

بررسی میکرو رآکتور جت برخوردی به منظور تولید نانوذرات کلسیم کربنات با استفاده از دینامیک سیالات محاسباتی

کاظم اداوی^۱، سمانه امینی آحور^۲، ماجد امینی^۱، احمد رضانی سعادت آبادی^۳

^۱ کارشناسی ارشد مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران

^۲ کارشناسی ارشد مهندسی مکانیک، دانشگاه شهید مدنی آذربایجان، تبریز، ایران

^۳ دانشیار، دانشکده مهندسی شیمی و نفت، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران

نام نویسنده مسئول:

کاظم اداوی

چکیده

تجهیزات میکرومیکسینگ به دلیل ایجاد اختلاط در مقیاس مولکولی در واکنش‌هایی که زمان واکنش از زمان مشخصه میکرومیکسینگ کوچکتر است حائز اهمیت هستند. واکنش‌های هم رسوبی جزء واکنش‌های سریع محسوب می‌شوند به همین دلیل اختلاط نقش تعیین‌کننده‌ای در کیفیت محصول خروجی دارد. در این مقاله، هیدرودینامیک و واکنش شیمیایی تولید کلسیم کربنات در رآکتوری با دو جت برخوردی با استفاده از روش عددی المان محدود مورد شبیه‌سازی قرار گرفت. رآکتور پیشنهادی از دو نازل افقی که در محفظه‌ای استوانه‌ای قرار گرفته‌اند ساخته شده است. اثر پارامترهای طراحی مانند قطر نازل‌ها، قطر رآکتورها بر زمان مشخصه میکرومیکسینگ و پروفیل سرعت و پروفیل غلظت مواد مختلف مورد بررسی قرار گرفت. نتایج بدست آمده نشان می‌دهد که کاهش قطر رآکتور و افزایش قطر نازل موجب کاهش زمان مشخصه میکرومیکسینگ می‌شود. انرژی جنبشی نماینده میزان اختلاط می‌باشد که با افزایش قطر نازل‌ها افزایش پیدا می‌کند. **واژگان کلیدی:** رآکتورهای جت برخوردی، میکرومیکسینگ، نرم افزار چند منظوره کامسول، روش المان محدود.

مقدمه

متن مقاله با قلم بی نازنین ۱۱ با فاصله بین خطوط ۱ نوشته شود. توصیه می‌شود برای کلمات و اصطلاحات بیگانه، برابری فارسی آشنا و رایج به کار گرفته شود. در صورت نیاز به استفاده از واژه‌های انگلیسی در متن فارسی از قلم Times New Roman ۱۰ استفاده گردد. نانو ذرات کلسیم کربنات به دلیل داشتن تخلخل بالا، سطح به ازای حجم بالا، سمی نبودن، در دسترس بودن و زیست سازگاری با بدن انسان دارای کاربردهای گسترده‌ای هست [۱۱]. کلسیم کربنات به‌عنوان پوشش‌دهنده و رنگ‌دانه در کاغذسازی، پرکننده در صنعت پلاستیک، لاستیک و چسب، کنترل آلودگی و جذب گازهای مضر خروجی از دودکش صنایع، تصفیه آب، به‌عنوان منبع کلسیم در خوراک دام و طیور، صنعت شیشه‌سازی، سرامیک‌سازی و مواد آرایشی بهداشتی استفاده می‌شود [۱۳].

اختلاط یکی از پارامترهای مؤثر در کیفیت محصول خروجی از رآکتورها می‌باشد. سیستم‌های مختلفی با میزان اختلاط مختلف توسط محققان مورد بررسی قرار گرفته‌اند. اختلاط به‌منظور همگن‌سازی مواد واکنش‌دهنده و افزایش راندمان واکنش حائز اهمیت می‌باشد. این اختلاط وقتی زمان واکنش نسبت به τ_{Mixing} کمتر باشد از اهمیت بیشتری برخوردار می‌شود. مطالعات گسترده‌ی شبیه‌سازی و آزمایشگاهی در زمینه‌ی میکرومیکسر ها انجام شده است. کلودینو و همکاران [1] اهمیت عدد رینولز جت‌ها روی میزان اختلاط در رآکتورهای CIJ مورد بررسی قرار دادند، آن‌ها بررسی‌های خود را در رنج رینولزهای ۵۰-۵۰۰ انجام دادند. مشاهده شد زمانی که فلو ریت دو جریان ورودی به CIJ ها برابر باشند بیشترین بازده وجود خواهد داشت. آن‌ها سه رژیم مختلف جریان برحسب رینولز جت‌ها مشاهده کردند، برای $Re < 103$ دو جریان مایع کاملاً تفکیک می‌باشند و در $Re = 104$ یک نوسان دوره‌ای در جت‌ها مشاهده می‌شود و برای $Re > 104$ یک بی‌نظمی در سیستم با اختلاط گسترده مشاهده می‌گردد. در این رآکتور τ محفظه به‌صورت زیر تعریف می‌گردد.

