

①
311-316

湍动流化床内相间传质系数的测定

TQ 051.13

陈立宇 张秀成* 陈国亮 王善学 田忠社

(西北大学化工系, 710069, 西安; 第一作者 31岁, 女, 工程师)

A 摘要 本实验在 $\varnothing 200$ mm的流化床中, 以FCC粒子作为流化颗粒, 采用示踪气与流化气从床底分相并流输入的示踪方式, 并利用气相色谱仪中的热导池对流化床内的示踪气进行连续取样分析, 测定了湍动流化床内不同表观气速下的相间传质系数。实验结果表明相间传质系数随轴向位置的变化较大而随径向位置的变化较小, 且其值随表观气速的增大而增大。

关键词 流化床; 湍流; 相间传质; 气相色谱法**分类号** TQ 051.1

传质系数

气固流化床中气泡相与乳化相间的传质系数是预测流化床内反应程度的重要参数。虽然已有许多学者试图通过理论方法进行预测, 但因流化床内的流动过程过于复杂, 影响因素也较多, 所得结果还不能满足生产需要。目前, 流化床中的这种相间传质系数大多通过试验进行测定。

测定流化床中的相间传质系数, 通常采用向流化床内注入示踪气的方法, 检测床中气泡相和乳化相内示踪气的浓度分布, 再根据一定的模型, 计算出传质系数。对于鼓泡流化床, 已有许多实验结果发表。但对于湍动流化床, 由于床内气泡的激烈破碎和聚并, 床中的气泡相多已转变为空隙(Void)的形式, 而且流速很高, 为检测工作带来较大的困难, 有关的文献报道也很少。韩国的 Geun^[1]曾采用点源逆向从床顶注入示踪气的方法研究过湍动床内的相间传质过程, 这种方法虽然简便可行, 但床内示踪气的浓度分布是基于乳相的返混而形成。此方法一般多用于研究流化床内的相分布或床内的气体混合过程。若采用这种方法研究传质过程, 则应将轴向返混与相间传质对浓度分布的影响加以区别, 否则, 所得结果与工业实际过程会产生较大的偏差。为了克服这种方法存在的缺陷, 我们采用一种将示踪气与流化气从床底分相并流输入流化床的新方法, 可将示踪气作为乳相的主要气体成分, 以起到示踪乳相内气体浓度变化的作用, 并利用气相色谱仪中的热导池连续取样分析床内的浓度分布, 由此就可测得湍动床内的相间传质系数。

1 实验装置与方法

1.1 实验装置与流程

实验装置与流程见图1, 实验在直径200 mm, 高5 500 mm的有机玻璃制成的流化床中进行。来自罗茨鼓风机的流化气(空气)和来自钢瓶的示踪气(氢气)均从床底部输入床内, 其中氢气从床底通过气体分布板进入床层, 分布板为多孔筛板, 开孔率为2%, 为防止颗粒下漏, 分布板上覆有尼龙滤布两层。空气通过管式分布器引入, 管式分布器上开有 $\varnothing 4$ mm的孔24个, 开孔率为1%。实验用的流化颗粒为FCC($\bar{d}_p = 77.6 \mu\text{m}$, $\rho_s = 1 565 \text{ kg/m}^3$), 粒径小于45 μm 的细粉的质量分率约为10%。

1.2 实验方法

实验时先将氢气从床底输入, 并使床层流化, 这样就造成乳相内的气体全部为示踪气; 当再通入空

* 中国石油化工公司洛阳石油化工工程公司资助课题

收稿日期: 1994-11-01

气时,由于床层已经流化,从理论上讲空气进入床层后只能以气泡的形式穿过床层,这样就造成泡乳相的浓度差。然后根据沿床高各截面上测定示踪气在两相内的浓度变化的方法,就可以达到测定相间传质系数的目的。

为了消除分布管对床内流型的干扰,在分布管上方 180 mm 处开始取样,实验中共测定了 4 个轴向位置的径向浓度分布。取样探头的内径为 1 mm,探头的端部包有醋酸纤维以阻止流化颗粒进入样气分析系统。

