

УДК 532.529

## **ВЛИЯНИЕ ПЛОТНОСТИ И ДИСПЕРСНОГО СОСТАВА ТВЕРДЫХ ЧАСТИЦ НА СТРУКТУРУ РАЗВИТОГО ПСЕВДООЖИЖЕННОГО СЛОЯ**

**ВАСИЛЬЕВ А. М., ЖЕЛЕЗНОВ А. С., ОЙГЕНБЛИК А. А.,  
СЕРГЕЕВ Ю. А., ЦИБУЛЬСКИЙ В. Г.**

Описана методика экспериментального исследования характеристик фазы пузырей развитого псевдоожигенного слоя на примерах дисперсных материалов, относящихся к группам *A* и *B* известной классификации Гелдарта [1], выделяющей четыре группы псевдоожигаемых материалов в зависимости от плотностей и размеров твердых частиц. Разработанная методика позволяет определить осредненные и локальные характеристики фазы пузырей в аппаратах любого масштаба. В зависимости от принадлежности материала к группам *A* и *B* классификации найдены распределения пузырей по вертикальным размерам и скоростям, относительные количества актов коалесценции и актов образования агломератов, относительные времена контакта неоднородностей с датчиком в плоском псевдоожигенном слое.

Физико-механические свойства и дисперсный состав твердых частиц существенно влияют на процессы движения фаз и тепломассообмена в псевдоожигенном слое. Известно, например, что даже небольшие изменения дисперсного состава и плотности частиц могут привести к значительным изменениям показателей технологических (в особенности каталитических) процессов. При использовании дисперсных материалов различных групп классификации Гелдарта имеют место качественные различия протекания каталитических процессов.

Материалы группы *A* характеризуются низкими значениями средних размеров и плотности частиц. К группе *A* относятся, например, микросферические катализаторы, плотность материала которых не превышает  $4000 \text{ кг}\cdot\text{м}^{-3}$ , средний диаметр  $D < 150 \text{ мкм}$ . Для ряда каталитических и гомогенно-гетерогенных процессов (например, для хлорирования углеводородов) используются материалы группы *B*, характеризующиеся значениями плотности  $1400 \leq \rho \leq 4000 \text{ кг}\cdot\text{м}^{-3}$  и средними диаметрами, не превышающими  $500 \text{ мкм}$  (к материалам группы *B* относятся, например, песок и стеклянные микросферы).

Качественные различия параметров фазы для материалов различных групп отмечались еще в работе [1], в которой приведены результаты визуальных наблюдений за поведением слоя в небольших прозрачных аппаратах.

Предлагаемая ниже методика заключается в регистрации кривых флуктуации плотности слоя несколькими последовательно расположенными по высоте диэлектрическими датчиками, соединенными с записывающей аппаратурой. Эксперименты выполнялись в двумерном слое с прозрачными стенками, что позволяло осуществлять синхронизированную с показаниями датчиков фотосъемку и скоростную киносъемку слоя и, таким образом, идентифицировать вид осциллограммы и тип неоднородности, эволюцию последней и взаимодействие между неоднородностями. Целью одновременной фиксации флуктуаций плотности слоя и визуального изображения является разработка метода расшифровки осциллограмм плотности для реальных трехмерных крупномасштабных псевдоожигенных слоев.

Псевдоожигение твердых частиц осуществлялось в имеющем прозрачные стенки аппарате шириной  $0,2$ , толщиной  $0,02$  и высотой  $3 \text{ м}$ . Чувствительные элементы диэлектрических датчиков состояли из пары медных проводков диаметром  $3 \cdot 10^{-3}$  и длиной  $0,03 \text{ м}$ , которые впивались в стенку аппарата вдоль его вертикальной оси на высотах  $0,4; 0,6; 0,9; 1,1; 1,4; 1,6; 1,9 \text{ м}$ . Одновременно использовались четыре датчика, установленные в аппарате.



