[24],使得水相黏度和表面张力较大,表面张力增大后,气泡尺寸变大,不利于传质。液相黏度增大使体系中液体流动阻力增大,使气-液传质减缓,气泡易于合并,气液表面的更新速率降低,从而使气液比表面积减小,导致 $k_L a$ 的下降^[25]。

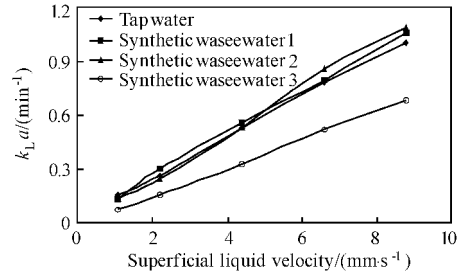


图5 模拟废水水质对 $k_L a$ 的影响(固含率0.2)

Fig.5 Effect of characteristics of synthetic wastewater on $k_L a$

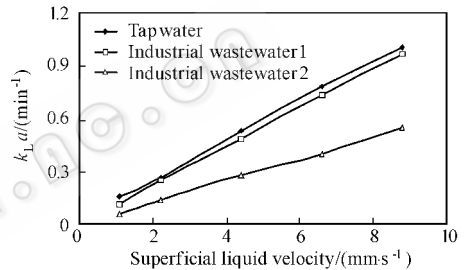


图6 工业废水水质对 $k_L a$ 的影响(固含率0.2)

Fig.6 Effect of characteristics of industrial wastewater on $k_L a$

3 结论

(1)在所试条件下,当表观气速为 $0.53 \sim 10 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$ 、表观液速 $0 \sim 0.2 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$ 、固含率 $0 \sim 0.3$ 时,对于三相逆流湍动床反应器,液相容积传质系数 $k_L a$ 为 $0.0456 \sim 1.414 \text{ min}^{-1}$ 。

(2)液相容积传质系数 $k_L a$ 随着表观气速和表观液速的增加而增加,随着固含率的增加先增加后减小, $0.05 \sim 0.08$ 为反应器传质的最优固含率条件。

(3)液体性质对 $k_L a$ 有重大影响,高浓度模拟废水和工业废水中的 $k_L a$ 比清水中的 $k_L a$ 分别减小39.0%和50.9%。

REFERENCES(参考文献)

- [1] Tanaka H, Dunn IJ. Kinetics of biofilm nitrification. *Biotechnology and Bioengineering*, 1982, 24: 669 - 689.
- [2] Ryhiner G, Petrozzi S, Dunn IJ. Operation of a three-phase biofilm fluidized sand bed reactor for aerobic wastewater treatment. *Biotechnology and Bioengineering*, 1988, 32: 679 - 688.

