第 37 卷第 3 期 2021 年 6 月 化学反应工程与工艺 Chemical Reaction Engineering and Technology Vol 37, No 3 June 2021

文章编号: 1001-7631(2021)03-0193-10

DOI: 10.11730/j.issn.1001-7631.2021.03.0193.10

高通量连续流微反应器的流动与传热数值模拟

朱 杰, 潘 腾, 王丽军, 成有为, 李 希

浙江大学化学工程与生物工程学院,浙江 杭州 310027

摘要: 微反应器作为一种连续流反应器,已广泛应用于各类有机合成反应过程,但是由于微尺度限制了流动 通量,其大规模工业应用仍有诸多困难。本研究通过在流体通道中内置三维螺旋构件的思路设计出一种高通 量连续流微反应器。介绍了该反应器的几何构型与功能特点,并采用计算流体力学模拟基本单元的对流传热 过程。结果表明:流体在内构件的作用下产生大量二次流,显著强化了传热过程,流动径向上温度近乎均一。 雷诺数、普朗特数与几何结构对传热过程影响显著,通过数值拟合得到努塞尔数与摩擦系数的计算关联式。

关键词: 连续流微反应器 计算流体力学 传热强化 二次流 中图分类号: TQ052.5 文献标识码: A

随着连续化、自动化和智能化生产观念的深入,连续流反应技术在精细化工和药物化工领域快速 发展^[1-2]。作为一种典型的连续流反应器,微反应器凭借自身高效的传热和传质性能在有机合成反应 中得到广泛应用^[3-4]。然而,微尺度在带来优越的传递性能的同时也限制了流动通量,微反应器的大 规模工业应用仍有许多挑战^[5-6]。

微反应器的放大策略主要有三种^[7]:一是平行数目放大,该方法的优点是可以保持传递性能不变, 难点在于如何实现成千上万台设备的流量均布;二是串联数目放大,该方法无须流量分配器,可以应 用于较长反应停留时间的反应以及多步反应,但是能够实现的通量有限,鲜有超过 100 mL/min 处理 量的报道;三是几何尺寸放大,该方法可以实现通量的数量级增长,降低通道堵塞风险,难点在于保 留微尺度的传递性能。康宁公司基于几何尺寸放大的策略设计了一种先进流反应器(Advanced Flow Reactor, AFR)^[8-10],该反应器的特征几何尺寸为宽 1 mm、高 1.1 mm,流动通量达到 10~200 mL/min, 气-液相界面积为 160~1 300 m^{-1[11]},液-液相界面积为 1 000~10 000 m^{-1[12]},仅需七个 AFR 组合就可 实现每分钟公斤级的原料处理量,展现出了一定的工业应用潜力。Fang 等^[13]自行设计了一种可以连 续合成季铵盐的反应器,该反应器由内径为 9 mm、总长为 200 m 的钛材蛇形圆管构成,管内容积为 15.7 L,在管内插入组合式静态混合器以增强传热和传质效果,结果表明该反应器可以在几分钟内实 现相当于间歇反应器 10 h 的生产能力,年生产能力超过 1 000 t。

本研究基于扩大通道尺寸并内置三维螺旋构件的思路设计了一种高通量连续流反应器 (High-throughput Continuous-flow Reactor, HTCR),该反应器在保持较优的混合与传热性能的前提 下,通量比常见微反应器增加 1~3 个数量级,为微反应器的几何放大提供了一条新的思路。本工作 首先介绍 HTCR 的几何构型,再采用计算流体力学(CFD)的方法对反应器基本单元的对流传热过程

收稿日期: 2021-04-27;修订日期: 2021-05-23。

作者简介:朱杰(1996一),男,硕士研究生;潘腾(1990一),男,博士后,通讯联系人。E-mail:115_pt@zju.edu.cn。

进行模拟,分析其流动与传热规律,随后采用单因素分析的方法考察雷诺数、普朗特数、螺旋片长径 比和扭转角对传热的影响,最后通过数值拟合得到努塞尔数与流动摩擦系数的计算关联式。