实验中所选取的流化速度分别为 0.4, 0.6, 0.8, 1.0 $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。按文献 2 推荐的公式计算,实验所用的 FCC 颗粒由鼓泡区向湍流区的转变速度大约为 0.4 $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$,脱离湍流区的流化速度约为 1.5 $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$,故实验选取的流化速度皆在湍动流化区域内。

1.3 样气的采集与分析

为了分别测试出流化床内气泡相和乳化相的浓度,实验中采用气相色谱仪连续采样分析样气的浓度,具体方法是去掉气相色谱仪中的填料柱,将样气直接通入色谱仪的热导池,参照气采用氮气,色谱仪的型号为 SP2304。由于床中压强较低,故采集系统利用负压从床中连续抽取床中的气体,采集的样气经色谱仪分析后排出。色谱仪输出的信号同时送入记录仪和放大器,经过放大的信号进入 A/D 转换板,由计算机采集并处理。

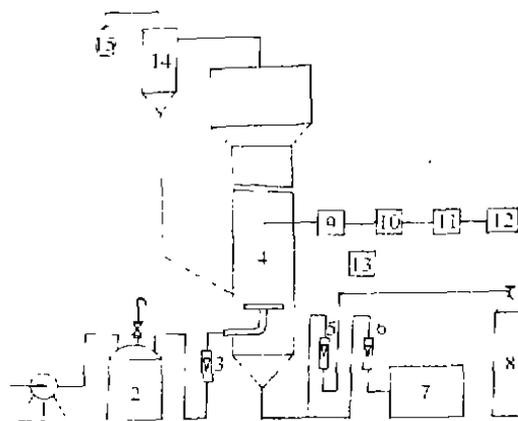


图 1 实验装置与流程

Fig. 1 Schematic Diagram of Experiment

- 1 罗茨鼓风机 2 缓冲罐 3, 5, 6, 流量计 4 流化床
7 空气压缩机 8 氢气钢瓶 9 色谱仪 10 放大器 11 A/D 板
12 计算机 13 记录仪 14 旋风除尘器 15 袋式过滤器

2 相间传质模型的建立与传质系数的计算

描述流化床内两相传质的模型很多,如并流模型、逆流返混模型、气栓流动模型等。在以上模型中,通常认为 Van Deemeter^[3]提出的乳相扩散模型能够较好地描述湍动床内的传质行为^[4],所以采用该模型处理实验数据,并由此计算传质系数。由于实验条件的改变,微分方程及其解也相应变化。

2.1 基本假定

2.1.1 流化床的密相区分为气泡相和乳化相两部分,即所谓的两相模型;泡相中的气流以活塞流的形式向上流动,乳相中的气流在向上流动的同时伴有轴向返混。

2.1.2 气泡尺寸和气泡速度 u_b 以及泡相空隙率 δ_b 均不随床层高度化,这一假定已由实验结果所证实。

2.1.3 从床层底部来的流化气体一部分以 $\delta_b u_b$ 的分率通过泡相流过床层,另一部分以 $u_c(1-\delta_b)$ 的分率经乳相流过床层。流化床中的表观流化速度 u 和二者的关系为:

$$u = \delta_b u_b + u_c(1 - \delta_b). \quad (1)$$

2.2 交换系数 K_{bc} 的计算

根据以上假定,在床层中任取 $-dz$ 的微元高度作示踪剂的物衡,可得到两相的微分方程:

$$\text{泡相: } \delta_b u_b \frac{dC_b}{dz} + K_{bc}(C_b - C_c) = 0, \quad (2)$$

$$\text{乳相: } (1 - \delta_b)u_c \frac{dC_c}{dz} + K_{bc}(C_c - C_b) - (1 - \delta_b)E_a \frac{d^2C_c}{dz^2} = 0. \quad (3)$$

