

烧结板布风的甲烷化流化床反应器建模与分析

张晓瑞, 曹志凯, 陈秉辉, 周 华*

(厦门大学化学化工学院, 福建 厦门 361005)

摘要: 采用双流体模型对烧结板型气体分布器的甲烷化流化床反应器进行数值模拟, 在 ANSYS-FLUENT 平台中利用用户自定义函数建立了烧结板型气体分布器的数学模型; 并对过程反应动力学模型进行改进, 在宏观上实现了反应速率与催化剂浓度的正相关; 通过模型的计算结果与实验数据对比验证了模型的有效性. 在模拟结果的基础上对烧结板型气体分布器的甲烷化流化床反应器的参数分布进行了分析, 结果表明: 烧结板模型的引入增强了反应器进口边界描述的精确性, 对反应动力学模型的合理改进更好地反映了甲烷化反应过程, 并更符合实验结果, 从而提高了模拟计算的精确性.

关键词: 甲烷化; 流化床; 烧结板; 反应动力学; 计算流体动力学

中图分类号: TQ 051.1⁺3; TQ 052

文献标志码: A

文章编号: 0438-0479(2019)05-0643-08

天然气是一种优质、高效的清洁能源^[1], 主要成分是甲烷(CH₄), 具有低碳、高热值的特点, 可以有效减少 CO₂ 等温室气体和细颗粒物的排放^[2-6], 因此天然气的开发利用越来越受到社会的关注. 合成天然气(synthetic natural gas, SNG)是指由煤或生物质经过气化、甲烷化等工艺生产的代用天然气(substitute natural gas)^[7]. 目前, 本课题组已开发出新型的甲烷化催化剂^[8]并建立了甲烷化流化床反应器, 可实现较高的 CO 转化率和 CH₄ 选择性, 该反应器具有良好的传热传质效果^[9]. 然而在甲烷化流化床反应器中气固两相流动复杂, 致使反应器的设计和放大存在极大困难^[10]. 而计算流体动力学(computational fluid dynamics, CFD)可以提供精确的局部流动和传递信息^[11-12], 因此借助流化床反应器的 CFD 计算结果可为流化床反应器的设计和放大提供一定的基础数据. 由于气体分布器直接影响流化床内流化分布的均匀程度^[13], 所以气体分布器模型的适当与否严重影响流化床内部流场及温度场的模拟结果.

对于实验室规模的装置而言, 分布板大多采用由金属网烧结而成的烧结板, 其几何模型的数字化描述已有相关报道. Gibson 和 Ashby^[14]建立了 Gibson-Ashby 模型, 将泡沫金属表征为具有立方结构孔隙单

元的集合体. Lu 等^[15]提出立方孔单元结构模型来描述泡沫金属的几何结构, 并利用泡沫铝的传热特性实验验证了该模型. Liu 等^[16-17]将泡沫金属表征为八面体结构的集合体, 并通过金属镍的力学性质验证了模型的准确性. 上述研究重点关注烧结板作为一种多孔介质的传热传质规律, 但在流化床流场及反应过程的模拟中尚无研究考察分布板模型的模拟过程. 此外, 采用流体双欧拉模型可大大提高甲烷化流化床数值模拟的计算效率. Liu 等^[10]利用开源软件 OpenFOAM, 首次采用双欧拉模型探究了不同气速和催化剂含量对甲烷化反应的影响, 并与实验数据进行对比. Sun 等^[18]发现 CO 转化率和 CH₄ 选择性会随着压力的增加和温度的下降而升高, 并随着 H₂/CO 体积比的降低而降低; 之后对循环流化床甲烷化过程进行了模拟计算^[19]. 然而以上的甲烷化研究均未考虑颗粒相流动状态对反应速率的影响.

为此, 本研究首先利用 CFD 软件的 ANSYS-FLUENT 平台建立了甲烷化流化床反应器的几何模型; 其次考虑到烧结板型气体分布板直接影响反应的进口边界条件, 因此使用 ANSYS-FLUENT 平台的用户自定义函数(UDF)从边界网格角度出发实现了烧结板分布器的建模; 最后根据甲烷化反应过程的特

收稿日期: 2018-11-26 录用日期: 2019-03-10

基金项目: 国家自然科学基金(21576228)

*通信作者: cezhouh@xmu.edu.cn

引文格式: 张晓瑞, 曹志凯, 陈秉辉, 等. 烧结板布风的甲烷化流化床反应器建模与分析[J]. 厦门大学学报(自然科学版), 2019, 58(5): 643-650.

Citation: ZHANG X R, CAO Z K, CHEN B H, et al. Modeling and analysis of methanized fluidized bed reactor with sintered plate distributor[J]. J Xiamen Univ Nat Sci, 2019, 58(5): 643-650. (in Chinese)



<http://jxmu.xmu.edu.cn>

性,在反应动力学模型中引入修正系数,实现了反应速率与颗粒相浓度的关联.通过对比有无烧结板模型的流化及甲烷化反应过程,以期更准确地描述烧结板对流化过程的影响,更真实地反映催化反应过程,验证烧结板模型及反应动力学模型的准确性.