برای این رآکتور به‌صورت زیر تعریف می‌گردد:

$$\tau_{mixing} = \frac{nD^3}{vd(1+r_s^{-1})} Re^{-1} \quad (1)$$

که در رابطه‌ی بالا r_s به‌صورت زیر تعریف می‌گردد:

$$r_s = \frac{q_{Left}}{q_{right}} \quad (2)$$

که رینولز به‌صورت زیر تعریف می‌گردد:

$$Re = \frac{u_{inj}d}{\nu} \quad (3)$$

که در رابطه‌ی بالا u_{inj} سرعت متوسط جت‌ها، ν ویسکوزیته‌ی سینماتیکی و d قطر نازل‌ها، H ارتفاع سطح نازل‌ها تا قسمت فوقانی محفظه و D قطر محفظه می‌باشد.

که در این روابط می‌توان گفت $nD \approx 2.5D$ می‌باشد. چن و وانگ [2] هیدرودینامیک سیستم‌های گاز- جامد را مورد بررسی قرار دادند، در این سیستم جریان گاز از یک سو و جریان ذرات جامد از اطراف وارد میکسر می‌شود. آن‌ها مشاهده کردند که در طول بستر کسر ذرات جامد روندی کاهشی افزایشی دارد. آن‌ها به منظور شبیه‌سازی سیستم از روش CFD-DEM استفاده کردند. زنگمینگ و همکاران [3] راندمان اختلاط در یک رآکتور CIJ مورد مطالعه قرار دادند. بهترین راندمان در طول‌های محفظه ۶.۵-۱۲.۵ میلی‌متر مشاهده شده است. کمترین زمان اختلاط مشاهده شده در این سیستم $2 \times 10^{-4} s$ می‌باشد که در مقایسه با کمترین زمان اختلاط برای تانک‌های همزن دار ($2 \times 10^{-3} - 2 \times 10^{-2} s$) کمتر می‌باشد. آن‌ها مشاهده کردند که افزایش سرعت جت‌های ورودی موجب کاهش t_m و افزایش فاصله‌ی جت‌ها موجب افزایش t_m می‌گردد. محمد سلطان و همکاران [4] به بررسی اختلاط در میکرومیکسر T شکل با سطح مقطع نازل مستطیلی و محفظه مکعبی پرداختند. شوکسیا و همکاران [5] به مطالعه عددی جت‌های برخوردی با پالس آرام مخالف^۲ پرداختند. سیستم‌های پالسی اثر قابل توجهی در میزان اختلاط سیستم‌های جریان مختلف دارند و موجب بهبود کارایی سیستم اختلاط می‌گردند. و افزایش فرکانس پالسی جریان جت‌ها موجب بهبود در میزان اختلاط در CIJ ها می‌گردد.

جدول ۱: مطالعات آزمایشگاهی انجام شده در زمینه رآکتورهای جت برخوردی

محقق	هندسه	اندازه محفظه اختلاط (mm)	اندازه نواحی ورودی (mm)	محدوده رینولز
لی و همکاران [6]	استوانه ای	۳.۱۸	۱	۵۰-۱۵۰
توکر و سو [7]	استوانه ای	۲۲	۹.۵	۵۰-۲۰۰۰
وود و همکاران [8]	استوانه ای	۲۵.۴	۲.۳۸	۶۰-۳۰۰
آنگر و موزیو [9]	استوانه ای	۸۹۰	۱۳	۱۵۰-۶۰۰
هوفمن و همکاران [10]	منشوری	۰.۴	۰.۱-۰.۲	۱۰۰-۳۷۵

از میکرومیکسر ها به صورت مالتی نیز به منظور افزایش میزان اختلاط و افزایش مقیاس سیستم‌ها می‌توان استفاده کرد. لاوو و همکاران [۶۲] به مطالعه آزمایشگاهی اختلاط مایعات مولتی اریفیس در میکسرهای جت برخوردی عرضی^۳ پرداختند. آن‌ها مشاهده کردند که با افزایش رینولز جت‌ها τ_{Mixing} کاهش پیدا خواهد کرد.