1 反应器几何构型设计

流体的旋转、拉伸及剪切,对强化流体传热、 混合和传质有重要作用。借鉴 SK 静态混合器的结 构,提出了一种新的连续流反应器型式,其基本单 元为内置 SK 螺旋片的六角直管。如图1所示,六角 管横截面为正六边形,SK 螺旋片为左旋、右旋交替 出现的周期性结构,相邻元件头尾交叉角 90°,将六 角管与 SK 螺旋片组合在一起,即构成 HTCR 的基本单元。



图 1 内置 SK 螺旋片的六角管示意 Fig.1 Schematic diagram of hexagonal tube embedded SK helical plates

将基本单元沿六个外壁面法向阵列再切割形成反应管束,如图2所示。将反应管束轴向的两个端 面套上固定板,在板上按一定的规则开槽使每根六角管依次连通,连通后的槽口布置如图3所示。将 槽口表面封闭后再将z方向两个端面用矩形板封闭,并在第一根六角管上开若干进料口,在最后一根 六角管上开一个出料口,此时反应器的流体通道构建完毕,反应器内物料流向如图4所示。



图 2 反应管束示意 Fig.2 Schematic diagram of reaction tubes bunch



图 4 物料流向示意 Fig.4 Schematic diagram of flow direction of stream



图 3 槽口布置示意 Fig.3 Schematic diagram of rabbets arrangement



图 5 零部件装配 Fig.5 Assembly diagram of parts

反应管束中六角管外的区域为换热介质区域,在 x 方向上两个端面分别设置换热介质进、出口, 在进口与反应管束间设置分布器,各部件的装配关系如图 5 所示。

反应器运行时,反应物分别通过不同的进料口进入第一根六角管,在螺旋片的作用下进行快速混 合与高效传热,然后沿立体蛇形路径流至最后一根六角管再从出料口流出。换热介质通过管线进入分 第37卷第3期

布器,从分布器孔流入反应管束壳程,通过间壁传热与管内反应物进行热交换,两流体错流换热。

2 数学模型

2.1 几何模型

抽取流体通道的最小重复单元作为几何模型, 如图 6 所示, *l* 为一个螺片的长度, 横截面正六边形 边长为 5 mm, 内置 *n* 组螺旋片。

2.2 控制方程



图 6 几何模型 Fig.6 Geometric model

对于不可压缩牛顿流体的三维稳态流动,忽略 质量力,以张量形式表示的控制方程如下:

$$\frac{\partial v_i}{\partial x_i} = 0 \tag{1}$$

$$\frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho v_i v_j \right) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\mu \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \right]$$
(2)

 $\frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho v_j c_p T - \lambda \frac{\partial T}{\partial x_j} \right) = 0 \tag{3}$

由于模拟的雷诺数 (*Re*) 在湍流区 (对于 SK 螺旋结构, *Re*>150 即为湍流区^[14])。根据以往对 于三维剪切流的研究,剪切应力传输模型 (SST) *k-w* 湍流模型可以更准确地描述流体行为^[15],故本 研究选用该模型进行计算。

2.3 网格划分及无关性分析

采用软件 Star ccm⁺的网格划分功能,贴近壁面 设置 5 层棱柱层网格以解析边界层,保证算例中壁 面 *y*+值为 0.1~1.2,网格划分情况如图 7 所示。

网格无关性分析的边界条件设置:进口速度为 0.3 m/s,进口温度为 60 ℃;出口为压力边界,其值 为 0 Pa;几何壁面为无滑移边界条件,外壁面温度 设为等温 80 ℃,螺旋片壁面设置为绝热,流动介质 设置为水。由疏到密选取了 163 659,262 874,



图 7 网格划分进口段(a)和 SK 段(b) Fig.7 Mesh of inlet section(a) and SK structure section(b)

418 102,566 706,866 350 和 14 490 616 六个网格总数目进行计算,以模拟对象的努塞尔数(Nu)和 摩擦系数(f)作为判断依据,结果如图 8 所示。结果显示,f在整个考察范围内均保持稳定,当网格 数大于 56.6 万时,Nu 几乎不随网格数的增长而变化,此时网格尺寸已经可以消除其本身对计算结果 的影响,本文案例均采用该尺寸进行计算。

