

# Analogieën in meerfasehydrodynamica

Ter gelegenheid van de uitreiking van de Conrad's premie hield dr. R. Krishna een voordracht over recent werk. In deze voordracht 'Analogies in multiphase hydrodynamics' - wees de prijswinnaar op de overeenkomsten in hydrodynamisch gedrag in verschillende meerfasecontactapparaten, zoals wervelbedreactoren en bellenkolommen. Gegevens die verkregen zijn bij commerciële wervelbedreactoren, zouden voor bijvoorbeeld schaalvergroting van andere meerfase-contactapparaten gebruikt kunnen worden. Dit artikel is een bewerking van zijn voordracht.

## Dr. R. Krishna\*

Er bestaat op het ogenblik veel belangstelling voor het gebied van de meerfase-reactoren in verband met de vele nieuwe praktische toepassingen, in het bijzonder op het terrein van de steenkoolomzetting. Voorbeelden van toepassing van meerfase-reactoren zijn de wervelbedverbranding van steenkolen en het vloeibaar maken van steenkool in de slurry-fase. Wanneer men zich bewust is van de analogieën tussen verschillende typen meerfase-contactapparaten, zal men de complexe verschijnselen die hierbij een rol spelen beter begrijpen en het ontwerpen en schaalvergroten van deze reactoren beter kunnen uitvoeren.

### Wervelbed-reactoren

Wervelbed-reactoren, (gas/vaste stof) worden op grote schaal gebruikt in de olie- en petrochemische industrie. Het meest voor de handliggende voorbeeld van een proces dat in zulke reactoren wordt uitgevoerd is de regeneratie van kraakkatalysator waarop zich koolstof heeft afgezet. Industriële wervelbedreactoren kunnen een zeer grote omvang hebben (de diameter kan tot 10 m bedragen en de hoogte tot 20 m). De katalysator (of reagerende vaste stof) is gewoonlijk zeer fijn verdeeld (diameter in de orde van grootte van  $60\mu\text{m}$ ). In dit artikel zal ik het dan ook voornamelijk hebben over het fluidiseren van fijne poeders, ofschoon grove poeders

\* De auteur is werkzaam bij het Koninklijke/Shell-Laboratorium, afd. Equipment Engineering Amsterdam (Shell Research BV)

ook in mijn analyse betrokken zouden kunnen worden, zij het met enige wijzigingen. Voor het beschrijven van het hydrodynamisch gedrag van meerfase-contactapparaten wordt de reactor beschreven als bestaande uit twee fasen (afbeelding 1):

- een verdunde fase, die uit snel stijgende bellen bestaat, en
- een dichte (min of meer homogene) fase, bestaande uit de katalysator, die door de gasstroom  $U_{gr}$  in suspensie gehouden wordt.

Door de aanwezigheid van gasbellen wordt de inhoud van het reactorvat 'rondgekarnd', waardoor een in werking zijnd wervelbed een turbulent beeld te zien geeft. Dit verschijnsel heeft zowel positieve als negatieve kanten. Een positief aspect is dat de geproduceerde bellen voor een goede menging van de vaste stoffen zorgen, wat bij exotherme reacties een gunstige omstandigheid is. Daar staat tegenover dat, aangezien de vaste fase in hoge mate teruggemengd wordt, een hoge omzettingsgraad voor de vaste fase slechts bereikbaar is door middel van lange verblijftijden in de reactor, d.w.z. een groot reactorvolume. Bovendien stijgen de in het bed gevormde bellen met grote snelheid, waardoor de contacttijd kort is. Wanneer een hoge omzettingsgraad van de gasfase gewenst wordt, zullen in verband met dit effect hoge reactoren nodig zijn.

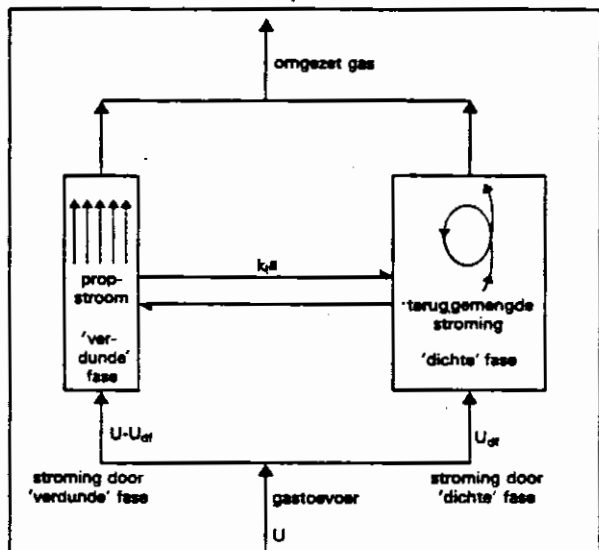
Voor het ontwerpen van een wervelbed-reactor moeten de volgende gegevens bekend zijn:

- de relatieve fracties van de twee fasen (deze fracties worden meestal aangeduid als 'hold-up')
- de efficiëntie van de stof-

overdracht tussen de twee fasen (verdund en dicht), en

- de terugmengingskarakteristieken van de twee fasen. Eerst zullen wij de bellen-'hold-up'  $\epsilon_b$  beschouwen. De bellen-'hold-up' hangt af van de stijgsnelheid van de bellen, die weer afhankelijk is van de diameter van de bellen. Hoe groter de bellen, des te hoger de stijgsnelheid. De grootte van de bellen wordt o.a. bepaald door de deeltjesgrootte en de verdeling van de deeltjesgrootte.

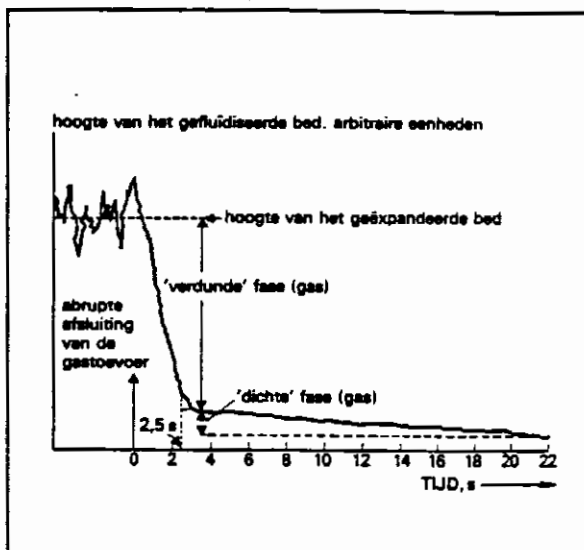
Een verdere complicatie is dat de stijgsnelheid van de bellen schijnt af te hangen van de diameter van het vat: hoe groter de diameter, des te hoger de stijgsnelheid [1]. Dit houdt in, dat de bellen-'hold-up' in een commerciële productie-eenheid kleiner zal zijn dan in een proeflab die onder dezelfde omstandigheden draait. Het lijkt niet mogelijk om, op basis van de nu ter beschikking staande theorieën, de gas-'hold-up' voor een nieuwe proces-toepassing te voorspellen. Het blijkt, dat alleen experimentele metingen betrouwbare informatie verschaffen over het gedrag van een 'nieuwe' poeder. Het zou natuurlijk ideaal zijn, metingen uit te voeren onder de werkelijke reactieomstandigheden. Helaas zijn representatieve experimenten op grote schaal zo kostbaar dat dit niet in overweging kan worden genomen. De diameter van een proefkolom moet ten minste 0,5 m bedragen om tot betrouwbare resultaten te kunnen komen [1]. Er wordt daarom de voorkeur gegeven aan een benadering waarbij gegevens voor schaalvergroting worden verkregen uit een koud stromingsmodel met een niet-reagerend systeem.



Afbeelding 1: twee-fasenmodel van een wervelbed-reactor

Dit model zou kunnen worden gebruikt om informatie te verkrijgen over het hydrodynamisch gedrag, de stofoverdracht en de menging. Wanneer deze gegevens worden gecombineerd met de reactiekinetiek, is voldoende informatie beschikbaar voor schaalvergroting. Het is duidelijk, dat veel factoren in koude stromingsmodellen onderzocht moeten worden; in het bijzonder de invloed van de deeltjesgrootteverdeling en de eigenschappen van het gas moeten nauwkeurig bestudeerd. Keren we nu weer terug tot de bepaling van die zeer belangrijke parameter de bellen-'hold-up'. Een zeer eenvoudige manier om gegevens te verkrijgen over de bellen-'hold-up' is door middel van de dynamische gasontwikingsmethode, waarvan afbeelding 2 een kenmerkend beeld geeft. Het eerste gedeelte van de kromme (het snel ontwijken) kan worden toegeschreven