1 模型简介

1.1 几何模型

甲烷化流化床反应器的几何模型如图 1(a)所示,反应器高 300 mm,直径 67.5 mm.将反应器分

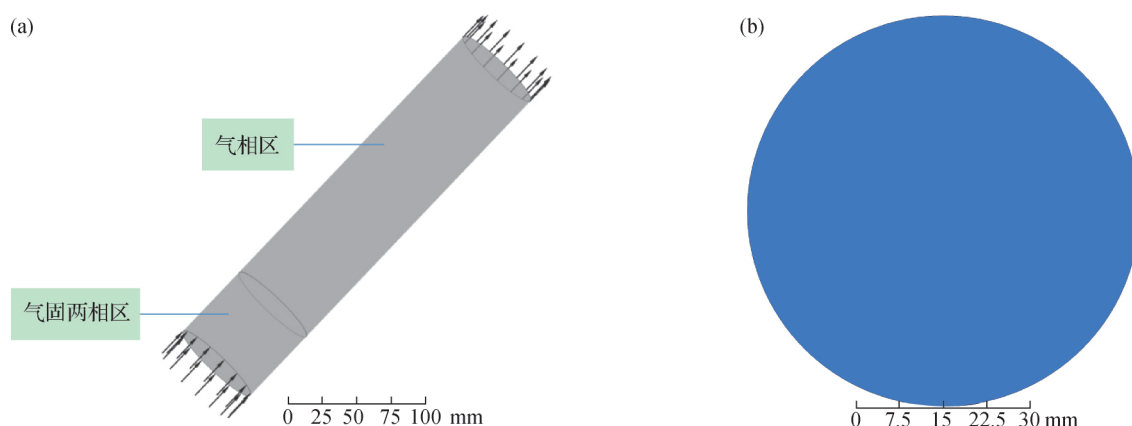


图 1 反应器(a)和烧结板(b)的几何模型

Fig. 1 Geometric models of reactor (a) and sintered plate (b)

1.2 气固两相基本控制方程

采用流体双欧拉模型模拟甲烷化流化床反应器,其质量守恒方程为:

$$\frac{\partial(\alpha_g \rho_g)}{\partial t} + \nabla(\alpha_g \rho_g u_g) = R_g, \quad (1)$$

$$\frac{\partial(\alpha_s \rho_s)}{\partial t} + \nabla(\alpha_s \rho_s u_s) = R_s. \quad (2)$$

式中: α 为体积分数, $\alpha_g + \alpha_s = 1$; ρ 为密度; u 为速度; t 为时间; R 为化学反应产生的源项^[21]; 下标 g 和 s 分别表示气相和颗粒相. 质量守恒方程的推导可以通过对各相局部瞬时平衡进行整体平均来完成^[22].

动量守恒方程:

$$\frac{\partial(\alpha_g \rho_g u_g)}{\partial t} + \nabla(\alpha_g \rho_g u_g u_g) = -\alpha_g \nabla p + \nabla(\alpha_g \tau_g) + \alpha_g \rho_g g + \kappa(u_s - u_g) + F_g + F_{vm,g}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial(\alpha_s \rho_s u_s)}{\partial t} + \nabla(\alpha_s \rho_s u_s u_s) = -\alpha_s \nabla p - \nabla p_s + \nabla(\alpha_s \tau_s) + \alpha_s \rho_s g + \kappa(u_g - u_s) + F_s + F_{vm,s}. \quad (4)$$

式中, p 为压力, τ 为剪应力, κ 为气固相曳力系数, g 为

为上下两段,其中:上段为气相区;下段为气固两相区,是发生反应的主要区域,对该区域网格进行局部加密处理^[20].反应器流体域采用六面体网格,边界采用四边形网格,网格总数为 172.490 万,其中六面体网格数为 165.775 万,四边形网格数为 6.715 万.

烧结板直径 67.5 mm,孔径 20~70 μm ,平均孔径 50 μm ,开孔率 11%.采用烧结板作为流化床气体分布板,由于孔径小于颗粒粒径且气固两相作用与反应均发生在烧结板上部,所以不考虑烧结板内部变化,将烧结板简化为如图 1(b)所示的二维几何模型.

重力加速度, F 为额外力, F_{vm} 为虚拟质量力.颗粒相剪应力 τ_s 和颗粒相压力 p_s 均由颗粒动能理论(KTGF)所得.气相和颗粒相的虚拟质量力按下式计算:

$$F_{vm,g} = C_{vm} \alpha_s \rho_g \left(\frac{du_g}{dt} - \frac{du_s}{dt} \right), \quad (5)$$

$$F_{vm,s} = -F_{vm,g}. \quad (6)$$

式中 C_{vm} 为虚拟质量系数,取 0.5.

κ 采用 UDF 修正的 Syamlal-O'Brien 模型^[23]:

$$\kappa = \frac{3\alpha_g \alpha_s \rho_g}{4v_{r,s}^2 d_s} C_D \left(\frac{Re_s}{v_{r,s}} \right) |u_s - u_g|, \quad (7)$$

$$C_D = \frac{24}{\alpha_g Re_s} [1 + 0.15(\alpha_g Re_s)^{0.687}], \quad (8)$$

$$Re_s = \frac{\rho_g d_s |u_s - u_g|}{\mu_g}, \quad (9)$$

$$v_{r,s} = 0.5(A - 0.06 Re_s + \sqrt{(0.06 Re_s)^2 + 0.12 Re_s(2B - A) + A^2}), \quad (10)$$

$$A = \alpha_g^{4.14}, \quad (11)$$

$$B = \begin{cases} \alpha_g^{9.07696}, & \alpha_g > 0.85, \\ 0.281632 \alpha_g^{1.28}, & \alpha_g \leq 0.85. \end{cases} \quad (12)$$

式中, d_s 为颗粒直径, μ_g 为气相动力黏度, Re 为雷诺数.