مواد افزودنی در سیستم می‌توانند بر خواص محصول نهایی اعم از پلی مورف، مورفولوژی و اندازه ذرات اثرگذار باشد به عنوان نمونه یون منیزیم و فسفات باعث تضعیف و یون پتاسیم و سدیم و پتاسیم فسفات^۴ موجب تسریع در فرآیند انتقال آراگونیت به کلسیت می‌گردند [8-9-10]. از طرف دیگر یون فسفات موجب کاهش اندازه ذرات می‌گردد [11]Zhu & Qi et al. [12] با افزودن SDS و CTAB

¹. Confined impinging jet

². Pulsed Laminar Opposed impinging Jets

³. impinging transverse jet

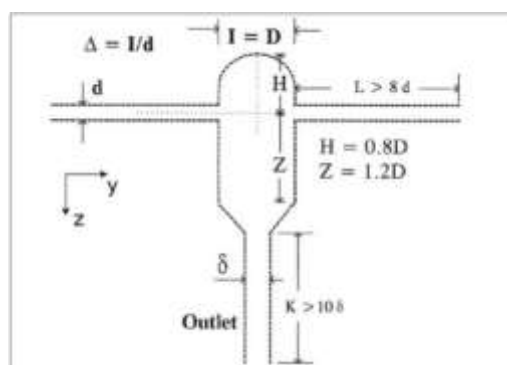
⁴.KH₂PO₄

ذراتی با مورفولوژی‌های dagger-like, bicone-like, shuttle-like تولید کردند. Mateescu et al. [13] نشان دادند افزودن الکل‌ها موجب تشکیل ذراتی با کوچک‌ترین سایز ممکن می‌گردد. Jaho et al. [14] نشان دادند که افزودن n-dodecane موجب کاهش اندازه کریستال‌های کلسیم کربنات می‌گردد.

فرضیات و معادلات حاکم

برای شبیه سازی رآکتور TII پیشنهادی از روش‌های دینامیک سیالات محاسباتی استفاده شده است. روش گسسته سازی این معادلات با استفاده از روش المان محدود، و برای انجام محاسبات از نرم افزار چند منظوره کامسول ورژن 5.2a استفاده شده است. ماژول‌های مورد استفاده در شبیه سازی ماژول‌های Turbulent flow, k-w و Transport diluted species می‌باشند. معادلات حاکم بر شبیه سازی سیستم در دو گروه معادلات مربوط به بقای مومنتوم که منجر به بدست آمدن پروفیل سرعت و معادلات بقای جرم و واکنش در سیستم می‌باشند که منجر به ارائه پروفیل غلظت می‌گردند. پروفیل غلظت به دلیل وجود ترم همرفتی در انتقال جرم درون رآکتور وابستگی به پروفیل سرعت درون رآکتور دارد ولی پروفیل سرعت درون محفظه اختلاط از غلظت اجزا درون رآکتور استقلال دارد. لذا ابتدا معادلات بقای مومنتوم حل می‌گردد و نتایج حاصله به منظور بدست آوردن پروفیل غلظت در معادلات بقای جرم مورد استفاده قرار داده می‌شوند.

سه رآکتور جت برخوردی با ابعاد محفظه ۵،۱۰ و ۱۵ میلی‌متر و سه نازل با اندازه ۵۰۰، ۸۰۰ و ۱۰۰۰ میکرومتر با قابلیت تعویض نازل‌ها طراحی شدند. قابلیت تعویض نازل‌ها امکان رسیدن به ۹ حالت هندسی متفاوت را در سه رآکتور ایجاد می‌کند. طرح شماتیک عمومی این رآکتور در شکل ۱ نشان داده شده است. طراحی رآکتور به نحوی بوده است که گستره ی وسیعی از نسبت قطر را در بر گیرد این مقدار $5 < \Delta < 40$ می‌باشد در این شکل D قطر رآکتور (محفظة اختلاط)، H ارتفاع محفظه و Z فاصله ی محور نازل‌ها تا ابتدای مخروط خروجی پایین را نشان می‌دهد. L و d نیز به ترتیب طول و قطر مجرای ورودی نازل‌ها هستند.



