

Stofoverdracht in een sproeicycloon : experimentele resultaten

Citation for published version (APA):

Schrauwen, F. J. M., & Thoenes, D. (1988). Stofoverdracht in een sproeicycloon : experimentele resultaten. *I2-Procestechnologie*, 4(3), 31-33.

Document status and date:

Gepubliceerd: 01/01/1988

Document Version:

Uitgevers PDF, ook bekend als Version of Record

Please check the document version of this publication:

- A submitted manuscript is the version of the article upon submission and before peer-review. There can be important differences between the submitted version and the official published version of record. People interested in the research are advised to contact the author for the final version of the publication, or visit the DOI to the publisher's website.
- The final author version and the galley proof are versions of the publication after peer review.
- The final published version features the final layout of the paper including the volume, issue and page numbers.

[Link to publication](#)

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal.

If the publication is distributed under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license above, please follow below link for the End User Agreement:

www.tue.nl/taverne

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us at:

openaccess@tue.nl

providing details and we will investigate your claim.

Experimentele resultaten

Stofoverdracht in een sproeicycloon

De toepassing van een cycloon voor het afscheiden van stof uit gasstromen is bekend. Als in een cycloon vloeistof verneveld wordt, is er sprake van een "cyclone spray scrubber" ofwel sproeicycloon. Daarin kunnen hoge partiële stofoverdrachtscoëfficiënten aan de gaszijde van het gas-vloeistof contactoppervlak bereikt worden. Experimenteel onderzoek betreffende de eigenschappen van de sproeicycloon ten aanzien van stofoverdracht wijst dit uit. Een sproeicycloon biedt dan ook mogelijkheden voor bepaalde gas-vloeistofprocessen, zoals selectieve gasabsorptie. Een mogelijke toepassing, de selectieve absorptie van H_2S uit CO_2 -houdend gas, komt in een tweede artikel aan de orde.

In de procestechnologie wordt een grote variëteit aan apparatuur gebruikt voor het uitvoeren van processen waarbij een gas en een vloeistof met elkaar in contact worden gebracht. In veel conventionele apparatuur, zoals de schotelkolom, de gepakte kolom en de sproeikolom, bewegen gas en vloeistof zich ten opzichte van elkaar onder invloed van de zwaartekracht. De snelheid van de stofoverdracht wordt in belangrijke mate bepaald door de relatieve stroomsnelheid, en kan dus beperkt worden door de gegeven waarde van de zwaartekrachtversnelling.

In een cycloon kunnen grote centrifugaalkrachten gegenereerd worden door de roterende stroming van de continue fase. Hiervan kan men gebruik maken bij het afscheiden van bijvoorbeeld stof uit een gasstroom. Wanneer men een disperse fase door een continue fase laat bewegen in een centrifugaalveld, zijn veel hogere waarden voor de partiële stofoverdrachtscoëfficiënt in de continue fase mogelijk. Dit is aangetoond door Beenackers [1] voor een hydrocycloon, waarin kleine gasbelletjes via een poreuze wand worden geïnjecteerd en in radiale richting door de vloeistof bewegen.

In een sproeicycloon (cyclone spray scrubber) wordt de vloeistof in de vorm van kleine druppeltjes centraal, langs de as van de cycloon, geïntroduceerd (zie figuur 1). Het gas is hierbij de continue fase; experimenteel werden dan ook zeer hoge stofoverdrachtscoëfficiënten aan de gaszijde gevonden [1]. Door de hoge partiële overdrachtscoëfficiënten zijn voor bepaalde processen hoge selectiviteiten haalbaar. Voor de hydrocycloon met gasinjectie werd dit door Beenackers aangetoond voor de sulfonering van benzeen. In de sproeicycloon blijken zeer hoge selectiviteiten haalbaar bij de absorptie van H_2S uit een CO_2 -houdend gas in waterig alkanolamine-oplossingen.