甲烷化反应中气相各组分的输运方程^[24-25]为

$$\frac{\partial(\alpha_g \rho_g \omega_{g,i})}{\partial t} + \nabla(\alpha_g \rho_g u_g \omega_{g,i}) = \nabla(\alpha_g J_{g,i}) + r_{g,i} \quad (13)$$

式中, $\omega_{g,i}$ 、 $J_{g,i}$ 和 $r_{g,i}$ 分别为气相组分 i 的质量分数、扩散通量和反应速率。

能量守恒方程:

$$\frac{\partial(\alpha_g \rho_g c_{p,g} T_g)}{\partial t} + \nabla(\alpha_g \rho_g u_g c_{p,g} T_g) = -\nabla(\alpha_g q_g) + Q_{sg} + Q_{r,g} \quad (14)$$

$$\frac{\partial(\alpha_s \rho_s c_{p,s} T_s)}{\partial t} + \nabla(\alpha_s \rho_s u_s c_{p,s} T_s) = -\nabla(\alpha_s q_s) - Q_{sg} + Q_{r,s} \quad (15)$$

式中: c_p 为比热容, 是温度 T 的函数; q 为流体热通量; Q_r 为均相反应热; Q_{sg} 为相间传热量。其传热模型采用 Gunn 模型^[26]:

$$Q_{sg} = h(T_s - T_g) \quad (16)$$

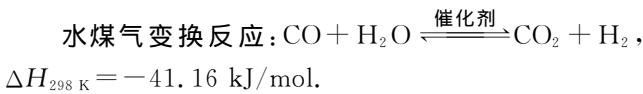
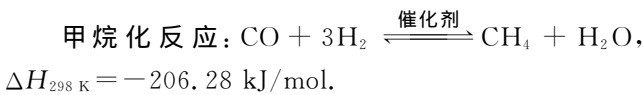
$$h = \frac{6\lambda_g \epsilon_s \epsilon_g Nu}{d_p^2} \quad (17)$$

$$Nu = (7 - 10\epsilon_s + 5\epsilon_s^2)(1 + 0.7Re_s^{0.2} Pr^{1/3}) + (1.33 - 2.4\epsilon_s + 1.2\epsilon_s^2) Re_s^{0.7} Pr^{1/3} \quad (18)$$

式中, h 为相间体积传热系数, λ_g 为气体导热系数, ϵ_g 和 ϵ_s 分别为气相和颗粒相的空隙率, Pr 为普朗特数, d_p 为气泡直径。

1.3 反应动力学模型

合成气甲烷化过程主要发生甲烷化和水煤气变换两个反应。



反应速率方程^[27]:

$$r_1 = \frac{k_1 K_c p_{CO}^{0.5} p_{H_2}^{0.5} \left(1 - \frac{p_{CH_4} p_{H_2O}}{K_{eq1} p_{CO} p_{H_2}^3}\right)}{\left[1 + K_c p_{CO}^{0.5} + K_{OH} p_{H_2O} p_{H_2}^{-0.5}\right]^2} \quad (19)$$

$$r_2 = \frac{k_2 \left(K_a p_{CO} p_{H_2O} - \frac{p_{CO_2} p_{H_2}}{K_{eq2}}\right)}{\left[1 + K_c p_{CO}^{0.5} + K_{OH} p_{H_2O} p_{H_2}^{-0.5}\right]^2 p_{H_2}^{0.5}} \quad (20)$$

式中, p_i 为气相组分 i 的分压, k_1 和 k_2 分别为甲烷化反应和水煤气变换反应的动力学速率常数, K_{eq1} 和 K_{eq2} 分别为甲烷化反应和水煤气变换反应的平衡常数, K_c 为 CO 和 H_2O 吸附常数的函数, K_c 为碳物质中间体的吸附常数, K_{OH} 为反应中间体 OH^* 的吸附常数。

该模型可以较为准确地描述甲烷化反应, 但反应

速率只是温度及气相组分分压的函数, 采用双欧拉模型计算时, 该动力学模型无法体现催化剂浓度对反应过程的影响, 即无法描述催化剂活性位点对反应的影响, 为此本研究在计算中采用新的反应速率 r'_i 。

$$r'_i = r_i \cdot C \quad (21)$$

该式将反应速率模型表述为 $r'_i = f(T, p_i, C)$ 的形式, 其中 C 表示催化剂表观浓度, 表述为 $C = N(1 + \alpha_s)$, 其中, N 为多次实验得到的常数, α_s 为通过 UDF 读取的反应过程中颗粒相的体积分数。

1.4 烧结板模型

通过对烧结板流化实验观察以及相关研究^[28]表明, 流化过程中流体通过气体分布器以射流的方式进入床层, 通过与固相颗粒进行复杂的相互作用使颗粒相获得持续的动能, 整个床层呈现均匀流化状态。为实现反应器进口段气体射流以及完全流化后颗粒相呈现均一的混合效果, 需对烧结板进行建模。基于 CFD 软件的 ANSYS-FLUENT 平台, 利用 UDF 对进口边界进行描述以实现烧结板布风效果的建模。

烧结板建模的基本思路: 首先对几何进行网格划分, 得到与烧结板孔大小相近的网格; 然后将网格导入 ANSYS-FLUENT 平台, 利用 UDF 定位识别进口边界网格并对进气网格进行编号(图 2), 并通过网格编号均匀地选取一些网格作为进气网格, 其余网格设置进气量为零。对于进气网格而言, 由于烧结板存在孔径分布, 所以采用线性同余算法^[29]使网格进气量在一定范围内随机分配, 具体方法为: 在选取进气网格的同时通过式(22)和(23)产生随机风速, 并将产生的风速分配给该网格, 如此反复循环直到所有进气网格均具有风速, 最后通过式(24)验证总进气量和实验及