شکل ۱: شماتیک رآکتور با دو جت برخوردی مطالعه شده در این مقاله

$\Delta = D/d$ نسبت قطر رآکتور به قطر نازل بوده و یک ضریب بدون بعد مهم در هندسه رآکتورهای جت برخوردی می باشد. برای رسیدن به جریان پایدار نسبت عمق حفره ی نازل به طول آن یعنی L/d باید بزرگتر از ۸ باشد. جهت لحاظ کردن ملاحظات افزایش مقیاس نسبت ارتفاع به قطر محفظه و همچنین طول به قطر آن باید بصورت زیر باشد.

$$\frac{H}{D} = 0.8 \quad (۴)$$

$$H + Z = 2D$$

برای اطمینان از این که جریان های مخلوط شده قبل از خروج از محفظه واکنش، بصورت کامل با هم واکنش داده باشند. طول مجرای

$$\frac{K}{\delta} = 10$$

خروجی باید حداقل ۱۰ برابر قطر آن باشد یعنی:

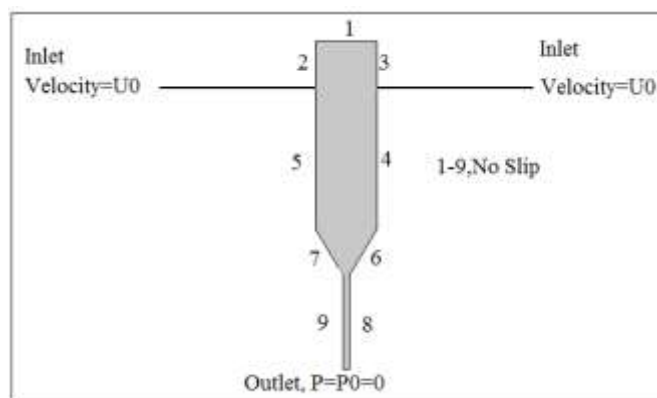
معادلات مومنتوم و پیوستگی به منظور محاسبه شدن پروفیل سرعت بصورت معادلات ۸ تا ۱۲ آمده است.

$$\rho(u \cdot \nabla)u = \nabla \cdot \left[-pI + (\mu + \mu_T)(\nabla u + (\nabla u)^T) \right] + F \quad (۵)$$

$$\rho \nabla \cdot (u) = 0 \quad (۶)$$

$$\mu_T = \rho C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon} \quad (۷)$$

معادلات بالا برای بالک سیال صادق می باشند، برای مرزهای سیستم باید از شرایط مرزی حاکم استفاده شود. بدین منظور برای دیواره های محفظه رآکتور IIJ از شرط مرزی عدم لغزش، برای ورودی رآکتور از شرط مرزی سرعت ورودی و برای خروجی رآکتور از شرط مرزی فشار محیط استفاده می شود.



شکل ۲: هندسه رآکتور جت برخوردی مورد مطالعه همراه با شرایط مرزی

معادلات حاکم بر شرایط مرزی بصورت زیر می باشند:

$$u = u_{Inlet} \quad (۸) \text{ ورودی}$$

$$P = P_0 \quad (۹) \text{ خروجی}$$

$$u.n = 0 \quad (۱۰) \text{ دیواره ها}$$

معادلات بقای جرم به منظور بدست آوردن پروفیل غلظت بصورت زیر می باشند.

$$\nabla \cdot j_i + \rho(u \cdot \nabla) w_i = R_i \quad (۱۱)$$

$$N_i = j_i + \rho u w_i$$

معادلات حاکم بر شرایط مرزی بصورت زیر می باشد.

$$C_i = 1 \text{ mol} / \text{m}^3 \quad (۱۲) \text{ ورودی}$$

$$-n \cdot \rho D_i^m \nabla w_i = 0 \quad (۱۳) \text{ خروجی}$$

$$-n \cdot N_i \quad (۱۴) \text{ دیواره}$$

عمل استقلال از مش انجام شده و این نتیجه بدست آمد که تعداد مش 24,840 بهترین حالت مشبندی می باشد.

نتایج

توصیه جدی می شود که نویسندگان محترم، نکات و آیین نگارش فارسی را رعایت و در نوشتار علمی لحاظ کنند.