式中 K_{bc} 为相间的气体交换系数(s^{-1}), C_b 和 C_c 分别为泡相和乳相中的示踪剂浓度, E_a 为乳相内的轴向返混系数($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)。显然,当 $E_a = 0$ 时,以上两式转化为并流模型。

按照实验方案,示踪气和流化气分两路同时从床底输入,经过射流区后进入正常的流化区,为消除射流区的影响,我们选择空气分布管的顶部作为正常流化区的边界,即轴向位置的原点,故式(2),(3)的边界条件为:

$$Z=0, \quad C_b=C_{bm} \quad C_s=C_{sm}, \quad (4)$$

$$Z=\infty, \quad C_b=C_r=C_0. \quad (5)$$

式中的 C_{bm} 、 C_{sm} 为空气分布管顶部的泡相和乳相浓度, $Z=\infty$ 处为流化床内密相段与稀相段的交界处,由于密相段泡相和乳相在该处已达到充分的混合和交换,故可以认为两相的浓度已相同。

根据以上边界条件,可分别求出式(2),(3)的解:

$$C_b - C_0 = \frac{B_1}{\tau_2 + A_1} (e^{\tau_2 x} - e^{-A_1 x}) + (C_{bm} - C_0) e^{-A_1 x}, \quad (6)$$

$$\frac{C_r}{C_0} - 1 = \left(\frac{C_{sm}}{C_0} - 1\right) e^{\tau_2 x}. \quad (7)$$

式中的系数分别为:

$$A_1 = \frac{K_{bc}}{\delta_b u_b}, \quad (8)$$

$$B_1 = \frac{K_{bc}}{\delta_b u_b} (C_{sm} - C_0), \quad (9)$$

$$\tau_2 = \frac{1}{2} \left[\left(\frac{u_r}{Ea} - \frac{K_{bc}}{\delta_b u_b} \right) - \sqrt{\left(\frac{u_r}{Ea} - \frac{K_{bc}}{\delta_b u_b} \right)^2 + 4 \left(\frac{K_{bc} u_r}{\delta_b u_b Ea} + \frac{K_{bc}}{(1 - \delta_b) Ea} \right)} \right]. \quad (10)$$

从式中可以看出 τ_2 应为负值。

由于描述泡相浓度分布的式(6)为超越方程,用于处理数据比较麻烦,所以只采用描述乳相浓度分布的式(7)和实验数据进行关联。将(7)式两端分别取对数,即

$$\ln\left(\frac{C_r}{C_0} - 1\right) = \tau_2 x + \ln\left(\frac{C_{sm}}{C_0} - 1\right). \quad (11)$$

可以看出,将 $\ln\left(\frac{C_r}{C_0} - 1\right)$ 对轴向位置 x 进行线性回归,所得斜率即为 τ_2 。再将 τ_2 的表达式进行整理,即可由 τ_2 的值计算出相应的相间交换系数 K_{bc} , 即:

$$K_{bc} = \frac{(\tau_2^2 Ea - u_r \tau_2) [\delta_b u_b (1 - \delta_b)]}{u - (1 - \delta_b) Ea \tau_2}. \quad (12)$$

2.3 由两相间交换系数 K_{bc} 计算相间传质系数 k_{bc}

相间交换系数 K_{bc} 和相间传质系数 k_{bc} 之间的关系可由其定义确定^[5]:

$$K_{bc} = \frac{S_b}{V_b} k_{bc}, \quad \text{若假设气泡为球形,则有:} \quad \frac{S_b}{V_b} = \frac{\pi d_b^2}{\frac{1}{6} \pi d_b^3} = \frac{6}{d_b}.$$

$$\text{故} \quad K_{bc} = \frac{6}{d_b} \cdot k_{bc}. \quad (13)$$

式中 d_b 为气泡的有效直径(m), K_{bc} 为相间气体的交换系数(s^{-1}), k_{bc} 为相间气体的传质系数($m \cdot s^{-1}$)。