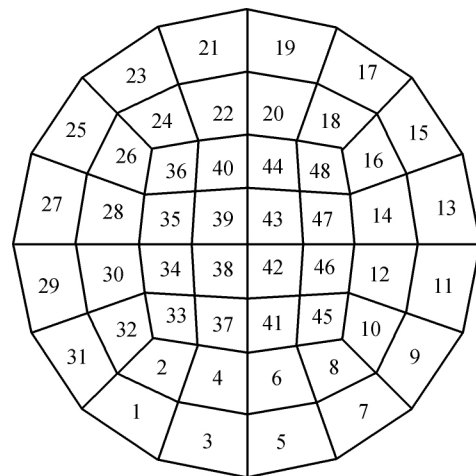


图 2 进气网格编号

Fig. 2 Number of inlet mesh

<http://jxmu.xmu.edu.cn>

无板模型是否保持一致,若保持一致则输出结果,若不一致则重新分配赋值.

进气量的计算公式为:

$$v_n = av_{n-1} + \delta(\text{mod } M), \quad (22)$$

$$r_n = v_n/M, \quad (23)$$

$$\sum_{n=0} v_n A_n = Q, \quad (24)$$

式中, v_n 为网格 n 的进口气速, A_n 为进气网格 n 的面积, 下标 n 为进气网格编号 ($n=1, 2, \dots, 48$), δ 为增量, a 为乘子, M 为模, Q 为总进气量. 设 v_0 为初始种子, 则可通过上式计算得到烧结板在进口的随机进气量.

1.5 计算方法及操作条件

上述控制方程可通过 ANSYS-FLUENT 平台计算求解, 但模型中耦合了流动、反应、传热及传质等描述传递规律的方程, 致使计算复杂且难以收敛. 依据文献[30]的结果及本课题组的经验[20], 模型求解可采用分步计算, 先得到稳定的流场后再加入反应以求解温度场与浓度场. 压力-速度耦合采用 Phase Coupled SIMPLE, 空间离散方法采用一阶迎风格式.

反应过程中原料气从反应器的底部进入, 原料气中 $V(\text{N}_2) : V(\text{H}_2) : V(\text{CO}) = 1.37 : 3.1 : 1$, 总流速 0.2 m/s , 系统温度 $350 \text{ }^\circ\text{C}$; 耦合烧结板模型甲烷化过程的进口边界采用烧结板模型, 无板模型的进口边界为均匀的进口流速, 反应器壁面对气相无滑移, 固相有滑移, 出口为压力出口.

实验中催化剂总质量为 125 g , 真密度为 1.8 g/mL , 床层高度为 32.13 mm , 催化剂颗粒的粒径分布如表 1 所示, 混合后催化剂体积为 114.98 mL , 堆密度为

表 1 催化剂的粒径分布

Tab. 1 The size distribution of the catalyst

目数	直径范围/ μm	质量分数/%
120~150	106~120	5
80~120	120~180	50
60~80	180~250	40
40~60	250~380	5

1.087 g/mL , 在模拟中催化剂的平均直径取 0.172 mm .

2 结果与分析

数值模拟在 ANSYS-FLUENT 平台上完成, 颗粒相和气相的连续性方程、动量守恒方程中的重力项和压力梯度项以及能量守恒方程可以直接设定, 而动量守恒方程中的气固曳力相、化学反应动力学项以及烧结板模型均通过 UDF 来实现.

2.1 模型有效性验证

如图 3 所示, 取反应器进口面及流化床分布板段 $x=0, y=0$ 面作为参考面, 可以得到烧结板气速分布图. 由图 3(a) 速度分布云图可知气体以均匀的入射位置进入流化床, 由于烧结板存在一定的孔径分布, 所以每一个入射位置的进气量在孔径范围随机分布. 图 3(b) 为分布板段 $x=0$ 参考面进口气速分布矢量图, 图中显示进口不同位置气速不同, 进一步说明烧结板模型的有效性.

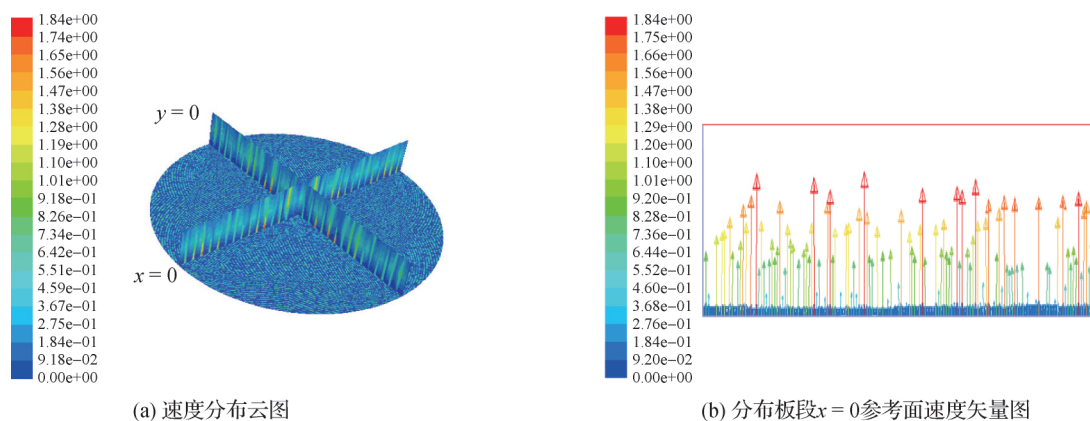


图 3 烧结板入口气速分布(单位: m/s)