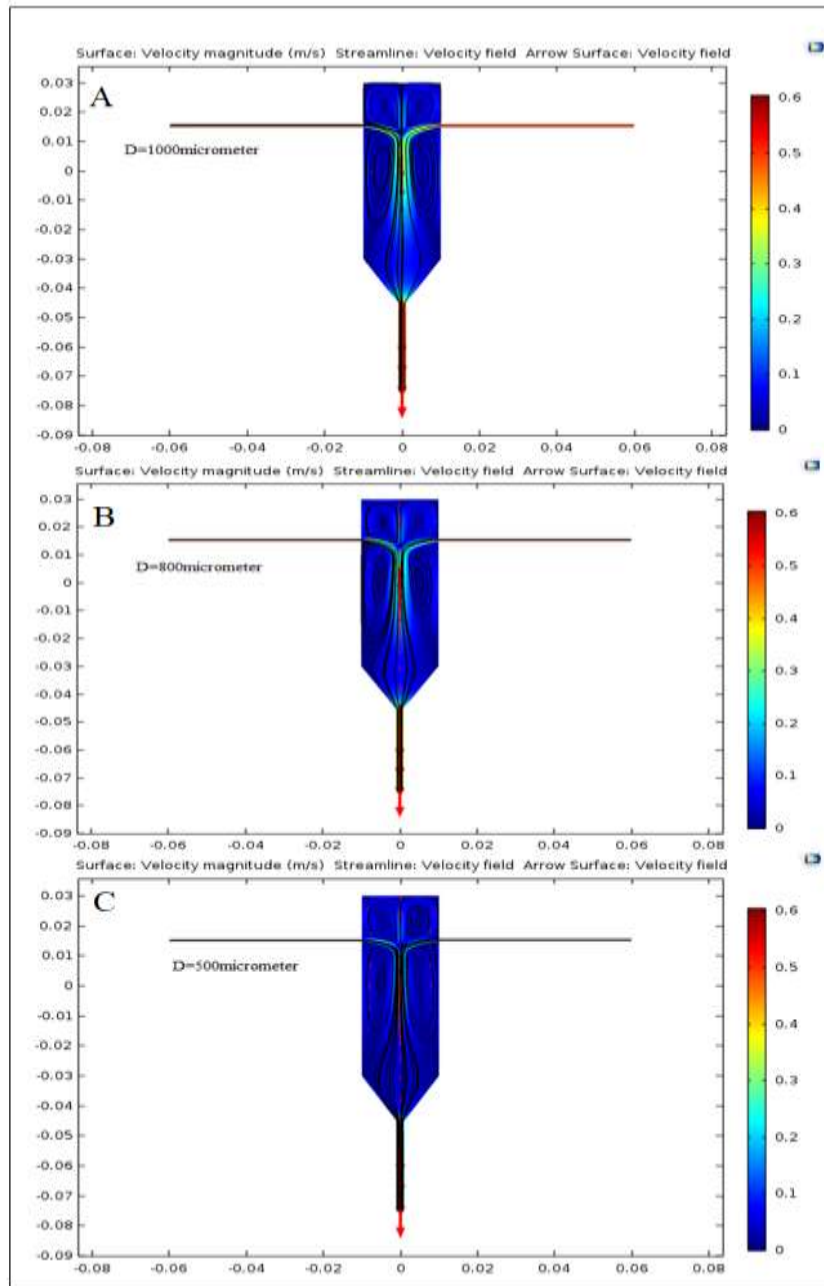
به منظور شبیه سازی رآکتورهایی با دو جت برخوردی سه رآکتور با قطر های ۲۰،۱۰ و ۵ میلیمتر و سه نازل با قطرهای ۸۰۰، ۱۰۰۰ و ۵۰۰ میکرومتر ساخته شده است. ترکیب رآکتورها و نازل های مختلف امکان رسیدن به ۹ حالت هندسی مختلف را ایجاد می کند. در تمامی مراحل قطر دو نازل و سرعت جریان خوراک برابر در نظر گرفته شده است تا صفحه ی برخورد در وسط تشکیل گردد. محدوده رینولز مورد بررسی در این نوع رآکتور ۳۰۰ تا ۶۰۰ بوده و زمان مشخصه اختلاط در این رآکتورها بصورت زیر می باشد.

جدول ۲: حالت های مختلف ایجاد شده توسط سه رآکتور با سه نازل با قابل تعویض

شماره	قطر رآکتور (D)(mm)	H(mm)	قطر نازل (میکرومتر)	رینولز جت	زمان مشخصه میکرومیکسینگ (s)
۱	۵	۴	۱۰۰۰	۶۰۰	۰/۰۸۳۳
۲	۵	۴	۸۰۰	۴۸۰	۰/۱۳۰۲
۳	۵	۴	۵۰۰	۳۰۰	۰/۳۳۳۳
۴	۱۰	۸	۱۰۰۰	۶۰۰	۰/۶۶۶۷
۵	۱۰	۸	۸۰۰	۴۸۰	۱/۰۴۱۷
۶	۱۰	۸	۵۰۰	۳۰۰	۲/۶۶۶۷
۷	۲۰	۱۶	۱۰۰۰	۶۰۰	۵/۳۳۳۳
۸	۲۰	۱۶	۸۰۰	۴۸۰	۸/۳۳۳۳
۹	۲۰	۱۶	۵۰۰	۳۰۰	۲۱/۳۳۳۳