Фиг. 1

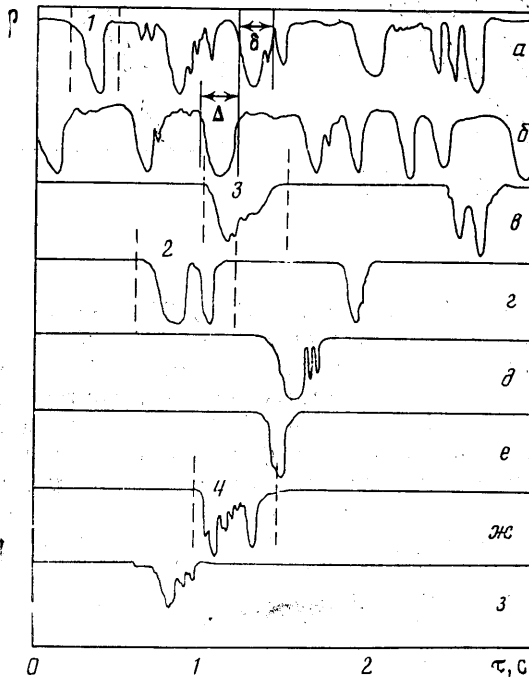
В качестве псевдоожигаемого материала группы А использовались частицы микросферического катализатора плотностью  $\rho=2700 \text{ кг}\cdot\text{м}^{-3}$ ; средний размер частиц катализатора  $70,8 \text{ }\mu\text{м}$ , скорость начала псевдоожигания  $u_{mj}=1,2\cdot 10^{-3} \text{ м}\cdot\text{с}^{-1}$ , скорость газа, при которой появляются пузыри,  $3\cdot 10^{-3} \text{ м}\cdot\text{с}^{-1}$ . В качестве материала группы В применялся песок, плотность которого  $2590 \text{ кг}\cdot\text{м}^{-3}$ , средний диаметр частиц  $D=2,3\cdot 10^{-4} \text{ м}$ , скорость начала псевдоожигания  $u_{mj}=1,4\cdot 10^{-2} \text{ м}\cdot\text{с}^{-1}$ , скорость начала неоднородного псевдоожигания  $u_{mb}=1,5\cdot 10^{-2} \text{ м}\cdot\text{с}^{-1}$ .

Представление о структуре развитого псевдоожиганного слоя дают приведенные на фиг. 1 фотографии, полученные для материала группы А при скорости газа  $0,1; 0,2; 0,3 \text{ м}\cdot\text{с}^{-1}$ . Видно, что вблизи газораспределителя существует область формирования пузырей, насыщенная растущими неоднородностями малого размера, промежуточная область, содержащая пузыри различных размеров и их скопления (агломераты), и примыкающая к верхней границе слоя сравнительно небольшая область разрушения пузырей. По количеству и размерам пузырей в промежуточной области можно судить об интенсивно идущих процессах их коалесценции и разрушения. При скоростной кинематике этой же системы [2] было показано, что крупный пузырь может распадаться на кратковременно живущий агломерат более мелких, которые затем вновь сливаются в один пузырь. Образование агломератов часто имеет место после актов коалесценции крупных пузырей<sup>1</sup>.

На фиг. 2 представлены примеры осциллограмм пульсаций плотности слоя, полученные для материала группы А при скорости псевдоожигания  $8\cdot 10^{-2} \text{ м}\cdot\text{с}^{-1}$ . Осциллограммы а и б иллюстрируют идентификацию и

<sup>1</sup> Ойгенблик А. А., Сергеев Ю. А. Методы экспериментального исследования макрокинетики кипящего слоя: Препринт № 222. М.: ИПМ АН СССР, 1984. 61 с.