Fig. 3 Distribution of inlet gas velocity of the sintered plate (unit: m/s)

图 4(a) 和 (b) 分别表示烧结板模型和无板模型中不同时刻颗粒相的流动状态. 由图可知, 使用烧结板模型在床层进口段存在明显的射流, 在 0.3 s 后床层

已呈现明显的不对称性; 而无板模型对称性持续到 0.5 s . 由于烧结板不同位置的进气量不同导致流化过程随机性增加, 更快达到均匀流化状态, 进一步说明

烧结板模型均匀随机布气的有效性. 结合图 5 完全流化后不同位置床层空隙率可得, 烧结板模型的存在可

以使床层流化状态更加均一, 与实验观察以及相关研究结果^[28]基本一致.

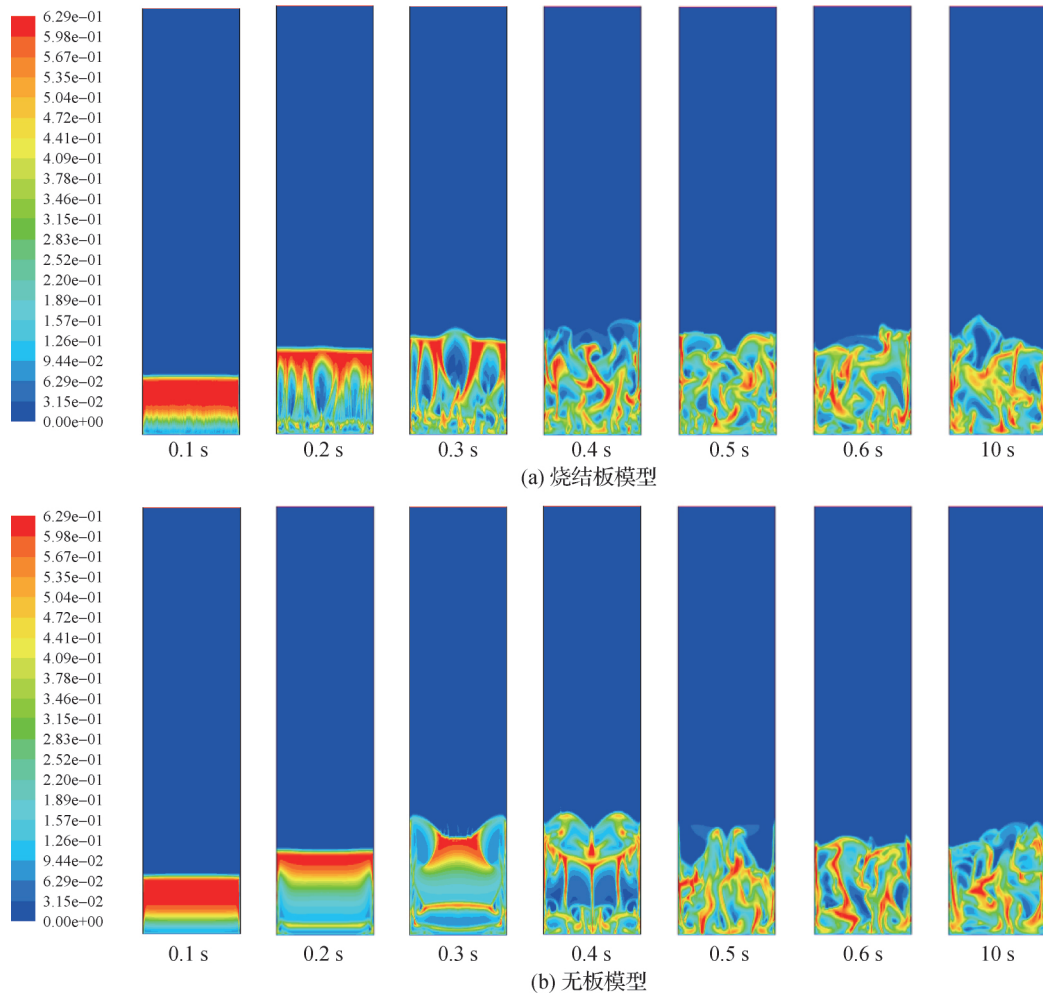


图 4 流化过程中颗粒相体积分分布

Fig. 4 Distribution of volume fraction of particle phase in the process of fluidization

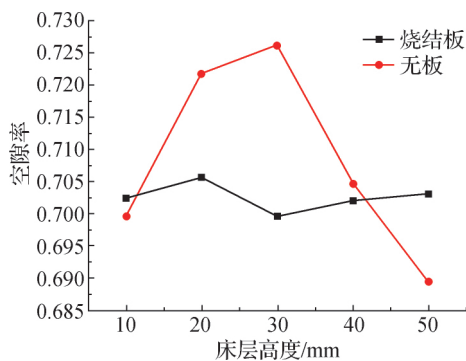


图 5 床层空隙率随床层高度的变化

Fig. 5 Variation of bed voidage with bed height

间步所得到的 CH₄ 质量分数分布云图. 可以发现, 在一定的反应时间内, 颗粒相体积分数与 CH₄ 质量分数在整个区域呈现正相关, 说明修正动力学的有效性.

