

卢天雄 编著

流化床反应器

化学工业出版社

79.516
172
C3

流化床反应器

卢天雄 编著

312.8153



化学工业出版社

内 容 提 要

本书是基于气-固流化床反应器各分支的一本综论集。共分八章，其中包括：流态化的流动体系，流化床反应器的放大和数学模型，流化床反应器的分布器，流化床反应器的内部构件，流化床颗粒的夹带，流化床燃烧器（FBC），流化床的测定技术，在磁场或离心场作用下的流化床。

本书供从事化学反应工程研究的工作人员阅读，也可供有关大专院校的师生以及化工系统的科技人员参考。

流 化 床 反 应 器

卢天雄 编著

责任编辑：陈 丽

封面设计：任 辉

化学工业出版社出版

（北京和平里七区十六号楼）

化学工业出版社印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行

开本850×1168^{1/32}印张5^{1/2}·字数137千字印数1—2,500

1986年2月北京第1版1986年2月北京第1次印刷

统一书号15063·3753定价1.25元

前 言

早在1976年, A. M. Squires教授就完成了“流态化在煤炭工业中的应用”一文, 作为Virginia Polytechnic Institute and State University 化工系的教材, 同年, 被编入美国科学出版社出版的论文集。1980年夏, Squires教授曾想以该文为总纲扩展成为一本教科书, 并要我参与部分工作。从那时起, 即着手收集和整理流态化的有关文献, 其中包括会议论文集、专业商讨会(Workshop)的报告等。特别应予指出, O. Levenspiel, A. M. Squires, J. M. Smith以及已故 C. Y. Wen 等教授所提供的资料, 使人获益不浅。在参加第五届国际流态化会议(Henniker, N. H., U. S. A) 期间, 有机会与工业界人士接触, 对于了解工业流态化的情况颇有好处, 从而丰富了所收集的内容。

在资料收集即将完成的时候, Squires教授受能源部之托而别有任务, 致使这一合作计划未能完成。考虑到本人在美时间有限, 如不及时动笔整理, 难免日后遗忘, 此为编写此书的缘由。

由于流态化的研究领域日趋广泛, 因此想用教科书的形式编写材料似属不易, 这可能就是十余年来, 未见有关书籍出版的原因。从七十年代以来, 所见大多为论文的选编。此种论文集的优点是内容丰富, 故为一种很有价值的素材; 缺点是系统性较差, 读者为搞清一个概念, 需广涉文献, 从而费时太多。

本书不是教科书, 也不是论文选编, 而是基于气-固流化床反应器各分支的一本综论集。内容大多取自七十年代后期和八十年代初期的资料, 也结合工业界以及作者所在单位研究工作的心得。通过本书, 希望展示气-固流态化的沿革以及对今后的要求。

笔者对于给予热情帮助和鼓励的郭慕孙和 Squires 两位教授一贯深怀敬意, 值此成书之日, 谨向他们二位致以深切的谢意。

作者

目 录

引言	1
第一章 流态化的流动体系	5
1.1 流化体系的分类——历史的回顾	5
1.2 腾涌流	11
1.3 鼓泡流化床和湍动床	15
1.4 快速流化床	22
第二章 流化床反应器的放大和数学模型	26
2.1 流化床反应器设计、放大的现状和任务	26
2.2 流化床反应器的设计和放大经验	28
2.3 流化床反应器数学模型化概况	33
2.4 流化床反应器数学模型的应用	34
第三章 流化床反应器的分布器	45
3.1 一般情况	45
3.2 分布器对流化床性能的影响	46
3.3 理论分析	50
3.4 气体分布器压差的确定	54
3.5 分布器的泄漏和死区	55
第四章 流化床反应器的内部构件	61
4.1 一般情况	61
4.2 横向构件	62
4.3 纵向构件	67
4.4 纵横向结合构件	71
第五章 流化床颗粒的夹带	74
5.1 一般情况	74
5.2 机理方面的研究	76
5.3 颗粒夹带关联式的评述	78
5.4 减轻颗粒夹带的措施	82