определение параметров единичного пузыря. Указанные две осциллограммы получены в одном и том же эксперименте при помощи двух последовательно расположенных датчиков, при этом датчик *a* расположен выше датчика *b*. Флуктуация плотности слоя, соответствующая единичному пузырю, проиллюстрирована областью 1 осциллограммы *a*. Значение  $\delta$  представляет собой разность времен появления первых сигналов о неоднородности на осциллограммах *a* и *b* соответственно; скорость пузыря может быть оценена согласно соотношению  $U_b = l_{ab}/\delta$ , где  $l_{ab}$  — расстояние между датчиками *a* и *b*. Вертикальный размер неоднородности



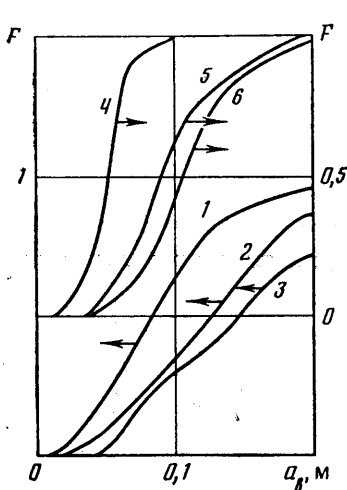
Фиг. 2

определяется по формуле  $a_b = l_{ab}\Delta/\delta$ , где  $\Delta$  — время контакта неоднородности с датчиком.

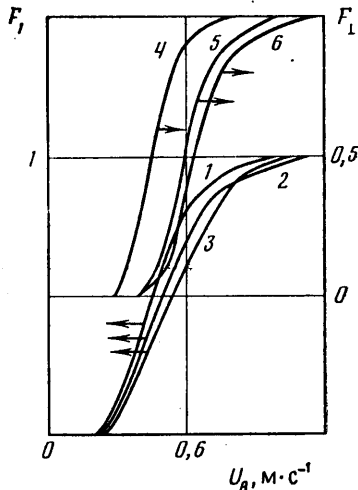
Осциллограммы *в* и *г* иллюстрируют явление коалесценции пузырей (здесь, как и в предыдущем случае, осциллограммы получены в одном и том же эксперименте при помощи двух последовательно расположенных датчиков; датчик *в* расположен над датчиком *г*). Область 2 на осциллограмме *г* показывает два находящиеся в непосредственной близости пузыря, область 3 на осциллограмме *в* — момент их коалесценции.

Осциллограммы *д*, *е*, *ж*, *з*, полученные при помощи четырех последовательно расположенных датчиков (осциллограмма *д* соответствует верхнему датчику), иллюстрируют явление образования агломерата из крупного единичного пузыря и последующее слияние мелких пузырей, образующих агломерат, в крупный пузырь. Область 4 на осциллограмме *ж* соответствует агломерату.

Обработка осциллограмм дает возможность определить сравнительные характеристики развитых псевдооживленных слоев дисперсных материалов групп *A* и *B*. Сравнение проводилось при одинаковых значениях разностей скоростей псевдооживления  $u$  и скоростей начала неоднородного псевдооживления  $u_{mb}$ . Высота неоднородного слоя в указанных экспериментах составляла 1,4–2,0 м. Функции распределения пузырей по вертикальным размерам и по скоростям представлены на фиг. 3 и 4 соответственно; здесь  $F(a_b)da_b$  — число пузырей в слое, имеющих вертикальные



Фиг. 3



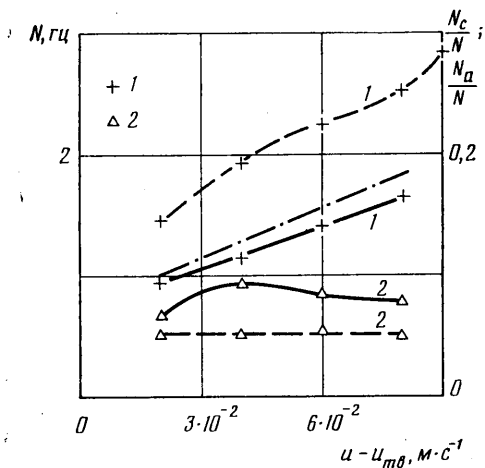
Фиг. 4

размеры в интервале  $(a_b, a_b + da_b)$ ,  $F_1(U_b)dU_b$  — число пузырей в слое, скорость которых лежит в интервале  $(U_b, U_b + dU_b)$ . Кривые 1–3 на фиг. 3 и 4 соответствуют материалу группы *B*, 4–5 — материалу группы *A*. Кривые 1 и 4 на указанных фигурах соответствуют значению  $u - u_{mb} = 2 \cdot 10^{-2} \text{ м} \cdot \text{с}^{-1}$ , 2 и 5 —  $6 \cdot 10^{-2} \text{ м} \cdot \text{с}^{-1}$ , 3 и 6 —  $8 \cdot 10^{-2} \text{ м} \cdot \text{с}^{-1}$ .