3 实验结果与分析

3.1 测试数据的分析与处理

图2为测试过程中色谱仪输出的反映流化床密相段某一点示踪剂浓度变化的色谱仪号。图中的基线是未通示踪剂时的信号,即 $C_b=C_r=0$, 实验中用这条线作为各相浓度的基准线。由图中可以看出,在未通示踪气体时,床内各相的浓度均为零,色谱输出信号为一条直线。图中的自由空间浓度线是在通入示踪气体后,在流化床的自由空间处采集的样气浓度,由于两相气体在自由空间处已充分混合,所以 $C_s=C_b=C_0$, 实验中以这条浓度线作为床内密相段的平均浓度。根据这条平均浓度线可以处理床内的浓度信号,很显然,凡是高于平均浓度 C_0 的浓度信号,只能是来自乳相的浓度(即 C_r), 而低于平均浓度 C_0 的

浓度信号,则可视为泡相内的浓度信号(即 C_b)。

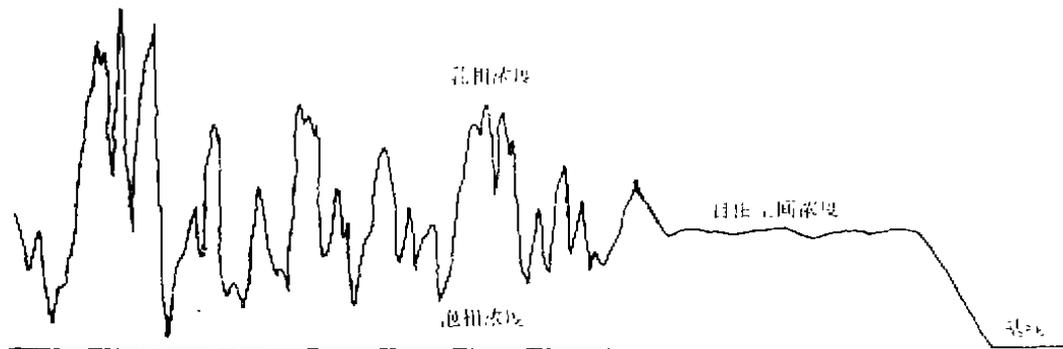


图 2 传质实验浓度信号图

Fig. 2 Concentration Signal Diagram of Mass Transfer Experiment

($u=0.4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, $z=0.18 \text{ m}$, $r/R=0.5$)

从图中还可以看出流化床内的浓度信号是由一些高低不一的波峰组成。显然,这是由于床内由气泡组成的分散相和以乳相组成的连续相在床内做激烈的混合运动,泡相或乳相经过采样探头的“通过时间”很短,且快慢不一,探头采集的样气中泡相和乳相气体更换频繁;当探头遇到较大的气泡或乳相时,因通过时间较长,探头能采集到完整的泡相或乳相气体,色谱则能输出较高或较低的峰值。但遇到小气泡或气泡边缘穿过探头时,因通过的时间很短,采集的气体很可能是两相的混合气,只是两相的比例不一样,色谱输出的都是一些小峰值。从而形成这样一种浓度分布信号。为了从这种浓度分布信号中获得床内多点的相应浓度,我们采取将各峰值加权平均,求出各峰值的平均值,这个浓度不一定是各相的真实浓度,但它能反映出各相浓度值的大小及衰减情况,并由此得出两相间的传质规律。

