

中文摘要

分子蒸馏技术的应用研究始于上世纪初期，随着该项技术的广泛应用与发展，人们对该技术的理论研究也越来越深入。刮膜式分子蒸馏器是一种高效的分子蒸馏设备，由于刮膜器的作用，流体的流动过程比较复杂。研究刮膜器对分子蒸馏器内液体的流动、传热和传质过程的影响，描述流体速度、温度和浓度的分布规律可以为设备设计和操作优化提供科学依据，对预测分子蒸馏速率和分离效率也非常重要。

在刮膜式分子蒸馏器中，刮膜器的刮动使液相在蒸发器壁面上均匀分布并形成液膜，刮膜器刮起的液相同时在刮膜转子前形成头波。本文利用计算流体力学软件 Fluent 6.2 对刮膜分子蒸馏过程的流体流动、传质、传热进行了较为完整的模拟、分析。

首次建立完整的 3-D 模型，在旋转坐标系下进行模拟计算，选用了 RNG $k-\epsilon$ 湍流模型，采用增强壁面函数法加强对近壁面流体流动的处理，由于模型使用的限制，所以使用 VOF 多相流模型和欧拉多相流模型分别对停留时间分布、流体流动和传热进行了模拟。

同时自行设计了分子蒸馏冷模实验装置，进行了不同物料的停留时间测量以及停留时间分布曲线测量。论文将实验结果与已有的相关文献结论相结合，对数值模拟计算的结论进行了验证讨论。

模拟结果与停留时间分布实验测试结果比较吻合，可以得出如下结论：刮膜器对液膜的周期性刮动使液膜在蒸发壁面分布均匀，可以强化液膜内的传质和传热过程，有利于提高分离效率。模拟结果展示了流体在蒸发器壁面的速度、温度、浓度和液相的分布规律，并与实验结论和相关文献中的结果进行比较，发现具有较好的一致性。同时，对刮膜转子附近的流体流场的模拟结果进行分析发现：在转子附近的流体速度、浓度和温度的波动相对较大，显示了刮膜器在刮膜式分子蒸馏器分离过程起到的特殊作用。模拟结果还给出了在不同进料速度和不同刮膜器转速下，气液界面的波形变化、液相内轴向与径向的速度分布和温度变化等情况，对提高分离效率、优化设备、优化操作具有重要的理论意义。

关键词： 刮膜式分子蒸馏,计算流体力学,多相流, 停留时间分布

ABSTRACT

Application of molecular distillation can be traced back to earlier last century. With the development of application on molecular distillation carried out more and more deeply and widely, theoretical research on molecular distillation has also been carried out largely. Wiped-film molecular evaporator is a kind of high efficient and widely used molecular distillation equipment with complexity of fluid flow and heat transfer resulting from mechanical motion of wipers. It is important to predict the separation efficiency and optimize the equipment design and operation by studying the mass and heat transfer and developing a comprehensive mathematic model for wiped-film molecular distillation process.

The movement of rotation wipers forms both falling liquid film on the evaporator wall and bow wave in front of the wipers. Liquid fluid flow and heat transfer in liquid film and bow wave in a wiped film molecular distillatory was indirectly studied by using a kind of computational fluid dynamics (CFD) software, Fluent 6.2.

Three assumptions were introduced in order to simplify modeling processes. In rotating coordinate system, the volume of fluid (VOF) multiphase model and the Eurler model were applied to simulate different parts of the study for the limitation of each model. The RNG $k-\varepsilon$ turbulent model treating near-wall flow was properly used in this simulation and a near-wall modeling method, enhanced wall treatment, was used to consider the effect of the surface of evaporating cylinder.

A set of experimental equipment were designed to testify part of the simulation results by concerning the Residence Time Distribution (RTD) curves of the evaporating cylinder flow from the tracer concentration. Other simulating results were also compared with the published data and were discussed in several aspects accordingly.

It was concluded that the liquid film on the cylindrical evaporator wall distributed well for the periodic wiping which would strengthen the mass and heat transfer inside of the liquid film and reduce the difference in temperature and concentration between the evaporator wall and the surface of liquid film leading to high separation efficiency. The simulation results correspond with experiments and a theory analysis in a wiped film evaporator similar to this proposed distillatory. The

analyses of simulating result revealed that liquid flow and temperature were fluctuant in front and behind wipers and reversed flow appeared nearby the wipers which proved that wipers plays an crucial role in wiped-film molecular distillation. The effects of feed flow rate and rotational velocity were evaluated too, and it was found that wiper movements enhance mass transfer and heat transfer by reducing film thickness and renewing film surface periodically. All these analyses provide scientific evidences for enhancing the separation efficiency in the distillation process and optimize the operation.

KEY WORDS: wiped-film molecular distillation, CFD, multi-phase flow, RTD

符号说明

d	分子直径, m
D	馏出液流量, $kg \cdot s^{-1}$ 或 $mol \cdot s^{-1}$
D_{AB}	扩散系数, $m^2 \cdot s^{-1}$
f	蒸发系数
F	进料流量, $kg \cdot s^{-1}$ 或 $mol \cdot s^{-1}$
F'	蒸发参数
G	蒸发速率, $kg \cdot s^{-1}$, 或 $mol \cdot s^{-1}$
g	重力加速度, $m \cdot s^{-2}$
H	蒸发面与冷凝面的距离, m
J	蒸发通量, $kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ 或 $mol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$
k	蒸发系数
l	分子平均自由程, m
L	分子蒸馏器长度, m
M	摩尔质量, $kg \cdot mol^{-1}$
M_A, M_B	分子量
m_0	质量流率, $kg \cdot s^{-1}$
N_A	阿佛加德罗常数, $6.022 \times 10^{23} mol^{-1}$
P	绝对压力, Pa
p^0	饱和蒸汽压, Pa
R	普适气体常数, $8.314 J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$
Re_y	临界点的湍流雷诺数
R_l	蒸馏器半径, m
T	温度, K
u	速度, $m \cdot s^{-1}$
V	体积, m^3
W	残余液流量, $kg \cdot s^{-1}$ 或 $mol \cdot s^{-1}$

符号说明

X	残余液摩尔分率或质量分率
Y	馏出液中摩尔分率或或质量分率
y	蒸发液膜厚, m
z	轴向距离, m
希腊字母	
α	分离因数
α'	相对挥发度
δ	液膜厚度, m
ε	湍流耗散率
Γ	导热系数
γ	活度系数
η	普朗特常数
κ	气体分子的异向性
λ	关联因数
ν	运动粘度, $m^2 \cdot s^{-1}$
ω	角速度, s^{-1}
ξ	回收率
下标	
D	馏出液
F	进料
W	残余液
i	组分
j	分离级数
m	平均值

独创性声明

本人声明所提交的学位论文是本人在导师指导下进行的研究工作和取得的研究成果，除了文中特别加以标注和致谢之处外，论文中不包含其他人已经发表或撰写过的研究成果，也不包含为获得天津大学或其他教育机构的学位或证书而使用过的材料。与我一同工作的同志对本研究所做的任何贡献均已在论文中作了明确的说明并表示了谢意。

学位论文作者签名：王燕飞 签字日期： 07 年 1 月 26 日

学位论文版权使用授权书

本学位论文作者完全了解 天津大学 有关保留、使用学位论文的规定。特授权 天津大学 可以将学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，并采用影印、缩印或扫描等复制手段保存、汇编以供查阅和借阅。同意学校向国家有关部门或机构送交论文的复印件和磁盘。

(保密的学位论文在解密后适用本授权说明)

学位论文作者签名：王燕飞

导师签名：许桂林

签字日期： 07 年 1 月 26 日

签字日期： 07 年 1 月 26 日

第一章 文献综述

分子蒸馏又称作短程蒸馏，是一种在石油化工、食品、制药等领域应用越来越广泛的分离技术。不同种类物质的分子在高真空条件下逸出液面后分子平均自由程大小不同，这导致蒸发速率的不同，分子蒸馏就是利用不同物质组分的这种性质来实现混合物的分离或提纯。这种方法具有操作温度低、压降小、分离效果好等优点，适用于高分子量、高沸点、高粘度物质以及热稳定性差的有机混合物的分离。

1.1 分子蒸馏技术概述

分子蒸馏技术作为一种相对较新的液液分离技术，为分离和提纯高沸点、热敏性和易氧化液体物料提供了一种有效手段。迄今为止，该项技术已经被广泛地应用于化工、医药、轻工、油脂、核工业等多个领域。

分子蒸馏是一种在高真空下进行分离操作的非常规蒸馏过程。在高真空条件下，由于分子蒸馏器的加热面和冷凝面之间的距离小于或者等于被分离物料分子的平均自由程，当分子从蒸发壁面形成的液膜表面蒸发时，逸出的分子相互间几乎不经过分子碰撞而直接到达冷凝面被冷凝，所以分子蒸馏也被称为短程蒸馏(short path distillation)或无阻行程蒸馏(unobstructed distillation)^[1]。短程蒸馏技术的操作温度远低于物质常压下的沸点温度，物料被加热的时间非常短，不会对物质本身造成破坏或可以把对物料的破坏降到最低程度。

分子蒸馏具有以下特点：(1)如果分子蒸馏器冷热面之间达到足够的温差，蒸馏过程就可以在远低于常压沸点的温度下进行；(2)分子蒸馏装置结构形式独特，内部压降极小，操作压力极低(0.1-10Pa)；(3)被分离物料在蒸馏器内蒸发壁面呈液膜状分布，加热温差小，受热时间很短；(4)分子蒸馏的分离因数不仅与组分间的蒸汽压差别有关，还与组分间分子量差别有关，分子量差别越大，越容易分离。

上世纪 60 年代，分子蒸馏技术被用来从鱼肝油中提取维生素 A，并成功地在工业上进行了规模化生产，时至今日，分子蒸馏技术已经在石油化工、食品、化妆品和制药等领域得到了广泛的应用^[2]。同时，分子蒸馏基础理论研究也取得了很大进展。

1.2 主要理论基础与设备

1.2.1 分子蒸馏基本概念

平均自由程 气体分子运动论曾对分子间的相互作用力进行解释^[3]：当两分子相距较远时，分子之间的作用力以吸引力为主，使得两分子逐渐被拉近；在两分子逐渐接近过程中，分子之间的吸引力减小，排斥力增加；当分子间距接近到一定程度时，排斥力迅速增加，直至使两分子分开，这种分子间由相互接近到相互分离的过程就是分子碰撞过程。

分子运动自由程被定义为某一分子相邻两次分子碰撞所走过的距离。由定义可推知，任一分子的运动自由程在运动过程中都是不断变化的。分子运动平均自由程是指气体分子在与其它气体分子的多次连续碰撞中，相邻两次碰撞间走过距离的平均值^[4-6]。设 λ_m 为平均自由程， f 为碰撞频率，则

$$\lambda_m = V_m / f \quad (1-1)$$

即

$$f = V_m / \lambda_m \quad (1-2)$$

其中， V_m 为某一分子的平均速度。对于理想气体，由统计热力学原理可知：

$$f = \sqrt{2} V_m \cdot \frac{\pi d^2 P}{k \cdot T} \quad (1-3)$$

结合以上各式可得：

$$\lambda_m = \frac{k}{\sqrt{2}\pi} \cdot \frac{T}{d^2 P} \quad (1-4)$$

其中， d 为分子有效直径，即在分子的碰撞过程中，两次碰撞的质心距离。由式 (1-4) 可知，气体分子平均自由程与温度成正比，与压强和有效碰撞直径的平方成反比。当体系中存在两种分子时，其平均自由程分别为：

$$\lambda_1 = \frac{1}{4.28 \times 10^{19} \times \frac{p_1 \times d_1^2}{T} + 7.55 \times 10^{18} \times \sqrt{1 + \frac{M_A}{M_B}} \times p_2 \times \frac{(d_1 + d_2)^2}{T}} \quad (1-5)$$

$$\lambda_2 = \frac{1}{4.28 \times 10^{19} \times \frac{p_2 \times d_2^2}{T} + 7.55 \times 10^{18} \times \sqrt{1 + \frac{M_B}{M_A}} \times p_1 \times \frac{(d_1 + d_2)^2}{T}} \quad (1-6)$$

分子平均自由程的分布规律为:

$$F = 1 - \exp(-\lambda/\lambda_m) \quad (1-7)$$

式(1-7)中, λ 和 λ_m 分别表示某一自由程和平均自由程, F 为自由程小于或等于 λ_m 的概率。由式(1-7)可以得出, 对于相同状态下的分子体系, 其自由程等于或大于其平均自由程的概率为:

$$1 - F = \exp(-\lambda/\lambda_m) = 1/e = 36.8\% \quad (1-8)$$

蒸发速率 传统的分子蒸馏理论是建立在气体分子动力学中平均自由程基础上的。在对分子蒸馏过程中进行计算时, 主要使用三种表面分子速率: 汽化速率、蒸发速率、蒸馏速率。汽化速率指单位时间内离开蒸发液膜表面的气体分子的绝对量大小; 蒸发速率是离开蒸发液膜表面后, 没有返回蒸发液面的气体分子的净值, 是表面温度和分子种类的函数; 蒸馏速率则是到达冷凝液面后气体分子被冷凝下来的速率。蒸发速率是分子蒸馏过程十分重要的物理量之一, 是衡量分子蒸馏器生产能力的重要指标。理论上, 表面分子蒸发速率完全取决于分子从蒸发液面的挥发速度。Langmuir^[7]研究了纯物质的蒸发现象, 推导出绝对真空下, 液体表面自由蒸发的速率为:

$$J^0 = p^0 \left(\frac{M}{2\pi RT} \right)^{1/2} \quad (1-9)$$

如果溶液中存在多种组分, 在理想的情况下, 混合物中组分 i 的蒸发速率为:

$$J_i = p_i^0 X_i \left(\frac{M}{2\pi RT} \right)^{1/2} \quad (1-10)$$

Kawala 和 Stephan^[8]在 Langmuir 的多组分理想气体模型基础上, 做出进一步假设: 进料温度与蒸馏温度相同; 与传导传热相比, 对流传热可以忽略; 分子蒸馏只是表面现象。从而提出了两组分理想混合物的蒸发速率模型:

$$J_i = p_i^0 \left(\frac{M_i}{2\pi RT} \right)^{1/2} \left[1 - (1-f)(1 - e^{-\frac{H}{\lambda_i}})^n \right] \quad (1-11)$$

其中 f 为冷凝系数, H 为蒸发面与冷凝面间距, n 通过实验获得, 一般为 4~5。

$$\lg \kappa = 0.2 + 1.38(f + 0.1)^4 \quad (1-12)$$

$$J = \sum X_i J_i \quad (1-13)$$

分离效率 分离效率表示组分分离的难易程度。在分子蒸馏中, 分离效率是用分离因数 (α) 来表示。分离因数是 Langmuir^[7]根据精馏计算中相对挥发度的概念提出的, 用来衡量液相分子蒸发进入气相和气液表面捕捉气相分子的相对能

力。温度和被分离物质的分子量是影响分离因数的两个重要因素。在理想情况下，分子蒸馏中两组分分离因数公式为：

$$\alpha = \frac{P_A}{P_B} \sqrt{\frac{M_B}{M_A}} \quad (1-14)$$

Kawala^[9] 在(1-14)式中引入活度系数(γ)，得

$$\alpha = \frac{P_A \gamma_A}{P_B \gamma_B} \sqrt{\frac{M_B}{M_A}} \quad (1-15)$$

式(1-15)在理论上具有很重要的意义，但缺乏实用性。Cvengros^[10]通过变换式(1-15)提出了具有实用意义的计算公式：

$$\alpha = 1 + \frac{\ln w_W(1-w_F)/w_F(1-w_W)}{\ln W(1-w_W)/F(1-w_F)} \quad (1-16)$$

公式(1-16)可用于计算实际分子蒸馏过程中的分离因数 α 。

1.2.2 分子蒸馏主要设备类型

一套完整的短程蒸馏装置主要包括：分子蒸馏器、脱气系统、进料系统、加热系统、冷却系统、真空系统和控制系统，而分子蒸馏器是实现分子蒸馏技术的关键部分。分子蒸馏过程研究与分子蒸馏器结构形式的发展密不可分，在分子蒸馏技术发展的过程中，根据分子蒸馏器的结构形式和操作特点，主要有以下几类设备类型^[11]：

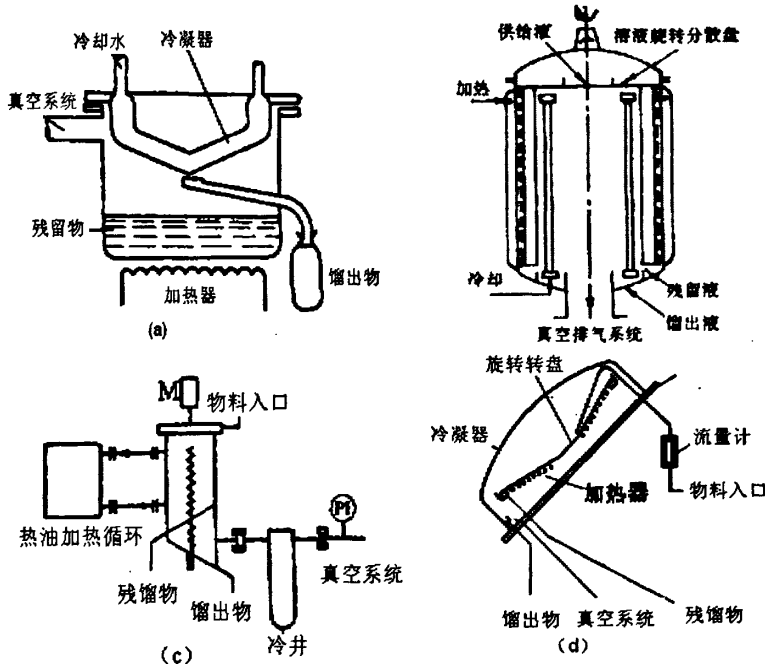
(1)间歇釜式分子蒸馏器 该类型的设备出现最早，结构相对简单，主要由蒸馏釜和内置冷凝器组成，其特点是，在外置热源供热下，物料静止不动地进行分子蒸馏操作。由于物料在蒸馏器内的停留时间比较长，液体内部的传质、传热阻力大，导致分离能力低，分离效果差，容易热分解，并且只能间歇操作。所以间歇釜式分子蒸馏器一般适用于实验室及小批量生产，并且不能用于热敏性混合物的分离，目前已基本不再使用。

(2)降膜分子蒸馏器 降膜式分子蒸馏设备主要由具有圆柱形的蒸发壁面的蒸发器和与之同轴且距离十分相近的冷凝器构成，物料靠重力作用在蒸发壁面呈液膜流动，在流动过程中，热源通过蒸发壁面将热量传递到液膜，使液膜表面的逸出分子到达冷凝表面被冷凝。与间歇釜式分子蒸馏器相比，该类型分子蒸馏器中液膜内的传质和传热阻力显著降低，单位体积物料的传热和蒸发面积增大，停留时间大大缩短，既可增加生产能力，又可保证加工物料的热稳定性；其缺点是液膜厚度不均匀，容易形成过热点使热敏性物料发生分解；所产生的雾沫也常溅

到冷凝面上；液膜呈层流流动，液膜内的传质传热阻力使分子蒸馏并不处于最优状态。所以它的生产规模也非常有限。

(3)刮膜式分子蒸馏器 该类型蒸馏器是对降膜分子蒸馏器的进一步完善，在降膜蒸馏器内部设置一个转动的刮膜器，当物料沿蒸发壁面向下流动时，刮膜器将物料均匀涂抹在壁面上，使进料形成的厚度小且均匀的液膜得到充分搅动，降低了传质和传热阻力，强化了传热和传质，同时在刮膜转子前缘还形成沿轴向运动的头波(bow wave)。刮膜式分子蒸馏器主要分为两种^[11,12]:(a)刮板式：在旋转轴安装有刮板，刮板外缘与蒸发器表面维持一定间隙，轴的旋转带动刮板沿蒸发器表面作圆周运动；(b)滚筒式：将圆柱形滚筒安装在与主轴平行的滚轴上，主轴转动时，滚筒在液膜表面同时作圆周运动和滚动，不断对流体进行分布和更新。该类型设备中，物料在蒸发壁面上的停留时间短，并且可以避免过热点的形成，热分解可能性小，生产能力大，在工业上的应用较为广泛。

离心式分子蒸馏器 该设备的蒸发表面是一高速旋转的圆锥盘，物料在其上受到的离心力远远大于重力，使物料在蒸发表面形成的液膜厚度远远低于降膜分子蒸馏形成的液膜厚度，传质和传热阻力非常小，物料与热源的接触时间很短，分离效果好，尤其适用于分离热稳定性很差的混合物。因为有高速旋转的圆盘，