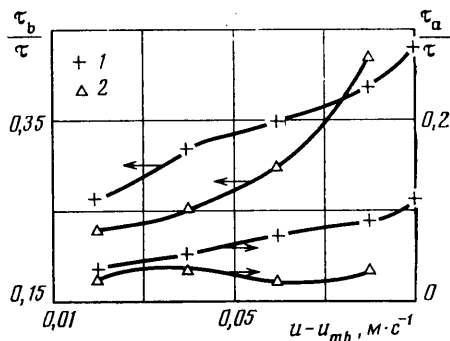
Из результатов, приведенных на фиг. 3 и 4, следует, что спектр распределения по размерам для дисперсного материала группы *B* существенно шире, чем для материала группы *A*. При этом средние размеры пузырей в слое материала группы *B* почти в 1,5 раза превышают средние размеры пузырей в слое материала группы *A*. Отметим, что функции распределения по скоростям всплытия в развитом псевдооживленном слое существенно отличаются от предсказываемых известными корреляциями вида  $U_b - u \sim a_b^{1/2}$ , полученными из зависимости скорости движения одиночного пузыря от его размера в безграничном псевдооживленном слое (см., например, [3, 4]). Для материалов группы *A* имеет место заметное увеличение скоростей неоднородностей с увеличением их размеров; для материалов группы *B* скорости движения пузырей существенно слабее зависят от размера последних. Скорости всплытия крупных (диаметром более  $2 \cdot 10^{-1} \text{ м}$ ) неоднородностей в слое материала группы *B* ниже, чем в слое твердых частиц группы *A*.

Результаты, приведенные на фиг. 3 и 4, свидетельствуют о наличии в слоях материалов обеих групп неоднородностей, скорости которых достигают  $1,5 \text{ м} \cdot \text{с}^{-1}$ , превышая почти в 2 раза скорости изолированных пузырей соответствующего размера в двумерном псевдооживленном слое. Причина этого явления заключается, по-видимому, в том, что перед актом коалесценции скорость расположенного ниже по потоку пузыря в паре коалесцирующих неоднородностей значительно увеличивается.

Полученные при помощи обработки осциллограмм средние частоты  $N$  прохождения пузырей, относительные частоты коалесценции  $N_c/N$  и относительные частоты образования агломератов  $N_a/N$  для слоев дисперсных материалов обеих групп приведены на фиг. 5. Здесь кривые и экспериментальные точки 1 и 2 соответствуют группам *A* и *B*. Штриховые кривые представляют средние частоты прохождения пузырей, сплошные линии — относительные частоты образования агломератов. Относительное число актов коалесценции, представленное штрихпунктирной линией, оказывается практически одинаковым для слоев обоих дисперсных материалов. Последнее означает, что существенные различия скоростей движения неоднородностей в материалах групп *A* и *B* связаны с различ-



Фиг. 5



Фиг. 6

ным реологическим поведением плотных фаз материалов обеих групп.

Из результатов, приведенных на фиг. 5, следует, что частоты прохождения пузырей в слое материала группы *A* значительно выше, чем в слое материала группы *B*. В то время как частоты прохождения пузырей в слое материала группы *A* существенно зависят от  $u - u_{mb}$ , влияние скорости псевдооживления на частоту прохождения пузырей в слое материала группы *B* при  $u > u_{mb}$  практически отсутствует. Последний результат согласуется с результатами, приведенными на фиг. 3 и 4, из которых следует, что размер неоднородностей в слое материала группы *B* значительно быстрее, чем в слое материала группы *A*, возрастает с увеличением значения  $u - u_{mb}$ .

Относительное количество актов агломерации выше в слое материала *A* и возрастает с ростом скорости псевдооживления, в то время как указанная зависимость для материала *B* имеет максимум при относительно невысоких значениях  $u - u_{mb}$ .