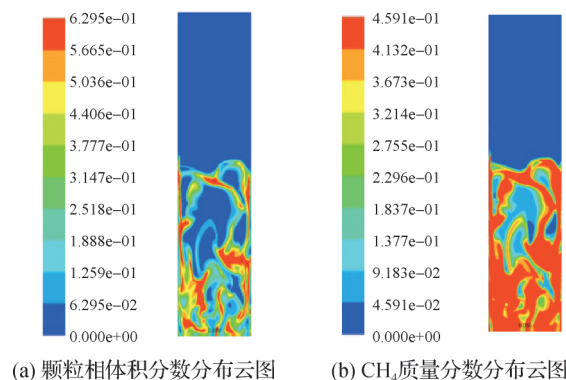


图 6 改进动力学计算结果

Fig. 6 Results of improved dynamics

图 6 为加入颗粒相浓度的改进反应动力学计算结果. 其中图 6(a) 为在流场稳定后颗粒相体积分分布云图; 图 6(b) 为在流场稳定之后, 加入反应并计算一个时

2.2 模型准确性验证

图 7(a)~(c) 分别表示反应器内 CO、H₂ 和 CH₄ 的质量分数分布. 由图可知: 反应主要发生在催化剂床层区域, 由于反应在一定程度上为可逆反应, 所以在床层内部存在 CO 和 H₂ 的富集; 同时, 由于水煤气变换反应是消耗 CO 生成 H₂ 的过程, 所以 H₂ 在床层内部的富集更加明显, 在远离床层的区域 CO 和 H₂ 的质量分数基本为零; CH₄ 质量分数随床层高度的变化基本均一, 反映出甲烷化反应速率非常快. 图 8 为 CO、H₂ 和 CH₄ 的质量分数随床层高度的变化, 可以看出在进口段反应已经基本进行完全, 床层内 H₂、CO 和 CH₄ 的质量分数分别维持在 5.63%, 8.19% 和 33.0% 左右.

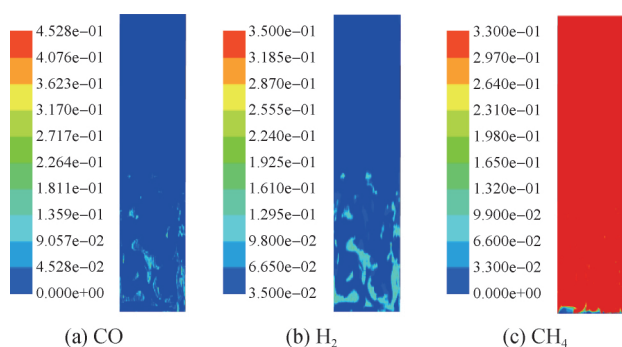


图 7 CO、H₂ 和 CH₄ 的质量分数分布

Fig. 7 Distribution of mass fraction of CO, H₂ and CH₄

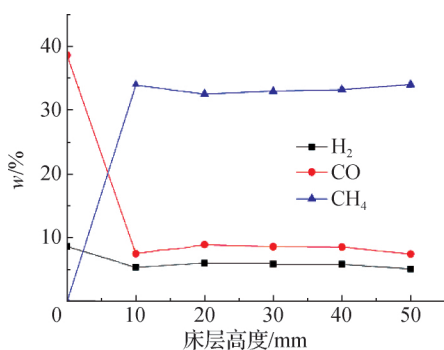


图 8 CO、H₂ 和 CH₄ 的质量分数随床层高度的变化

Fig. 8 Variation of mass fraction of CO, H₂ and CH₄ with bed height

为了说明模型的准确性, 将同时耦合烧结板与改进动力学模型、只耦合改进动力学模型以及实验结果三者的床层温度、CO 转化率和 CH₄ 的选择性进行对比, 其中实验数据来源于本课题组前期研究工作^[9].

表 2 中对比了上述 3 种类型的床层平均温度、CO 出口转化率 ($X_{CO,out}$) 以及 CH₄ 出口选择性 ($S_{CH_4,out}$), 可以看出模拟结果与实际数据基本吻合, 验证了改进动力学模型的准确性.

表 2 模拟结果与实验数据对比

Tab. 2 Comparison of the simulated results with experimental data

类型	床层平均温度/K	$X_{CO,out}/\%$	$S_{CH_4,out}/\%$
烧结板模型	746.12	98.263	93.475
无板模型	750.31	97.150	93.851
实验 ^[9]	753.38	99.650	93.860

图 9(a) 显示了不同进口边界 (有无烧结板) 床层内不同位置的温度情况, 由图可知无论有无烧结板, 床层温度均呈先上升而后平稳, 最后下降的趋势. 由于甲烷化反应是强放热反应且反应速率较快, 所以在反应器进口段床层温度快速上升; 之后随着床层高度的上升, 产热与放热基本均衡, 温度基本不变; 最后由于催化剂以及 CO、H₂ 质量分数的减少, 所以床层温度呈现下降趋势. 床层温度的变化也从侧面反映出流化床存在密相和稀相的区别以及改进动力学的有效性. 当存在烧结板时, 床层内温度分布更加均匀, 与实验数据更加接近; 而无板情况下床层温度波动相对较大, 证明烧结板可以有效地改善颗粒相的流动状态, 加速床层内部传热. 这也充分说明对于甲烷化等强放热反应来说, 进行合理布风的必要性.