(a)釜式分子蒸馏器；(b)降膜式分子蒸馏器；(c)刮膜式分子蒸馏器；(d)离心式分子蒸馏器；

图 1-1 几种类型分子蒸馏器简图

Fig. 1-1 Apparatus of four kinds of molecular distillation

真空密封技术要求更高。

如图1-1所示的任何一种类型分子蒸馏器，其分子蒸馏过程一般都包括以下四个步骤^[13]：

(1)物料在蒸发壁上形成液膜：在重力、离心力或者机械搅拌的作用下，物料在蒸发壁面形成快速移动、厚度均匀的液膜。传质和传热阻力小，受热时间短，对提高分子蒸馏的蒸馏速率及热稳定性极为有利。

(2)分子在液膜表面上自由蒸发：在高真空下，液体分子汽化，利用不同组分蒸发速率不同的差别而达到分离目的。

(3)逸出分子从液膜表面向冷凝壁面运动：在真空下，使分子的平均自由程小于或者等于蒸发和冷凝表面之间的距离，使分子运动时几乎不与其它分子碰撞。

(4)汽化分子在冷凝面上冷凝：蒸发分子到达冷凝表面后可以直接冷凝，由于冷凝过程会释放大量的热量使液膜表面温度升高，导致冷凝液膜表面的分子蒸发，降低了分子蒸馏率和分离因数，所以及时移走冷凝液对分离过程非常重要。

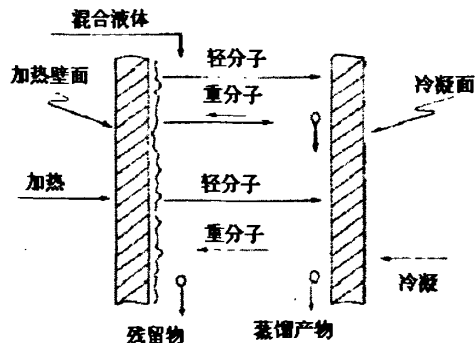


图 1-2 分子蒸馏原理图

Fig.1-2 Scheme diagram of molecular distillation

1.3 分子蒸馏技术的工业应用

早在上世纪三四十年代分子蒸馏技术的出现初期，学者们就已经对分子蒸馏技术在提纯石油、动植物油、脂类、固体甚至是金属物质方面的应用进行了研究，其中对维生素 E 的精制提取方面的研究尤其多；到了六十年代，分子蒸馏技术作为一种新型、有效的分离手段，开始得到规模的工业化应用；随着应用的深入，美、日、德等发达国家相继设计制造出多套工业化分子蒸馏装置^[13,14]，这进一步促进了分子蒸馏技术的应用发展；到八十年代末以后，随着人们对天然物质的越来越青睐，回归自然的潮流兴起，分子蒸馏技术得到了迅速发展^[15]。

事实上分子蒸馏技术已经应用到了诸如天然物质、热敏性物料、中间产品等多种混合物系的分离提纯中。随着分子蒸馏技术的发展，分子蒸馏技术的应用有了更广阔的前景。迄今为止，分子蒸馏技术的主要应用领域^[16]有：

(1) 石油化工：原油的渣油分离、表面活性剂的提纯以及化工中间体的精制等，如高碳醇及烷基多苷等的纯化，羊毛酸酯、羊毛醇酯等的生产。

(2) 食品工业：分离混合油脂，如硬脂酸单甘油酯、月桂酸单甘油酯、丙二醇单甘油酯等；提取脂肪酸及其衍生物，生产二聚脂肪酸等；从动植物中提取天然产物，如鱼油、米糠油和小麦胚芽油等高价值产品。

(3) 香料工业：处理天然精油，脱臭、脱色以及提高纯度，如香茅油、广霍香油和山苍籽油等^[17]。

(4) 医药工业：制取氨基酸和葡萄糖衍生物；提纯得到药用级天然维生素、 β -胡萝卜素等；脱除中药制剂中的有害重金属等杂质；制备天然药物标准品；获得激素缩体等^[18, 19]。

(5) 塑料工业：邻苯二甲酸二辛酯和癸二酸二辛酯等增塑剂的提纯，高分子物质的脱臭和树脂类物质的精制。

(6) 硅生产业：从聚合物混合物中除去低分子量和提纯高分子量聚合物。

(7) 蜡生产业：天然石蜡、蜂蜡、棕蜡和某些微晶蜡以及高熔点蜡的提纯。

(8) 表面活性剂生产业：糖脂、聚亚氧烷基乙二醇以及天然脂肪酸和脂肪酸蜡制品的提炼。

(9) 矿物油生产：用于提取高温润滑油和油脂。

阅读大量的参考文献可以发现，研究者一直在努力尝试将分子蒸馏技术应用到各种新物系甚至是新领域中^[20]，对于那些已经应用分子蒸馏技术进行分离提纯的物系，人们也在继续深入地研究，以期找到最佳工艺条件，获得理想的产品纯度，或者是结合该物系对过程进行理论研究，以期找到技术的内部规律。对于研究人员来说，通过应用分子蒸馏分离提纯的实验研究，将会获得对分子蒸馏技术的深入理解，为分子蒸馏技术的工业推广提供理论指导。

1.4 分子蒸馏过程研究

分子蒸馏的分离因数和收率取决于不同组分的蒸馏速率。分子蒸馏研究的主要内容是研究液膜内传递阻力、汽液界面传递阻力、惰性气体和冷凝液膜表面分子蒸发对分子蒸馏速率和分离因数的影响。

在早期的分子蒸馏研究中，人们把各种阻力对分子蒸馏速率的影响归纳于参数蒸发系数 E ，研究分子蒸馏主要就是研究蒸发系数 E ^[21]。蒸发系数 E 的定义：

$$E = \frac{\text{纯组分的实际蒸发速率}}{\text{纯组分的理论蒸发速率}} \quad (1-17)$$

蒸发系数的研究包括实验和理论计算两方面，其中理论计算研究主要应用了统计力学理论^[22]和自由角比率理论^[23]。

随着化学工程学科的发展和计算机技术的应用,数学模型法开始被应用在对分子蒸馏过程的研究。数学模型法是通过液相质量和热量传递阻力、蒸发表面和冷凝表面之间的气体分子的相互碰撞以及冷凝表面分子的返蒸发等因素影响分别进行分析,建立数学模型对其进行描述,然后再考察分子蒸馏速率和分离效率。对分子蒸馏过程的数学研究,很大一部分就是集中在对液膜内部的传质、传热研究。

实验研究中,大多数物质的蒸发系数低于1,而理论研究^[24]认为纯物质的蒸发系数应当是1,原因主要是,理论研究是在理想分子蒸馏条件下得到的,实际液相主体传热阻力以及表面分子蒸发吸热使液膜表面温度下降,从而导致以液相主体温度计算得到的理论蒸发速率偏高。

液体的表面蒸发速率测量比较困难,目前使用的一种测量仪器是射流张力计,这种仪器可以通过调节其喷嘴长度和液体流速来调节液膜在真空中的停留时间,停留时间越短,液膜表面与主体的温差越小。有学者^[24~25]在用射流张力计测定甘油蒸发速率时,将液膜在真空中的停留时间调节至非常短,测到的蒸发速率与理论蒸发速率几乎相等,蒸发系数趋近于1,此结果证实了Hickman^[26]的观点。

一般的实验方法无法直接测量液膜表面的温度和组成,所以通过分析液膜流动及其内部热量和质量传递过程,建立起描述主体和表面温度及组成关系的数学模型是目前研究分子蒸馏的主要手段。

学者 Maa^[27]用“一维非稳态扩散”模型来描述液膜温度在液膜厚度方向上随时间的变化。Hickman^[28]用“当量热阻”模型来描述液膜内传热阻力,得出了液膜表面平均温度和液膜主体温度的关系。此模型不能反映液膜表面温度与液膜在真空中停留时间的关系。

Micov 和 Lutisan^[29-30]在深入研究分子蒸馏过程的基础上,认为构建分子蒸馏过程相关数学模型可从以下四个方面着手:

(1) 在分子蒸馏过程气体分子运动中,用 Boltzman 方程来考虑质量传递:

$$\frac{p_A}{M_A} \text{grad} f_A = St_A(f_A, f_B) \quad (1-18)$$

式中, f_A 与 f_B 分别表示组分 A、B 的单粒子分布函数, p_A 与 M_A 为分压和分子量。

(2) 与液膜流动相关的 Navier-Stokes 方程。在重力作用下形成液膜时,方程为:

$$(\mathbf{V}_j \text{grad}) \mathbf{V}_j = \nu \nabla^2 \mathbf{V}_j + f_j \quad (1-19)$$

式中, \mathbf{V}_j 表示蒸发液膜流动速度, ν 为粘度, f_j 为蒸发面上单粒子分布函数。

(3) 蒸发或冷凝液膜的质量扩散方程:

$$\operatorname{div}(V_j C_{ij}) = \operatorname{div}(D \operatorname{grad} C_{ij}) \quad (1-20)$$

式中, C_{ij} 为组分 i 在蒸发或冷凝表面 j 上的摩尔浓度, D 为扩散系数。

(4) 热量平衡方程:

$$\operatorname{div}(V_j T_j) = \operatorname{div}(\Gamma \operatorname{grad} T_j) \quad (1-21)$$

式中, T_j 为蒸发面或冷凝面的温度, Γ 为液膜导热系数。

运用以上方程, 结合具体的分子蒸馏过程, 可建立任何操作条件下的理论模型, 并可通过估算过程的影响因数, 对模型加以优化。

1.4.1 釜式分子蒸馏器内的流体模型研究

釜式分子蒸馏器内的流体模型研究在釜式分子蒸馏器内的双组分分子蒸馏过程中, 传热阻力和扩散阻力导致了液体表面和主体之间的温度差和浓度差的产生, 温度和浓度边界层的厚度随着分子蒸馏过程的进行而逐渐变厚, 液体表面温度和易挥发组分的浓度逐渐降低。Hickman^[24,27]在静止式分子蒸馏器内对EHP-EHS混合物进行了蒸馏, 结果表明当蒸馏速率不大时, 分离因数比较大, 且大于平衡蒸馏时的分离因数, 但随着蒸馏速率的增大, 分离因数逐渐减小, 甚至小于平衡蒸馏时的分离因数。Maa^[31]用一维非稳态扩散模型描述了液体温度和浓度在液体厚度方向上随时间的变化, 液体表面温度和易挥发组分浓度的下降使液膜表面易挥发组分的蒸发速率降低, 分离因数逐渐变小, 甚至小于普通蒸馏的分离因数^[32, 33]。Inuztka^[34]对搅拌过程进行了实验和理论研究, 考察了搅拌过程中的对流作用对质量传递和热量传递的影响, 得出了传质和传热系数与搅拌速率和设备尺寸的关系, 很好地解释了混合物分离因数随搅拌速率增加而升高的现象。

1.4.2 降膜式分子蒸馏器内的流体模型研究

降膜式分子蒸馏器主要由圆柱形的蒸发面和冷凝面组成, 靠重力作用在蒸发壁面形成流动的液膜。对于降膜式分子蒸馏而言, 蒸发液膜的厚度远小于蒸馏器的半径以及轴向距离, 研究中可以把蒸发液膜在器壁的流动假设成在无限垂直平面上的向下流动。

Ruckenstein^[35]假设液膜流动为充分发展的稳态层流, 利用运动方程和连续性方程求出液膜流速分布, 在此基础上, 用稳态二维对流扩散方程描述了液膜浓度分布:

$$u = \frac{g\delta^2}{\nu} \left[\frac{y}{\delta} - \frac{1}{2} \left(\frac{y}{\delta} \right)^2 \right] \quad (1-22)$$

若假设蒸发量与蒸发面浓度成线性关系,且液体的摩尔浓度之和不变的情况下,对于两组分理想液体混合物系,蒸发液膜厚度可表示为:

$$\frac{g\delta^2}{\nu} \frac{d\delta}{dx} = - \left[(k_1 - k_2) \left(\frac{c_1}{c_T} \right) + k_2 \right] \quad (1-23)$$

边界条件为:

$$x = x_0, \quad \delta = \delta_0$$

所建模型在考察温度分布时,忽略了轴向对流传热作用,只考虑了径向上的热传导作用,所以此模型只适用进料温度等于壁面加热温度的情况。

余国琮等^[36]在假设液膜流速和温度均匀、分别就稳态蒸发和非稳态蒸发建立了二维对流扩散模型,并求出了液膜浓度二维分布的解析解。实际上,液膜表面分子不断蒸发及分子蒸发吸收热量产生表面冷却效应,导致液膜厚度沿轴向逐渐减小,在径向和轴向上产生了温度梯度。

Micov^[30]等通过考虑蒸发和冷凝面的面积大小、两者之间距离以及膜内的扩散过程,在层流与湍流两种情况下,分别建立平衡方程,进行模拟计算,得到了数值解。Kawala^[37, 38]假设液膜流动为充分发展的稳态层流,液膜内轴向流速在径向上分布用 Nusselt 方程描述,在假设流体的物理性质不变的基础上,利用所建立的模型对 DBP-DBS(癸二酸二丁酯)物系在绝热操作下的分子蒸馏进行了模拟计算,结果表明在轴向和径向上存在较大的温度和浓度梯度,但没经过实验验证。Batistella^[39, 40]对 Kawala 建立的模型方程进行了修正,并用修正后的模型对恒蒸发壁温下从蓖麻油中提取类胡萝卜素的工艺进行了模拟预测,发现用上述理论预测得到的液膜厚度与实验结果基本吻合。Cvengroš^[41]利用上述模型对同条件下单组分分子蒸馏过程进行了研究,考察了不同进料温度、流量对液膜厚度、液膜内温度分布和液膜表面温度分布的影响。

对于降膜式分子蒸馏器内的流体流动以及流体内部的传热传质研究已经取得了许多进展,目前为止,主要的研究瓶颈存在于如下几个方面:(1)雷诺数一般小于 400 时,上述的模型条件基本成立^[42]。但高雷诺数的液膜波动效应影响基本没有报道。(2)在之前的模型求解时,都假设流体的粘度、密度、质量扩散系数及热传到系数等物性为常数。这在物性发生较大变化时会带来误差。

1.4.3 离心式分子蒸馏器内的流体模型研究

离心式分子蒸馏器内部有一个高速旋转的圆形或圆锥形蒸发盘，物料垂直到达蒸发盘的中间后，在离心力的作用下扩散成极薄的液膜。

Greenberg^[1]针对离心分子蒸馏过程中单组分液膜，建立了简化数学模型，模型忽略内部对流传热的作用，假设液膜内传导传热速率能满足表面蒸发所需潜热，进而预测了液膜厚度变化、液膜厚度方向上的温度梯度和蒸发速率。由于假设的局限性，该模型只能适用于进料温度和壁面加热温度相等的情况。David^[43]考虑到圆锥形蒸发盘旋转是完全对称的，液膜厚度与圆锥半径相比非常小，认为液膜是粘性控制的，静压力不变，且液膜切向速分量及表面法向速度分量与其轴向速度分量相比可以忽略，推导出单组分流体的速度分布公式为：

$$-g \sin \varphi + (2\pi\omega)^2 \xi \sin \varphi + \nu \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} = 0 \quad (1-24)$$

其边界条件为： $u=0, y=0$ （壁面）， $\frac{\partial u}{\partial y}=0, y=\delta$ （自由表面）。

液膜厚度为：

$$\frac{\delta}{\delta_0} = \left(\frac{\xi_0}{\xi} \right)^{2/3} \left[1 - \left(\frac{fw}{w_e} \right) \phi \right]^{1/4} \quad (1-25)$$

其中 ϕ 表示：

$$\phi = 1 - \left[1 - \bar{w}\beta \left(\left(\frac{\xi}{\xi_0} \right)^2 - 1 \right) \right]^{1/3} \quad (1-26)$$

$$\beta = \frac{3\nu}{4\pi^2 \omega^2 \delta_0^3 \rho \sin^2 \varphi} \quad (1-27)$$

Kaplon^[44]研究了预热单组分的绝热分子蒸馏过程，建立了二维传热模型，在假设流体物性恒定的基础上，对蒸馏 DBP 的过程进行了模拟计算，由于是在绝热操作下，温度变化大，物性变化也很大，所以发现计算结果比实验结果偏高。Bhandarker^[45]对离心分子蒸馏双组分分离的过程进行了研究，考虑了物性和温度的关系，并假设液膜呈层流流动，在忽略重力作用前提下建立二维模型，通过模拟计算预测了蒸馏 DBP 的速率，发现与实验值吻合较好。其中使用的连续性方程为：

$$\frac{\partial u_z}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} + \frac{u_x}{x} - \frac{u_y \operatorname{ctg} \theta}{x} = 0 \quad (1-28)$$

温度和浓度分布控制方程为：

$$u_x \frac{\partial C_A}{\partial x} + u_y \frac{\partial C_A}{\partial y} = D_{AB} \left(\frac{\partial^2 C_A}{\partial y^2} + \frac{1}{x} \frac{\partial C_A}{\partial x} - \frac{\text{ctg}\theta}{x} \frac{\partial C_A}{\partial y} \right) \quad (1-29)$$

$$u_x \frac{\partial T}{\partial x} + u_y \frac{\partial T}{\partial y} = \alpha \left(\frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{1}{x} \frac{\partial T}{\partial x} - \frac{\text{ctg}\theta}{x} \frac{\partial T}{\partial y} \right) \quad (1-30)$$

Inuzuka 等^[46, 47]在大量假设的基础上,研究了壁面热通量恒定情况下的单组分分子蒸馏传热过程,建立了单组分离心式分子蒸馏的传热数学模型,并得到了液膜温度与壁面传热和表面蒸发速率的关系。他还用数值方法进行了求解,但结果没有进行实验验证。

离心分子蒸馏过程产生的液膜非常薄,当液膜温度变化不大时,忽略物性的变化来简化计算过程对计算结果影响很小,当液膜温度变化很大时,就必须考虑物料物性的变化,这也是离心式分子蒸馏数学模型建立过程中需要深入考虑的问题。

1.4.4 刮膜式分子蒸馏器内的流体模型研究

刮膜蒸发器是在化工过程中得到广泛应用的传质传热设备,加工对象的粘度范围很宽^[48~51]。蒸馏过程中,流体在重力作用下沿蒸发器壁面轴向流动,在内置旋转刮膜器的作用下,流体均匀分布在蒸发表面上,使液膜中流体得到周期性更新,降低了传质和传热阻力,强化了传质和传热过程。

刮膜式分子蒸馏器是在设备内部安装有一个旋转的刮膜转子,物料从顶部进料器进入分子蒸馏器后,沿着蒸发壁面向下流动,在高速旋转的刮膜器作用下,在刮膜转子的前缘形成了沿轴向螺旋性下降的头波,在蒸馏器壁面则形成了下降液膜。

此类型分子蒸馏器内刮膜器的存在使流体的流动变得复杂,许多学者对此进行了研究。Nakamura^[52]用水跃理论研究了等温条件下,水平刮膜蒸馏器内低粘度流体非蒸馏状态下头波的大小以及液体负荷。Mckelvey^[53]没有就头波的流型结构和流速分布进行研究,仅通过受力分析和质量衡算得出液膜厚度和头波的大小。Cvengros^[54, 55]通过实验进行了停留时间分布测定,通过示踪剂浓度的变化对流体停留时间进行了分析,考察了刮膜分子蒸馏器液体负荷和流体粘度的影响;他还利用二维模型对恒温时单组分分子蒸馏过程进行研究,考察了进料速率、进料温度、刮膜器形式等因素对液膜厚度及温度分布的影响。Gruber 和 Stepan^[56, 67]在研究过程中考虑了物料性质以及液膜更新频率对脱水过程的影响。Komori^[58~60]在理论上对头波的流型结构和头波中流体和液膜中流体的混合进行了研究,并考察了刮膜器的配置对头波和液膜中流体混合效果的影响。发现头波中流体在刮膜器的作用下沿轴向呈螺旋形运动,流速分布非常复杂。一些学

者还发现^[61-64]，增加刮膜器的数目和刮膜器的转速都能有效提高蒸发器的传质效率。

由于刮膜式分子蒸馏器内的流体流动及传热过程很复杂，所以如何准确描述刮膜转子的作用对蒸馏过程的影响就显得非常重要。Nguyen^[65]对两组分混合物在等温操作下的分子蒸馏过程进行了研究。得出了残液浓度、馏出液浓度和收率与蒸发面积，进料浓度和进料温度的定量关系。上述模型只能描述刮膜分子蒸馏的极限情况，不能反映液膜内传质和传热阻力对分子蒸馏过程的影响；无法反映刮膜器的数目、液膜厚度、刮膜器的转速(液膜的更新频率)等参数对刮膜分子蒸馏的影响。