aan de fase van de snel stijgende bellen, het tweede gedeelte geeft het ontwijken van het gas uit de dichte fase. Het is interessant om te zien, dat na 2,5 s de bellen volledig uit de 2,8 m hoge kolom verdwenen zijn, wat duidt op een gemiddelde stijgsnelheid van de bellen in de orde van 1 m/s. Door dergelijke metingen uit te voeren is het mogelijk de totale gas-'hold-up' in het systeem te bepalen, namelijk als de som van de gas-'hold-up' in de verdunde en de dichte fase. Afbeelding 3 laat een typische 'hold-up'-verdeling zien; bij  $U > 0,1$  m/s (een bij industriële toepassing kenmerkende omstandigheid) blijft de gas-'hold-up' in de dichte fase praktisch constant, onafhankelijk van de gassnelheid. De stroomsnelheid van het gas door de dichte fase,  $U_{gr}$ , bedraagt ongeveer 3 mm/s voor kraakkatalysator. Wanneer we deze waarde vergelijken met de stijgsnelheid van de bellen,



Afbeelding 2: dynamische ontwijking van gas uit een wervelbed. Een typisch resultaat verkregen in een bed met een geëxpandeerde hoogte van 2,8 m bij een superfciele gassnelheid van 0,3 m/s. Het systeem was stikstofgebruikte kraakkatalysator

$V_b$ , die 1 m/s bedraagt, dan moet het duidelijk zijn waarom de aanwezigheid van snel stijgende bellen leidt tot 'kortsluitstroming' van de gasfase.

Door een serie metingen uit te voeren van de bellen-'hold-up' in de verdunde fase als functie van de gassnelheid  $U$  en de bedhoogte  $H$  is het mogelijk om gegevens af te leiden over de verdeling van de bellengroote als functie van de bedhoogte (zie [1] voor verdere gegevens). Als we eenmaal beschikken over een schatting van de bellengroote als functie van de bedhoogte, dan kunnen theoretische modellen van de stofoverdracht via bellen (bijv. het model van Davidson) gebruikt worden om de coëfficiënt van de uitwisseling (of stofoverdracht),  $k_1 a$ , tussen de verdunde en de dichte fase te voorspellen of te berekenen. Een dergelijke benadering is met succes toegepast voor het correleren van exper-

imentele gegevens verkregen met reactoren van zeer uiteenlopende schaal, met inbegrip van commerciële reactoren [1]. De sleutel tot een verantwoorde schaalvergroting van een wervelbed ligt daarom naar alle waarschijnlijkheid in een juiste karakterisering van het hydrodynamisch gedrag van de bellen. Na deze beschouwing van de grondbeginselen van het hydrodynamisch gedrag van een wervelbed zullen we onze aandacht richten op bellenkolommen en de analogieën tussen deze twee typen contactapparaat.

### Bellenkolommen

We beschouwen een kolom die met vloeistof gevuld is (met of zonder gesuspendeerde vaste stof). Een gas wordt in deze kolom geïntroduceerd en vervolgens in de vloeistof gedispergeerd. Deze manier om verschillende fasen met elkaar in contact te brengen

wordt in de industriële praktijk toegepast voor reacties in de vloeistoffase (soms gekatalyseerd door vaste stoffen). Processen voor het vloeibaar maken van steenkool worden gewoonlijk in begaste torens uitgevoerd. Bellenkolommen zijn eenvoudig van constructie en bieden de mogelijkheid om warmtewis-

dig te maken, definiëren wij ook een minimum-snelheid voor fluidisering voor een bellenkolom, maar stellen deze op nul, d.w.z.  $U_{mf} = 0$  voor de bellenkolom.

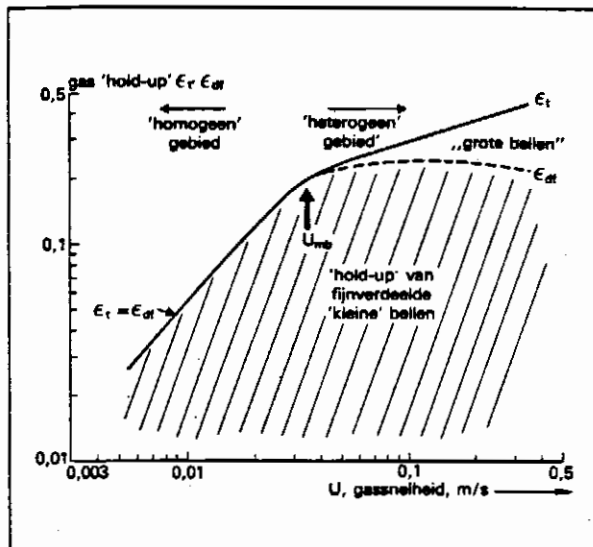
• **Minimum-snelheid voor bellenvorming** In een reactor met een wervelbed is de minimum-snelheid voor bellen-

air verband bestaat (zie afbeelding 4).