根据床层内部不同位置各组分质量分数的实验测量结果可得出 CO 的转化率, 并将其与不同模型得到的模拟值进行对比. 如图 9(b) 所示: 在靠近分布板的区域 (0~10 mm) CO 已经基本完成反应, 将该区域称为分布板区; 而后在床层内部 CO 转化率有所波动, 这主要是因为 CH₄ 的积累和温度的上升, 导致逆反应速率升高; 但床层内几个测量点之间 CO 的转化率差别不大, 这也反映出床层流化效果较为均匀, 流动状态接近于全混流. 对比不同进口边界条件 (有无烧结板) 与实验结果, 可以发现烧结板模型模拟的 CO 转化率更加接近实验结果, 进一步体现出烧结板模型的有效性与准确性. 图 9(c) 显示了 CH₄ 选择性随床层高度的变化, 由图可知, CH₄ 选择性随床层高度并无太大变化且与实验结果基本一致, 体现出动力学的准确性.

3 结 论

1) 本研究基于 ANSYS-FLUENT 平台对实验室规模的甲烷化流化床反应器进行了模拟计算. 采用流体双欧拉模型, 气固相间耦合采用修正的 Syamlal-O'Brien 模型, 在进口边界建立烧结板模型, 并通过 UDF 对反应动力学进行改进, 在宏观上实现了反应速率与

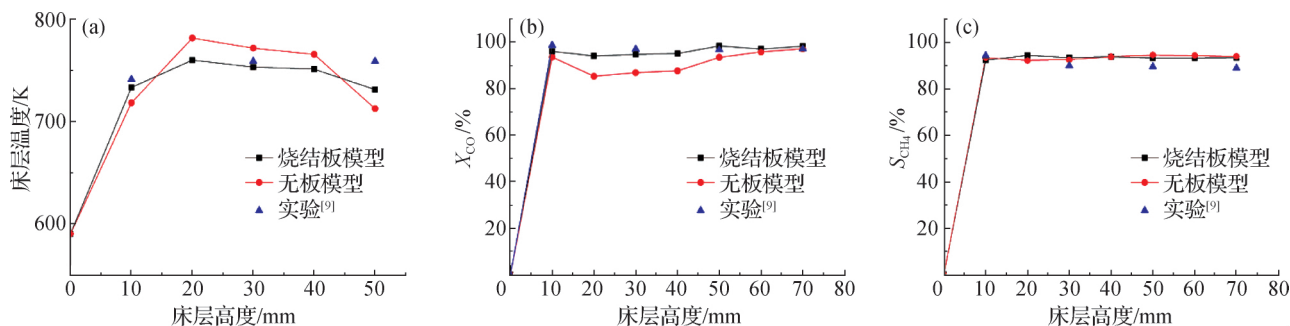
图9 床层温度(a)、CO转化率(b)和CH₄选择性(c)随床层高度的变化

Fig. 9 Variation of bed temperature (a), conversion of CO (b) and selectivity of CH₄ (c) with bed height

催化剂浓度的正相关。

2) CO在进口分布板区已经基本反应完全,由于存在水煤气变换反应,所以在催化剂床层内仍然存在少量H₂富集,反应完全后床层内H₂、CO和CH₄的质量分数分别维持在5.63%、8.19%和33.0%左右。

3) 模拟结果与实验结果基本吻合。烧结板模型的建立实现了进口段气相射流,床层流化状态更加均匀,床层更快达到均匀流化状态,反应速率与催化剂浓度相关联后更加真实地反映催化过程,烧结板模型甲烷化过程的CO转化率和床层温度更加符合实验结果,可为后续烧结板与甲烷化流化床反应器的研究提供一定经验。

参考文献:

- [1] RAZZAQ R, LI C, AMIN N, et al. CO-methanation of carbon oxides over nickel-based Ce_xZr_{1-x}O₂ catalysts[J]. Energy Fuels, 2013, 27(11): 6955-6961.
- [2] HU D, GAO J, PING Y, et al. Enhanced investigation of CO methanation over Ni/Al₂O₃ catalysts for synthetic natural gas production[J]. Ind Eng Chem Res, 2012, 51(13): 4875-4886.
- [3] LIU Q, TIAN Y Y, AI H M. Methanation of carbon monoxide on ordered mesoporous NiO-TiO₂-Al₂O₃ composite oxides[J]. RSC Adv, 2016, 6(25): 20971-20978.
- [4] WANG R, LI Y H, SHI R H, et al. Effect of metal-support interaction on the catalytic performance of Ni/Al₂O₃ for selective hydrogenation of isoprene[J]. Journal of Molecular Catalysis A: Chemical, 2011, 344(1/2): 122-127.
- [5] CHENG C B, SHEN D K, XIAO R, et al. Methanation of syngas (H₂/CO) over the different Ni-based catalysts[J]. Fuel, 2017, 189: 419-427.
- [6] ZHAO A M, YING W Y, ZHANG H T, et al. Ni/Al₂O₃ catalysts for syngas methanation: effect of Mn promoter[J]. Journal of Natural Gas Chemistry, 2012, 21(2): 170-177.
- [7] SUN L Y, LUO K, FAN J R. Numerical simulation of CO methanation for the production of synthetic natural gas in a fluidized bed reactor[J]. Energy & Fuels, 2017, 31(9): 10267-10273.
- [8] 崔德春, 刘志铭, 李强, 等. 合成气完全甲烷化催化剂的放大制备及其性能表征[J]. 厦门大学学报(自然科学版), 2016, 55(6): 823-829.
- [9] 叶松寿. 合成气甲烷化催化剂放大制备及其流态化反应技术模式研究[D]. 厦门: 厦门大学, 2015.
- [10] LIU Y F, HINRICHSEN O. CFD simulation of hydrodynamics and methanation reactions in a fluidized-bed reactor for the production of synthetic natural gas[J]. Ind Eng Chem Res, 2014, 53(22): 9348-9356.
- [11] 徐志刚, 洪钢, 郭奇勋, 等. 自然循环工况下倒U型管蒸汽发生器管内倒流的数值计算分析[J]. 厦门大学学报(自然科学版), 2017, 56(6): 831-837.
- [12] 程源洪, 张亚新, 王吉德, 等. 甲烷化固定床反应器床层反应过程与场分布数值模拟[J]. 化工学报, 2015, 66(9): 3391-3397.
- [13] 徐俊, 秦新潮, 李晓曼, 等. 流化床管式分布器内流场模拟和布气性能分析[J]. 化工学报, 2010, 61(9): 2280-2286.
- [14] GIBSON L J, ASHBY M F. 多孔固体结构与性能[M]. 刘培生, 译. 北京: 清华大学出版社, 2003: 160-164.
- [15] LU T J, STONE H A, ASHBY M F. Heat transfer in open-cell metal foams[J]. Acta Materialia, 1998, 46(10): 3619-3635.
- [16] LIU P S, FU C, LI T F, et al. Relationship between tensile strength and porosity for high porosity metals[J]. Science in China Series E: Technological Sciences, 1999, 42(1): 100-107.
- [17] LIU P S, FU C, LI T F. Relationship between elongation and porosity for high porosity metal materials[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 1999, 9(3): 546-552.