Lutišan^[66]指出实际刮膜分子蒸馏，其液膜内传热阻力和传质阻力小于降膜分子蒸馏液膜内传热阻力和传质阻力，但不能忽略，他利用二维模型对恒温条件下，双组分体系的刮膜式分子蒸馏进行了全面研究，通过假设蒸发液膜、冷凝液膜及其间温度为不同的线性分布，并且认为蒸发液膜表面浓度等于液膜主体浓度，分别就蒸发液膜为层流和湍流两种情况，建立了数学模型，并针对三种不同形状的刮膜器，进行了数值计算，发现两种情况下得出的分离效率差别并不是很大。

此外，Badin^[67]对降膜式分子蒸馏器内部蒸气的冷凝过程和热量传递过程进行了研究，建立了与分子蒸发过程类似的数学模型，并对甘油的冷凝过程进行了模拟计算。Cvengroš 等^[68]在考虑蒸发和冷凝液膜传质的同时，对分子蒸馏的过程进行了研究，指出在蒸气分子运动过程中，由于压力较低，气体之间的碰撞几率较小，一般认为其对蒸馏过程的影响可以忽略。Bhandarker^[45]在操作压力小于 0.3Pa 的条件下，忽略气体碰撞的影响，通过模型计算，得到的蒸馏速率与实验值基本吻合。但是当操作压力上升到 1Pa 时，分子的碰撞效应就不能忽略了。Ferron^[69]应用波尔兹曼方程，对气体分子的行为进行了模拟计算。Lutišan^[70, 71]和 Batistella^[72]分别通过蒙特卡洛法用简化的一维硬球模型对双组分体系的分子蒸馏过程进行模拟，考察了浓度、温度及惰性气体的影响，并探讨了分子蒸馏器设备参数的影响。

1.5 计算流体力学工具

1.5.1 概述

流体流动现象大量存在于自然界及多种工程领域中，所有这些过程都受质量守恒、动量守恒和能量守恒的基本物理定律的支配。计算流体力学(Computational

Fluid Dynamics, 简称 CFD) 是通过计算机数值计算和图像显示, 对包含有流体流动和热传导等相关物理现象的系统所做的分析^[73]。CFD 的基本思想可以归结为: 把原来在时间域及空间域上连续的物理量的场, 用一系列有限个离散点上的变量值的集合来代替, 通过一定的原则和方式建立起关于这些离散点上场变量之间关系的代数方程组, 然后求解代数方程组获得场变量的近似值^[74-76]。

CFD 方法是基于实践需要而发展起来的。在实践中, 人们往往需要对工程问题中的物理量进行预测。在对流动现象进行预测时, 通过求解 Navier-Stokes (输运) 方程来获得变量的解析解这种方法虽然在理论上行得通, 但实际上由于太过简单, 太过理想, 是不可能的。因此, 数值计算成为实际问题中求解输运方程最常用的方法和手段。通过数值计算的方法直接求解控制方程和边界条件来解决具有强烈非线性特征的流动现象, 从而形成涉及学科广泛的计算流体力学(CFD)这一分支学科。

实验测量方法所得到的结果真实可信, 是理论分析和数值方法的基础, 但往往受模型尺寸、流场扰动、人身安全和测量精度的限制, 特别是, 还有经费投入、人力和物力耗费的困难。

理论分析方法所得结果具有普遍性, 各种影响因素清晰可见, 是指导实验研究和验证新的数值计算方法的理论基础。具有花费少、速度快、信息完整、模拟能力强等优点, 特别是计算流体力学软件的出现, 大大减少了计算流体力学研究的工作量, 从而扩大了计算流体力学的应用范围; 但是它往往要求对计算对象进行抽象和简化, 才有可能得出理论解。对于非线性情况, 只有少数流动才能给出解析结果。相对来说还不是很成熟。

因此, 在采用 CFD 的方法对流体流动进行数值模拟时, (1)首先要建立反映问题各个量之间关系的微分方程及相应的定解条件, 这是数值模拟的出发点: 没有正确完善的数学模型, 数值模拟就毫无意义。(2)然后, 建立针对控制方程的数值离散化方法, 如有限差分法、有限元法、有限体积法等, 这里的计算方法不仅包括微分方程的离散化方法及求解方法, 还包括贴体坐标的建立, 边界条件的处理等。(3)最后进行计算网格划分、初始条件和边界条件和边界条件的输入、控制参数的设定等。这是整个工作中花时间最多的部分, 由于求解的问题比较复杂, 比如 Navier-Stokes 方程就是一个十分复杂的非线性方程, 数值求解方法在理论上不是绝对完善的, 所以需要通过实验加以验证, 以确定模拟的正确性和有效性。

1.5.2 计算流体力学应用领域

近十多年来, CFD 有了很大的发展, 替代了经典流体力学中的一些近似计

算法和图解法；过去的一些典型教学实验，如 Reynolds 实验，现在完全可以借助 CFD 手段在计算机上实现。所有涉及流体流动、热交换、分子输运等现象的问题，几乎都可以通过计算流体力学的方沈进行分析和模拟。CFD 不仅作为一个研究工具，而且还作为设计工具在水利工程、土木工程、环境工程、食品工程、海洋结构工程、工业制造等领域发挥作用。典型的应用场合及相关的工程问题包括：

- 水轮机、风机和泵等流体机械内部的流体流动
- 飞机和航天飞机等飞行器的设计
- 汽车流线外型对性能的影响
- 洪水波及河口潮流计算
- 风载荷对高层建筑物稳定性及结构性能的影响
- 温室及室内的空气流动及环境分析
- 电子元器件的冷却
- 换热器性能分析及换热器片形状的选取
- 河流中污染物的扩散
- 汽车尾气对街道环境的污染
- 食品中细菌的运移

对这些问题的处理，过去主要借助于基本的理论分析和大量的物理模型实验，而现在大多采用 CFD 的方式加以分析和解决，CFD 技术现已发展到完全可以分析三维粘性湍流及旋涡运动等复杂问题的程度。

1.5.3 CFD 在研究分子蒸馏过程的应用

王军武^[77]在其硕士学位论文中，首次利用计算流体力学方法对具有气液自由界面的湍流蒸发液膜进行了数值模拟，应用流体力学计算软件 Fluent，建立三维局部模型，选用 Realizable k- ϵ 湍流模型和两层区域模型模拟近避区流体流动，并利用 VOF 方程追踪气液界面形状和位置。向爱双^[78]采用 CFD 数值模拟软件 Fluent，建立二维模型，在旋转坐标下，选用 RNG k- ϵ 和 Realizable k- ϵ 两种湍流模型进行对比研究，然后分别改变刮膜转速及液膜厚度，模拟得出液膜内的速度分布、气液界面的波形变化以及湍流分布等的变化情况。

1.6 课题研究内容

刮膜分子蒸馏器有效地降低了液膜内传质和传热阻力，强化了传质和传热过程，对混合物的分离和提纯极为有利。目前，国内在分子蒸馏技术的应用及设备

的研制开发等方面取得了一定的成就，对其过程的基础理论研究也有了一定进展。但刮膜式分子蒸馏由于刮膜器导致的流场内复杂流动，使得对该分离过程的研究不够深入，如何准确描述各种设备参数和操作参数对分离过程的影响还有待于进一步探讨。研究刮膜式分子蒸馏过程，建立准确的数学模型对刮膜式分子蒸馏器的设计和操作优化有重要作用。

论文运用计算流体力学模拟方法对刮膜式分子蒸馏的流体流动与传热过程进行系统的研究，充分利用 CFD 数值模拟软件 Fluent6.2，结合实际对分子蒸馏蒸发液膜流动过程进行了基本假设，简化计算流域，建立三维数学模型。在旋转坐标下，选用 RNG k- ϵ 湍流模型，并利用 VOF 和欧拉多相流模型进行两相模拟，采用增强壁面函数法加强对近壁面流动的处理，模拟了三维空间中，流场区域内的速度、温度和浓度等的变化，并对不同刮膜器转速及进料速率下，液膜内的速度分布、温度分布、停留时间分布及气液界面的波形变化进行了分析。

对模拟结果采用了多种方法进行验证，首先通过建立冷模实验设备进行停留时间方面的测量对相关模拟结果进行了直接的实验验证，然后采取将模拟结果与以往的数值模型所得结果进行对比分析的方法对部分难以实验验证的模拟结果进行了文献对比验证。

第二章 冷模实验研究

传热与流体流动过程的研究可以通过两个主要的方法,即实验研究与理论计算的方法得到。实验方法是研究一种新的基本现象的唯一方法,就这个意义上讲,实验在前而计算在后;在对许多相互作用的已知现象进行综合分析时,计算方法更为有效。但是就是在这样的情况下,为了充分确认计算结果的可靠性,人们仍然有必要把这些结果与实验数据加以比较、验证。最佳的研究、预测过程应当是计算与实验的恰当结合。

2.1 流体力学实验理论基础

2.1.1 停留时间分布

停留时间分布函数是描述和解释连续流动的非理想流动的重要手段。停留时间表示流体从进入所研究的控制体到流出控制体所花的时间。在非理想流体中,不同的流体粒子在装置中所流经的通道不同,这就使得不同的流体粒子在装置中的停留的时间不同。这种流体粒子流过装置所需的不同时间分布就叫停留时间分布(Residence Time of Distribution, RTD)^[79]。

停留时间分布是流动反应器的一个重要性质,它直接影响到反应器的效率及其计算。应用十分广泛。通过停留时间分布的测定,可了解实际反应器内的流体流动状况,以及设备的性能。从而可确定反应器是否符合工艺要求,并制定改进设备的方案及措施。通过反应时间分布,可确定反应器内的流体流动模型并通过数学期望及方差计算模型参数,预测反应结果或进行反应器体积及实际反应率的定量计算。

2.1.2 停留时间分布的测定方法

停留时间的实验测试方法主要是基于激励-响应技术,就是在被测的流体内注入某种示踪剂物质,随后观察记录被测各点的响应,确定流体动力学的某些性能。实验所选用的示踪剂要尽量与所研究相的物理性质基本相同。另外,在检测仪器能够检测到的前提下,示踪剂的浓度应尽可能的低^[80]。

电导法是用电解质溶液作示踪剂,沿入口全长注入,然后通过布置在各测量

点的电极，测量液体流经各点时导电率随时间的变化。常用的电解质溶液有氯化钠 (NaCl) 溶液、硫代硫酸钠 (Na₂S₂O₃) 溶液、亚硝酸钠 (NaNO₂) 溶液。前人利用电导法对平均停留时间的测定做过不少实验，余国琮等^[81]曾在 φ2000 的半圆形筛板塔上，以空气和水为试验系统，用 NaCl 溶液作示踪剂，测得各点液体的平均停留时间，研究了单、双溢流塔板的液体等平均停留时间分布和流动型式。

电导法由于其设备简单，易于操作并使用微型计算机直接输出结果，使繁琐的数据处理变得简单，此法实质上检测的是电解质溶液的浓度，电解质溶液不会流失，所以浓度也不会损失，不像温度场那样有少量的热损失。

2.1.3 计算原理

由于分子扩散、涡流扩散及流速分布的不均匀等原因，而使流动状况偏离理想流动时，可用轴向扩散模型来模拟。该模型是在理想置换模型的基础上迭加一个轴向扩散相而得，该模型最初由 Danckwerts (1953) 提出，使描述轴向返混最成功的模型，适用于返混程度不太大的系统。

模拟方程建立在如下假设基础上：① 与流体方向相垂直的每一截面上都具有均匀的径向浓度，而只是在轴向上有浓度梯度；② 在任一截面上和流体流动方向上，流体流速和径向扩散系数均为常数；③ 浓度为流动距离的连续函数。

对轴向模型进行模型推导，通过物料衡算可得如下式子：

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_z \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} - u \frac{\partial C}{\partial Z} \quad (2-1)$$

其中模型参数为轴向扩散系数 D_z 和有效速度 u 。用矩法估算模型参数。

$$\text{对本实验的流动系统，按平均时间的定义有：} \quad \bar{t} = \frac{L}{u} \quad (2-2)$$

$$\text{而对于 RTD 曲线有：} \quad \bar{t} = \frac{\int_0^\infty t \times C(t) dt}{\int_0^\infty C(t) dt} = \mu \quad (2-3)$$

由 (2-1) (2-2) 可得：

$$u = \frac{L}{\mu} \quad (2-4)$$

其中 μ 为 RTD 曲线的一阶矩。

对于模型方程，在脉冲法注入示踪剂的条件在 $x=L$ 处可以得：

$$\frac{CV}{m_0} = \frac{1}{2\sqrt{\pi\left(\frac{vt}{V}\frac{D_z}{uL}\right)}} \exp\left[-\frac{\left(1-\frac{vt}{V}\right)^2}{4\left(\frac{vt}{V}\right)\left(\frac{D_z}{uL}\right)}\right] \quad (2-5)$$

$$\text{无因次方差可表示为: } \delta^2 = \int_a^b x^2 f(x) dx - \left[\int_a^b x f(x) dx \right]^2 \quad (2-6)$$

把 x 用无因次时间 $\frac{vt}{V}$ 代入, $f(x)$ 用 (2-5) 的函数代入, 经整理上式可化为:

$$\delta^2 = 8 \left(\frac{D_z}{uL} \right)^2 + 2 \left(\frac{D_z}{uL} \right) \quad (2-7)$$

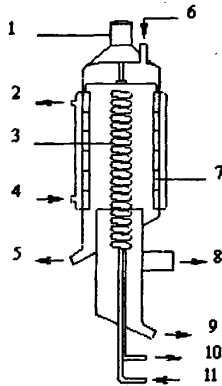
$$\text{对 RTD 曲线的无因次方差有: } \delta^2 = \left(\frac{u}{L} \right)^2 \frac{\int_0^\infty t^2 C(t) dt}{\int_0^\infty C(t) dt} - 1 \quad (2-8)$$

利用(2-4)、(2-7)、(2-8)就可以求出模型参数 D_z 。

2.2 实验设备

2.2.1 实验设备设计

图2-1为实验用刮膜式分子蒸馏设备蒸馏器简图。在真空条件下进行操作, 操作温度低, 停留时间短。我们的主要目的是获取加热面的流场分布情况, 真空条件对其影响很小, 我们在实验中忽略这一点, 直接选取常压进行操作; 同时, 加热面的温度情况对于传热传质过程有着必然的影响, 但是对于流场分布整体趋势影响不大, 因此我们选择设计常温冷模实验装置进行操作。

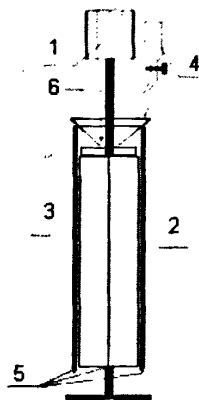


1-转子驱动马达; 2-导热油出口; 3-冷凝器; 4-导热油入口; 5-重组分出口; 6-进料口; 7-刮膜转子; 8-接冷阱; 9-轻组分出口; 10-冷凝水出口; 11-冷凝水入口;

图 2-1 刮膜式分子蒸馏器示意图

Fig 2-1 Evaporator of wiped film molecular distillation

冷模实验验证所用设备如图2-2所示：



1-马达；2-塔身；3-旋转带；4-进料器；5-测试点；6-示踪剂注入；

图 2-2 分子蒸馏装置简图

Fig.2-2 Schematic drawing of the cold model experimental apparatus

在筒壁下端设检测点，选取等分塔出口圆周的四个点作为检测点，随机按顺时针方向依次编号 1、2、3、4。

实验设备主要参数：

马达转速范围：0~3000rpm；

蒸馏器壁内径：50mm；材质：玻璃（天大玻璃仪器厂制造）；

转子直径：8mm；转子高度：200mm；转子与外壁距离：0.5mm；材质：聚四氟乙烯。

2.2.2 实验仪器与原料

主要实验仪器：旋转带蒸馏实验装置一套（自行设计），电导仪一台（型号 DDS-11A,上海雷磁新泾仪器公司），秒表一个，10mL烧杯40个，10mL容量瓶 5支，100mL容量瓶 1支，0.1mL移液管 1支，5mL示踪剂注射器1支，100mL量筒 1支。

实验原料：氯化钾，蒸馏水，丙三醇（甘油）。

2.3 实验内容

2.3.1 停留时间测量

- (1) 在进料器中加入原料蒸馏水；
- (2) 开启马达使刮膜器转动；

- (3) 打开进料阀门开始进料, 使冷模壁面湿润;
- (4) 设置刮膜器转速 120rpm, 进料速率 0.05m/s, 使用秒表记录从开始进料到第一滴液体从出口流出的液体停留时间, 重复五次实验, 记录平均时间;
- (5) 按步骤(4)操作, 测量进料速率 0.05m/s, 刮膜器转速分别为 150rpm, 250rpm, 450rpm 时的液体停留时间;
- (6) 按步骤(4)操作, 测量进料速率为 0.1m/s, 刮膜器转速为 120rpm, 150rpm, 250rpm, 450rpm 时的液体停留时间;
- (7) 按步骤(4)、(5)、(6)操作, 测量丙三醇(甘油)的液体停留时间;
- (8) 实验结束, 关闭马达进行实验数据的处理。

2.3.2 停留时间曲线测量

2.3.2.1 准备工作

1. 标准曲线的测定

- (1) 取7.455gKCl, 加入适量蒸馏水完全溶解, 定容到100ml, 得溶液①;
- (2) 10ml溶液①加入100ml容量瓶中, 定容到100ml, 得溶液②;
- (3) 10ml溶液②加入100ml容量瓶中, 定容到100ml, 得溶液③;
- (4) 如上操作得5组溶液, 浓度分别为1mol/L, 0.1mol/L, 0.01mol/L, 0.001mol/L, 0.0001mol/L;
- (5) 测定各组溶液的电导率, 做标准曲线。

2. 实验前的准备及调试

- (1) 根据图 1-2 所示, 组装实验装置, 安放分布器及进料口;
- (2) 准备 1mol/L 的标准 KCl 示踪剂溶液;
- (3) 准备10mL的烧杯并贴好标签纸。

2.3.2.2 具体实验操作

- (1) 在进料器中加入原料蒸馏水;
- (2) 开启刮膜器转动系统;
- (3) 打开进料阀门, 开始进料;
- (4) 调整转速 150rpm、进料速率 0.05m/s;
- (5) 液膜流动稳定后, 脉冲式注入 1mol/L 的氯化钾溶液 5mL;
- (6) 同时开始每隔 2s 接液一次, 接液量约为 0.3mL;
- (7) 至出液基本达到纯水电导率(每点约为 9 个样), 停止接液;
- (8) 将所得样品取 0.1mL 稀释 100 倍, 至 10mL, 再用电导仪测其电导率, 记录实验结果;

(9) 修改操作条件为转速 150rpm，进料速率 0.1m/s 以及转速 300rpm，进料速率 0.05m/s、0.1m/s，重复以上步骤；

(10) 各组测试点测试完毕，实验结束，关闭马达，关闭电导仪实验数据的处理。

2.3.2.3 绘制氯化钾标准曲线

表 3-1 25℃氯化钾标准溶液浓度及电导率值

Table 3-1 Concentration and electric conductivity of KCl standard solution at 25°C

氯化钾浓度 mol/L	1	0.1	0.01	0.001
电导率 us/cm	111310	12852	1408.3	146.5

由表 3-1 中值绘制氯化钾标准曲线：

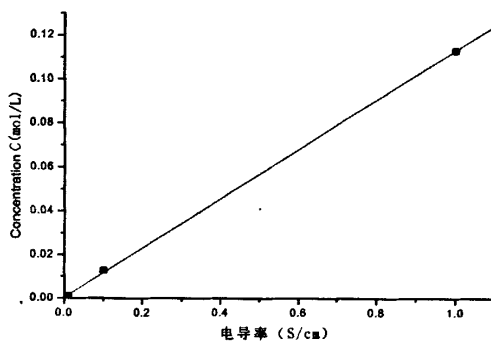


图 2-3 25℃氯化钾标准曲线图

Fig.2-3 KCl electrical-conductance calibration

纯水的电导率仅为 5~6us/cm，远远小于氯化钾浓度的电导率，为方便计算，设定纯水电导率为 0，即氯化钾曲线截距为 0，进行线性拟和后得到的公式为： $y = 9E-06x$ 。

2.4 实验结果分析

2.4.1 停留时间结果分析

实验测定了水和丙三醇在高低两种进料速率（0.1m/s，0.05m/s）下，随着刮膜器转速的不同（120rpm，150rpm，250rpm，450rpm），物料在塔壁上的停留时间变化。实验发现：在进料为丙三醇，进料速率 0.1m/s，刮膜器转速 120rpm 时，由于物料粘度大、进料量大且刮膜器转速低，可以直接在转子前观察到头波出现，而且多次重复实验均发现第一滴物料的流出位置在刮膜转子的刮动附近位置；而