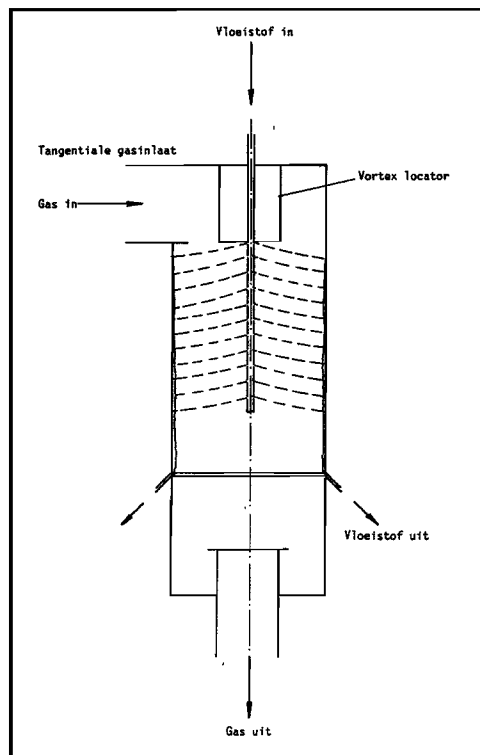


Fig. 1. Sproeicycloon

De sproeicycloon

De beweging van beide fasen in een sproeicycloon kenmerkt zich door zeer hoge slipsnelheden tussen de gas- en vloeistoffase, zich manifesterend in een

F.J.M. Schrauwen en D. Thoenes



Dit artikel is gebaseerd op promotieonderzoek van dr.ir. F.J.M. Schrauwen aan de TH Eindhoven o.l.v. prof.dr.ir. D. Thoenes, hoogleraar fysische technologie.

hoge partiële stofoverdrachtscoëfficiënt aan de gaszijde van het fasengrensvlak. Door de goede fasenscheiding na het contact kunnen kleine vloeistofdruppeltjes met een groot specifiek oppervlak toegepast worden. De vloeistofdruppeltjes worden meegeleurd door de roterende gasfase en hun beweging krijgt een tangentiële snelheidscomponent. Door de geïnduceerde centrifugaalkrachten bewegen de druppeltjes met toenemende snelheid naar de wand van de cycloon, vormen een vloeistoffilm en worden vervolgens afgevoerd.

Een sproeicycloon is interessant voor gas-vloeistofprocessen waarbij een hoge partiële overdrachtscoëfficiënt aan de gaszijde, korte contacttijden, een lage vloeistoffase hold-up en een goede fasenscheiding na het contact van belang zijn. Eenmaal op de wand verzameld, wordt de vloeistof niet meer meegeleurd door de gasstroom. De van stofafscheidende cyclonen bekende conische onderzijde is derhalve overbodig. Bij commerciële toepassingen wordt de vloeistof op de bodem van de cycloon verzameld.

Modelberekeningen

Ter verkrijging van een indruk van de grootte van de overdrachtscoëfficiënten aan de gaszijde van het fasengrensvlak zijn berekeningen uitgevoerd, gebaseerd op de bewegingsvergelijkingen voor een vloeistofdruppeltje in een sproeicycloon.

Uit metingen blijkt, dat de tangentiële component van het gasstromingspatroon in een cycloon globaal is opgebouwd uit een met constante hoeksnelheid roterende gaskern met een vortex aan de buitenzijde [3]. De meesleurkracht die het gas uitoefent op de vloeistofdruppeltjes zorgt voor een tangentiële versnelling. De baan van een druppeltje wordt verder bepaald door de centrifugaalkracht, de Corioliskracht en de zwaartekracht.

Op basis van verschillende criteria uit

de literatuur kon geconcludeerd worden dat druppeltjes van voldoende kleine afmetingen zich in de cycloon gedragen als starre bollen (onder andere [4]). Het is mogelijk op basis van de vergelijking van Ranz & Marshall de gemiddelde uitwendige stofoverdrachtscoëfficiënt te berekenen uit de slipsnelheid van een druppeltje ten opzichte van de gasfase tijdens de vlucht naar de cycloonwand.

Uit de modelberekeningen kon geconcludeerd worden dat zeer hoge partiële stofoverdrachtscoëfficiënten en korte contacttijden verwachten mochten worden.