بدست آوردن پروفیل سرعت درون رآکتور از حل معادلات بقای مومنتوم با استفاده از نرم افزار چند منظوره کامسول انجام می گیرد. سرعت ورودی جریان ثابت و برابر ۰.۶ متر بر ثانیه در نظر گرفته شده است. همانطور که در شکل زیر نشان داده شده است با کاهش قطر نازل ها مقدار سرعت جریان درون محفظه اختلاط کاهش داشته است. در بحث تولید نانو مواد از این روش با کاهش قطر زمان مشخصه میکرومیکسینگ افزایش می یابد.

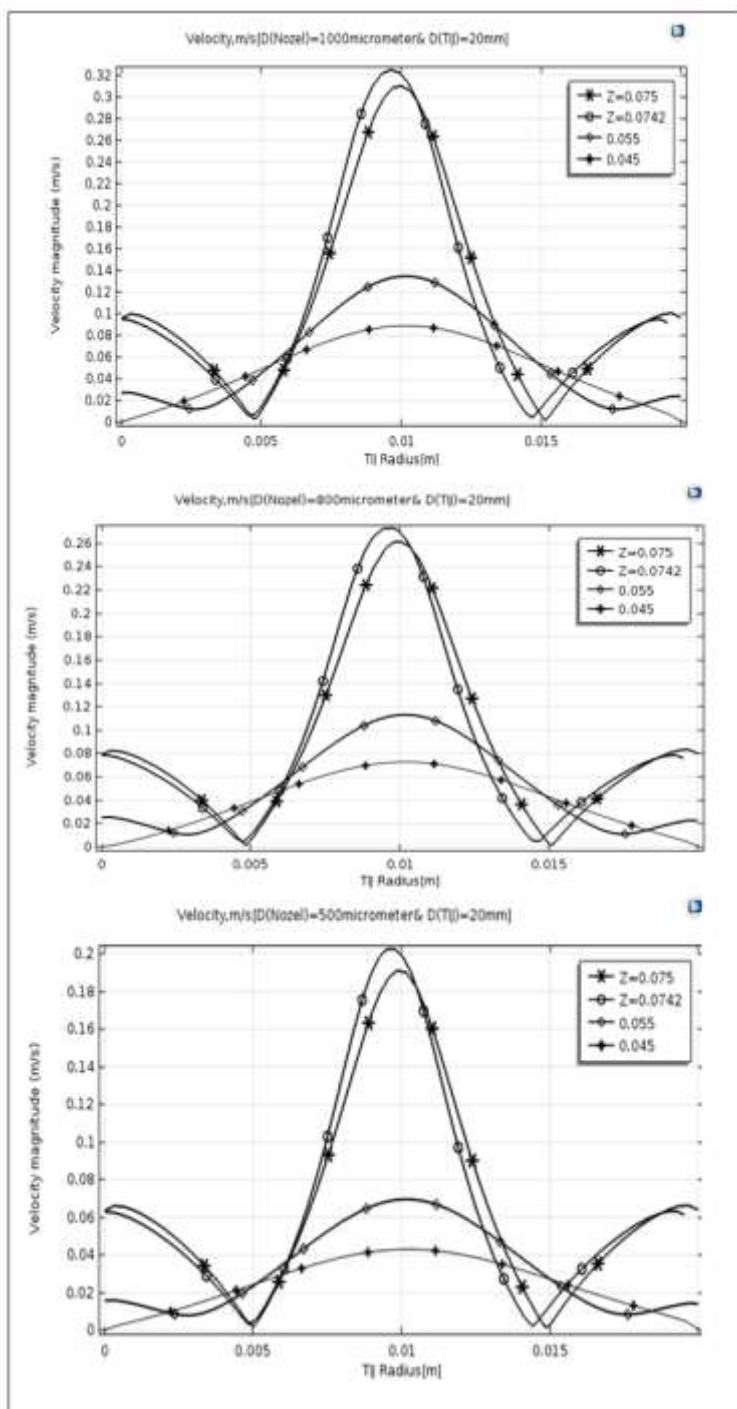
از آنجایی که واکنش های هم رسوبی جزء واکنش های سریع محسوب می شوند. در ابتدای فرآیند کلسیم کربنات آمورف^۵ تولید می شود این ماده ژله مانند با رنگ شیری کم رنگ طی فرآیند Recrystallization به ذرات کریستالی تبدیل می شوند. این فرآیند تبدیل در بازه ی زمانی ۲-۱ ثانیه انجام می گیرد؛ و در ادامه انتقال بین فازی انجام می شود. نحوه ی اندازه گیری دماها و کنترل آن ها در فصل ۴ بصورت مختصر ذکر شده است.