3.2 湍动流化床内两相的浓度分布

图 3,4,5,6 分别给出各气速下氢气在床内两相中的浓度分布,其中浓度坐标为相对浓度,即各点的浓度值与自由空间的平均浓度的比值。

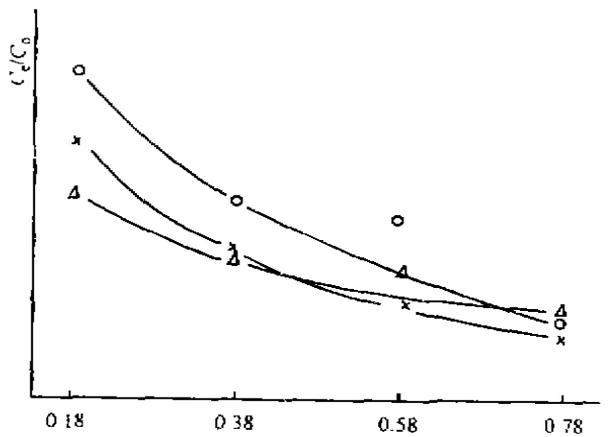


图 3 $C_b \sim Z$ 曲线图

Fig. 3 $C_b \sim Z$ Curves

$u=0.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

Δ : $r/R=0$ \times : $r/R=0.5$ \circ : $r/R=0.9$

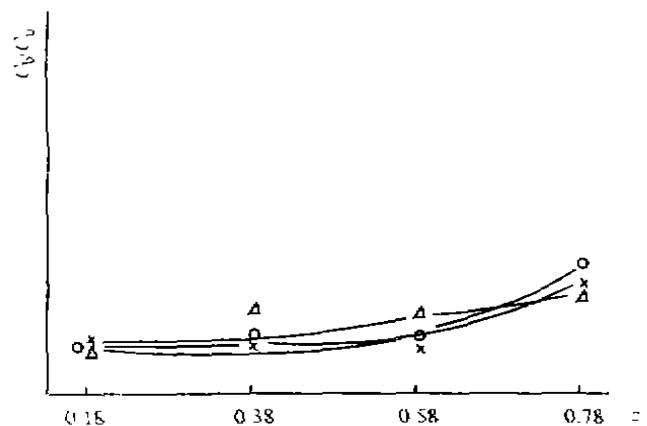


图 4 $C_b \sim Z$ 曲线图

Fig. 4 $C_b \sim Z$ Curves

$u=0.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

Δ : $r/R=0$ \times : $r/R=0.5$ \circ : $r/R=0.9$

从各图可以看出,在同一轴向位置,无论是泡相还是乳相浓度,沿径向都没有明显的差别,这说明床内混合程度很大,各相浓度分布均匀,但两相浓度沿轴向变化较大。在床底泡乳两相的浓度接近,这些结果都与湍动流化床的规律基本吻合。

将同一轴向位置上的各径向浓度取平均值,图 7,8 分别给出各表观气速泡、乳相的径向平均浓度沿轴向的变化。由图中可以看出,随表观气速的增大,泡相的平均浓度沿轴向递增速率加大,而乳相的衰减

速率也相应增加。这说明当表观气速增大时,湍动床内两相间传递速率增加。从另一方面看,随着表观气速的增加,泡相浓度的增加速率小于乳相浓度的衰减速率,说明湍动床内泡相的分率远大于乳相。