Experimentele opzet

Het experimentele deel van het hier beschreven onderzoek was gericht op de karakteristieken met betrekking tot de stofoverdracht tussen gas- en vloeistoffase in een sproeicycloon. Hiertoe zijn methoden ontwikkeld ter bepaling van zowel beide partiële volumetrische stofoverdrachtscoëfficiënten (k_1A en k_gA) als de waarde van het fasencontactoppervlak afzonderlijk (A). De metingen werden uitgevoerd aan een experimentele sproeicycloon met een diameter van 0,1 m, zie figuur 2. De relatieve afmetingen zijn gebaseerd op richtlijnen van Stairmand [6] voor high-efficiency stofafscheidende cyclonen en van Nonhebel [7] voor nevelafscheiders. In deze uniflow cycloon wordt aan de bovenzijde tangentiaal de (continue) gasfase ingevoerd, die roterend zijn weg vindt door het apparaat en aan de onderzijde axiaal wordt afgevoerd (figuur 3). De vloeistof wordt geïnjecteerd via een geperforeerd buisje of verneveld tot 50 μm druppeltjes door een piezoelectrische ultrasone sproeier. De vloeistoffilm die zich op de wand vormt wordt afgevoerd via een langs de omtrek lopende verstelbare spleet. Dit om overdrachtsprocessen te beperken tot de vloeistofnevel en -film. De bijdrage van de vloeistoffilm aan de wand kon afzonderlijk bepaald worden door de vloeistof rechtstreeks op de wand in te voeren. De experimentele sproeicycloon werkte met gasdebieten tot $40 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$ (gas invoersnelheid tot 40 m/s) en vloeistofdebieten tot $20 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$. Westerterp en Yoshida [8, 9] bedachten begin jaren zestig een methode om k_1 te bepalen uit twee verschillende experimenten. Bij het eerste experiment wordt gebruik gemaakt van een chemisch versnelde gasabsorptie om het

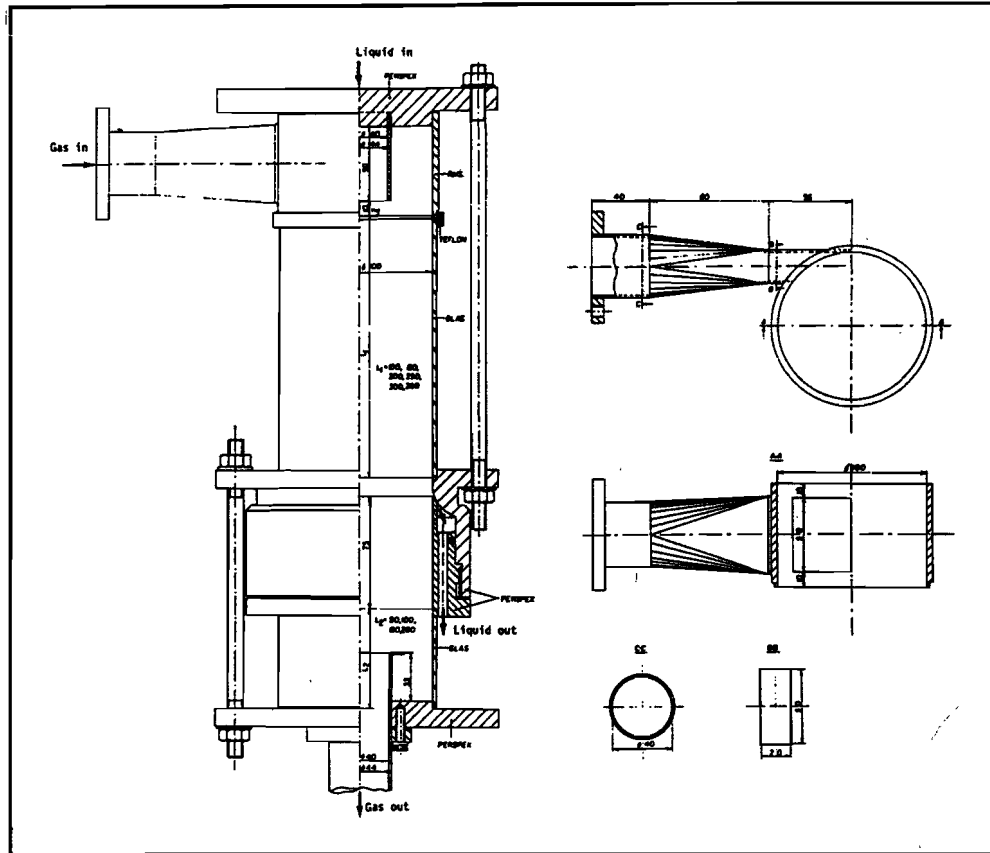


Fig. 2. Experimentele \varnothing 0,1 m sproeicycloon

contactoppervlak A afzonderlijk te bepalen. Bij het tweede experiment wordt een gas fysisch geabsorbeerd in de vloeistoffase, waaruit het product van k_1 en het fasencontactoppervlak A bepaald kan worden. De weerstand voor stofoverdracht bevindt zich hierbij uitsluitend in de vloeistoffase.