شکل ۳: خطوط جریان و پروفیل سرعت جریان درون محفظه اختلاط با قطر ۲۰ میلیمتر برای سه نازل الف: ۱۰۰۰ ب: ۸۰۰ ج: ۵۰۰

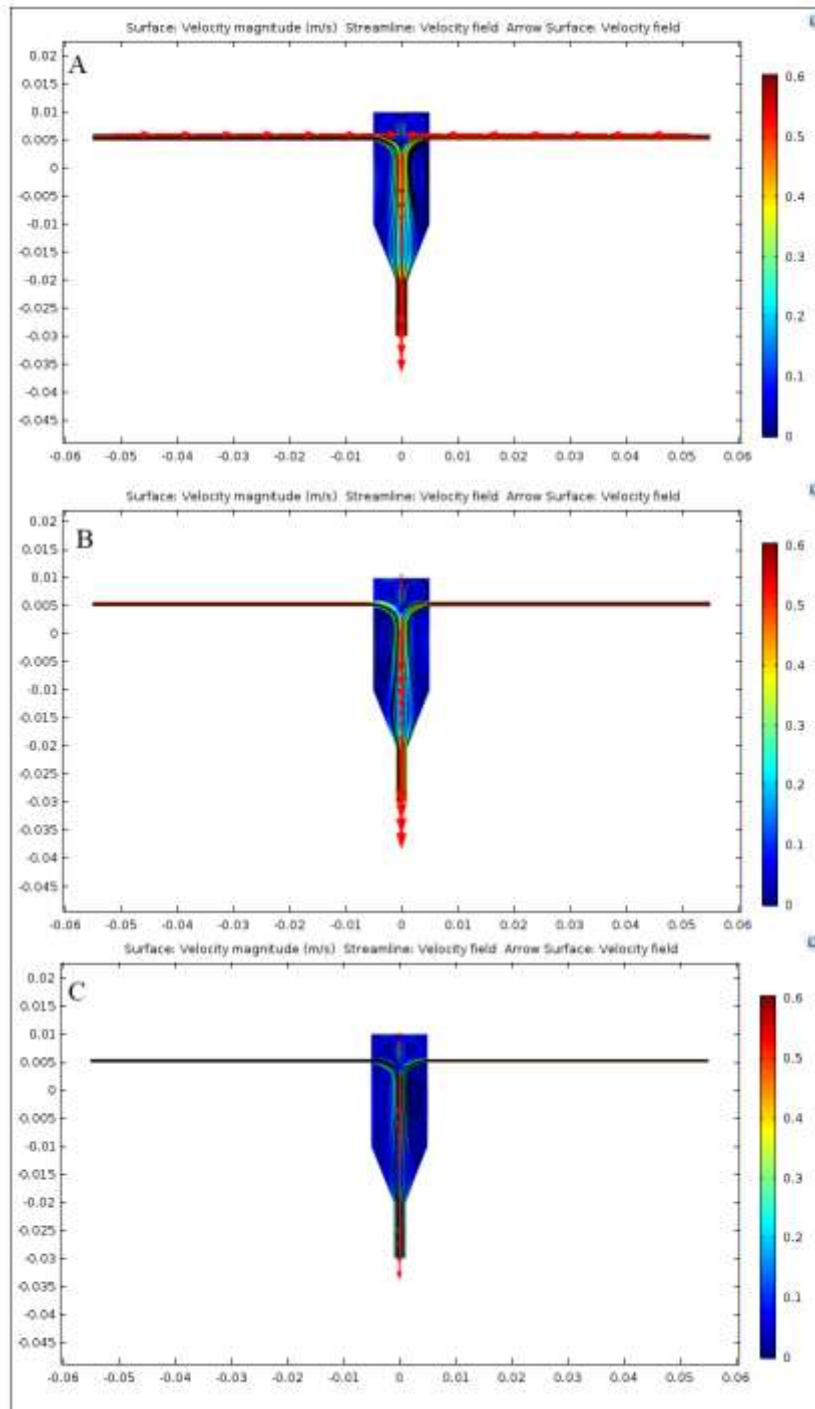
میکرومتر

در شکل زیر پروفیل سرعت درون رآکتور در مقاطع مختلف رآکتور نشان داده شده است.