第六章 流化床燃烧器(FBC)	34
6.1 一般情况	84
6.2 煤的燃烧速率	86
6.3 FBC的模型化	93
第七章 流化床的测定技术	96
7.1 一般情况	96
7.2 温度的测定	97
7.3 气体组成的测定	98
7.4 压力测定	101
7.5 气速测定	102
7.6 床层粘度的测定	103
7.7 气泡的测定	104
7.8 传热的测定	111
7.9 传质的测定	113
7.10 床密度的测定	113
7.11 浓相空隙率的测定	114
7.12 固体粒子运动的测定	115
7.13 粒度分析	116
第八章 在磁场或离心场作用下的流化床	117
8.1 磁场作用下流化床的一般情况	117
8.2 磁性稳定性现象	117
8.3 磁性稳定性的机理	119
8.4 磁性接触器的特性	121
8.5 磁性催化剂的制备和性质	123
8.6 MSB有希望的应用领域	124
8.7 离心场作用下流化床的一般情况	126
8.8 离心式流化床的流体力学	128
8.9 离心式流化床有希望的应用领域	132
8.10 离心式流化床尚需研究的内容	137
符号说明	139
参考文献	143
主题索引	158

引 言

近四十年来，流态化技术在工业过程中已有了广泛的应用。流化床传统的应用领域是化学工业和石油工业，但是，近几年来，其应用范围已扩展到煤的燃烧和转化、金属的提取和加工、环境处理和能源工业以及需要固体处理的多种领域。

如对上述的使用场合进行初步统计，可以发现流态化技术的重要应用领域为化学反应工程，这就是“流化反应工程”或“流化床反应器”一词出现的缘由。

气体的流化反应可以方便地划分为气相反应和气-固反应。前者又可区分为催化反应和非催化反应。就气相反应而言，流化催化反应器的例子有石油裂化、加氢反应、丙烯腈生产、烯烃的氯化反应、丁烯氧化脱氢反应、苯酚、氧化乙烯、醋酸乙烯、费-托合成、甲苯和二甲苯的氨氧化以及高密度和低密度的聚乙烯等。非催化气相流化反应的例子则有热裂解以及燃料气的燃烧等。气-固流化床反应器的例子有二甲基二氯硅烷的生产、煤的燃烧、煤的干馏、煤的气化、固体废物的焚烧（催化氧化）、铀处理、硫化矿石的焙烧、铁矿石的还原和废液处理等。

流化床反应器日益广泛的应用，证明它具有如下的优越性：

- (1) 床内物料的流化状态有助于实施连续流动和循环操作；
- (2) 床内固体颗粒的迅速循环和气泡的搅动作用，造成了气-固之间、床层与内部构件之间良好的传热性能和床层的等温条件。一般，流化床反应器所需的传热面积相对较小；
- (3) 流化床的结构比较简单、紧凑，故适宜于大型操作；
- (4) 气-固之间的传质速率较高。

以上列举的优点可以看出流化技术的使用潜力。但是，导致优点的原因有时亦构成为缺点的根源。实践证明，流化床反应器

具有如下局限性:

(1) 在连续流动的情况下, 固体颗粒的迅速循环和气泡的搅动作用, 会造成固体颗粒某种不利的停留时间分布;

(2) 部分气体以气泡的形式通过床层, 严重地降低了气-固接触效率, 并导致不合适的产物分布;

(3) 在靠近床层的底部, 通常存在明显的温度梯度。这种现象无疑加剧了床内不合适的转化率分布和产物分布, 有时甚至还会出现分布板的烧结现象;

(4) 与其它类型的气-固接触设备相比, 流化床反应器存在着因大量固体的循环和床内固体运动而引起的颗粒损失和磨损现象;