Полезной характеристикой структуры развитого псевдооживленного слоя является среднее отношение времени контакта неоднородностей с датчиком  $\tau_b$  к полному времени эксперимента  $\tau$ . Зависимости величины  $\tau_b/\tau$  от  $u - u_{mb}$  приведены на фиг. 6. Здесь кривые 1 и 2 соответствуют группам *A* и *B*.

На фиг. 6 изображено также отношение времени контакта датчика с агломератом  $\tau_a$  к полному времени эксперимента  $\tau$  в зависимости от значений величины  $u - u_{mb}$ . Полученные результаты свидетельствуют о том, что вероятность образования агломератов выше для материалов группы *A*.

Полученные результаты позволяют заключить, что средние характеристики неоднородностей в псевдооживленных слоях материалов групп *A* и *B* хорошо различимы и могут быть определены с помощью методики, не требующей визуального контроля или контроля с помощью обычной фото- и киносъемки, съемки в рентгеновских лучах и т. д. Разработанная методика и полученные результаты позволяют определить значения параметров, входящих в математические модели реакторов с псевдооживленным слоем, таких, как объемные содержания плотных и разбавленных фаз, средние размеры и скорости движения пузырей и др.

Анализ соответствующих математических моделей в принципе позволяет исследовать влияние параметров, характеризующих влияние структуры псевдооживленного слоя, на показатели технологических (в частности, каталитических) процессов. Такой анализ связан со значительными математическими и вычислительными трудностями, однако существующие модели химических реакторов с развитым псев-

доожигенным слоем (обзор которых приведен, например, в монографии [4]) позволяют сделать некоторые качественные выводы. Так, анализ пузырьковых моделей показывает, что показатели каталитических процессов ухудшаются при увеличении размеров неоднородностей и скоростей их всплывания и улучшаются с ростом частоты разрушения пузырей. Следовательно, по большей части характеристик псевдоожигенный слой материала группы А обладает преимуществами, однако для слоя материала группы В выше значение скорости начала неоднородного псевдоожигения  $u_{mv}$  и соответственно выше доля газа, проходящего через плотную фазу, т. е. находящегося в непосредственном контакте с частицами катализатора.

Выполненные согласно методике [5] эксперименты по одновременной регистрации флуктуаций плотности слоя и концентраций газов-трассеров показали, что при высотах слоя, превышающих 1 м, условия контактирования газа и твердых частиц для слоев дисперсных материалов группы В существенно хуже. В частности, коэффициенты массообмена между неоднородностями и плотной фазой в слоях материала А в 1,5–3 раза выше, чем в слоях материала группы В.

Описанная в настоящей работе методика обеспечивает возможность детального исследования влияния физико-механических свойств и дисперсности твердых частиц на характеристики псевдоожигенного слоя как среды для осуществления технологических процессов. Полученные результаты объясняют, в частности, причину преимущественного применения материалов группы А в промышленных каталитических реакторах с высотами слоя, существенно превышающими 1 м. В то же время при высотах слоя, меньших 1 м, материалы группы В могут обеспечить лучшие условия контактирования газа и твердых частиц.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Geldart D. Types of gas fluidization // Powder Technol. 1973. V. 7. № 5. P. 285–292.
2. Ойгенблик А. А., Железнов А. С., Слинько М. Г., Баранников В. И. Исследование параметров фазы пузырей в развитом кипящем слое // Докл. АН СССР. 1978. Т. 238. № 3. С. 653–656.
3. Куни Д., Левеншпиль О. Промышленное псевдоожигение. М.: Химия, 1976. 446 с.
4. Бородуля В. А., Гупало Ю. П. Математические модели химических реакторов с кипящим слоем. Минск: Наука и техника, 1976. 207 с.
5. Ойгенблик А. А., Железнов А. С., Слинько М. Г. Исследование продольного перемешивания и межфазного обмена в свободно кипящем слое // Докл. АН СССР. 1975. Т. 222. № 4. С. 901–903.

Москва

Поступила в редакцию  
17.XI.1986