在进料为水，进料速率 0.1m/s，刮膜器转速 450rpm 时，大的转速使转子前被刮动的液体产生飞溅。

表 3-2 25℃水和丙三醇在不同条件下的停留时间

Table 3-2 Residence time of water and glycerol at 25℃

转速 rpm		120	150	250	450
进料 速率 m/s	0.05 蒸馏水	7.4 s	7.8s	8s	7.7 s
	丙三醇	62s	62.3s	110s	150.5s
0.1	蒸馏水	1.5s	2.1s	2.3s	1.8s
	丙三醇	34s	34s	50.5s	91s

常温下，丙三醇的粘度 (945mPa.s) 远大于水的粘度 (0.890mPa.s)，所测停留时间如表 3-2 所示，进料速率增大时，两种物料的停留时间都显著减小，可见进料速率是影响物料在蒸发壁上停留时间的重要因素。

刮膜器转速对物料停留时间的影响规律因物料粘性的不同而有所差别。进料为水时，在低转速区，随转速增大，停留时间变长，当转速增大幅度较大时，液体在壁上的停留时间开始减少，结合出现液体飞溅的实验现象进行分析，原因可能是刮膜转子对液膜的强外力刮擦使液膜表面湍动剧烈，且刮膜转子前刮起的纵向波厚度较大，湍动更加严重，使液体往下流的速度加快。进料为丙三醇时，在低转速区，停留时间略有增加，但变化不大，当转速增加较大时，停留时间明显增长，从出口流出的液体速率比较均匀、缓慢，说明返混现象明显，可见，当物料粘度较大时，刮膜器转速对液体在蒸发壁面的分布影响更为显著。在实际实验中，停留时间过长容易造成物料返混严重，尤其不利于热敏性物质的分离正常进行，所以分离粘度较大的物系时，控制刮膜器转速在一定范围内非常重要。

2.4.2 停留时间分布结果分析

进料速率和刮膜器的转速都是影响分子蒸馏效率的重要因素，进料速率的快慢主要影响物料在蒸发壁面上的停留时间；刮膜器转速直接影响液体在蒸发壁面的分布，实验选用相差较大的转速与进料速度进行测量对比。

对比图 2-4 与 2-5 所示停留时间分布曲线可以得知，在转速 150rpm 下，进料速率越低，轴向停留时间分布越均匀；固定转速 300rpm 的时候，对比图 2-6 与 2-7 所示停留时间分布曲线会发现，此时进料速率对停留时间的影响稍微减弱。

实际上，转速过高过低都会对液体的分布不利。一般来说，转速过低，液体不容易分布均匀；转速过高，由于返混、涡流等条件的影响，扩散效果反而变差，也不利于液体的均匀分散。固定低进料速率，从图 2-4 与 2-6 对比可以看出，低流量，适宜的转子转速条件下，轴向上 RTD 分布比较均匀。而过高的转子转速，

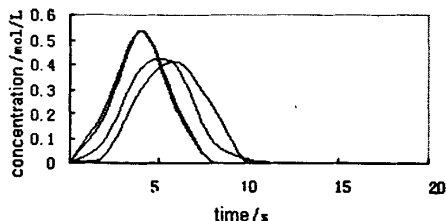


图 2-4 转速 150rpm, 流速 0.1m/s 时各
取样点的轴向 RTD

Fig. 2-4 Typical RTD in the apparatus with
150rpm, 0.05m/s

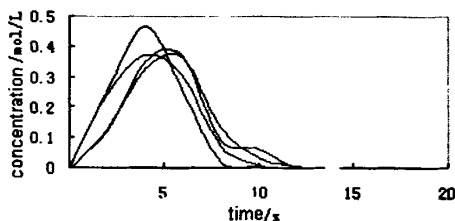


图 2-5 转速 150rpm, 流速 0.05m/s 时各
取样点轴向 RTD

Fig. 2-5 Typical RTD in the apparatus with
150rpm, 0.1m/s

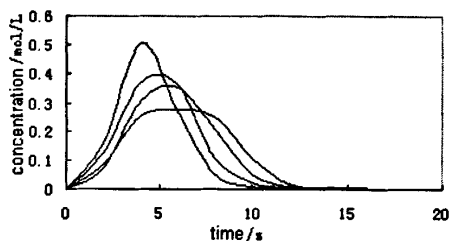


图 2-6 转速 300rpm, 流速 0.1m/s 时各
取样点的轴向 RTD

Fig. 2-6 Typical RTD in the apparatus with
300rpm, 0.05m/s

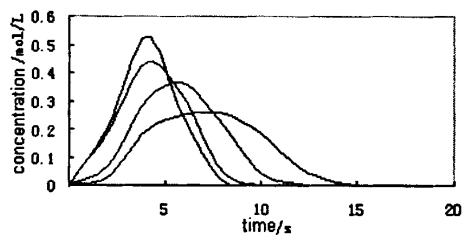


图 2-7 转速 300rpm, 流速 0.05m/s 时各取
样点的轴向 RTD

Fig. 2-7 Typical RTD in the apparatus
with 300rpm, 0.1m/s

反而使停留时间的分布均匀程度下降, 不利于液体在蒸发壁面的均匀分布。增大进料速率时, 对比图 2-5 与 2-7 所示, 过高的转速依然对液体分布不利, 与进料速率低时的停留时间分布对比可以看出, 相应的分布均匀程度都有所下降。这说明, 高的进料速率和过高的转速都会对停留时间的分布造成负面影响。因此实际生产中, 一定要选择合适的进料速率和刮膜器转速, 以保证获得最佳经济效益。

2.5 冷模实验小结

本章使用自行设计的设备进行了冷模实验研究, 由于实验条件所限, 实验中必然存在着一定的误差, 主要原因如下几点: (1) 实际的刮膜式分子蒸馏器在接近真空条件下操作, 系统压力一般小于 10Pa; 而实验中采用了常压操作, 必然导致相关材料的物性与实际有所差异, 由此造成液膜内的流体流动情况与实际存在一定的误差; (2) 实验电导率在测量过程中, 采用了稀释放大的方法, 操作过程的复杂化, 使系统误差增大; (3) 实验数据处理过程中, 多步计算中对数据结果采用了数学方法的省略和简化。

通过冷模实验结论总结得出了物料粘度、刮膜器转速和进料速率对蒸发壁面

液体停留时间及轴向停留时间分布的影响。结果表明刮膜器转速对物料停留时间的影响规律因物料粘性的不同而有所差别，刮膜器转速过大时容易造成低粘性物料的飞溅和高粘性物料的返混，但刮膜器转速适当越大，利于示踪剂在蒸发液膜的均匀分布；而进料速率是影响物料在蒸发壁面上停留时间的重要因素，适当的进料速率利于蒸馏分离进行，但进料速率过大，会造成系统内部沟流情况严重，不利于示踪剂在液膜内的均匀分布；对高粘度物料进行停留时间测量时还观察到刮膜转子前有轴向长波出现。本实验结论将会为检验 Fluent 模拟结果中的液膜分布及示踪剂浓度分布等部分提供帮助。

第三章 模型介绍与分析

理论的计算都是出自一个数学模型的结果,对于所要研究的物理过程,数学模型主要由一组微分方程组成。计算流体力学涉及计算机科学、流体力学、偏微分方程的数值计算、计算几何、数值分析等科学,在计算流体力学软件中,首先要熟悉相关的模型,及其适用范围,然后才能从中选择适合的模型进行计算。

课题选取刮膜式分子蒸馏分离过程中,蒸发壁面与冷凝壁面之间的三维区域为研究区域。首先,蒸发壁面具有一定的温度,对壁面上流动的流体进行传热;其次,蒸发壁面上有液相流动,对液相的研究,考察其单组分与多组分时的状态,也考察其在转子附近的复杂流动状态;第三,研究区域内还有稀薄气体存在,所以存在气液之间的热量传递;最后,整个过程中,刮膜器在一定转速下进行旋转。

根据如上的大体讨论,下面介绍流体力学软件中的相关模型与方法:多相流模型、湍流模型及近壁面处理方法和可动区域中流体的建模。

3.1 多相流模型

自然界和工程问题中会遇到大量的多相流动。在计算流体力学软件中,多相流系统中的相的概念具有更广泛的意义,所谓的“相”可以定义为具有相同类别的物质,该类物质在所处的流动中具有特定的惯性响应并与流场相互作用。比如说,相同材料的固体物质颗粒,如果具有不同尺寸,就可以把它们看成不同的相。刮膜式分子蒸馏设备中就存在气液两相问题,所以在使用 CFD 方法进行研究时,首先需要对各种的多相流模型有清晰的认识。

计算流体力学的研究进展为深入了解多相流动提供了基础,多相流一般可以分为连续-连续流动(continuous-continuous flow)和连续-离散流动(continuous-dispersed flow)两大类^[80],目前有两种数值计算的方法处理多相流:一类将主体相视为连续相,而将非主体相视为离散颗粒,在拉格朗日坐标下对其轨迹进行跟踪,即所谓的欧拉-拉格朗日方法;另一类则是把每一相均视为连续相,相与相之间相互渗透,共同占据计算单元格,即所谓的欧拉-欧拉方法。

欧拉-拉格朗日方法应用于连续-离散流动系统,其中流体被处理为连续相,直接求解奈维-斯特方程,而离散相是通过计算流场中大量的粒子、气泡或是液滴的运动得到的。其基本假设是作为离散相的第二相所占的体积分率非常

小,一般要求离散相的体积分率小于 10%。粒子或液滴运行轨迹地计算是独立的,它们被安排在流相计算的指定的间隙完成。此外,欧拉-拉格朗日方法中,离散相和流体相之间可以有动量、能量和质量的交换。欧拉-拉格朗日方法广泛应用于喷雾干燥器、煤和液体燃料的燃烧、旋风分离器等过程的模拟。通过对已有的应用进行分析可以看出,此方法不适用于刮膜式分子蒸馏过程模拟。

在欧拉-欧拉方法中,不同的相被处理成互相贯穿的连续介质。由于一种相所占的体积无法在被其他相占有,故此引入相体积率的概念。欧拉-欧拉方法对每一相通过求解相同的动量、能量和质量方程达到对速度等流体力学参数的预测,相间的动量、能量和质量的交换用经验公式来关联,对于粒子流来说,相间的动量、能量和质量的交换用动力学理论关联。欧拉-欧拉方法主要包括 VOF 模型、混合模型和欧拉模型。

3.1.1 VOF 模型 (The Volume of Fluid Model)

VOF 模型是一种在固定的欧拉网格下的表面跟踪方法,是在标记点格子法^[82](MAC 方法)的基础上发展起来的,MAC 方法第一次成功的处理了不可压缩的、粘性的、瞬变的具有自由表面的流体流动。文献^[82]中提出了只跟踪自由表面而非整个流体区域的流体体积函数法,大大降低了 MAC 法中所需的大量计算内存和运行时间。VOF 法可以模拟较陡的自由表面和非单一表面,同时它需要少量的计算机存储单元,因而具有处理含复杂自由表面流体力学问题的优越性。在 VOF 模型中,不同的流体组分共用着一套动量方程,计算时在全流场的每个计算单元内,都记录下各流体组分所占有的体积率。

VOF 模型在 Fluent 中的应用限制:

- (1) 必须使用离散求解器,而非耦合求解器;
- (2) 所有的控制容积必须充满单一或多相流体,不允许计算区域中没有任何类型的流体存在;
- (3) 只有一相是可压缩的;
- (4) VOF 模型中,不能模拟指定质量流率或者压力降的多股周期流动;
- (5) 使用 VOF 模型时,不能模拟组分的混合反应流模型;
- (6) 大涡模拟紊流模型不能用于 VOF 模型。

3.1.2 混合模型 (The Mixture Model)

混合模型是一种简化的多相流模型,该模型对整个混合流体求解动量方程,并定义相对速度来描述各个离散相。混合模型适用于量小的载粒子流动、气泡流动、沉积和旋风分离等情况,也适用于模拟不需要定义离散相相对速度的均相多

相流动^[83]。

混合模型在 Fluent 中的应用限制:

- (1) 混合模型只能使用离散求解器, 不能使用耦合求解器;
- (2) 混合模型中, 只有一相可压缩;
- (3) 混合模型中, 不能模拟指定质量流率或者压力降的多股周期流动模型;
- (4) 混合模型中, 不能模拟指定质量流率或者压力降的多股周期流动;
- (5) 混合模型不能与固化和溶化模型同时使用;
- (6) 混合模型中不能使用二阶隐式时间步长公式;
- (7) 混合模型不能用于无粘流动;
- (8) 混合模型不能用于模拟壁上热传导模型。

3.1.3 欧拉模型 (The Eulerian Model)

欧拉模型是 Fluent 中最复杂的多相流模型。它建立了一套包含有 N 个的动量方程和连续性方程来求解每一相。它的基本思路是认为两相流动可以看成是两种流体各自运动及其相互作用的加和^[83]。空间中各分散相与主体相相互共存, 相互渗透, 各相具有不同的速度及体积分数; 分散相在空间中连续, 作为拟连续相处理; 两流体间存在动量、能量及质量的相互作用; 压力项和各界面交换系数是耦合在一起的。欧拉模型在 Fluent 中可以模拟多相分离流, 及相间的相互作用, 相可以是液体、气体、固体的几乎任意的联合。

欧拉模型广泛应用于搅拌釜、流化床、鼓泡塔、板式塔、固体沉积等过程的数值模拟。

欧拉模型在 Fluent 中的应用限制:

- (1) 颗粒跟踪 (使用拉格朗日分散相模型) 仅与主相相互作用;
- (2) 欧拉模型中, 不能模拟周期流动 (不管指定质量流率还是压力降);
- (3) 欧拉模型不允许存在可压缩流体;
- (4) 欧拉模型不能用于无粘流动;
- (5) 欧拉模型中不能使用二阶隐式时间步长公式;
- (6) 欧拉模型中不允许组分输运、反应;
- (7) 欧拉模型不能模拟热传递;
- (8) 欧拉模型只能模拟气穴现象的质量传递, 不能模拟蒸发、冷凝等;
- (9) 进行紊流模拟时只能使用 $k-\varepsilon$ 模型。

3.2 湍流模型

流体的流动分为层流流动和湍流流动，层流流动就是流体层与层之间互相没有干扰，层与层之间既没有质量的传递也没有动量的传递；而湍流流动中层与层之间互相有干扰，而且干扰的力度还会随着流动而加大，层与层之间既有质量的传递又有动量的传递。判断流动是层流还是湍流，是看其雷诺数是否超过邻接雷诺数^[84]。刮膜式分子蒸馏器内的流体流动非常复杂，实际流动状态介于如下两种极限状态之间^[73] (a) 液膜完全湍动，混合均匀，在垂直于流体流动的方向上不存在浓度和温度梯度；(b) 降膜层流，半抛物线的速度分布且存在浓度和温度梯度。

湍流出现在速度变动的地方，这种波动使得流体介质之间相互交换动量、能量和浓度变化。实际情况中的绝大多数流动现象都属于湍流，但是实际工程计算中，如果直接模拟，则对计算机有较高的要求。实际上，瞬时控制方程可能在时间上、空间上是均匀的，或者可以人为改变尺寸，这样修改后的方程更便于计算。只是修改后的方程可能包含有我们所不知的变量，湍流模型需要用已知变量来确定这些变量。

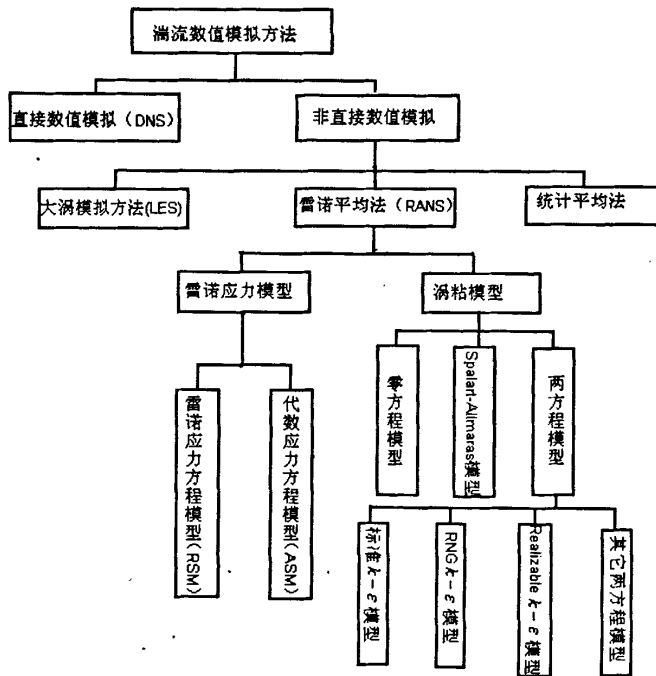


图 3-1 Fluent 中湍流模型结构示意图

Fig.3-1 Composition diagram turbulent models in Fluent

对湍流的理论研究的局限性，研究中很多地方还需要进行半经验假设，因而使用现有湍流模型会对模拟结果产生影响。如图 3-1 显示了湍流模型大体分类，计算流体力学软件中提供了适用于各种湍流情况的湍流模型，CFD 软件 Fluent 分别基于雷诺时均方程 (RANS) 和大涡模拟 (LES) 给出了湍流模型。其中 RSM 代表雷诺应力模型，它与基于 Boussinesq 方法的模型不同之处在于两者对雷诺时均方程中 $-\rho \overline{u_i u_j}$ 项的表达不同。同样，Spalart-Allmaras 模型与 $k-\varepsilon$ 模型的不同之处也在于封闭雷诺时均方程方法的不同，前者只采用了一个额外的方程，而后者构造了两个额外的方程。事实上，Fluent 中还提供了基于 Boussinesq 方法的标准 $k-\omega$ 和剪切应力输运 (SST) $k-\omega$ 两种湍流模型，其中 SST $k-\omega$ 湍流模型结合了 $k-\omega$ 湍流模型和 $k-\varepsilon$ 湍流模型的优点，较好的描述了主体湍流应力的输运性能。考虑到 $k-\varepsilon$ 模型能较好的模拟湍流流动，应用比较广泛，下面简要介绍各种 $k-\varepsilon$ 湍流模型，并将选择其中能较好模拟近壁区域快速变形的蒸发液膜的湍流模型进行应用研究。

3.2.1 标准 $k-\varepsilon$ 双方程模型

标准 $k-\varepsilon$ 双方程模型是最简单的完整湍流模型，是两个方程的模型，需要求解两个变量，速度和长度尺度。在 Fluent 中，标准 $k-\varepsilon$ 模型自从被 Launder 和 Spalding 提出之后，就变成工程流场计算中主要的工具了，至今已广泛应用超过二十年。具有适用范围广、更经济、更准确等优点，它是从实验现象中总结出来的，基于漩涡粘度是各向同性的假设上的半经验模型。与零方程湍流模型和单方程湍流模型相比，标准 $k-\varepsilon$ 模型具有使用范围更广泛等优点。大量的预报及其与不同实验结果的对照，表明标准 $k-\varepsilon$ 模型可以基本上成功的用于以下几种情况：无浮力平面射流；平壁边界流；管流、通道流或喷管内流动；无旋或弱旋的二维或三维回流流动。但是标准 $k-\varepsilon$ 模型用于以下几种情况则有较大的问题^[85]：强旋流；浮力流；重力分层流；曲壁边界流；低雷诺数流动；圆射流。而且在有些流动区域，有必要精确的描述湍流应力各分量的输送，应用各向同性涡动粘性系数建立起来的标准 $k-\varepsilon$ 模型，便显得不太准确，所以国内外一些学者对各向同性的标准 $k-\varepsilon$ 模型进行修正。

3.2.2 RNG $k-\varepsilon$ 双方程模型

RNG $k-\varepsilon$ 模型源于严格的统计技术。RNG $k-\varepsilon$ 模型与标准 $k-\varepsilon$ 模型非常相似，主要的改进在于：

(1) 标准 $k-\varepsilon$ 模型是通过传统的雷诺平均得到的，而 RNG $k-\varepsilon$ 模型使用了严格的统计方法；

- (2) 在 RNG $k-\varepsilon$ 模型的 ε 方程里添加了一项考虑快速变形流动的条件, 可以进行更加精确的预测;
- (3) RNG $k-\varepsilon$ 模型中包括了湍流中漩涡的影响, 提高了涡旋流的准确性;
- (4) 在标准 $k-\varepsilon$ 模型中湍流 Prandtl 数是一个常数, 在 RNG $k-\varepsilon$ 模型中湍流 Prandtl 数是一个解析公式;
- (5) 标准 $k-\varepsilon$ 模型是一种高雷诺数模型, RNG $k-\varepsilon$ 模型提供了考虑低雷诺数流动粘性的解析公式, 公式效用依靠正确求解近壁区域。