(5) 由实验室到工业规模的放大颇为困难, 这是由于不同规模流化床的流化类型属于各异的流化体系之故。

照例, 流化技术的进展, 有赖于减轻或消除上述缺点。这似乎是一项相当明确的工作。但在实际的过程开发中, 要达到这一目的, 并非轻而易举。这一方面是因为流化技术优缺点的互存性, 另一方面也是由于流体动力学条件与反应类型之间存在着复杂关系的缘故。例如, 快速反应的转化深度受到气-固之间传质速度的限制, 因此, 为了破碎气泡并防止它们的合并, 人们可利用横向的构件。这一措施对于增进气-固之间的接触, 改善物料的停留时间分布是相当有效的, 但是, 横向构件的存在, 显著地削弱了固体的循环运动, 从而影响反应器的热过程和温度的均匀性。因此, 对于温度敏感的反应类型来说, 这一措施显然是不恰当的。又例如, 提高气体速度, 使流化床在湍动区进行操作能强化流化床的热、质传递过程(气泡小、固体运动激烈)。然而, 这一措施对于慢反应来说是弄巧成拙的, 更何况湍动床对固体循环和回收系统提出了苛求。

从以上分析可知, 流化技术的所谓优缺点有时确是互为依存的, 并且仅仅相对于某一反应类型而言。换言之, 对于某一特定的化学反应来说, 以上每一条优缺点不会同时发生作用的。因此,

流化床反应器的最优设计，需考虑特定反应类型下流化床优缺点之间的权衡。

几十年来，随着流化技术的发展，其应用领域已有了不断的扩大。但是，对于流化现象的了解仍然相当粗浅，以致于大量的工程设计主要还是依靠经验判断而作出的。事实上，将新近投产的流化催化反应器与早年开发的催化裂化流化床反应器相比，人们很难找到本质的技术变革。这就说明三十年来，尽管已累积了大量的研究数据，但却很少体现在流化床的设计中。究其原因，可能有如下几点：

(1) 流化床的诸因素，如流体力学、床层结构和几何参数、物理现象对化学反应的影响和相际接触的非稳态特性等极为复杂，为要揭示诸因素及其相互关系是一项相当困难的工作；

(2) 大量累积的数据，主要取自小规模装置。如上所述，小规模装置与工业规模的流动体系是十分不同的。迄今为止，对于发生在大规模装置内的流化现象仍然不甚明了；

(3) 研究工作存在着一定的局限性。自六十年代初以来，人们已对流化床的气泡现象作了长期深入的研究，并据此提出了一系列的数学模型。但是，大部分的气泡测定工作和所得的关联式均针对Geldart所谓的B型颗粒（含义下详）而言。有关的研究成果很难推广到其余类型的颗粒；

(4) 工业过程的开发，常因不恰当地选择流化方式而受阻。设计工作者有时不顾所进行的反应类型而不加选择地因循同一种流化方式。

近几年来，对于流化现象的研究工作已开始出现重大的转折。在以往，“流态化”是浓相鼓泡流化床的同义词，而人们津津乐道的流化床数学模拟工作亦主要着眼于B型颗粒。如今，流态化工作者的视野已扩展到多种流化体系和各类固体颗粒。而理论解析的工作也不再局限于基于B型颗粒的浓相鼓泡床。研究者对于A型和D型颗粒以及流化床的各个区域（分布器区、自由空间区）已经重新或开始进行工作。此外，有关流化床的内部构件和因流

化体系拓展所带来的严重的颗粒带出问题也取得了一定的结果。

研究结果的可靠性在很大程度上取决于测试技术的优劣。本书对于这一问题也作了相当篇幅的介绍。

在离心场或磁场作用下的流态化是崭露头角的流化技术。尽管目前尚难预测其前途如何，本书亦辟少量篇幅予以介绍。

煤在流化床的加工技术，是当前热门的研究课题。这里展示了最新的研究结果。

第一章 流态化的流动体系

1.1 流化体系的分类——历史的回顾

液-固流化体系大体上是均匀的。其总体的行为反映了液体与单一颗粒之间的互相关系。气-固系统，除了有限的情况外，大多是非均相的。气-固系统中的固体颗粒，在不同的条件下发生聚集，从而导致性质各异的流动体系。各种气-固流动体系总体的行为取决于气体和固体的性质、它们的速度以及容器的几何形状和尺寸。