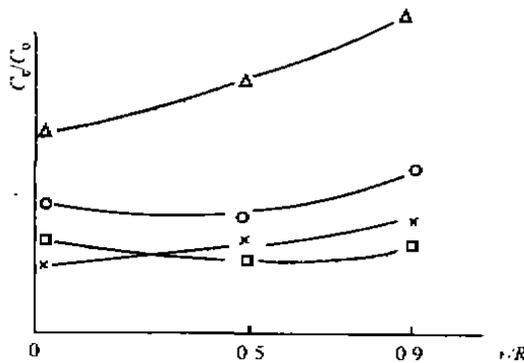


图 5 $C_p \sim r/R$ 曲线图

Fig. 5 $C_p \sim r/R$ Curves

$u = 0.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

$\Delta Z = 0.18 \text{ m}$ $\times Z = 0.38 \text{ m}$

$\circ Z = 0.58 \text{ m}$ $\square Z = 0.78 \text{ m}$

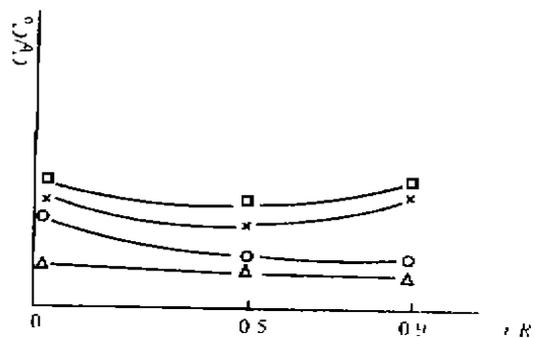


图 6 $C_p \sim r/R$ 曲线图

Fig. 6 $C_p \sim r/R$ Curves

$u = 0.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

$\Delta Z = 0.18 \text{ m}$ $\times Z = 0.38 \text{ m}$

$\circ Z = 0.58 \text{ m}$ $\square Z = 0.78 \text{ m}$

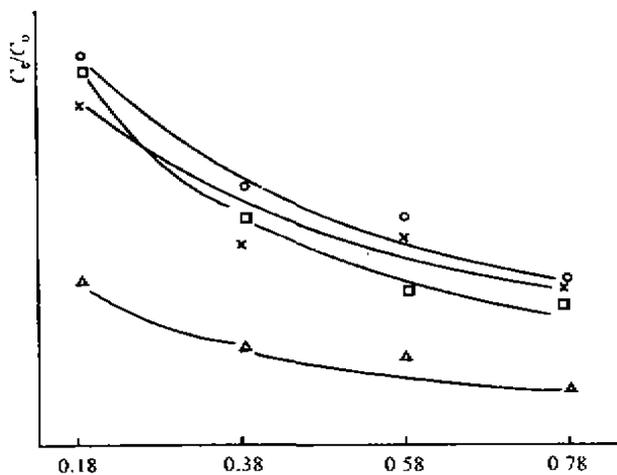


图 7 $C_p \sim z$ 曲线图

Fig. 7 $C_p \sim z$ Curves

$\Delta u = 0.4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ $\times u = 0.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

$\circ u = 0.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ $\square u = 1.0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

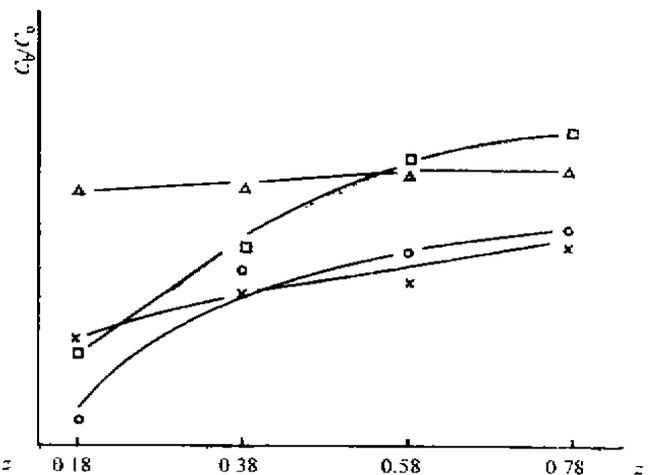


图 8 $C_p \sim z$ 曲线图

Fig. 8 $C_p \sim z$ Curves

$\Delta u = 0.1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ $\times u = 0.6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

$\circ u = 0.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ $\square u = 1.0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

3.3 气泡参数的确定

按照式(12)由床层内乳相的浓度分布计算相间交换系数时,还需要确定床层内的气泡分率 λ 、气泡速度 u_b 、气泡直径 d_b 以及乳相内的表观气速 u 。等气泡参数,文献6在本文所用的流化床中采用光导法测定了床内的各种气泡参数,并用床层降压法进行了校核。

日本学者中岛元幸也曾在相似的条件下测试过有关参数,二者结果相近,因此文献6中的数据基本上是可信的,可用于相间交换系数的计算。

3.4 相间交换系数与传质系数的计算结果

将图9中各径向乳相浓度的平均值按

附表 相间交换系数与传质系数

| $u / (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$ | $Ma / (\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$ | K_{12} / s^{-1} | $K_{12} \cdot 10^{-3} / (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$ |
|--------------------------------------|---|--------------------------|---|
| 0.1 | 2.303 | 0.06105 | 2.6760 |
| 0.6 | 1.664 | 0.1361 | 6.510 |
| 0.8 | 1.353 | 0.2576 | 13.567 |
| 1.0 | 1.110 | 0.3226 | 18.281 |