Het product k_gA is op soortgelijke wijze toegankelijk via een volledig door de stofoverdrachtsweerstand in de gasfase gecontroleerd proces. In de sproeicycloon werd de gasfase-stofoverdracht bepaald uit metingen van de verdampingssnelheid van 1,2-ethaandiol en n-butanol. Deze vloeistoffen worden gekenmerkt door een lage dampspanning zodat thermische effecten kunnen worden verwaarloosd. Lage concentraties van deze componenten in lucht werden gaschromatografisch bepaald. De stofoverdrachtscoëfficiënten aan de vloeistofzijde van het contactoppervlak zijn bepaald door fysische absorptie van (lucht-) zuurstof in water. Het zuurstofgehalte van de in- en uitgaande waterstromen werd gemeten met membraan-amperometrische (MEAM) cellen [5].

Een veel toegepast reactiesysteem voor de bepaling van gas-vloeistof contactoppervlakken is de door cobalt gekatalyzeerde chemisch versnelde absorptie van zuurstof in waterige sulfietoplossingen. Dit systeem bleek voor metingen in de sproeicycloon echter ongeschikt. Onder de condities, noodzakelijk om een meetbare sulfietconversie te realiseren in de experimentele cycloon,

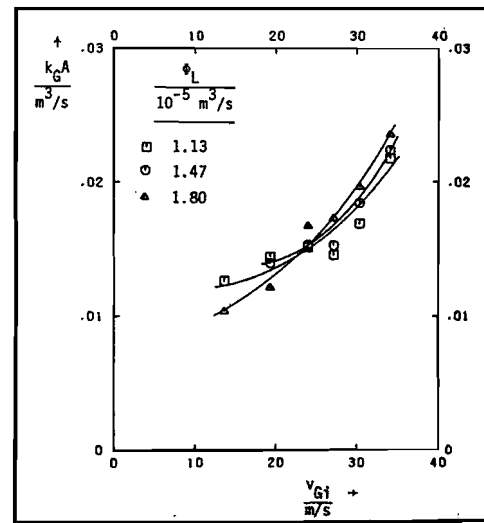


Fig. 4. Stofoverdracht aan de gaszijde als functie van de gas inlaatsnelheid (vloeistofdebiet als parameter)

trad uitvlokking van de cobaltkatalysator op.

Een efficiënte methode bleek de chemisch versnelde absorptie van CO_2 in een waterige oplossing van mono-ethanolamine (MEA). In waterige oplossing is de reactie eerste orde in zowel CO_2 als MEA. De kinetiek werd met behulp van een laminaire straal reactor nauwkeurig bepaald als functie van amineconcentratie, temperatuur en carbonatiegraad. De kooldioxide opname door de vloeistof kan continue worden gevolgd via de elektrische geleidbaarheid van de amineoplossing, afhankelijk van de temperatuur en de amineconcentratie.