在流化技术发展的早期，即已注意到气-固系统的差别。Wilhelm 和郭慕孙^[10-12]着重考虑了流体密度对于流动体系的影响。提出了以无因次的Froude数来区分流态化的两种方式：

$Fr_{mf} < 0.13$ 主要见于液-固系统，被命名为散式流化。

$Fr_{mf} > 1.3$ 主要见于气-固系统，被命名为聚式流化。

Romero和Johanson^[8-9]用四个无因次数来区分流化方式，

$$(Fr_{mf})(Re_{p,mf}) \left(\frac{\rho_f - \rho_g}{\rho_g} \right) \left(\frac{H_{mf}}{D_t} \right) < 100 \text{ 为散式流化}$$

$$(Fr_{mf})(Re_{p,mf}) \left(\frac{\rho_f - \rho_g}{\rho_g} \right) \left(\frac{H_{mf}}{D_t} \right) > 100 \text{ 为聚式流化}$$

近来所揭示的加压流化床的散式倾向，进一步证实了以上判断具有相当的可靠性。

Squires^[8-11]从固体颗粒的粒度出发，对气-固流化床作了分类。他把小于20目，而主要为200目以下的细颗粒流化床称为“流动床”。其典型的应用例子有石油的流动催化裂化(FCC)、乙烯的氯化、丙烯和氨的催化氧化(Sohio法)。通常，此类大型

流化床所用的气速为最小流化速度的几百倍。

大部分的粗颗粒（大于60目）则用于浅层鼓泡床。其操作气速约为最小流化速度的几倍。Squires称其为“搅动床”。其典型的应用例子有Winkler煤气发生炉、Lurgi砂子炉和流动煅烧炉等。

Geldart^(G-6)对颗粒作了较为精细的分类，并将不同的流动体系表示为颗粒粒度与 $(\rho_p - \rho_g)$ 的函数（见图1.1）。

Geldart认为，不同流动体系的主要特性如下：

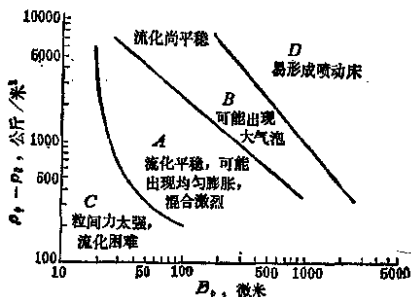


图 1.1 Geldart对流动体系的分类

A型颗粒 裂化催化剂为其典型的例子，系属于Squires的流动床范畴。

(1) 在床层最小流化速度 U_{mf} 与首次出现气泡的流化速度 U_{mb} 之间，床层出现均匀，亦即散式的膨胀，因此， $U_{mb}/U_{mf} > 1$ ；

(2) 气泡小，床层膨胀度较大，流化较为平稳，即使在大型装置中亦同；

(3) 固体的返混较为严重。

B型颗粒 砂为其典型例子，属于Squires的搅动床范畴。

(1) 超过最小流化速度 U_{mf} 即出现气泡，故 $U_{mf} = U_{mb}$ ；

- (2) 气泡较大，并沿床高而增大；
- (3) 床层不甚平稳。

C型颗粒

- (1) 由于粒间力较大，所以不易实施流化操作；
- (2) 在搅拌或振动等辅助作用下，可以实施流化操作。

D型颗粒 其典型例子有麦子及粗玻璃球等。

- (1) 床层易于产生喷动；
- (2) 迄今尚未确定B、D颗粒之间严格的分界线。

Geldart 流化体系的概念在一定程度上可以预示工业规模的流化状态。但是，图1.1所示各流动体系的边界划分是定性的，而且图1.1也没有包含操作气速和其它的过程变量，因此，要借此来确定放大过程的流化状态是有困难的。

北京化工研究院反应工程组^[2'-4']的研究结果认为，气泡的尺寸是表征流化状态的一个重要参数。他们根据气泡尺寸随颗粒粒度、颗粒密度和气体速度等因素的变化规律，将气-固流化状态区分为鼓泡流化床和湍动床两种流动体系。在此两种流动体系内，气泡尺寸的变化规律如下：