为了排除进出口对计算结果的干扰,进一步考察螺旋片组数(n)对流动和传热的影响,模拟结果如图9所示。当 n≥6时,Nu 和 f 趋于平缓,说明此时螺旋片组数对于传热和流动阻力已经几乎没 有影响,故本模拟计算的 n 均以 6 为基准。







3.1 速度场与二次流

图 10 展示了模拟对象的流线图。可以看出流体 在管内呈现出不断分裂合并的流动状况,与此同时, 流体在径向上还有大量的穿插和交互,这些径向上 的二次流对于强化传热具有重要意义。

为了细致分析流体在径向上的流动,考察了第 七个螺旋片对应区域的横截面速度场的变化情况, 结果如图 11 所示。z 为模型横截面距入口的长度, 则 z/l 可便捷地表示横截面所处位置,比如 z/l 为 49/8 就代表第七个螺旋片轴向 1/8 长度位置的横截面,黑



图 9 螺旋片组数对 Nu和f的影响 Fig.9 Influence of group number of spiral pieces on Nu and f



图 10 模拟对象的流线 Fig.10 Streamline of simulation object

色箭头矢量表示速度在横截面上的投影;颜色等值线表示轴向速度大小。



Axial velocity/ $(m \cdot s^{-1})$

图 11 第七个螺旋片不同横截面的速度场 Fig.11 Velocity field of different cross sections of the 7th helical plate

可以发现每个截面上都存在径向二次流,这是因为流体在螺旋前进的过程中,轴心附近的流速高 于管壁附近的流速,不同流速的流体微团的离心力不同,径向上产生了逆压梯度,引起流体从轴心向 螺旋外侧管壁的流动,同时还会引起流体沿管壁从螺旋外侧向内侧的附加流动,形成一对反向的双旋 流涡,这对旋涡又被称为 Dean 涡^[16]。图 11 中螺旋片两侧各有一对 Dean 涡,图 11 (a)和图 11 (b) 中每一对都是两个同向涡组成,这是因为相邻的两个螺旋片头尾呈 90°交叉布置,第六个螺旋片产生 的两对 Dean 涡进入第七个螺旋片时,四个涡被重组,旋向相同的两个涡进入了第七个螺旋片的同一 侧。由于同向的两个涡的动能会相互抵消,可以观察到:从图 11 (a)到图 11 (b),涡的强度在逐渐 变弱;图 11 (c)时,其中一个涡消失;图 11 (d)时,涡消失的区域形成了一个与消失前反向的涡; 再从图 11 (e)到图 11 (h),两对反向涡不断发展、平衡,如此再进入第八个螺旋片。整个流体区域 的二次流都表现出这种周期往复的特性。

3.2 温度场及传热过程强化

在二次流的影响下,反应器的传热过程也得到了强化,图 12 所示为第七个螺旋片不同横截面的 温度场情况。颜色等值线表示温度场,线状的纹理表示速度矢量在横截面投影的线积分卷积。



Temperature/°C

图 12 第七个螺旋片不同横截面的温度场

Fig.12 Temperature field of different cross sections of the 7th helical plate

由图 12 可知,热边界层很薄,整个横截面的绝大部分区域温度是均一的,这是由于在二次流的 作用下,流动主体区的冷流体不断侵扰边界层的热流体,边界层的热流体不断被卷入流动主体区的冷 流体,这个过程中不仅流体微团的位置发生了交错,流体微团的温度也在快速交换和平衡,形成了大 面积温度均一的区域。

为了更加直观地展现 SK 螺旋结构强化传热的能力,以相同边界条件下无构件空管的温度场为对 照,三个截面的中轴线温度分布如图 13 所示,横坐标 χ 为横截面径向上的无量纲长度。可以看出随 着轴向距离的增大,SK 结构对应的主流区温度快速上升并逐渐趋于均一,而空管对应的主流区温度 仅缓慢上升,并且径向分布很不均匀。在该条件下,SK 螺旋结构的传热系数为空管的 4.2 倍。