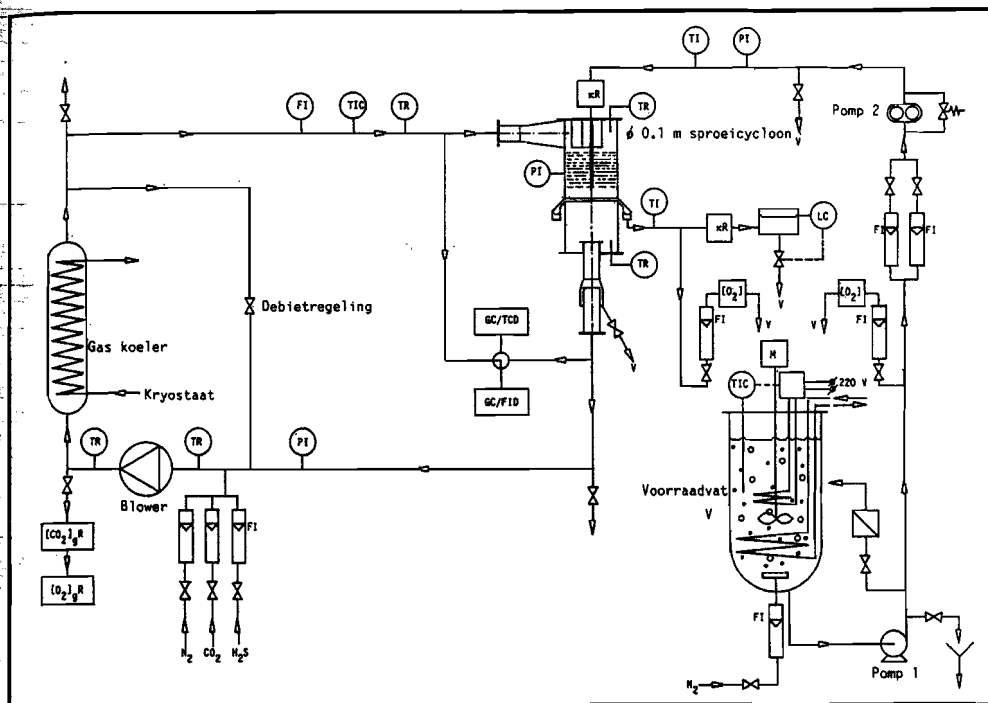


Fig. 3. Opstelling experimentele ϕ 0.1 m sproeicycloon. [O₂] MEAM zuurstof electrode; κ elektrische geleidbaarheid; F debiet; T temperatuur; P druk; I aanwijzing; R registratie; C regeling

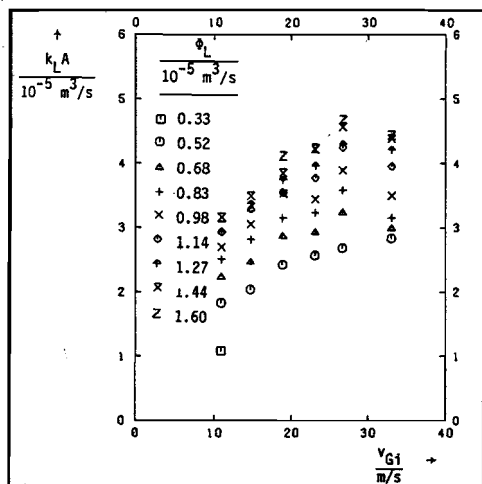


Fig. 5. Stofoverdracht aan de vloeistofzijde als functie van de gas inlaatsnelheid (vloeistofdebiet als parameter)

De CO₂ concentratie in de gasfase (CO₂ + N₂) werd gemeten met een monitor gebaseerd op de thermische geleidbaarheid.

Experimentele resultaten

Een deel van de resultaten van de stofoverdrachtsmetingen is in grafiekvorm opgenomen in de figuren 4 t/m 6. Figuur 4 geeft de gasfasestofoverdracht $k_g A$ bij toepassing van de ultrasone piëzo-eletrische vloeistofverdeler. In figuur 6 zijn de onder vergelijkbare omstandigheden gemeten gas-vloeistof contactoppervlakken A uitgezet. Hieruit volgen zeer hoge waarden voor de partiële stofoverdrachtscoëfficiënt k_g van 0,15 tot 0,30 m/s.

Volgens de modelberekeningen daalt de waarde van $k_g A$ met toenemende gasinlaatsnelheid. De afname van het contactoppervlak A door de kortere vluchtijd van de vloeistofdruppeltjes is gro-