鼓泡流化床

- (1) 气泡尺寸较大；
- (2) 气泡尺寸沿床高而增大；
- (3) 气泡尺寸与操作气速大体上成线性关系；
- (4) 气泡尺寸随无因次数 $\mu U/gD_p^3\rho_p$ 的增加而锐减。

湍动床（亦称湍流床）

- (1) 气泡尺寸较小；
- (2) 气泡尺寸几乎不随床高而变；
- (3) 气泡尺寸几乎不随操作气速而变；
- (4) 气泡尺寸不随无因次数 $\mu U/gD_p^3\rho_p$ 而变。

必须指出，北京化工研究院的实验是在二维床(2000×200×8)内进行的。考虑到容器尺寸和形状对于流化现象有明显的影响，所以上述规律未必能全而反映工业流化床的实际情况。此

外，实验的操作气速较低，因此，该文未能提供高气速下流化床的性能数据。

Yerushalmi等^[Y-8]以及郭慕孙等^[L-10]认为，提高细颗粒流化床的气体速度，可以得到不同的流动体系。他们提出了气-固流化系统的相图（见图1.2和图1.3）并对不同流动体系的性质作了叙述。图1.2是相当概括的，与此相反，图1.3却具有定量的意义。

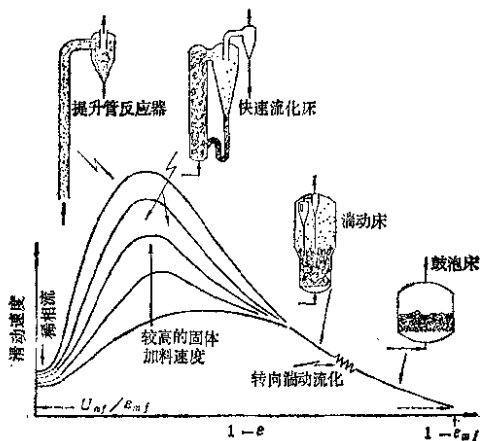


图 1.2 细颗粒气-固流化床的相图 (Yerushalmi等)

事实上，对于不同的颗粒粒度和容器直径而言，在改变气体速度的情况下，可以出现与上述不全相同的相图。

Van Swaaij^[V-3]所提供的表格（见表1.1）比较全面地包括了各种可能出现的情况。由表1.1可见，在改变颗粒粒度和床径时，尚有可能出现腾涌流和噎塞流。

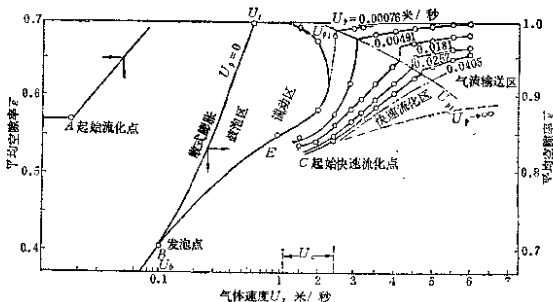


图 1.3 细颗粒气-固流化床的相图 (郭慕孙等)

表 1.1 不同的流态化体系

→增加U

↓ D_T 和 D_p	$D_p < 100$ 微米 大床径	A_1 浓相床	A_2 湍流床	A_3 快速床	A_4 提升管	
	$D_p < 100$ 微米 小床径	B_1 浓相床	B_2 腾涌床	B_3 湍流床	B_4 快速床	B_5 提升管
	$D_p > 150$ 微米 更小床径	C_1 浓相床	C_2 腾涌床	C_3 噎塞床	C_4 快速床	C_5 提升管

表 1.1 中第一行和第二行有可能属于 Leung^[2-5] 所命名的“无腾涌流的浓相输送”的体系。

根据类似的思路, Van Deemter^[6-12] 企图将气体速度和颗粒粒度的影响表示于同一图上。图 1.4 纵座标为颗粒粒度并按照 Geldart 的概念进行分类。横座标为气体表观速度。作图时假定 $\rho_p/\rho_g = 1000$, 这是符合大部分气-固流化催化反应情况的。