上面所列的特点使得 RNG $k-\varepsilon$ 模型比标准 $k-\varepsilon$ 模型更加准确和可靠。它特别适用于模拟以下这些流动方式: 分层流, 环流, 在弯曲几何体里的流动, 快速变形的流动, 涡旋流, 剪切层不稳定的流动, 低 Prandtl 数流体的传热, 低雷诺数流体流动和过渡流。因此与标准 $k-\varepsilon$ 模型相比, RNG $k-\varepsilon$ 模型可对近壁处的流体流动, 流线高度弯曲的流体流动, 快速变形的流体流动, 低雷诺数的流体流动, 过渡流, 尾流和漩涡流等流动方式进行更准确的预测。

3.2.3 Realizable $k-\varepsilon$ 双方程模型

在 Fluent 里除了标准 $k-\varepsilon$ 模型和 RNG $k-\varepsilon$ 模型外, 还有 Realizable $k-\varepsilon$ 模型, Realizable $k-\varepsilon$ 模型与标准 $k-\varepsilon$ 模型相比有两个主要的不同点^[86]:

- (1) Realizable $k-\varepsilon$ 模型为湍流粘性增加了一个公式;
- (2) 耗散率增加了新的传输方程, 这个方程来源于一个为层流速度波动而作的精确方程。

Realizable $k-\varepsilon$ 模型已经被证实与 RNG $k-\varepsilon$ 模型一样, 不但适用于模拟近壁处的流体流动、流线高度弯曲的流体流动、快速变形的流体流动、低雷诺数的流体流动、过渡流、尾流和漩涡流等流动方式, 而且适用于旋转坐标系下的非均相剪切流、边界层的流动等流动方式的模拟^[87]。Realizable $k-\varepsilon$ 湍流模型的一个主要不足是计算旋转和静态流动区域时不能提供自然的湍流粘度, 这是因为该模型在定义湍流粘度时考虑了平均旋度的影响, 这种额外的旋转影响已经在单一旋转参考系中得到证实, 由于这些修改, 把它应用于多重参考系统中需要注意。

3.2.4 近壁区域处理方法

湍流流动受壁面的影响很大, 平均流动区域将由于壁面不光滑而受到影响, 因为墙的存在会使湍流和漩涡消失, 在离壁面很近的地方, 粘性力将抑制流体切线方向速度的变化, 而且流体运动受壁面阻碍从而抑制了正常的波动。而湍流模型适用于模拟处于湍流核心的流体的流动状况, 特别是 $k-\varepsilon$ 、RSM 和 LES 这三种湍流模型基本上只在湍流核心区域有效。而刮膜式分子蒸馏器内的流体呈液膜

状分布在蒸发壁面上，所有选择一种合适的近壁区模型非常必要。

实验表明，近壁区可分为三个区域：层流底层，流动区域很薄，分子粘性力在动量、能量和质量传递中起主导作用、流体以层流方式流动；湍流边界层，只需考虑惯性力作用而无须考虑粘性力作用，流体处于完全湍动；过渡层，在层流底层与湍流边界层之间，流体的流动既非层流，又非完全湍流。

有两种方法为近壁面区域建模：一种方法是不直接求解受粘性影响的内区域，包括层流内层和过渡区，而是采用“壁面方程”的半经验公式将壁面与完全湍流区域衔接起来；另一种方法修正湍流模型，用修正后的模型求解近壁面区域，使壁面处受粘性力影响的区域也能用网格划分解决。壁面方程法运用在低雷诺数流动区域并不理想，其所依赖的壁面方程的假设不再成立，这种情况下，需要用“近壁面模型”来解决粘性力影响区域的流动。根据以上方法，Fluent 中提供了三种相应的处理湍流近壁区的数学模型：标准墙函数、非平衡墙函数和增强壁面处理。

标准墙函数 (Standard Wall Functions) 用半经验的对数规则来代替对粘性区域的求解，因此标准墙函数能够为大多数高雷诺数的边界限制流提供合理、精确的预测；非平衡墙函数 (Non-equilibrium Wall Functions) 在标准墙函数的基础上，采用两层理论来计算湍流壁面附近单元的湍流动能，对压力梯度和偏移平衡点进行了部分说明，进一步扩展了墙函数的使用范围，被推荐使用在包含脱流、回流和冲击的复杂流动当中；增强壁面函数 (Enhanced Wall Functions) 是一种近壁面模型方法，它通过增强壁面函数结合了一个双层模型，如果靠近壁面的网格足够好，能够解决薄片状的亚表层，那么这里的增强壁面处理就等同于传统的双层带状模型，使得靠近壁面的网格足够好，势必会大大地增加运算量，为了达到采用近壁面模型方法的目的，要为细近壁面网格保证标准双层模型方法的精确度，且不会较大地减小对壁面函数网格地精确度，Fluent 能够将双层模型和增强壁面函数相结合。

3.3 可动区域中流动问题建模

在运动参考系中的流动问题求解需要使用可动单元体，单元体的运动可以由参考坐标系的运动来解释。通常模型都是建立在关系参考坐标系中，但 CFD 软件中也可以在具有加速度的参考坐标系中建立流动模型，用来解决很多设备旋转问题。图 3.2 可以阐明坐标系转换过程中动静部分的变化。当有些旋转问题被定义在旋转坐标系中时，由于旋转边界与参考系以相同的速度运动，因此旋转边界相对旋转参考系就是静止的。

旋转坐标系的约束条件:

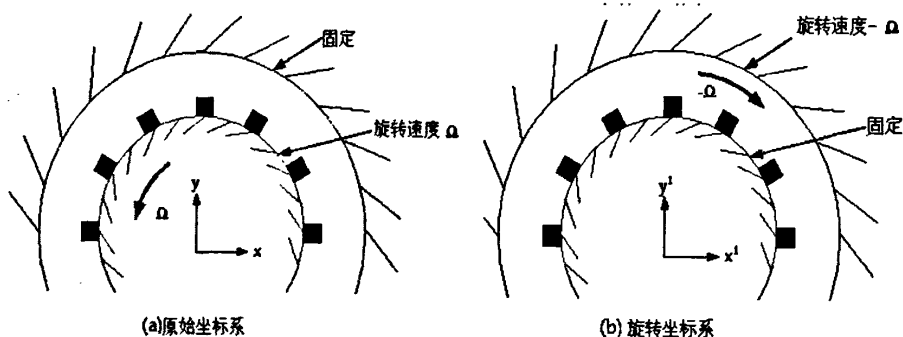


图 3-2 静止坐标系与旋转坐标系的转换

Fig. 3-2 Transforming coordinates to a rotating reference frame

- (1) 二维问题，旋转轴必须平行于 Z 轴；
- (2) 二维轴对称性问题，旋转轴必须是 X 轴；
- (3) 三维问题，对于旋转单元体，先指定一个旋转轴来建立网格，通常选取 x 轴，y 轴或 z 轴做为旋转轴。

3.4 研究工具与研究对象

近几十年来，随着数值技术的广泛运用，求解复杂方程的各种数值方法越来越向计算简单、适用性广、精度高、效率快的方向发展。人们将数值技术、计算机技术、流体力学理论等结合起来，开发了许多大型计算流体力学软件，极大地方便了人们对各种流体现象传递性能的研究。

在国外众多计算流体力学商业软件中，有美国 CHAM 公司等推出的 PHOENICS，Gosman 公司等推出的 TEACH 系列及 FLOW3D，美国 Fluent 公司推出的 Fluent 系列，以及英国 AEA 公司推出的 CFX 和 STAR-CD。国内也开发出了一些试用软件，如：TEAM 和 FACI 等。计算流体力学软件一般包括三个部分，即前处理器、解算器和后处理器。由于计算流体力学软件的出现及不断改进，使得计算流体力学的研究从以前需要编程、调试等繁杂的工作中解脱出来，从而使研究者集中精力对复杂流体问题内部规律进行更深入细致的研究。本课题选择使用计算流体力学软件 Fluent6.2 进行数值模拟计算。

对刮膜分子蒸馏过程进行分析，可以确定，在计算区域内存在气液两相，液相均匀的分布在蒸发壁面上，侧重观察气液界面的分布时选用 VOF 多相模型可以使结果更为精确；在液相中加入第二组分作为示踪剂，然后监测出口不同点处的浓度分布，可以测得第二组分的停留时间分布曲线；如果忽略相间质量传递，

也可以使用 VOF 对计算区域内的温度场分布进行预测，只是由于气液热传导系数的不同，相间热传导存在一定误差。为了精确预测液相中的速度场分布，选用可以包含两个动量方程和连续性方程的欧拉模型进行模拟，只对结果中的液相速度场分布进行分析。

刮膜分子蒸馏器较之降膜分子蒸馏器的优势在于转子的存在使得蒸发壁上液膜流动状态复杂，利于传热传质，从而提高分离效率，本研究选用适于旋转模型的 RNG $k-\epsilon$ 湍流模型，用增强近壁模型处理近壁区的流体流动，使用旋转坐标系解决刮膜器转动问题，刮膜转子的旋转方向由右手定则确定。至此，所选用的模型与计算方法大体确定。

第四章 模型选择与计算

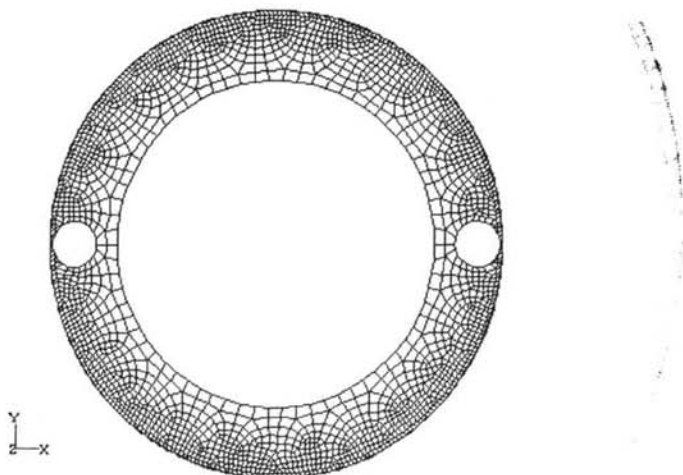
4.1 设备结构分析与网格划分

刮膜式分子蒸馏器是在降膜式蒸发器内设置一个转动的刮膜器,工业上应用比较广泛,但由于在物料流动的同时加入了机械的作用,使得分子蒸馏过程的传热和传质研究变得异常复杂。如前所述,模拟选取的是刮膜式分子蒸馏分离过程中,蒸发壁面与冷凝壁面之间的三维区域为研究区域。

图 2-1 为计算所参考的刮膜式分子蒸馏装置,实际过程中,物料从进料口滴到刮膜器顶部固定圆盘,从刮膜器顶圆盘周边与蒸发壁面之间的缝隙流下,然后被刮膜转子刮动,均匀分布在蒸发壁上。

选择空气、水为两相物系,乙醇为液相第二组分示踪剂,液相从入口处的圆环进料,内外两环距离 1mm,两个直径为 8mm 的转子距蒸发壁面 0.3mm,在计算区域内与 Z 轴呈对称分布,蒸发壁面高为 200mm (图 5-1,5-2)。

为了力求模拟结果显示更为精确,在前处理的网格划分过程,尽量使用结构化网格。先对径向切面进行网格划分,如图 4-1 所示,在外圆环使用边界层细化网格,在切除了两个转子圆面的内圆环面上,使用 submap 划分;然后使用 cooper 法对整个三维结构进行网格划分。共生成网格 15 余万。



(a) 径向切面网格划分 (b) 转子附近入口局部网格划分

图 4-1 二维截面上的网格划分策略

Fig. 4-1 2-D grid scheme of computational fluid area

4.2 数学模型选用

4.2.1 两种多相流模型

受所使用模型的应用范围限制，选用两种多相流模型对流动过程进行模拟。

4.2.1.1 VOF 模型

使用 VOF 模型进行气液界面的监测、停留时间分布监测和温度场分布的预测时，需要在模型建立过程进行几点假设：(1)计算流体不可压缩，(2)忽略刮膜转子的自转作用，(3)忽略相间传质作用。

VOF 公式建立的基础是两种或多种流体没有互相穿插，每增加一个相，就引进一个变量，即体积积分率。在所使用的模型中，主相为空气，第二相是水。则有：

$$\frac{\partial \alpha_L}{\partial t} + \vec{v} \cdot \nabla \alpha_L = 0 \quad (4-1)$$

其中 L 代表液相水，G 代表空气；

$$\alpha_L + \alpha_G = 1 \quad (4-2)$$

每一单元格中的密度可以表示为：

$$\rho = \alpha_L \rho_L + (1 - \alpha_L) \rho_G \quad (4-3)$$

整个计算区域内使用单一的动量方程，作为结果的速度场是由各相共享的，动量方程如下所示：

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \vec{v}) + \nabla \cdot (\rho \vec{v} \vec{v}) = -\nabla p + [\mu(\nabla \vec{v} + \nabla \vec{v}^T)] + \rho \vec{g} + \vec{F} \quad (4-4)$$

能量方程为：

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho E) + \nabla \cdot [\vec{v}(\rho E + p)] = \nabla \cdot (k_{eff} \nabla T) \quad (4-5)$$

VOF 模型中，将能量 E 和温度 T 处理为质量平均变量：

$$E = \frac{(\alpha_L \rho_L E_L + \alpha_G \rho_G E_G)}{(\alpha_L \rho_L + \alpha_G \rho_G)} \quad (4-6)$$

这里 k_{eff} 是有效热传导，也是被各相共享的。和速度场一样，在气液相间存在大的温度差时，靠近界面的温度的精确度会受到限制。

由于在液相中添加第二组分，模拟所需内存较大，所以在选用计算界面附近的插值方法时，没有选用缺省的几何重建方案（The Geometric Reconstruction Scheme），而选用了隐式方案（The Implicit Scheme）来降低计算量。

4.2.1.2 欧拉模型

选用欧拉模型进行模拟, 预测计算区域内液相的速度场分布, 也需要对使用的模型进行几点假设: (1)计算流体不可压缩, (2)计算区域内流动为湍流, (3)忽略刮膜转子的自转作用。

多相欧拉模型中, 需要在原有动量和连续性守恒方程的基础上, 修改原始的设置, 引入附加的守恒方程。这涉及到多相体积分数 α_q , q 表示多相中的一相,

体积分数代表了每相所占据的空间, 并且每相独自满足质量和动量守恒定律。

q 相的连续方程为:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_q \rho_q) + \nabla \cdot (\alpha_q \rho_q \mathbf{u}_q) = \sum_{p=1}^n \dot{m}_{pq} \quad (4-7)$$

其中 \dot{m}_{pq} 表示了从第 p 相到 q 相的质量传递。

q 相的动量平衡方程:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\alpha_q \rho_q \bar{\mathbf{u}}_q) + \nabla \cdot (\alpha_q \rho_q \bar{\mathbf{u}}_q \bar{\mathbf{u}}_q) = \\ -\alpha_q \nabla p + \nabla \cdot \bar{\bar{\boldsymbol{\tau}}}_q + \sum_{p=1}^n (\bar{\mathbf{R}}_{pq} + \dot{m}_{pq} \bar{\mathbf{u}}_{pq}) + \alpha_q \rho_q (\bar{\mathbf{F}}_q + \bar{\mathbf{F}}_{lift,q} + \bar{\mathbf{F}}_{vm,q}) \end{aligned} \quad (4-8)$$

其中: $\bar{\bar{\boldsymbol{\tau}}}_q$ 是第 q 相的压力应变张力, p 是所有相共享的压力, $\bar{\mathbf{F}}_q$ 是外部体积力, $\bar{\mathbf{F}}_{lift,q}$ 是升力, $\bar{\mathbf{F}}_{vm,q}$ 是虚拟质量力, $\bar{\mathbf{R}}_{pq}$ 是相之间的互相作用力, 满足相互作用项:

$$\sum_{p=1}^n \bar{\mathbf{R}}_{pq} = \sum_{p=1}^n K_{pq} (\bar{\mathbf{u}}_p - \bar{\mathbf{u}}_q) \quad (4-9)$$

其中, K_{pq} 是相间动量交换系数, 相之间的动量交换是以相间交换系数为基础的。

础的。

欧拉多相流动量方程中选用的紊流模型为 $k-\varepsilon$ 模型中提供的混合湍流模型, 这是默认的多相紊流模型, 可应用于刮膜分子蒸馏设备中存在的这种分层的多相流。

4.2.2 RNG $k-\varepsilon$ 湍流模型

在求解湍流情形势, 使用 RNG $k-\varepsilon$ 湍流模型, κ 和 $k-\varepsilon$ 的传递方程表示如下:

$$\rho \frac{Dk}{Dt} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\alpha_k \mu_{eff} \frac{\partial k}{\partial x_j} \right) + G_k - \rho \varepsilon \quad (4-10)$$

$$\rho \frac{D\varepsilon}{Dt} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\alpha_\varepsilon \mu_{eff} \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right) + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{k} G_k - C_{2\varepsilon} \rho \frac{\varepsilon^2}{k} - C_{2\varepsilon}^* \rho \frac{\varepsilon^2}{k} \quad (4-11)$$

α_k 和 α_ε 是 k 方程和 ε 方程的湍流 Prandtl 数, 均由以下公式计算:

$$\left| \frac{\alpha - 1.3929}{\alpha_0 - 1.3929} \right|^{0.6321} \left| \frac{\alpha + 2.3929}{\alpha_0 + 2.3929} \right|^{0.3679} = \frac{\mu_{mol}}{\mu_{eff}} \quad (4-12)$$

式中, $\alpha_0=1.0$, 此外, $C_{2\varepsilon}^*$ 由以下公式表示:

$$C_{2\varepsilon}^* \equiv C_{2\varepsilon} + \frac{C_\mu \rho \eta^3 (1 - \eta/\eta_0)}{1 + \beta \eta^3} \quad (4-13)$$

$$\eta \equiv S k / \varepsilon \quad (4-14)$$

式中, $\beta=0.012, \eta_0=4.38$ 。

当加入第二个组分时, 需要选择化学物质的守恒方程, Fluent 通过第二种物质的对流扩散方程预估及每种物质的质量分数, Y_i 。守恒方程:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho Y_i) + \nabla \cdot (\rho \bar{v} Y_i) = -\bar{J}_i \quad (4-15)$$

\bar{J}_i 是物质 i 的扩散通量, 由浓度梯度产生。

4.2.3 增强壁面处理模型

整个控制区域被分为粘性影响区域和完全湍流区域, 它们的分界点由湍流雷诺数 (Re_y) 来决定, 湍流雷诺数可由下式表示:

$$Re_y = \frac{\rho y \sqrt{k}}{\mu} \quad (4-16)$$

式中: y 是网格中心到墙的距离, k 为湍动能, μ 为粘度。

当湍流雷诺数 $Re_y > 200$ 时, 流体处于完全湍流区, 此时用相应的湍流模型来求解, 当 $Re_y \leq 200$ 时, 流体处于粘性影响区, 用 Wolfstein 单方程模型求解。

在 Wolfstein 单方程模型里相应于两种湍流模型, 湍流粘度由下式求得:

$$\mu_t = \rho C_\mu l_\mu \sqrt{k} \quad (4-17)$$

其中:

$$l_\mu = y C_l \left[1 - \exp\left(-\frac{Re_y}{A_\mu}\right) \right] \quad (4-18)$$

ε 由下式求得:

$$\varepsilon = \frac{k^{\frac{3}{2}}}{l_\varepsilon} \quad (4-19)$$

其中:

$$l_\varepsilon = y C_l \left[1 - \exp\left(-\frac{Re_y}{A_\varepsilon}\right) \right] \quad (4-20)$$

且, $C_1 = kC_\mu^{\frac{3}{4}}$, $A_\varepsilon = 2C_1$, $A_\mu = 70$ 。

4.3 初始设置

边界条件设置为: 入口处水以常温 298K 进料, 蒸发壁面的温度为 373K, 冷凝壁面为常温 298K; 设置入口类型为速度入口, 在刮膜器转速固定为 150rpm 时, 液相水的进料速度(Feed flow rate 简写为 FR)分别为 $FR_1=0.05\text{m/s}$, $FR_2=0.1\text{m/s}$, $FR_3=0.2\text{m/s}$; 在水的进料速度固定为 0.05m/s 时, 刮膜器的转速(Rotational velocity 简写为 RV)依次增加为 $RV_1=120\text{rpm}$, $RV_2=150\text{rpm}$, $RV_3=180\text{rpm}$; 出口类型为压力出口。

设置壁面边界条件时, 先将混合流体设定在旋转坐标系下, 并且其旋转速度大小设为转子转速。然后将蒸发壁面与冷凝壁面均设为移动墙, 相对速度设为坐标旋转速度的相反值; 将转子设为固定墙, 相对速度为零, 转子的旋转方向由右手定则确定。