197

3.3 场协同效应分析

将对流传热比作有热源的热传导, 传热速率不 仅与流体物性和流速有关, 还与速度场与温度梯度 的夹角有关。当流体被加热时,应使夹角尽量接近 0°, 当流体被冷却时应使夹角接近 180°, 这一思想被称 为"场协同原理"^[17-18]。

$$\theta = \arccos\left[\frac{\left|v_x \frac{\partial T}{\partial x} + v_y \frac{dT}{\partial y}\right|}{\sqrt{v_x^2 + v_y^2} \sqrt{\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial T}{\partial y}\right)^2}}\right] \quad (4)$$



图 13 不同横截面中轴线的温度分布 Fig.13 Temperature distribution of the central axis with different cross sections

通过式(4)计算不同截面的协同角,结果如图

14 所示。可以看出有较大面积区域的协同角偏离 90°,这说明 SK 螺旋结构产生的二次流对于强化传 热起着重要的作用。观察图 14(a)~图 14(c)红色与蓝色区域的演变,可以发现绿色区域占比逐 渐增多,这表明流过第六个螺旋片的流体二次流在第七个螺旋片的反旋向导流下逐渐减弱。在第七个 螺旋片的后半段,即图 14(d)~图 14(h)所示的截面位置,图中红蓝色区域的占比明显增多,这 是由于流体在第七个螺旋片的主导下逐渐形成新的 Dean 涡,二次流再次发展增强。



图 14 不同截面的协同角分布 Fig.14 Synergy angle distribution of different cross sections

3.4 雷诺数与普朗特数对传热的影响

雷诺数(*Re*)和普朗特数(*Pr*)是影响对流传热的重要因素,通过单因素分析的方式考察了两者 对传热过程的影响。为了综合考虑传热与流动阻力两方面的结果,引入性能评价指标(*PEC*)来量化 等泵功约束条件下强化传热的程度^[19],计算方法见式(5)。

$$PEC = \left(Nu/Nu_0\right) / \left(f/f_0\right)^{1/3}$$
(5)

选取等水力学直径的中空圆管作为参照结构,不同 Re 时的 Nu 和 f 值如图 15 所示,对 PEC 的影 响如图 16 所示。可以看出,在其他因素保持不变时, Nu 随着 Re 的增大而增大, f 随着 Re 的增大而 减小, PEC呈现先增大再减小的规律。在考察范围内, PEC 数值始终大于1, 说明 SK 螺旋结构实现 了强化传热。





通过拟合得到:

$$Nu = 0.565 \ 4Re^{0.628} \tag{6}$$

$$f = 0.813 \ 3 + \frac{100.3}{Re^{0.800}} \tag{7}$$

Pr 对 Nu 和 f 的影响如图 17 所示。可以看到, Nu随 Pr 的增大而增大, f 数值上与 Pr 无关。拟合 得到 Nu 与 Pr 的关系见式(8), Pr 项指数为 0.406, 与空管在完全湍流区的 Nu 实验关联式的 Pr 项指数 0.4 基本一致。

$$Nu = 36.155 Pr^{0.406} \tag{8}$$

3.5 螺旋片长径比与扭转角对传热的影响



和扭转角 (φ)。不同 Ar 对 Nu 和 f 的影响如图 18 所示,对 PEC 的影响如图 19 所示。



随着 Ar 的增大, Nu 和 f 都呈现减小的趋势, 这是由于 Ar 增大会使得单位轴向长度螺旋片旋转角



图 16 Re 对 PEC 的影响 Fig.16 The effect of Re on PEC



图 17 Pr 对 Nu 和 f 的影响 Fig.17 The effect of Pr on Nu and f

度的下降,二次流的强度减弱。PEC则随着 Ar 的增大缓慢减小,当 Ar>2.4 时减小速度变快,因此 在实际应用中Ar设计值为1.7~2.4较合适。通过拟合得到如下的关联式:

$$Nu = 146.6Ar^{-0.750} \tag{9}$$

$$f = 5.624 A r^{-2.040} \tag{10}$$

不同 φ 对 Nu 和 f 的影响如图 20 所示,对 PEC 的影响如图 21 所示,其中 φ_0 为 180°。可以看出 Nu 和 f 随着 φ/φ₀ 的增大而增大, PEC 随 φ/φ₀ 的增大而显著增大, 这说明增大扭转角是一种强化 SK 螺旋结构传热的理想方式,在实际应用中选择180°扭转角的螺旋片是合适的。