<http://jxmu.xmu.edu.cn>

- [18] SUN L Y, LUO K, FAN J R. Production of synthetic natural gas by CO methanation over Ni/Al₂O₃ catalyst in fluidized bed reactor[J]. Catalysis Communications, 2018, 105: 37-42.
- [19] SUN L Y, LUO K, FAN J R. Numerical investigation on methanation kinetic and flow behavior in full-loop fluidized bed reactor[J]. Fuel, 2018, 231: 85-93.
- [20] CAO Z K, LI T, ZHANG Q C, et al. Systems modeling, simulation and analysis for robust operations and improved design of entrained-flow pulverized coal gasifiers[J]. Energy, 2018, 148: 941-964.
- [21] CHEN J H, YIN W J, WANG S, et al. Effect of reactions in small eddies on biomass gasification with eddy dissipation concept-sub-grid scale reaction model [J]. Bioresource Technology, 2016, 211: 93-100.
- [22] ANDERSON T B, JACKSON R. Fluid mechanical description of fluidized beds. Equations of motion [J]. Ind Eng Chem Fundam, 1967, 6(4): 527-539.
- [23] SYAMLAL M, O'BRIEN T J. Computer simulation of bubbles in a fluidized bed[J]. AIChE Symposium Series, 1989, 85: 22-31.
- [24] SU M Z, ZHAO H B, MA J C. Computational fluid dynamics simulation for chemical looping combustion of coal in a dual circulation fluidized bed [J]. Energy Conversion and Management, 2015, 105: 1-12.
- [25] WANG X J, JIN B S, ZHANG Y, et al. Three dimensional modeling of a coal-fired chemical looping combustion process in the circulating fluidized bed fuel reactor[J]. Energy & Fuels, 2013, 27(4): 2173-2184.
- [26] GUNN D J. Transfer of heat or mass to particles in fixed and fluidised beds [J]. International Journal of Heat Mass Transfer, 1978, 21(4): 467-476.
- [27] KOPYSCINSKI J, SCHILDHAUER T J, VOGEL F, et al. Applying spatially resolved concentration and temperature measurements in a catalytic plate reactor for the kinetic study of CO methanation [J]. Journal of Catalysis, 2010, 271(2): 262-279.
- [28] GAD H. 多相流动和传热手册[M]. 鲁钟琪, 译. 北京: 机械工业出版社, 1993, 499-501.
- [29] 马华, 张晓清, 张鹏鸽. 一种基于线性同余算法的伪随机数产生器 [J]. 纯粹数学与应用数学, 2005, 21(3): 206-209.
- [30] 张杰, 李涛. 甲烷化梅花状催化剂 CFD 计算及改进[J]. 化工学报, 2018, 69(7): 2985-2992.

Modeling and analysis of methanized fluidized bed reactor with sintered plate distributor

ZHANG Xiaorui, CAO Zhikai, CHEN Binghui, ZHOU Hua*

(College of Chemistry and Chemical Engineering, Xiamen University, Xiamen 361005, China)

Abstract: Numerical simulations of a methanized fluidized bed reactor are carried out by a two-fluid (gas-solid phase) flow model. The sintered plate gas distributor of the fluidized bed is described by user-defined function in an ANSYS-FLUENT platform. In addition, an improved kinetic model with a positive correlation between reaction rate and catalyst active sites is programmed in the user-defined function. The model is validated by comparing the simulated results with experimental data. Furthermore, the parameters distribution in the methanized fluidized bed reactor with sintered plate gas distributor is analyzed on the basis of the simulated results. The results indicate that the simulated results of the sintered plate model are more reasonable than those without the sintered plate model at the inlet boundary. Moreover, the improved kinetic model is better to reflect the reaction process of methanation, and simulated results are in good agreement with the experimental data. So the simulation accuracy of the sintered plate model is higher than that without the sintered plate model.

Keywords: methanized; fluidized bed; sintered plate; reaction kinetics; computational fluid dynamics (CFD)