- [3] Tjihuis L, Huisman JL, Hekkelman HD, *et al.* Formation of nitrifying biofilms on small suspended particles in airlift reactors. *Biotechnology and Bioengineering*, 1995, **47**: 585 – 595.
- [4] Karamanev DG, Nikolov LN. Application of inverse fluidization in wastewater treatment: from laboratory to full scale bioreactors. *Environmental Progress*, 1996, **15**(3): 194 – 196.
- [5] Lazarova V, Nogueira R, Manem J, *et al.* Control of nitrification efficiency in a new biofilm reactor. *Water Science and Technology*, 1997, **36**(1) 31 – 41.
- [6] Grady Jr CPL, Daigger GT, Lim HC. *Biological Wastewater Treatment*. 2nd ed. New York: Marcel Dekker, 1999.
- [7] Nicoletta C, van Loosdrecht MCM, Heijnen JJ. Particle-based biofilm reactor technology. *Trends in Biotechnology*, 2000, **18**: 312 – 320.
- [8] Buffiere P, Bergeon JP, Moletta R. The inverse turbulent bed: a novel bioreactor for anaerobic treatment. *Water Research*, 2000, **34**(2): 673 – 677.
- [9] Bernet N, Sanchez O, Dabert P, *et al.* Effect of solid hold-up on nitrite accumulation in a biofilm reactor-molecular characterization of nitrifying communities. *Water Science and Technology*, 2004, **49**(11/12): 123 – 130.
- [10] Zhang SH(张淑华), Li T(李涛), Zhu BC(朱炳辰), *et al.* Gas-liquid mass transfer in three-phase mechanical agitated reactor. *Journal of Chemical Industry and Engineering(化工学报)*, 2005, **56**(2) 220 – 226.
- [11] Comte MP, Bastoul D, Hebrard G, *et al.* Hydrodynamics of a three-phase fluidized bed the inverse turbulent bed. *Chemical Engineering Science*, 1997, **52**: 3971 – 3977.
- [12] Buffiere P, Moletta R. Some hydrodynamic characteristics of inverse three phase fluidized-bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 1999, **54**: 1233 – 1242.
- [13] Shimodaira C, Yushina Y. Biological waste water treatment with downflow fluidized bed reactor. In: Proceeding of the Third Pacific Congress of Chemical Engineering, Seoul, Korea, 1983, pp. 237 – 242.
- [14] Nguyen-Tien K, Patwari AN, Shumpe A, *et al.* Gas-liquid mass transfer in fluidized particle beds. *AIChE Journal*, 1985, **31**(2): 194 – 201.
- [15] Nicoletta C, van Loosdrecht MCM, van der Lans RGJM, *et al.* Hydrodynamic characteristics and gas-liquid mass transfer in a biofilm airlift suspension reactor. *Biotechnology and Bioengineering*, 1998, **60**: 627 – 635.
- [16] Zheng P(郑平), Jin RC(金仁村), Lu G(卢刚). Kinetics characteristics of shortcut nitrifying reactor. *Journal of Zhejiang University(Agric & Life Sci)* 浙江大学学报:农业与生命科学版) 2006, **32**(1): 14 – 20.
- [17] Jin RC(金仁村), Zheng P(郑平), Wang XD(王向东), *et al.* Oxygen transfer characteristics in a modified internal-loop airlift nitrifying bioreactor. *Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities(高校化学工程学报)*, 2006, **20**(1): 40 – 45.
- [18] Xie J(谢嘉). Principle of Water Pollution Control. Chengdu: Chengdu Science and Technology University Press(成都科技大学出版社), 1994.
- [19] Lü XP(吕效平), Hayat U, Bascoul A, *et al.* Gas-liquid mass transfer in multiphase mechanically stirred airlift reactor. *Journal of Nanjing University of Chemical Technology(南京化工大学学报)*, 1998, **20**(3) 51 – 55.
- [20] Smith BC, Skidmore DR. Mass transfer phenomena in an airlift reactor: effects of solids loading and temperature. *Biotechnology and Bioengineering*, 1990, **35**: 483 – 491.
- [21] Karamanev DG, Nagamune T, Endo I. Hydrodynamic and mass transfer study of a gas-liquid-solid draft tube spouted bed bioreactor. *Chemical Engineering Science*, 1992, **47**: 3581 – 3588.
- [22] Nienow AM, Kone M, Bujuski W. Studies on the three-phase mixing: a review and results. *Chemical Engineering Research and Design*, 1986, **64**(1): 35 – 42.
- [23] Schmitz M, Steiff A. Gas/liquid interfacial area per unit volume and volumetric mass transfer coefficient in stirred slurry reactors. *Chemical Engineering and Technology*, 1987, **10**(3): 204 – 215.
- [24] Yang Y(杨晔), Sun ZS(孙振世). Counter measures for monosodium glutamate wastewater control. *Chian Biogas(中国沼气)* 2004, **22**(1): 18 – 21.
- [25] Muthukumar K, Velan M. Volumetric mass transfer coefficients in an internal loop airlift reactor with low-density particles. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 2006, **81**: 667 – 673