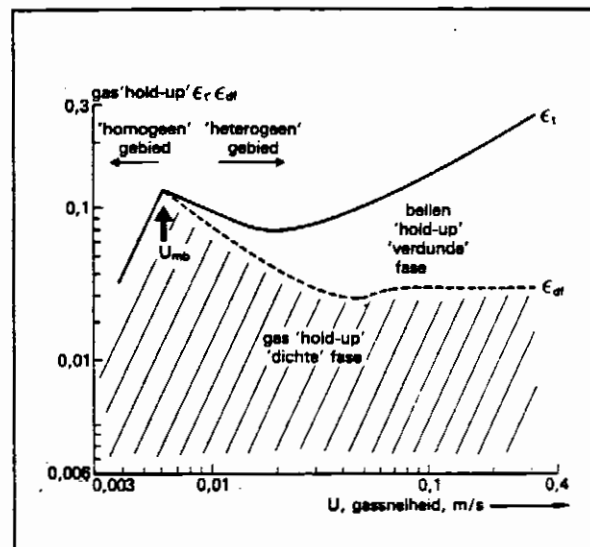
Het gebied van homogene expansie voor een reactor met een wervelbed is dus equivalent aan het gebied waarin uniforme bellenstroming plaatsvindt in een bellenkolom.

• **Homogene en heterogene stroming**

schappen van het systeem (in het bijzonder de viscositeit en de oppervlaktenspanning). Deze grote bellen in een bellenkolom vertonen een gedrag dat analoog is aan dat van bellen in een wervelbed. Dit kan worden gedemonstreerd door in een bellenkolom met heterogene stroming een experiment van het dyna-



Afbeelding 3: gas-'hold-up' in een wervelbed met het systeem stikstof/gebruikte kraakkatalysator



Afbeelding 4: de verdeling van de gas-'hold-up' in een bellenkolom met het systeem stikstof/terpentine. Zie de overeenkomst met afbeelding 2

laars in de reactor in te bouwen, teneinde de reactiewarmte af te voeren. Wanneer men een bellenkolom in bedrijf ziet, is het duidelijk, dat het gedrag van de kolom overeenkomt met dat van een wervelbedkolom (gas/vaste stof). Maar is de overeenkomst alleen van kwalitatieve aard? Het ziet er naar uit, dat er vele kwantitatieve overeenkomsten zijn tussen deze twee reactortypen, die in de gigantische hoeveelheid literatuur over dit onderwerp onvoldoende aandacht lijken te krijgen.

• **Minimum-snelheid voor fluidisering.** In een wervelbed wordt de minimum-snelheid voor fluidisering gedefinieerd als de snelheid waarbij een gepakt poederbed begint te expanderen. Wanneer gas wordt geïntroduceerd in een met vloeistof gevulde kolom, treedt expansie op zodra de gassnelheid hoger is dan nul. Ten einde de analogie volle-

vorming,  $U_{mb}$ , de snelheid waarbij de eerste bel geproduceerd wordt. Wanneer we te maken hebben met fijne poeders, zoals kraakkatalysatoren, expandeert het bed homogeen tussen  $U_{mf}$  en  $U_{mb}$ . Om een concreet voorbeeld te geven: voor gebruikte kraakkatalysatoren is de minimum-snelheid voor fluidisering ( $U_{mf}$ ) 1,5 mm/s en de minimum-snelheid voor bellenvorming ( $U_{mb}$ ) 6 mm/s. Er bestaat een equivalentie tussen een bellenkolom en een wervelbedkolom wat betreft het homogene expansiegebied. In een bellenkolom vindt de gasdispersie bij een gassnelheid onder ongeveer 30 mm/s ( $=U_{mb}$ ) plaats in de vorm van bellen met min of meer uniforme afmetingen; deze bellen hebben in het algemeen een diameter van 2,5 tot 4 mm. Wanneer wij de gas-hold-up in dit gebied van uniforme bellenstroming uitzetten tegen de gassnelheid, dan blijkt opnieuw dat er een line-