Tab. Exchange Coefficient and Mass Transfer Coefficient

照 $\ln\left(\frac{C}{C_0}-1\right)$ 对轴向位置进行关联, 可得到不同气速下的斜率 r_2 , 将 r_2 和相应的气泡参数代入式 (12) 及 (13), 即可计算出各表观气速下的相间交换系数 K_{12} 及相间传质系数 k_{12} , 计算结果见附表。

湍动流化床内的轴向返混系数已有许多学者进行过测定, 所得结果基本相同, 表中采用李佑楚等人^[7]给出的关联式计算 E_a :

$$E_a = 0.1835e^{-4.4453} \quad (17)$$

由附表中的结果可以看出, 相间交换系数和传质系数均随表观气速的增大而增加, 这说明随着表观气速的增加, 由于泡相的激烈破碎和聚并作用, 床内的泡相和乳相产生强烈的混合, 使相间的传质速率也迅速增加。

4 结 论

采用示踪气与流化气分相并流输入流化床的示踪方法, 可以克服点源示踪方法中无法区别轴向返混与相间传质相互影响的困难, 能更好地模拟工业流化床中的传质过程, 所得实验结果也具有明显的规律性。

利用色谱连续取样分析流化床中的气体成分, 可分别测定出流化床内泡、乳相的组成, 由此可根据两相浓度沿轴向的变化率计算相间的传质系数, 回避了其他方法中需涉及床内两相流动机理的困难。

实验结果表明: 相间传质系数随表观气速增大而迅速增加, 由于其他参量也受表观气速的影响, 可以确定: 湍动流化床内的相间传递过程主要受表现气速的影响, 而床径、示踪气体物性等其他因素的影响尚待进一步研究。

参 考 文 献

- 1 Geun Seong Lee, Sang Done Kim. Gas mixing in slugging and turbulent fluidized beds. Chem. Eng. Comm., 1989, 86:91~111
- 2 蔡平, 金涌, 俞芷菁. 鼓泡流态化向湍动流态化过渡的判别. 化工学报, 1986, 37(4):391~397
- 3 Van Deemter J J. Mixing and contacting in gas-solid fluidized beds. C. E. S., 1961, 13:148~151
- 4 Grace J R. High-velocity fluidized bed reactors. C. E. S., 1990, 45(8):1953~1960
- 5 Grace J R. Effect of bubble interaction on interphase mass transfer in gas fluidized beds. C. E. S., 1981, 38:307~335
- 6 李俊. 细颗粒 FCC 湍流流化床流体力学性能研究. [硕士学位论文]. 西安: 西北大学化工系, 1992
- 7 李佑楚, 吴培. 快速流化床中气体轴向混合特性. 化工学报, 1991, 42(5):541~547

责任编辑 时亚丽

The Measurement of the Mass Transfer Coefficient in Turbulent Fluidized Bed

Chen Liyu Zhang Xiucheng Chen Guoliang

Wang Shanxue Tian Zhongshe

(Department of Chemical Engineering, Northwest University, 710069, Xi'an)

Abstract Using FCC as the fluidized particle, the experiment was conducted in a fluidized bed whose diameter is 200 mm. The traced method is that the tracer gas and fluidized gas parallelly enter the fluidized bed from the bottom. The bed's tracer was measured continuously through the thermal conductivity detector of gas chromatograph. According to these methods, the bubble-emulsion mass transfer coefficient of turbulent fluidized bed has been measured under different superficial gas velocities. The results have shown that the change of coefficient is big with the change of axial location, but comparatively small with the change of radial location. Furthermore, the coefficient increases when the superficial gas velocity increases.

Key words fluidized bed; turbulent flow; bubble-emulsion mass transfer; gas chromatograph