操作条件设定如下: 操作压力为 10Pa, 压力参考中心在坐标中心 (0, 0, 0) 处, 激活重力选项, 设定重力加速度为 9.81m/s^2 。

进行液相水中第二组分的停留时间测量时, 使用 VOF 模型进行非稳态操作, 待液相水在流场中流动稳定后, 导入第二组分注入的 UDF(如下所示), 同时在出口面上检测第二组分流出的浓度分布曲线。

```
#include "udf.h"
DEFINE_PROFILE (inlet_tracer, thread, nv)
{face_t f;
  real flow_time = RP_Get_Real("flow-time");
  begin_f_loop (f, thread)
  { if(flow_time<t)
    F_PROFILE (f, thread, nv) =0;
    if(flow_time>t&&flow_time<=t+1)
      F_PROFILE (f, thread,nv)=0.05;
    else if(flow_time>t+1)
      F_PROFILE (f, thread,nv)=0;
    }
  end_f_loop (f, thread)
}
```

第五章 模拟结果与讨论

模拟计算过程采用非稳态模拟，在模拟开始时，设置时间步长为一个刮膜转子刮过圆周上同一位置所用时间的二十分之一，待结果收敛后，适当增大时间步长，加快运算过程。

图 5-1 中所示为模型的径向切面，图中所示 a~g 七个点在同一圆周 C 上，距离外圆周（蒸发壁面）0.2mm，根据右手定则判断点 b~d 位于刮膜转子前，点 e~g 位于刮膜转子后；图 5-2 为模型的轴向切面， z_1, z_2, z_3 分别是距离入口 x-y 截面 50mm, 100mm, 150mm 的径向切面。

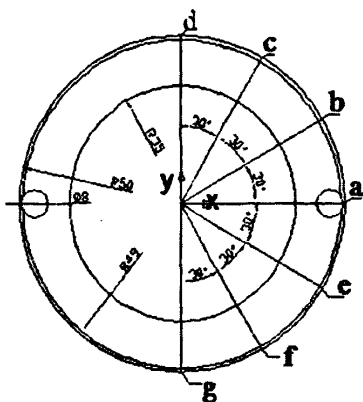


图 5-1 计算区域径向切面

Fig. 5-1 Schematic diagram of the computational field in radial cross section

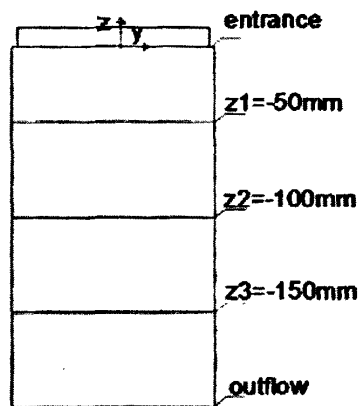


图 5-2 计算区域轴向切面

Fig. 5-2 Schematic diagram of the evaporating cylinder in longitudinal cross section

模拟所测的平行于 z 轴的线用 l 表示，不同点在三个不同截面上的名称见表 5-1:

表 5-1 三维计算区域内的监测点与线

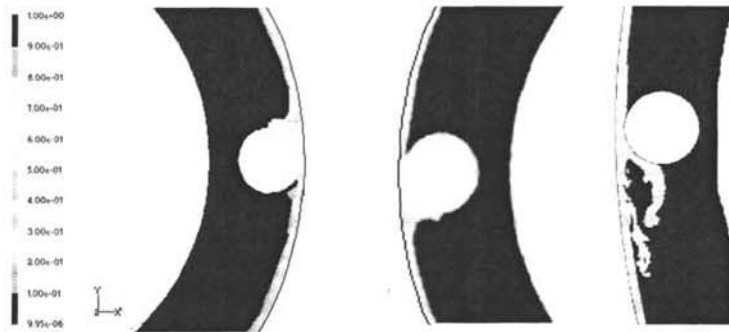
Table 5-1: points monitored in the 3-D computational area

	a	b	c	d	e	f	g
z_1	a_1	b_1	c_1	d_1	e_1	f_1	g_1
z_2	a_2	b_2	c_2	d_2	e_2	f_2	g_2
z_3	a_3	b_3	c_3	d_3	e_3	f_3	g_3
l	l_a	l_b	l_c	l_d	l_e	l_f	l_g

所有计算流体力学的数值计算结果都必须通过验证^[88]，验证方法有四种：(1) 与经验值比较；(2) 实验验证；(3) 与已有分析结果的相似但相对简单的模型比较；(4) 与已有文献中的权威数值比较。由于刮膜式分子蒸馏设备中转子的存在，在物料流动的同时加入了机械的作用，使得分子蒸馏过程的传热和传质研究变得异常复杂，全部进行实验验证存在困难，所以采用了实验验证和与文献值比较的综合方法对模拟结果进行验证。

5.1 液相分布

图 5-3 所示为转速 150rpm，进料速度为 0.05m/s 时径向截面 $z_2=-100\text{mm}$ 上的液膜分布，因为液膜较薄，如果显示整体截面则无法清晰观察液膜，且两个转子的刮动呈中心对称，所以图中只显示了一个转子附近的液膜分布。



(a) 欧拉模型结果；(b)VOF 模型结果；(c)二维模型结果

图 5-3 的转子附近液膜分布

Fig. 5-3 Volume distributions beside a wiper

图中(a)和(b)分别是使用不同多相流模型得出的结果，(c)为已有文献^[77]中二维模型的模拟结果，由图可以看出：由于刮膜转子的较大推动外力，转子前的液膜厚度最大，几个模型的模拟结果一致；实验测定丙三醇在高进料速率，低转速时的停留时间过程中也观察到转子前出现明显的纵向波，模拟结果与实验现象完全吻合。由于在所模拟的三维模型中，液相在一定进料速率下是连续进料的，所以径向截面上，转子后紧靠转子的位置处，液膜厚度并不均匀，而给定液膜厚度进行模拟的二维模型中，转子后的液膜受转子拖曳力的作用，厚度明显较薄，两种模拟结果稍有区别。

刮膜器的刮动使转子前出现头波，增大了蒸发表面积，同时头波随着转子的刮动，不断更新液膜表面，使液膜内的传质与传热进行的更为充分，转子后的液

膜较薄，蒸发壁面与液膜表面距离小，液膜内垂直于流动方向上的温度、浓度梯度相应变小，从而液膜表面温度接近蒸发壁面温度，有利于传热。

图 5-4 为使用 VOF 多相流模型的模拟结果，图中所示为表 5-1 中所监测的轴

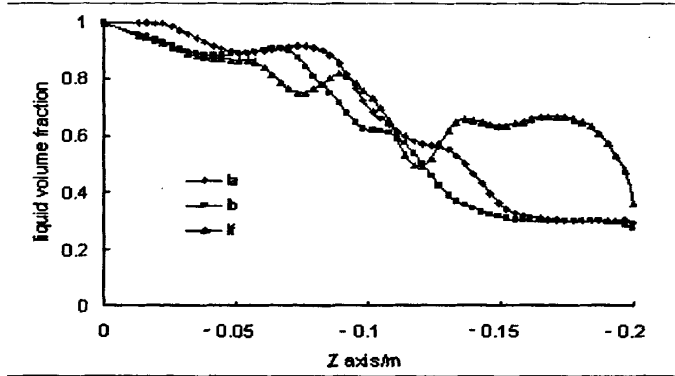


图 5-4 壁面附近轴向液相体积含量

Fig. 5-4 Dependence of the liquid volume fraction on the evaporating cylinder height

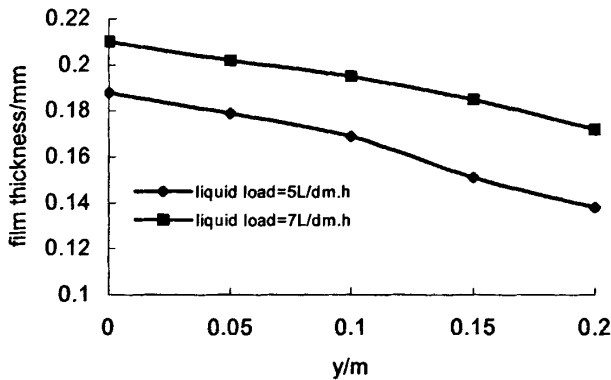


图 5-5 文献[71]中沿蒸发壁面的液膜厚度变化

Fig. 5-5 Dependence of the film thickness on the evaporating cylinder height in literature

向线上的液相体积含量变化趋势，线 l_a 位于转子前，线 l_b 位于转子底部，线 l_c 位于转子后，图中曲线显示大体的变化规律是沿着 z 轴的负向，液相体积含量逐渐降低，也即在流体流动的方向上液膜逐渐变薄；文献^[71]通过对双组分体系的降膜分子蒸馏过程进行模拟计算，所得出的液膜厚度在液膜蒸发与粘度的影响下沿流体流动方向逐渐变薄，图 5-5 为其在不同持液量下液膜厚度沿蒸发壁面的部分变化曲线，液体流动方向为 y 轴正向，经过对比发现，虽然液膜厚度都会减小，但模拟结果中液膜厚度的降低过程波动性较大，这是刮膜式分子蒸馏与降膜式分子蒸馏的区别。由图 5-3 可以观察到，在径向截面上转子刚刮过的位置处液膜变薄，但是，观察 5-4 中曲线发现，沿着壁面附近的监测线 l_c 上，液相水的体积含量曲

线波动较大,说明在刮膜转子刚刚刮过的位置上,液膜虽然变薄,但不停有物料流下更新液膜表面,且液膜出现强烈的波动现象,而线 l_b 位于前一个转子刮过之后,后一个转子即将刮到的位置,此位置的液膜相对稳定,所以线 l_b 上的液相水的体积含量曲线的降低速度相对平稳。

5.1.1 转速对液相分布的影响

刮膜器的转速 (Rotational velocity 简称为 RV) 是影响分子蒸馏效率的重要因素之一,图 5-6 中曲线描述的是进料速度为 0.05m/s,转速为 $RV_1=120\text{rpm}$, $RV_2=150\text{rpm}$, $RV_3=180\text{rpm}$ 时,在截面 $z_2=-100\text{mm}$ 的圆周 C 上七个不同点(见表 5-1) 处的液相体积含量分布,曲线上各点的体积含量分布说明,在不同的转速下均显示转子前位置处的液膜较厚,转子后的液膜较薄,这已经在实验中得到验

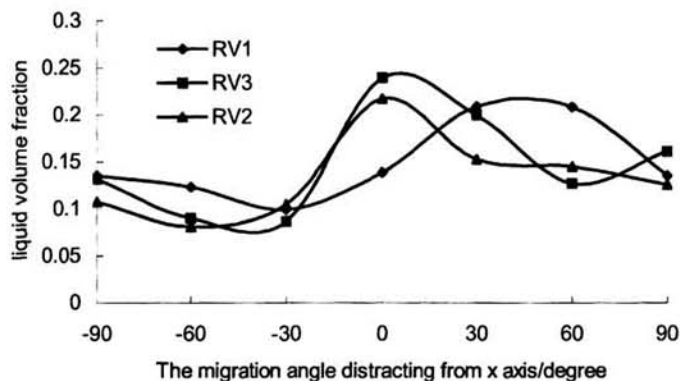


图 5-6 不同转速下 z_2 截面某圆周上的液相体积含量分布

Fig. 5-6 Dependence of liquid volume fraction on the rotational velocity



图 5-7 不同转速下 z_2 截面转子附近的液相体积含量分布

Fig. 5-7 Dependence of liquid volume fraction in z_2 on the rotational velocity

证；由于刮膜器转速直接影响液体在蒸发壁面的分布，从图中可以看出，在远离刮膜转子的位置上，随着转速增大，液膜厚度的变化不大，在转子附近，特别是转子前，液膜厚度随转速的波动较大。图中不同转速下的曲线规律并不明显，这是由于随着转速增大，转子前的头波波动较大，同一位置处的液相体积含量变化无法再用来说明液膜厚度变化；通过观察转速改变时，截面 $z_2=-100\text{mm}$ 的液膜波形变化（图 5-7）可以说明头波随转速增大的剧烈波动状况。通过冷模实验的观察也可以发现，转速过大时会出现液滴飞溅现象，这在实际的分子蒸馏过程中，会导致蒸发壁面的液体未经蒸馏直接到达冷凝壁面，影响轻组分的收率。

5.1.2 进料速度对液相分布的影响

进料速率(Feed rate 简称为 FR)也是影响分子蒸馏效率的重要因素之一，图 5-8 为转速为 150rpm，进料速率为 $FR_1=0.05\text{m/s}$ ， $FR_2=0.1\text{m/s}$ ， $FR_3=0.2\text{m/s}$ 时，在截面 $z_2=-100$ 的圆周 C 上七个不同点（见表 5-1）处的液相体积含量分布，图中曲线显示液相体积含量随着进料速率变化的规律非常明显，进料速率增大，在同一截面同一圆周上的液相体积含量增大，即同一截面上的液膜厚度增加，而且液膜厚度的变化趋势基本上与以上分析的一致，只有在转子附近的波动最大。在一定范围内增加进料量可以增大原料的处理量，但在其它条件不变的前提下进料速率增大，导致液膜变厚，不利于液膜内部传热的进行。

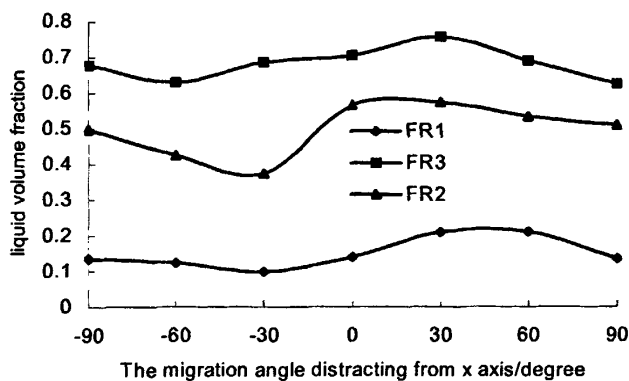


图 5-8 不同进料速率下 z_2 截面某圆周上的液相体积含量分布

Fig. 5-8 Dependence of the liquid volume fraction on the feed flow rate

由上述的现象与曲线可以发现，三维模型虽然可以给出更多细节，但由于模型假设刮膜转子没有自转，转子前的头波随转速增大会剧烈波动，如果考虑刮膜转子的自身转动，会有部分液相从转子底部通过，头波的刮动湍动会有所减弱，

所以模拟时出现液体飞溅的转速远小于实验时的转速。由于液相会有部分从转子底部通过，所以，改进刮膜转子的形状，通过在转子上设置导流的沟槽等方法可以在刮膜器转速较大时，有效控制头波的湍动，降低液滴的飞溅状况，从而可以优化设备，提高分离效率，目前已有学者从改善转子的形状入手改进分子蒸馏设备的文献报道^[41, 54]。

5.2 液相速度分布

速度场变化对于分离过程具有重要意义，为了对液相速度场进行针对分析，选用欧拉模型进行速度场的模拟。图 5-9 与图 5-10 是操作条件为刮膜器转速 150rpm，进料速度为 0.05m/s 时，轴向不同位置截面上（ $z_1=-50\text{mm}$ ， $z_2=-100\text{mm}$ ， $z_3=-150\text{mm}$ ）液相的切向速度分布与径向速度分布。

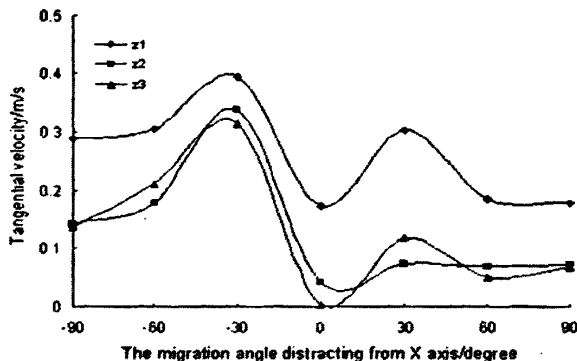


图 5-9 不同径向截面圆周上的切向速度分布

Fig. 5-9 Dependence of the tangential velocity in circumference on the evaporating cylinder height

如图 5-9 所示，转子前后的切向速度都较大，说明转子刮过之后，在强外力的刮擦作用下，切向速度快速增大，速度梯度较大；刮膜转子前会产生头波，且头波波动较大，切向速度也相应增大。图中曲线显示转子后的切向速度低于转子前的切向速度，可见转子对其前后的切向速度都有影响，且对刚刚刮过的液膜的切向速度影响更大；在远离转子的位置处，切向速度开始逐渐降低；而在沿着流体流动方向的轴向上，流体流动由入口处的不稳定流动变为周期性的稳定流动，切向速度的变化在轴向上的差距逐渐变小。

从图 5-10 中代表径向速度值的纵坐标上数值范围可以看出，在三个有代表

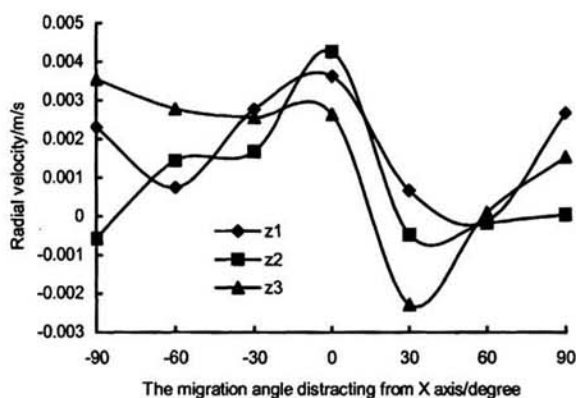


图 5-10 不同径向截面圆周上的径向速度分布

Fig. 5-10 Dependence of the radial velocity in circumference on the evaporating cylinder height

性的截面上的液膜内，径向速度均有正负的变化，说明径向速度既有指向冷凝壁面的方向，也有指向蒸发壁面的方向，径向速度的多方向变化可以使液膜内与流体流动方向垂直的方向上浓度与温度混合均匀。图中曲线坐标显示，最低负值出现在刮膜转子前，最高正值出现在刮膜转子后紧靠转子的位置，表明在所截面上的液膜内，转子对液膜的压力使液相产生了指向蒸发壁面的径向速度，而转子前存在液膜径向速度方向指向冷凝面，这之前分析的头波湍动状态有关，也可以解释冷模实验中刮膜转子前产生液体飞溅的实验现象。

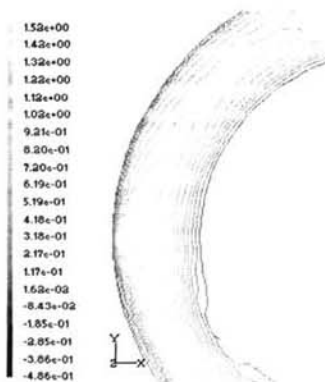


图 5-11 转子附近切向速度分布
Fig. 5-11 Tangential velocity profile around a wiper

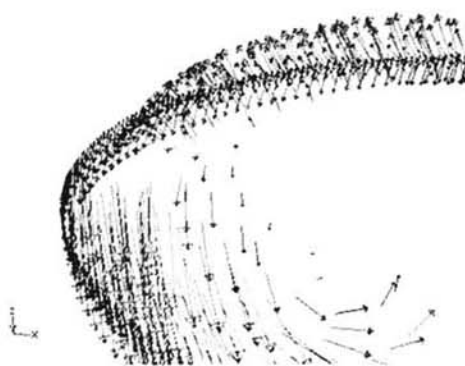


图 5-12 转子前后的速度矢量方向
Fig. 5-12 Velocity vectors in front of and behind a wiper

图 5-11 与 5-12 是 z_2 截面上转子附近的速度云图与速度矢量图，由云图和矢量图也可看出，转子前后的速度都不稳定，且转子前头波的速度矢量向下，而转子拖曳后的区域速度有向上和向下的分量，说明回流不仅出现在径向，也出现在

轴向，回流现象完全是由于刮膜转子的刮擦作用产生。径向回流利于减小垂直于流动方向上的液膜表面温度、浓度与主体温度、浓度的差距；而轴向回流如果过大，会导致出现返混，不利于分离进行。

5.2.1 转速对速度分布的影响

图 5-13 与 5-14 中的曲线所代表的是进料速率 0.05m/s ，转速为 $RV_1=120\text{rpm}$ ， $RV_2=150\text{rpm}$ ， $RV_3=180\text{rpm}$ 时，在截面 $z_2=-100\text{mm}$ 的圆周 C 上七个不同点（见表 5-1）处的径向速度与切向速度分布趋势，刮膜器转速越大，刮膜转子在同一位置上出现的频率越高，由图 5-13 可以看出，随着刮膜器转速的改变，径向速度变化最明显的位置处于转子后紧靠转子的底部位置，转速越大，指向蒸发壁面的径向速度越大，这加强了液膜内部径向上的传质与传热，利于分离过程的进行；远离转子的位置上，径向速度变化并不明显。