Wanneer de gassnelheid in een wervelbed van fijne deeltjes tot een waarde boven  $U_{mb}$  verhoogd wordt, vormen zich bellen in het systeem. Deze bellen stijgen met grote snelheid. Als in een gas/vloeistof-systeem de gassnelheid wordt verhoogd tot een waarde boven  $U_{mb}$ , dan verandert de stroming van fijn-gedispergeerde uniforme bellen in een zogenaamde kern-turbulente stroming. Dit kern-effect wordt veroorzaakt door grotere bellen die door coalescentie ontstaan zijn. Het heterogene stromingsbeeld in een wervelbed-reactor is analoog aan de kern-turbulente stromingsgedrag in een bellenkolom is bijzonder interessant [2]. We hebben hier te maken met zeer fijn-gedispergeerde, kleine bellen, die bestaan naast grote, gecoalesceerde bellen die een diameter kunnen hebben van 80 à 100 mm, afhankelijk van de eigen-

mische gas-ontwijkingsstype uit te voeren; een typisch voorbeeld is te zien in afbeelding 5. Wanneer we afbeelding 2 met afbeelding 5 vergelijken, worden de overeenkomsten tussen de twee typen contactapparaat duidelijk. Het is interessant om te zien dat de grote gecoalesceerde bellen ontwijken uit de 4 m hoge kolom in 2,25 s, wat duidt op een stijgsnelheid van ongeveer 1,5 m/s voor deze bellen. Door de gas-ontwikkelingsmetingen over een groot bereik van gassnelheden uit te voeren, kunnen de hold-up-verdelingen worden bepaald, zoals in afbeelding 4 te zien is. Deze figuur bevat o.a. de volgende informatie:

- Bij snelheden boven  $U_{mb}$  bestaat de totale gas-hold-up uit twee samenstellende delen: grote bellen ( $\epsilon_b = \epsilon_t - \epsilon_{df}$ ) en fijn-gedispergeerde, kleine bellen ( $\epsilon_{df}$ )

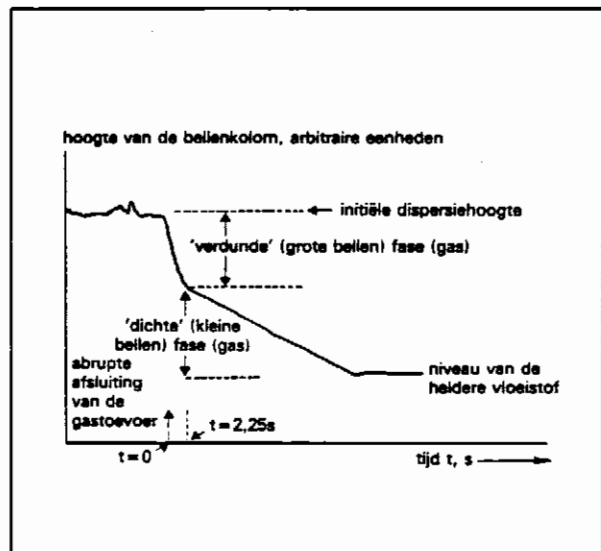
- De 'hold-up' van gas in de vorm van kleine bellen ( $\epsilon_{df}$ ) is

boven  $U = 0,1$  m/s praktisch constant; dit betekent dat, in het heterogeen gebied, bij een verhoging van de gassnelheid boven  $U_{mb}$  de gasstroom door de dichte fase praktisch constant blijft (we zullen deze snelheid  $U_{af}$  noemen), terwijl de rest van het gas door de kolom stroomt in de vorm van grote bellen. Er is een opval-

staat voor de bijdrage van de dwarsstroming. In fysische zin zou dit betekenen dat er uitwisseling van gas plaatsvindt tussen de kleine bellen en de grote bellen, en wel door het vrijkomen van kleine bellen uit het zog aan de achterzijde van de bel en het coalesceren van deze kleine belletjes, aan de voorzijde van

schouwen. In de zeer uitgebreide literatuur over dit onderwerp wordt al sinds vele jaren het axiale-dispersiemodel gebruikt om het terugmenggedrag van zowel belenkolommen als wervelbedkolommen te beschrijven. Ik ben niet erg gelukkig met vele van de gepubliceerde verhandelingen over terugmenging

bewust is, vooral wanneer men in het heterogeen gebied werkt. In dit gebied kan het twee-fasenmodel, dat voor gefluïdiseerde bedden ontwikkeld is, worden toegepast, mits de twee 'fasen' goed worden gedefinieerd, overeenkomstig het bijstaande schema. Analoge modellen kunnen