شکل ۴: پروفایل سرعت جریان درون محفظه اختلاط با قطر ۲۰ میلیمتر برای سه نازل الف: ۱۰۰۰ ب: ۸۰۰ ج: ۵۰۰ میکرومتر

در شکل زیر پروفیل سرعت درون رآکتور با قطر ۱۰ میلیمتر نشان داده شده است.



شکل ۵: پروفایل سرعت جریان درون محفظه اختلاط با قطر ۱۰ میلیمتر برای سه نازل الف: ۱۰۰۰:ب: ۸۰۰:ج: ۵۰۰ میکرومتر

نتیجه گیری

راکتورهای جت برخوردی به دلیل ایجاد میکرومیکسینگ مناسب در واکنش هایی که زمان واکنش آن ها کم است بسیار حائز اهمیت می باشند. افزایش قطر راکتور موجب افزایش زمان مشخصه میکرومیکسینگ و افزایش قطر نازل ها موجب کاهش زمان مشخصه میکرومیکسینگ می شود. از طرف دیگر در راکتور با قطر ۵ میلیمتر مواد اولیه بصورت کامل در حالت قطر نازل ۱۰۰۰ میکرومتر با یکدیگر واکنش نداده و قسمتی درصد تبدیل ماده کاهش پیدا میکند. بهترین راندمان مربوط به راکتور با قطر ۱۰ میلیمتر و قطر نازل ۱۰۰۰ میکرومتر می باشد. با افزایش قطر نازل در قطر ثابت میزان انرژی جنبشی در ناحیه برخورد دو جت افزایش پیدا خواهد کرد. با افزایش مقدار پارامتر H طول گردابه های ایجاد شده در قسمت فوقانی راکتور افزایش پیدا می کند و بهترین مقدار برای این پارامتر ۰.۸ برابر قطر راکتور است.

منابع و مراجع

1. C. P. Fonte, M. A. Sultan, R. J. Santos, M. M. Dias, and J. C. B. Lopes, "Flow imbalance and Reynolds number impact on mixing in Confined Impinging Jets," *Chem. Eng. J.*, vol. 260, pp. 316–330, 2015.
2. W. F. Li, W. W. Qian, G. S. Yu, H. F. Liu, and F. C. Wang, "Experimental study of oscillation behaviors in confined impinging jets reactor under excitation," *AIChE J.*, vol. 61, no. 1, pp. 333–341, 2015.
3. Z. Gao, J. Han, Y. Bao, and Z. Li, "Micromixing efficiency in a T-shaped confined impinging jet reactor," *Chinese J. Chem. Eng.*, vol. 23, no. 2, pp. 350–355, 2015.
4. M. A. Sultan et al., "High-Throughput T-Jets Mixers: An Innovative Scale-Up Concept," *Chem. Eng. Technol.*, vol. 36, no. 2, pp. 323–331, 2013.
5. S. Qiu, P. Xu, Z. Jiang, and A. S. Mujumdar, "Numerical modeling of pulsed laminar opposed impinging jets," *Eng. Appl. Comput. Fluid Mech.*, vol. 6, no. 2, pp. 195–202, 2012.
6. L. J. Lee, J. M. Ottino, W. E. Ranz, and C. W. Macosko, "Impingement mixing in reaction injection molding," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 20, no. 13, pp. 868–874, 1980.
7. C. L. Tucker and N. P. Suh, "Mixing of Liquids," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 20, no. 13, pp. 875–886, 1980.
8. P. Wood, a Hrymak, R. Yeo, D. Johnson, and a Tyagi, "Experimental and Computational Studies of the Fluid-Mechanics in an Opposed Jet Mixing Head," *Phys. Fluids a-Fluid Dyn.*, vol. 3, no. 1991, pp. 1362–1368, 1991.
9. D. R. Unger and F. J. Muzzio, "Laser-induced fluorescence technique for the quantification of mixing in impinging jets," *AIChE J.*, vol. 45, no. 12, pp. 2477–2486, 1999.
10. M. Hoffmann, M. Schlüter, and N. Rübiger, "Experimental investigation of liquid-liquid mixing in T-shaped micro-mixers using μ -LIF and μ -PIV," *Chem. Eng. Sci.*, vol. 61, no. 9, pp. 2968–2976, 2006.