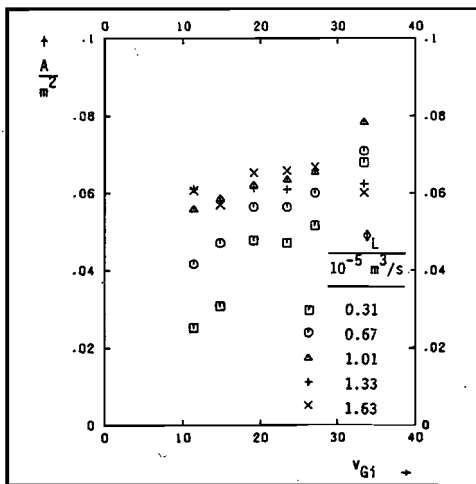


Fig. 6. Gas-vloeistof contactoppervlak als functie van de gas inlaatsnelheid (vloeistofdebiet als parameter)

ter dan de toename van k_g door de hogere slipsnelheid. Door het verder opbreken van vloeistofdruppeltjes en door de toename van het oppervlak van de vloeistoffilm aan de cycloonwand bij hogere gassnelheden wordt experimenteel evenwel een toename gevonden. Vergelijking met metingen waarbij alleen de wand van de cycloon bevochtigd wordt leerde dat de vloeistofdruppeltjes, ondanks de experimenteel nauwelijks significante bijdrage aan het totale contactoppervlak, de grootste bijdrage leveren aan de gasfase-overdracht $k_g A$. De hoogte van de nevelzone was tijdens deze experimenten slechts circa 2 cm.

De gas-vloeistof contactoppervlakken zoals gemeten in de experimentele sproeicycloon zijn in absolute zin betrekkelijk klein, zie figuur 6. In een grotere sproeicycloon kan ook het relatieve aandeel van de vloeistofdruppeltjes in

het totale gas-vloeistof contactoppervlak aanmerkelijk groter zijn. De vloeistoffase overdracht $k_L A$ is weergegeven in figuur 5. Via de corresponderende metingen ter bepaling van het fasegrensvlak volgen hieruit voor de partiële stofoverdrachtscoëfficiënt aan de vloeistofzijde waarden in de orde van $5 \cdot 10^{-4}$ m/s. Deze waarden liggen daarmee tegen de bovengrens van wat in conventionele gas-vloeistof-contactapparatuur bereikbaar is.

Door de combinatie van kruisstroom (sprayzone) en gelijkstroom (vloeistoffilm aan de wand) correspondeert de maximaal bereikbare overdracht met ongeveer één theoretische trap. Door het opstellen van meerdere cyclonen in een cascade kan een tegenstroomproces gerealiseerd worden met een groter aantal trappen.

Conclusies

Een sproeicycloon biedt perspectief voor gas-vloeistofprocessen waarbij hoge partiële overdrachtscoëfficiënten aan de gaszijde van het contactoppervlak, korte contacttijden, een lage vloeistoffase hold-up en een goede fase-scheiding na het contact van belang zijn. Tijdens het onderzoek is een algemeen bruikbare methode ontwikkeld voor de bepaling van gas-vloeistof contactoppervlakken, gebaseerd op de chemisch versnelde absorptie van CO₂ in waterige mono-ethanolamine oplossingen. De eigenschappen van de sproeicycloon ten aanzien van stofoverdracht zijn experimenteel en theoretisch onderzocht. Een demonstratie van een mogelijke toepassing, de selectieve absorptie van H₂S uit een CO₂-houdend gas, zal in een tweede artikel in dit tijdschrift worden besproken.

Naschrift

Dit onderzoek werd mogelijk gemaakt door financiële ondersteuning van de N.V. DSM te Heerlen.

Literatuur

1. Beenackers, A.A.C.M., proefschrift T.H. Twente, (1977)
2. Schrauwen, F.J.M., proefschrift T.H. Eindhoven, (1985)
3. Boysan, F., Ayers, W.H., Swithenbank, J. Trans IChemE., 60, p. 222-230, (1982)
4. Clift, R., Grace, J.R., Weber, M.E., Bubbles, drops and particles, Ac. Press, New York, p. 170-171, (1978)
5. Barendrecht, E., Chemisch Weekblad, 61, p. 555-565, (1965)
6. Stairmand, C.J., Trans IChemE., 29, p. 356-383, (1951)
7. Nonhebel, G., Gas purification processes, Georges Newnes Ltd., London, p. 751-755, (1969)
8. Westerterp, K.R., van Dierendonck, G.G., de Kraa, J.A., Chem.Eng.Sci., 18, p. 157, (1963)
9. Yoshida, F., Miura, Y., Ind.Eng.Chem. Process Des. Dev., 2, p. 263, (1963)