Abbeelding 5: dynamische ontwikkeling van gas in een belenkolom met het systeem stikstof/terpentine; de dispersiehoogte is 4 m en de superficiële gassnelheid 0,31 m/s

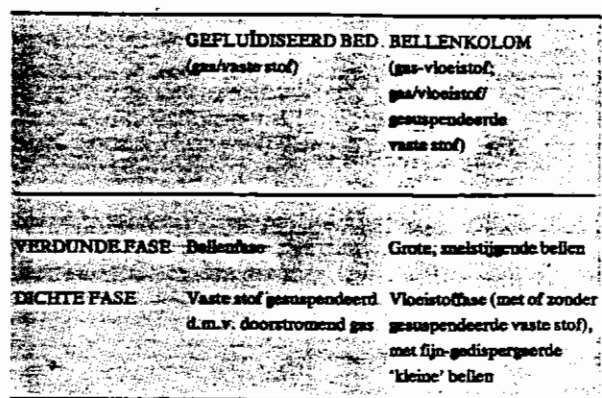
lende overeenkomst met de 'hold-up'-verdeling in een wervelbed (zie afbeelding 3) en de analogie tussen deze contactapparaten is duidelijk, vooral in het heterogeen gebied.

Op basis van het voorgaande bewijsmateriaal kan men stellen, dat het in afbeelding 1 weergegeven twee-fasenmodel gebruikt kan worden voor belenkolommen die werken bij  $U > U_{mb}$ , mits de 'verdunde' fase wordt geïdentificeerd met de gasfase met de snel stijgende grote bellen en de dichte fase met de vloeistoffase, waarin kleine bellen zijn gedispergeerd.

• **Stofoverdracht tussen de fasen.** In een wervelbed vindt de stofoverdracht tussen de verdunde en de dichte fase plaats door bijdragen van dwarsstroming en diffusie. Het is interessant te speculeren over de vraag of in een belenkolom een analoge be-

een snel stijgende bel. Dit onderwerp heeft niet de aandacht gekregen die het verdient. Verder onderzoek van dit aspect zou de moeite waard kunnen zijn.

• **Terugmenging van de verdunde en dichte fasen.** De verdunde fasen in beide typen kolommen stijgen in propstroming door de kolom. Het is misschien interessant om op te merken dat er in de literatuur over belenkolommen veel correlaties voor de gasfase-dispersiecoëfficiënt te vinden zijn. Deze dispersiecoëfficiënt heeft geen betekenis als we te maken hebben met karn-turbulente stroming, omdat een deel van het gas (grote bellen) in propstroming door de kolom gaat, terwijl de rest (kleine bellen) van de gasfase de dispersie karakteristiek van de omringende vloeistof heeft (d.w.z. volledig teruggemengd wordt). We zullen nu het terugmenggedrag in de dichte fase be-



in de vloeistoffase in belenkolommen, omdat zeer weinig aandacht wordt besteed aan het bestaan van de twee stromingsgebieden (onder  $U_{mb}$  en boven  $U_{mb}$ ). Het lijkt mij dat de in deze twee gebieden optredende vloeistof-terugmengingsmechanismen verschillend moeten zijn en dus niet correleerbaar zijn met behulp van hetzelfde type model. In kolommen met een grote diameter die in het karn-turbulente gebied werken, kan worden waargenomen dat de vloeistof van boven naar beneden circuleert, wat niet eenvoudig in een axiale-dispersiemodel is in te bouwen.

## Slotwoord

Het blijkt dat er enkele opvallende punten van overeenkomst bestaan tussen verschillende meer-fasecontactapparaten wat betreft hydrodynamisch gedrag. Het is van belang dat men zich hiervan

worden gebruikt om de 'hold-up' van de 'fasen', de stofoverdracht tussen de 'fasen' en de terugmenging te beschrijven. Dank zij deze analogie kunnen gegevens van commerciële wervelbedprocessen toegepast worden op andere meer-fase-contactprocessen, zoals slurry-reactoren. ■

## Literatuur

- [1] Krishna R.; 'Design and Scale-Up of Gas Fluidized Bed Reactors', Chapter in 'Multiphase Chemical Reactors', A. Rodrigues (editor), Sijthoff and Noordhoff, ter perse (1981)
- [2] Vermeer D. J.; and Krishna R.; 'Hydrodynamics and Mass Transfer in Bubble Columns Operating in the Churn-Turbulent Regime', Ind. Eng. Chem. Process Des. & Dev., ter perse (1981)