Fig.20 The effect of φ on Nu and f



$$Nu = 77.61 (\varphi/\varphi_0)^{0.655}$$
(11)

$$f = 0.989 \ 4(\varphi/\varphi_0)^{1.182} \tag{12}$$

3.6 计算关联式

取 3.4 和 3.5 的所有数据进行拟合,得到 SK 螺旋结构的 Nu 及 f 的总计算关联式:

$$Nu = 0.493 Re^{0.628} Pr^{0.406} Ar^{-0.750} \left(\varphi/\varphi_0\right)^{0.635}$$
(13)

$$f = \left(4.16 + 557.3Re^{-0.800}\right)Ar^{-2.040} \left(\varphi/\varphi_0\right)^{1.182} \tag{14}$$

式中: 866<Re<4330, 1<Pr<214, 1.7<Ar<2.9, 0.5<φ/φ0<1。

图 22 和图 23 为总关联式计算得到的值与模拟值的比较。



由图 22 和图 23 可知,计算值和拟合值的最大偏差都在 10%以内。*Nu* 计算关联式的相关系数 *R*² 为 0.998 1,显著性检验中 *F* 值为 23 089, *F*_{0.95}=4.07, *F* ≫ 10*F*_{0.95}; *f* 计算关联式的相关系数为 0.999 7,显著性检验中 *F* 值为 111 353, *F*_{0.95} 为 4.16, *F* ≫ 10*F*_{0.95}。两个关联式都有着较好的符合性和预测性。

4 结 论

a)基于扩大通道尺寸并内置三维螺旋内构件的思路设计了一种高通量连续流反应器,通量可达 1000 mL/min,比传统连续流微反应器高 1~2 个数量级;

b)在周期性螺旋片的作用下,流动径向上产生大量二次流,这些漩涡显著了强化传热过程;

- c)热边界层很薄,径向上温度近乎均一,SK结构的传热系数为空管的4.2倍;
- d) 雷诺数 (Re) 对性能评价指标 PEC 影响较大, 合适的 Re 为 2 000~3 000;
- e)螺旋片长径比(Ar)和扭转角(φ)对 PEC 影响较大,合适的 Ar 为 1.7~2.4, φ 为 180°;
- f)反应器内努塞尔数(Nu)和摩擦系数(f)计算关联式如下:

 $Nu = 0.493 Re^{0.628} Pr^{0.406} Ar^{-0.750} \left(\varphi/\varphi_0\right)^{0.635}$ $f = \left(4.16 + 557.3 Re^{-0.800}\right) Ar^{-2.040} \left(\varphi/\varphi_0\right)^{1.182}$

式中: 866<Re<4330, 1<Pr<214, 1.7<Ar<2.9, 0.5<φ/φ0<1。

符号说明

Ar	 螺旋片长径比	\boldsymbol{v}_i	 速度张量, m/s
C_p	 流体比热容,J/(kg·K)	Z	 模型横截面距入口的长度,mm
f	 流动摩擦系数	θ	 协同角,。
l	 螺片的长度, mm	λ	 流体热导率, W/(m·K)
Nu	 努塞尔数	μ	 流体黏度, Pa·s
Pr	 普朗特数	ρ	 流体密度, kg/m ³
Re	 雷诺数	φ	 扭转角,。
Т	 流体温度, K	χ	 横截面径向上的无量纲长度

参考文献:

- COLE K P, JOHNSON M D. Continuous flow technology vs. the batch-by-batch approach to produce pharmaceutical compounds[J]. Expert Review of Clinical Pharmacology, 2018, 11(1):5-13.
- [2] ROGERS L, JENSEN K F. Continuous manufacturing the Green Chemistry promise? [J]. Green Chemistry, 2019, 21(13):3481-3498.
- [3] JENSEN K F. Flow chemistry-microreaction technology comes of age[J]. AIChE Journal, 2017, 63(3):858-869.
- [4] KIM H, MIN K I, INOUE K, et al. Submillisecond organic synthesis: outpacing fries rearrangement through microfluidic rapid mixing[J]. Science, 2016, 352(6286):691-694.
- [5] KOCKMANN N, ROBERGE D M. Scale-up concept for modular microstructured reactors based on mixing, heat transfer, and reactor safety[J]. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 2011, 50(10):1017-1026.
- [6] KOCKMANN N, GOTTSPONER M, ROBERGE D M. Scale-up concept of single-channel microreactors from process development to industrial production[J]. Chemical Engineering Journal, 2011, 167(2-3):718-726.
- [7] 骆广生, 昌阳成, 王凯, 等. 微化工技术[M]. 北京: 化学工业出版社, 2020:401-402.
- [8] WOITALKA A, KUHN S, JENSEN K F. Scalability of mass transfer in liquid-liquid flow[J]. Chemical Engineering Science, 2014, 116:1-8.
- [9] NIEVES-REMACHA M J, KULKARNI A A, JENSEN K F. Open FOAM computational fluid dynamic simulations of single-phase flows in an advanced-flow reactor[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2015, 54(30):7543-7553.

202	化学反应工程与工艺 2021年6月
[10]	WU K J, NAPPO V, KUHN S. Hydrodynamic study of single- and two-phase flow in an advanced-flow reactor[J]. Industrial &
	Engineering Chemistry Research, 2015, 54(30):7554-7564.
[11]	NIEVES-REMACHA M J, KULKARNI A A, JENSEN K F. Gas-liquid flow and mass transfer in an advanced-flow reactor[J]. Industrial
	& Engineering Chemistry Research, 2013, 52(26):8996-9010.
[12]	NIEVES-REMACHA, JOSÉ M, KULKARNI A A, et al. Hydrodynamics of liquid-liquid dispersion in an advanced-flow reactor[J].
	Industrial & Engineering Chemistry Research, 2012, 51(50):16251-16262.
[13]	FANG Z, YANG Y H, GU J J, et al. Synthesis and scale-up of water-soluble quaternary cationic monomers in a continuous flow
	system[J]. Reaction Chemistry & Engineering, 2019, 4:919-926.
[14]	FANG J Z, LEE D J. Micromixing efficiency in static mixer[J]. Chemical Engineering Science, 2001, 56:3797-3802.
[15]	MENG H B, HAN M Q, YU Y F, et al. Numerical evaluations on the characteristics of turbulent flow and heat transfer in the Lightnin
	static mixer[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2020, 156:119788.
[16]	湛含辉, 成浩, 刘建文, 等. 二次流原理[M]. 长沙: 中南大学出版社, 2005:29-30.
[17]	GUO Z Y, TAO W Q, SHAH R K. The field synergy (coordination) principle and its applications in enhancing single phase convective
	heat transfer[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2005, 48(9):1797-1807.
[18]	GUO Z Y, LI D Y, WANG B X. A novel concept for convective heat transfer enhancement[J]. International Journal of Heat and Mass
	Transfer, 1998, 41(14):2221-2225.

[19] 陶文铨. 传热学 [M]. 第五版. 北京: 高等教育出版社, 2018:270.

Simulation of Flow and Heat Transfer in the High-Throughput Continuous-Flow Microreactor

ZHU Jie, PAN Teng, WANG Lijun, CHENG Youwei, LI Xi

College of Chemical and Biological Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China

Abstract: As a kind of continuous-flow reactor, the microreactor has been widely used in various organic synthesis reactions. However, the large-scale industrial application of microreactors is difficult because the flow flux is limited by the microscale. In this paper, a high-throughput continuous-flow microreactor was designed based on the idea of embedding three-dimensional spiral components in the channel. The geometric configuration and functional characteristics of the reactor were introduced, and then the convective heat transfer process of the basic unit was simulated by computational fluid dynamics. The results showed that the fluid generates a large number of secondary flows with the action of the internal components, which significantly enhanced the heat transfer process, therefore the temperature in the radial direction of the flow was nearly uniform. The Reynolds number, Prandtl number and geometric structure had significant effects on the heat transfer process. The correlation equations of Nusselt number and friction coefficient were obtained by numerical fitting.

Key words: continuous-flow microreactor; computational fluid dynamics; heat transfer enhancement; secondary flow

栏目编辑 胡晓萍