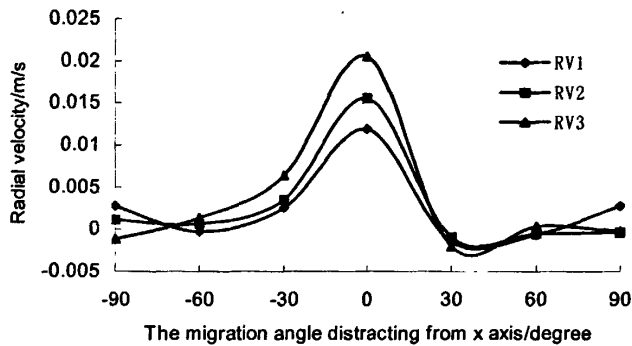


图 5-13 不同转速下 Z2 截面某圆周上的径向速度分布

Fig. 5-13 Dependence of the radial velocity around a circumference at z_2 on the rotational velocity

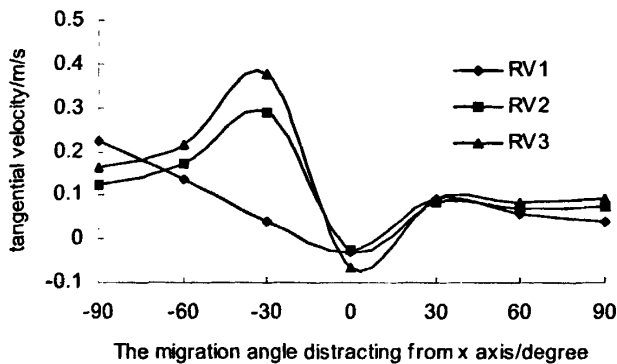


图 5-14 不同转速下 Z2 截面某圆周上的切向速度分布

Fig. 5-14 Dependence of the tangential velocity around a circumference at z_2 on the rotational velocity

图 5-14 显示的为切向速度变化规律，可以看出，随着刮膜器转速的改变，切向速度变化最明显的位置与径向速度不同，出现在转子刮过之后；转子前的切向速度基本没有改变。由于刮膜器转子拖曳力的作用，随着转速增大，刚刚刮过的液相切向速度也逐渐增大，这同样可以加强液膜内部径向截面上的传质与传热，有利于分离过程的进行，但是，随着刮膜器转速增大，切向速度的变化趋势减弱。

冷模实验的停留时间测量结果显示：进料为丙三醇时，在低转速区，停留时间略有增加，但变化不大，当转速增加较大时，停留时间明显增长，从出口流出的液体速率比较均匀、缓慢，说明返混现象明显。模拟结果也说明由于转子刮动所产生的轴向回流如果过大，会导致出现返混，可见，刮膜器转速对液体在蒸发壁面的分布影响更为显著。所以需要根据所分离的物质性质将刮膜器的转速控制在适宜的范围内，否则，转速过低导致刮膜不均匀，转速过大导致返混或液体飞溅，都会影响分离效果。

5.2.2 进料速率对速度分布的影响

图 5-15 与 5-16 中的曲线所代表的是转速 150rpm，进料速率为 $FR_1=0.05\text{m/s}$ ， $FR_2=0.1\text{m/s}$ ， $FR_3=0.2\text{m/s}$ 时，在截面 $z_2=-100\text{mm}$ 的圆周 C 上七个不同点(见表 5-1)处的径向速度与切向速度分布趋势，观察图 5-15 中径向速度的分布曲线发现，进料速率的改变并没有对截面圆周上的径向速度产生规律性变化，在转子底部，径向速度有减小趋势；远离转子，位于两个转子中间的圆周位置上，进料速率最低时，径向速度最大。可见进料速率的改变对径向速度的影响并不很大。

图 5-16 显示了截面圆周上切向速度随进料速率增大的变化规律，图中的曲线的变化规律较为明显，随着进料速率增大，液膜变厚，转子对液膜的刮动程度

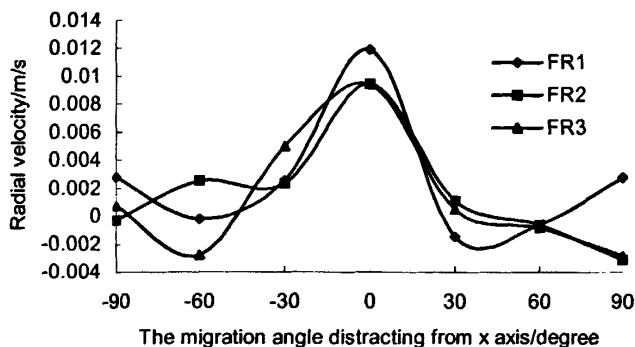


图 5-15 不同进料速率下 Z2 截面某圆周上的径向速度分布

Fig. 5-15 Dependence of the radial velocity around a circumference at z_2 on the feed flow rate

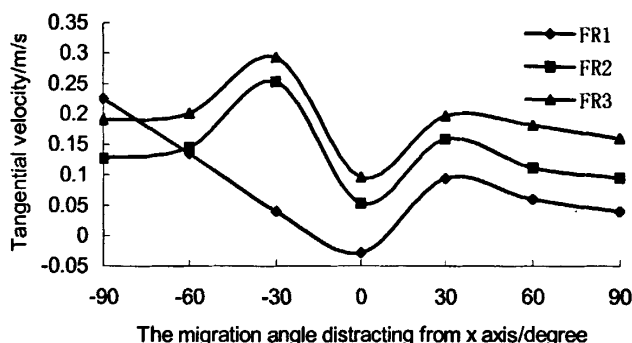


图 5-16 不同进料速率下 Z2 截面某圆周上的切向速度分布

Fig. 5-16 Dependence of the tangential velocity around a circumference at z2 on the feed flow rate

相对加强,从而导致截面上的切向速度随之增大;只是在距刮膜转子较远的位置上,转子的影响变得微弱,而切向速度主要是由转子的刮动产生,所以此时随着进料速率的变化切向速度的变化规律有时并不明显。

通过分析整体流体区域内的切向速度与径向速度分布规律,以及刮膜器转速与进料速率对流体区域内速度场分布的影响可以发现,转子的存在对速度场,特别是切向速度场的存在至关重要。而切向速度场与径向速度场的变化趋势对液膜内的传质与传热具有很大的影响,这也是刮膜式分子蒸馏器与降膜式分子蒸馏器相比的优势之一。

5.3 液相中的浓度场分布

使用 VOF 多相流模型,在操作条件为转速 150rpm,进料速率为 0.05 m/s 时,在液相水中加入第二组分乙醇,通过观察乙醇在液相中的浓度分布以及出口处第二组分的停留时间分布对流场中液膜中的传质现象进行分析。

5.3.1 液相第二组分在流场中的分布

图 5-17 为作为示踪剂的第二组分乙醇在计算流场中从注入完毕到流出的全过程,所监测的是乙醇质量含量为 0.01 时的液膜显示,示踪剂进料入口与液相水进料相同,也是圆周进料,由图所示,在示踪剂流下的过程中,由于存在刮膜转子的刮动作用,没有出现类似沟流等现象,在蒸发壁上分布均匀;示踪剂的最后流出的位置在转子附近,这可能是由转子前的液膜较厚,液膜中示踪剂的含量相对较高引起。

在冷模实验中,当进料为粘度较大的丙三醇,进料速率 0.1m/s,刮膜器转速

120rpm 时, 多次重复实验均发现第一滴物料的流出位置在转动的刮膜转子附近。

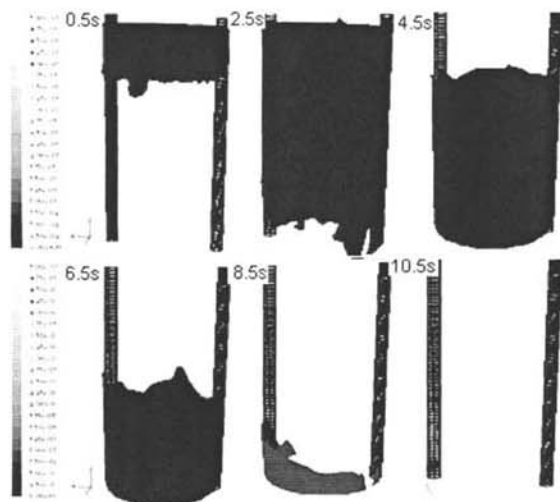


图 5-17 示踪剂在计算区域内流动过程

Fig. 5-17 Snapshots of tracer progression through the computational grid

5.3.2 液相第二组分停留时间分布

图 5-18 为采用两相多组分传输模型测得的停留时间分布曲线, 因为转子的转动为中心对称旋转, 所以在出口位置取代表性四个点 $p_1(49.8, 0, -200)$ 、 $p_2(0, 49.8, -200)$ 、 $p_3(-49.8, 0, -200)$ 与 $p_4(0, -49.8, -200)$ (单位: mm), 监控这四点处的示踪剂 (乙醇) 停留时间分布。图 5-19 是实验测得的停留时间分布曲线, 四个点按逆时针依次排序。

由图 5-18 可见, 模拟停留时间分布曲线较为平滑, 停留时间相对长的两点分别是位于两个转子附近的 p_1 和 p_3 , 说明刮膜转子前形成的较厚头波, 完全流出的时间比其它位置液膜流出所需的时间长。此模拟过程使用的时间步长为 0.0006s, 计算可得四个监测点上的示踪剂完全流出所需的时间跨度不大, 范围是 9s~11s。图 5-19 显示了冷模实验中所测四个点上的停留时间分布曲线, 其中第一点为第一滴液体流出的位置。实验结果表明, 第一点和与其相对的第三点上检测到的停留时间最长, 与模拟结果一致, 但实验所测停留时间范围在 11s~13s 之间, 比模拟结果所用时间略长, 可能受实验条件影响, 也与操作有关。曲线分布总体趋势与模拟结果一致, 充分说明液相相对均匀地分布在整个轴向壁面与圆周方向上, 有利于提高塔的分效率。

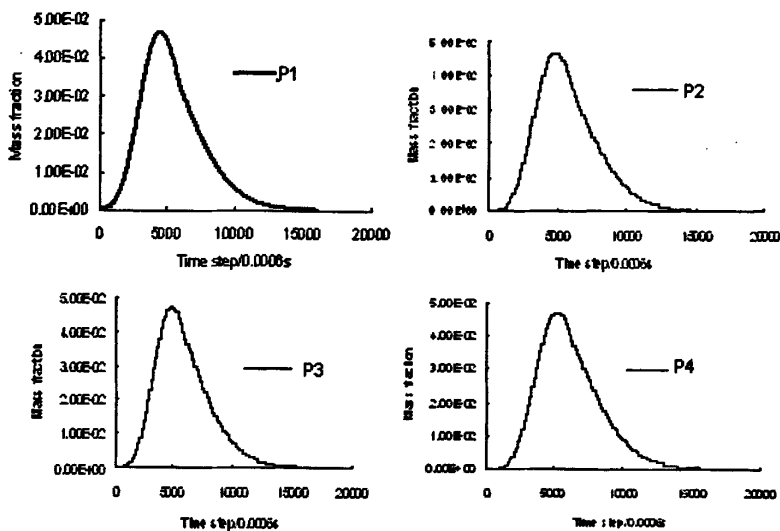


图 5-18 出口位置处的停留时间分布曲线

Fig. 5-18 RTD curves measured at the outflow

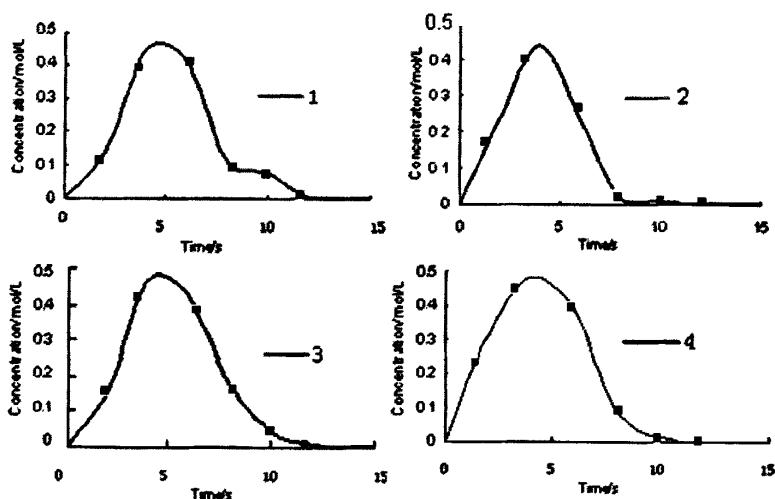


图 5-19 实验中各取样点的轴向停留时间分布曲线

Fig. 5-19 RTD curves measured at the experiments

物料在蒸发壁面上的停留时间主要受进料速率的影响，也与物料本身的性质有关，当实验需要脱除物料轻组分时，应使用较低进料速率尽可能多地脱除轻组分；当需要脱除重组分时，应适当增大进料速率，防止停留时间过长重组分馏出。冷模实验发现，刮膜器转速对物料停留时间的影响规律因物料粘性的不同而有所差别，当进料为水时，停留时间先增大后减小，当进料为丙三醇时，停留时间随

转速增大一直增大。所以在实际蒸馏操作中，如果物料粘性过大，低进料速率与高转速都可能会导致物料的轴向返混严重，重组分迟迟不能沿壁流下而是从蒸发液膜中馏出，严重影响分离效率。所以适宜的进料速率与刮膜转速时应根据分离物料性质不同进行调整。

5.4 液相中温度场分布

刮膜式分子蒸馏器内，在圆周与轴向方向上，液膜随暴露时间的差别会产生温度梯度，在温度场的模拟部分，模拟蒸发量较小的蒸馏过程，假设两相间的质量传递可以忽略，使用 VOF 多相流模型对流场进行模拟。通过对模拟结果中的液膜分布，速度场和浓度场进行实验验证发现，模拟结果与实验现象和实验数据变化趋势基本吻合，所以继续使用模拟方法对分子蒸馏器内的温度场分布进行预测。

图 5-20、5-21 为转速 150rpm 进料速率 0.05m/s 时，三维区域内的温度分布。图 5-20 是不同径向截面固定圆周上的温度场分布，在流体流动的方向上，沿着轴向蒸发壁面，温度逐渐升高，其中， z_1 截面靠近入口，不断有温度低的新液相物料流下，更新处在此截面上的液膜，同时，由于存在转子的强力搅动作用，所以 z_1 截面圆周上各点的温度较低且波动较大；刮膜转子前头波的液膜较厚，速度方向均为流体流动方向，所以轴向上头波内的物料向下流动的速度较快，而且头波在转子的刮动下不断与液膜进行热量传递，所以 z_1 截面上转子前头波附近的温度有很大降低。

z_2 与 z_3 截面远离入口，温度场基本稳定，头波温度的影响较小，所测圆周上的温度分布相对稳定，温度梯度较小，而且在 z_2 与 z_3 截面上的温度差明显小于 z_2 与 z_1 截面上的温度差。

在头波的影响较小温度场基本稳定的轴向上，转子刚刮过的位置，头波与液膜刚进行过热量传递，所以液膜温度略有降低，但转子的外力作用会使液膜内流动出现不同方向的速度，加快了对流传热，而且刮动后的液膜较薄且出现波动，使传热加快，温度会随着远离转子而逐渐回升；刮膜转子前的位置是另一个转子刮动二分之一周后的位置，暴露时间最长，与空气的热传递时间长，所以温度高且稳定，于是，在圆周上的流体温度分布整体趋势是转子前的温度高于转子后的温度。

图 5-21 为 z_2 截面不同径向位置上的液相温度分布， R_{b_2} 与 R_{e_2} 分别是通过 z_2 截面上点 b_2 与 e_2 的半径的线段部分。其中 R_{b_2} 位于转子前， R_{e_2} 位于转子后，从图中曲线也可以明显看出，在计算区域内，转子前的温度高于转子后的温度，

这是由于转子前的液膜热传递时间最长，转子后的液膜刚刚经过刮动，进行过热量传递；在蒸发壁面附近，由于存在温度边界层，所以靠近壁面的温度梯度很大，在远离蒸发壁面的位置上，温度会逐渐降低，但刮膜转子的搅动作用使温度场出现波动，温度降低的趋势没有理想模型稳定。

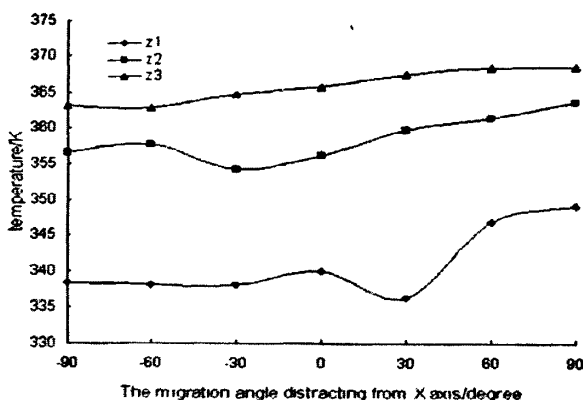


图 5-20 不同径向截面圆周上的温度场分布

Fig. 5-20 Liquid temperature profiles in a circumference on the evaporating cylinder height

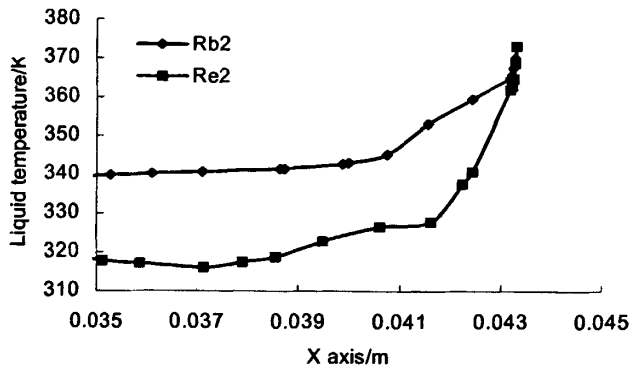


图 5-21 z_2 截面不同径向位置上的温度分布

Fig. 5-21 Liquid temperature profiles in a fixed circumference z_2 at different radius

图 5-22 给出了转速 150rpm，不同进料速率（FR1=0.05m/s，FR2=0.1m/s，FR3=0.2m/s）下，距离进料口较近的 z_1 截面中圆周 C 上的温度分布曲线。随着进料速率增大，在同一圆周上的温度会有所升高，但图中显示，当进料速率由 FR1 增加到 FR2 时，入口附近截面上的温度变化并不大，这说明在适当范围内增大进料速率并不会对温度场产生很大影响，从而不会过多影响传热的进行，但当进料速率增加较大时，从图中曲线可以看出对温度场的影响随之变大。

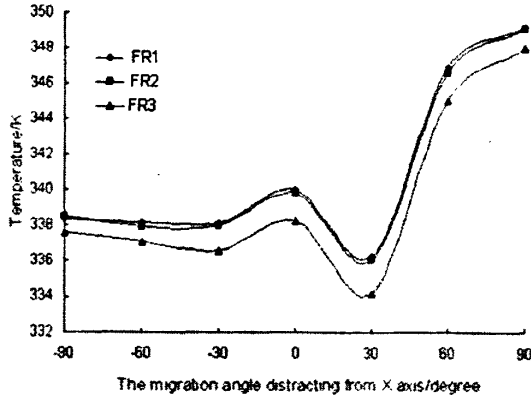


图 5-22 不同进料速率下 z_1 截面圆周上的温度分布

Fig. 5-22 Liquid temperature profiles in a fixed circumference z_1 at different feed flow rates

刮膜式分子蒸馏器内的温度分布对传热和传质的影响非常重要，由以上模拟结果分析可以得出，进料温度与蒸发壁面温度相差过大会使温度场的稳定较为缓慢，而且径向截面圆周上液膜的温度梯度过大也不利于分离的有效进行，影响分离效果。所以在分离许多物料时，进行预热可以达到好的分离效果。

5.5 本章小结

本章通过对刮膜式分子蒸馏器内流体流动与传热的模拟结果进行分析，讨论了三维分子蒸馏模型内的液膜分布和速度场、温度场及浓度场的分布；同时联系已有文献与冷模实验的结论，对不同进料速率和刮膜器转速这两种操作条件下的计算区域内的流体流动变化进行了分析研究，并通过模拟结果对主要的设备优化方法以及操作优化方法进行了解释。

第六章 结论与展望

本论文使用的模拟工具是计算流体力学软件 Fluent6.2, 在掌握软件使用的基础上, 对刮膜式分子蒸馏过程的流体流动与传热进行了数值计算, 分析了刮膜式分子蒸馏器内的流动, 对液膜流体和头波流体内的传质传热进行了研究; 通过自行设计的冷模实验装置, 研究者还进行了停留时间与停留时间分布的测量, 对模拟计算的结论进行了验证。