根据气泡上升或成长的速度, Van Deemter 又将鼓泡床体系分成三部分。其中第一部分的气泡上升速度大于乳化相(即浓相)粒隙气速, 称为“快速”气泡区; 就大颗粒系统来说, 气泡上升速度相对地慢于粒隙气速, 故称为“慢”气泡区; 在较高的

气速下，与气泡的上升速度相比，其成长的速率显得相当大，有时，气泡的尺寸甚至达到床高的一半，此为“成长气泡”区。

迄今为止，在流动体系的分类方面已取得了相当大的进展，但远未达到完善的程度。事实上，文献中涉及流动体系的报导大多指细颗粒而言，而关于粗颗粒方面只见到Staub所提供的极为粗略的流动体系图⁽⁹⁻¹²⁾。流动体系更精确的分类有赖于解决以下问题：

- (1) 定量地确定各流动体系之间的边界；
- (2) 进一步探明气体速度和性质、颗粒粒度和性质以及容器规模和几何形状等因素对于流动体系的影响；
- (3) 对粗颗粒床的流动体系全面开展研究。

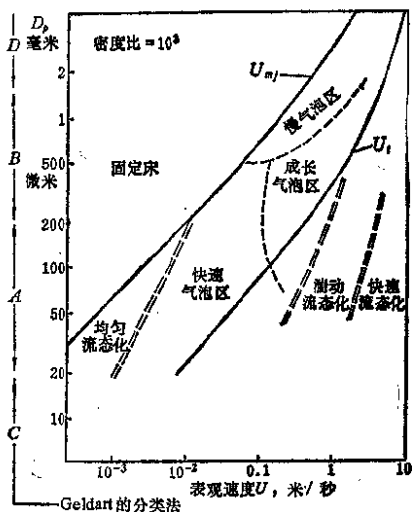


图 1.4 流动体系图 (Van Deemter)

1.2 腾涌流

一般而言，腾涌出现在颗粒较大或床径较小的场合。按表1.1所给定的顺序，腾涌床紧接在自由鼓泡床之后，要判定鼓泡床向腾涌床的转换是相当困难的，这可能是因为颗粒粒度、气速以及床径之间的交互影响颇为复杂的缘故。至今，已提出了几种腾涌床的判据，但最为著名的需推Broadhurst和Becker^(B-24)的工作：

$$Fr_{ms} = 51.4(D_T/H_{mf})^{1.79}(\rho_g/\rho_p)^{0.09} + 0.0042Ar^{0.41} \quad (1-1)$$

式中 Fr_{ms} ——为最小腾涌点的Froude数，即 $\rho_g U_{ms}^2 / (g \Delta \rho D_p)$ ；

Ar ——Archimedes数，即 $\rho_p g \Delta \rho D_p^3 / \mu_g^2$ ；

D_T ——床径；

H_{mf} ——初始流化床高；

U_{ms} ——最小腾涌点的表观速度；

$\Delta \rho$ —— $\rho_p - \rho_g$ ；

μ_g ——气体的粘度。

早期的流态化文献均认为腾涌会导致不良的气-固接触，造成床层的不稳定性和严重的固体颗粒夹带现象。人们同时还认为，由腾涌床测得的数据很难推演到工业规模的流化床去，这是因为不同规模的流化床有着各异的流动方式，因而亦就具有十分不同的气-固接触时间分布和温度历程。

在相当长的时期中，人们直观地从床高和压力的剧烈波动（反映了气栓在床层表面的迸裂）来判断腾涌的发生并设法避免之。为了消除或减少实验室流化床的腾涌趋势，已做了大量的工作，但均得到事倍功半的结果。腾涌的趋势是可以削弱的，但是，要使实验室流化床与工业规模流化床具有相同的流动方式仍然相当困难。这种差别可能是由于不同的床径以及不同的床高/直径所造成的^(M-5)。

于是，人们又转向了另一途径，即试图探明腾涌流的内在规