6.1 结论

通过对理论模拟结果与实验验证结果进行分析, 可以得出以下结论:

1.冷模实验中, 测量不同转速和进料速率下, 水与丙三醇这两种运动粘度相差较大的物料的湿板停留时间, 对实验现象进行分析, 总结出不同物料在不同转速和进料速率下的停留时间规律, 了解了刮膜式分子蒸馏器内的流体流动状况。

2.实验采用空气、水作为实验物系, 氯化钾作为示踪剂对冷模装置进行停留时间分布的监测, 在出口圆周上设置均匀分布的四个点, 用电导率仪测量液体的电导率随时间的变化, 得到液体等平均停留时间分布曲线, 与模拟结果呼应, 验证了刮膜式分子蒸馏器壁上液膜的均匀传质效果, 通过考察停留时间分布, 可以反映出刮膜转子对液膜浓度分布的影响。

3.首次建立完整的三维两相流模型, 模拟了液相水从进料到在蒸发壁面上形成液膜的过程, 克服了二维模型忽略重力以及由此引起的缺陷, 可以反映液膜温度、速度和浓度在轴向、径向和圆周方向上的三维分布, 对分子蒸馏过程的流体流动与传热进行较为完整的分析。

4.利用 VOF 模型对气液界面进行追踪, 并对温度场进行预测; 使用欧拉模型针对液相的速度场分布进行模拟, 在旋转坐标系下, 选用 RNG $k-\epsilon$ 湍流模型, 利用不同多相模型的不同优势进行计算流体力学模拟, 得出相对精确的模拟结果。

5.使用欧拉模型研究了给定进料速度和转速下, 不同截面上刮膜转子前后 180 度内的液相径向速度变化规律和轴向速度变化规律, 这是二维和局部模型无法做到的。研究发现转子附近局部存在不同方向的速度矢量, 说明了刮膜分子蒸馏器中流体流动的复杂性; 用 VOF 模拟了在出口不同位置处监测到的停留时间分布,

RTD 曲线的一致也表明了刮膜分子蒸馏比降膜分子蒸馏更有优势；在对温度场的预测中发现，沿着流体流动的轴向上，液膜温度逐渐接近蒸发壁面温度，进料温度与蒸发壁面温度差距较大时，液膜在轴向、径向和圆周方向上都存在温度梯度，这可能导致分离效率一定程度的下降，不利于分子蒸馏过程进行，可以通过操作条件或进料温度进行调节，相应提高分离效率。

6.使用两种多相流模型，分别研究了不同进料量和转子转速情况下，计算区域内流场的变化，尤其是蒸发液膜分布和流速的变化。通过对比不同的模拟结果并联系实验发现：相同刮膜器转速，不同进料速度下，刮膜器前均出现头波，随着进料量增大，蒸发壁面上的液膜会变厚，转子周围的速度波动有一定程度的降低；相同进料速度时，刮膜转速增大，刮膜转子周围的速度波动变大，流体流动状况愈加复杂，对于传质传热有一定帮助；但实际操作中发现转速和进料速率与物料性质及分离要求关系密切，选择合适的进料速度与刮膜器转速对获得好的分子蒸馏结果非常重要。

总之，通过对刮膜分子蒸馏流体流动和传热过程数值模拟及冷模验证方面的研究，归纳出了刮膜分子蒸馏过程中的一些基本规律，特别是对不同进料速率和刮膜器转速这两种操作条件下的计算区域内的流体流动变化进行了分析研究，对刮膜分子蒸馏过程的基础理论研究做出了些许贡献，并使用模拟结果对主要的设备优化方法以及操作优化方法进行了解释，对其操作的优化和工业放大有一定的理论指导意义。

6.2 展望

近些年，计算流体力学研究方法已应用到了诸如生物、化工、机械等许多的领域。虽然到目前为止，还没有找到完全吻合的数学模型对刮膜式分子蒸馏的过程进行研究，但是，相信通过模型修改，自定义源项等方法，计算流体力学模拟方法将会变成一种有力的工具，应用在分子蒸馏的过程研究中。未来的研究工作可以在以下得几个方面进一步地深入：

1.通过使用 Fluent 作为工具对刮膜式分子蒸馏蒸发液膜的流动、传热进行模拟，不仅需要研究对象有清晰的认识，也需要深入地掌握工具运行原理。理论计算的缺点之一就是迄今还有无法用合适的数学模型进行描述的一类问题，其中包括复杂的紊流流动，所以对分子蒸馏过程进行数值模拟时存在一定程度的偏差，这需要在良好的流体力学的掌握基础上，对已有模型进行修改，添加。

2.数值模拟研究中，简化了刮膜器的形状，忽略了刮膜转子的自转；在进一步的流体力学性能研究方面还可以进行横向扩展，例如，通过模拟研究不同刮膜

器形式、不同刮膜转子数目下的流体力学性能，为改善刮膜器结构和分布情况，优化设备构造提供进一步的理论依据。

3.对分子蒸馏的传递过程进行了整体但不全面的研究，如何对气液之间的传质效果进行准确描述，并做到通过整体的计算流体力学模拟对某一物系的分离过程进行研究进而给出最佳的工艺操作参数达到优化操作，这是需要深入研究的方向，也是计算流体力学在这方面研究希望达到的最优结果之一。

4.刮膜式分子蒸馏过程传热的验证目前多止步于数值计算，理论推导。如何通过实验设计进行验证也是今后的一个重要研究方面。

参考文献

- [1]Greenberg D. B., A theoretical and experimental study of the centrifugal molecular still, AICHE. J., 1972. 18(2):26
- [2]冯武文, 杨村, 于宏齐, 分子蒸馏技术及其应用.化工进展, 1998,6:26
- [3]杨德新, 气体分子运动论, 辽宁: 教育出版社, 1986, 4~8
- [4]翟志勇,离心式分子蒸馏转盘膜流动模型研究与装置设计: [硕士学位论文], 大连: 大连理工大学, 2001
- [5]彭劲甫, 广藿香、辣椒等四种中药分子蒸馏纯化工艺和化学成分分析研究: [硕士学位论文], 广州: 中山大学, 2001
- [6]刘义辉, 分子蒸馏过程数值模拟与系统研制: [硕士学位论文], 南京: 南京工业大学, 2002
- [7]Langmuir I., Condensation and evaporation of gas molecular, Phys. Rev., 1916, 7: 302~305
- [8]Kawala Z., Stephan K., Evaporation rate and separation factor of molecular distillation, Chemical Eng. Tech., 1989, 12: 406~413
- [9] Kawala Z., A dibutyl phthalate-dibutyl sebacate mixture as a system for testing molecular distillation columns, Int. Chem. Eng., 1974, 14(3): 536~543
- [10]Cvengroš J., Tkac A., Continuous processes in wiped films, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 1978, 17(3): 246~250
- [11]Erdweg K. J., Molecular and short path distillation, Chem.Ind., 1983, 9: 342~347
- [12]Nakamura K., Watanabe T., Flow in agitated thin film horizontal evaporator, Chem. Eng. Commun. 1982, 18:173~180
- [13]冯武文, 一种新型分离技术—分子蒸馏技术, 化工生产与技术, 2000, 7(4): 6~9
- [14]矫彩山, 李凯峰, 分子蒸馏技术及其在工业上的应用, 应用科技, 2002, 29 (10) : 56~58
- [15]郑韬, 分子蒸馏提纯天然产物及理论模型的研究: [硕士学位论文], 天津: 天津大学, 2004
- [16]吴鹏, 张东明, 张庆波, 短程蒸馏原理及其应用, 化工进展, 2000,1: 49~53
- [17]陆韩涛,程玉镜, 芳香油的分子蒸馏提纯, 精细化工, 1993, 10: 44~46
- [18]刘华, 葛发欢, 分子蒸馏新技术在天然产物分离和其他领域中的应用, 中药材, 1999, 22 (3) : 152~156

- [19]许松林,徐世民,干爱华,天然产物分离的新技术—分子蒸馏,中草药,2001,32(6):562~563
- [20]向爱双,许松林,CFD模拟刮膜式分子蒸馏液膜中湍流模型比较:[会议论文],第一届全国化学工程与生物化工年会,2004
- [21] Palmer H. J., Bose A., Bulk phase and intrinsic interfacial resistances to evaporation under vacuum, *J. Colloid Interface Sci.*, 1981, 84(2): 291~299
- [22] Polanyi M., Wigner E., Interface of characteristic vibrations as cause of energy fluctuations and chemical change, *Z. Physik. Chem.* 1928, 89: 439~449
- [23] Wyllie G., Wills H., Evaporation and surface structure of liquids, *Proc. Roy. Soc. (London)* 1949, A197:383~391
- [24] Trevo D., Rate of evaporation of glycerol in high vacuum, *J. Ind. Eng. Chem.*, 1953, 45: 2366~2375
- [25] Cammenga H. K. et al., Vapor pressure and evaporation, *J. Chem. Eng. Data*, 1977, 22: 131~142
- [26] Hickman K., Trevo D., Studies in high vacuum evaporation, *Ind. Eng. Chem.*, 1952, 44: 1882~1891
- [27] Lutisan J., Micov M. and Cvengroš J., The influence of entrainment separator on the process of molecular distillation, *Sep. Sci. Tech.*, 1998, 33(1): 83~96
- [28] Hickman K., Proceedings of First International Symposium on water Desalination, Washington, D. C., 1965(Oct): 305~317
- [29] Lutisan J., Micov M. and Cvengroš J., Effect of inert gas pressure on the molecular distillation process, *Sep. Sci. Tech.*, 1995, 30(17): 3375~3389
- [30] Micov M., Lutisan J. and Cvengroš J., Balance equations for molecular distillation, *Sep. Sci. Tech.*, 1997, 32(18): 3051~3066
- [31] Maa J. R., Tsay S. Y., Separation efficiency of the molecular distillation, *Vac. Sci. Technol.* 1973, 10: 472~479
- [32] Uyeha H., Hagihara Y. J. Vapor-liquid relations for EHP-MTCP system under high vacuum, *Chem. Eng. Jap.* 1970, 3: 13~25
- [33] Uyeba H., Hagihara Y., Agitation effect on the separation of a binary mixture by high vacuum distillation, *J. Chem. Eng. Jap.* 1972, 5: 207~215
- [34] Inuzuka M., Saito I., Evaporation of binary mixtures under vacuum, *Int. Chem. Eng.* 1987, 27 (1): 100~108
- [35] Ruckenstein E., Hassink W., The combined effect of diffusion and evaporation on the molecular distillation of ideal binary liquid mixture, *J. Sep. Sci. Technol.*, 1983, 18(6): 523~532
- [36]余国琼,樊丽秋,降膜式分子蒸馏设备基本理论的探讨,化工学报,1979,1:16

- [37] Kawala Z and Stephan K., Evaporation rate and separation factor of molecular distillation, *Chem. Eng. Technol.*, 1989, 12: 406~415
- [38] Kawala Z., Modeling of short-path high vacuum distillation, *Inst. Chem. Symp. Ser. 128 Distillation and Absorption*, 1992, B: 195~203
- [39] Batistella C. B., Maciel M. R. W., Modeling simulation and analysis of molecular distillation, *Computer Chem Engng*, 1996, 20: 19~27
- [40] Batistella C. B., Maciel M. R. W., Recovery of the carotenoids from palm oil by molecular distillation, *Computer Chem Engng*. 1998, 22: s53
- [41] Cvengros J., etc., Film wiping in the molecular evaporator, *Chem. Eng. J.* 2001, 81: 9~14
- [42] Erdweg K. J., molecular and short path distillation, *Chem. Ind.*, 1983, 9:342~348
- [43] David B., Greenberg A, Theoretical and Experimental Study of The Centrifugal Molecular Still, *AIChE Journal*. 1972, 18(2): 269~276
- [44] Kaplon J., Kawala Z., Evaporation rate of a liquid from the surface of rotating disc in high vacuum, *Chem. Eng. Sci.* 1986, 41(3): 519~522
- [45] Bhandarker M., Ferron J. R., Transport process in an agitated thin-film evaporator, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 1988, 27: 1016~1024
- [46] Inuzuka M., Sugiyama H., etc., Analysis of heat and mass transfer in a centrifugal molecular still, *J. Chem. Eng. Jap.* 1986, 19(1): 14~22
- [47] Inuzuka M., Sugiyama H., et c., Vaporization from liquid film of binary mixture in a centrifugal molecular still, *J. Chem. Eng. Jap.* 1989, 22(3): 291~298
- [48] Freese H. L., Golver W. B., Mechanically agitated thin-film evaporators, *AIChE* 1979: 52
- [49] Mckenna T. F., Design model of a wiped film evaporator applications to the devolatilisation of polymer melts. *Chem. Eng. Sci.* 1995, 50(3): 453~460
- [50] Biesenberger J. A., Sebastian D. H., *Principles of polymerization engineering*, Wiley, New York. 1983: 653~661
- [51] Heimgartner E., Devolatilisation in the thin-film evaporators. *Devolatilisation of Plastics VDI-Verlag GmbH*. 1980, 69~75
- [52] Godau H. J., Flow processes in thin-film evaporators, *Int. Chem. Engng.*, 1975, 15(3): 445~451
- [53] Hirose T., Murakami Y., Two-dimensional viscous flow model for power consumption in close-clearance agitators, *J. Chem. Engng. Japan*, 1986, 19(6): 568~576
- [54] Cvengroš J., Badin V., Pollak S, Residence time distribution in a wiped liquid film, *Chem. Eng. J.*, 1995, 56: 259~263

- [55] Cvengroš J., Lutisan J., Micov M., Feed temperature influence on the efficiency of a molecular evaporator, *Chem. Eng. J.*, 2000, 78: 61~67
- [56] Gruber G., Rak J. L., Model of a wiped films till, *Chem. Engng Prog.* 1989, 85:12
- [57] Steppan D. D., Doherty M. F., Malone M. F., A flowing film model for nylon 6,6 polymerization, *Ind. Eng. Chem. Res.* 1989, 28: 1324~1329
- [58] Komori S., Takata K., Murakami Y., Flow structure and mixing mechanism in an agitated thin-film evaporator, *J. Chem. Engng Japan.*1988, 21(6): 639
- [59] Komori S., Takata K., Murakami Y., Flow and mixing characteristics in an agitated thin-film evaporator with vertically aligned blades, *J. Chem. Engng Japan.*1989, 22(4): 346~354
- [60]Komori S., Takata K., Murakami Y., The effects of multiple inclined blades on flow and mixing characteristics in an agitated thin-film evaporator, *J. Chem. Engng Japan.*1990, 23(5): 550
- [61]Gudheim A. R. Donovan J., Heat transfer in thin film centrifugal processing units, *Chem. Eng. Prog.* 1957, 53: 476~483
- [62]Reay W. H., Recent advances in thin-film evaporation, *Ind. Chem.* 1963, June: 293
- [63] Mutzenberg A. B., A gitated thin film evaporators, *Chem. Eng.* 1965(Sept): 72~80
- [64] Najder L. E., Thin film evaporation, *Ind. Eng. Chem.* 1964, 56(2): 26~32
- [65] Nguyen A. D., Goffic F. L., Limits of wiped film short-path distiller, *Chem. Eng. Sci.*, 1997, 52(16): 2661~2666
- [66] Lutišan J., Cvengroš J., Micov M., Heat and mass transfer in the evaporating film of a molecular evaporator, *Chem. Eng. J.*, 2002, 85, 225~234
- [67] Badin V., Cvengroš J., Model of temperature profiles during condensation in a film in molecular evaporator, *Chem. Eng. J.*, 1992, 49: 177~185
- [68] Cvengroš J., Micov M., Lutišan J., Modelling of fractionation in a molecular evaporator with divided condenser, *Chem. Eng. Process*, 2000, 39: 191~199
- [69] Ferron J. R., Evaporation and condensation of mixtures under rarefied condition, *Ind. Eng. Chem. Fundam*, 1986, 25: 594~560
- [70] Lutišan J., Cvengroš J., Mean free path of molecules on molecular distillation, *Chem. Eng. J.* 1995, 56: 39~50
- [71] Lutišan J., Cvengroš J., Micov M., Heat and mass transfer in the evaporating film of a molecular evaporator, *Chem. Eng. J.*, 2002, 85: 225~234

- [72] Batistella C. B., Maciel M. R. W., Maciel F. R., Rigorous modeling and simulation of molecular distillators: development of a simulator under conditions of non- ideality of the vapor phase, *Computers and Chemical Engineering*, 2000,24: 1309~1315
- [73]王福军, 计算流体动力学分析: CFD 软件原理与应用, 北京: 清华大学出版社, 2004
- [74]周雪漪, 计算水力学, 北京: 清华大学出版社, 1995
- [75]陶文栓, 数值传热学(第二版), 西安, 西安交通大学出版社, 2001
- [76]郭鸿志, 传输过程数值模拟, 北京: 冶金工业出版社, 1998
- [77]向爱双, 刮膜式分子蒸馏精制 3-羟基丙腈及其蒸发液膜流场的 CFD 模拟: [硕士学位论文], 天津: 天津大学, 2004.
- [78]王军武, CFD 模拟短程蒸馏及其在分离天然产物中的应用: [硕士学位论文], 天津: 天津大学, 2003
- [79]梁斌, 段天平, 傅红梅等, 化学反应工程, 北京: 科学出版社, 2002
- [80]姬登祥, 大型 DJ 塔板上液体等平均停留时间分布的实验研究, 浙江工业大学[硕士学位论文], 2004
- [81]余国琮, 黄洁, 张泽廷.单、双溢流塔板液体停留时间分布和板效率的研究. *化工学报*, 1986, (2): 151~161
- [82] Hirt C. W., Nichols B. D., Volume of fluid (VOF) method for the dynamics of free boundaries, *Journal of Computational Physics*, 1981, 39: 201~225
- [83] Fluent Incorporated, *Fluent 5 Tutorial Guide Volume 3*, 1998
- [84]韩占忠, 王敬, 兰小平, 流体工程仿真计算机实例与应用, 北京: 北京理工大学出版社, 2000
- [85] Bracco U., Loliger J., Viret J. L., *Journal of the American Oil Chemists' Society*, 1981, 686~690
- [86] William G. A., Irving J. K., Process for the preparation of higher fatty acid monoglycerides, US: 3083216, 1963
- [87] Lanzani A., *Journal of the American Oil Chemists' Society*, 1994, 71(6): 609~614
- [88] Liu S.X., Peng M., Vane L., CFD modeling of pervaporative mass transfer in the boundary layer, *Chem. Eng. Sci.* 2004,59:5853~5857

发表论文和科研情况说明

发表的论文:

- [1] Songlin Xu, Yanfei Wang, CFD Simulating Effect of Wipers on Evaporating Liquid Film in a Wiped Molecular Distillatory, Chemical Engineering Science, (审稿中)
- [2] 许松林,王燕飞,向爱双, Modeling of Velocity Field of Evaporating Liquid Film in a Molecular Distillatory: Influence of Wiper Rotation Speed, 中国化学工程学报, (审稿中)
- [3] 许松林, 王燕飞, 新型分离技术—旋转带蒸馏, 化工机械, 2006年6月, Vol. 33(4):191-193
- [4] 王燕飞, 许松林, 刮膜式分子蒸馏塔中流场的 CFD 研究, 第五届全国制药工程科技与教育研讨会, 2006

参与的科研项目:

本人参与了短程蒸馏基础研究(国家自然科学基金, 批准号: 20176037), 旋转带蒸馏基础研究(国家自然科学基金项目, 批准号 20576088), 分子蒸馏技术在中草药分离过程中的应用(天津市科技发展计划项目, 批准号: 0131086114)。

致 谢

本论文的工作是在我的导师许松林研究员的悉心指导下完成的，许松林老师严谨的治学态度、刻苦的钻研精神、对科学问题敏锐的洞察力，以及对科学锲而不舍的执着追求让我终生难忘，也给了我极大的帮助和影响。在此衷心感谢许老师对我的关心和指导。

在计算流体力学软件的学习过程中，结晶中心的卫宏远老师给了我极大的帮助，他的耐心指导和深入浅出的解释让我对数值模拟产生了极大的兴趣；还有学院里同是使用计算流体力学的同学们，跟他们的交流让我受益匪浅，忠心感谢大家对我的帮助。

在实验室工作及撰写论文期间，鲁文华、董丽萍、刘慧彬等同学对我论文中的理论研究工作给予了热情帮助；与我相处两年多的室友谌怡、谭凤娱和姜利霞在我的生活中也给了我很多关心和鼓励；在此向他们表达我的感激之情。

最后，感谢父母、弟弟和男友，他们的理解和支持使我能够在学校专心完成我的学业！