

## 多段連續流動層內의 粒子滯留時間 分布測定\*

南宮 寔\*\* · 鄭雨昌\*\*

### Residence Time Distribution of Particles in Multi-Stage Fluidized Bed

Shik Namkoong\*\* and Woochang Chung\*\*

\*\* Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Hanyang Univ.

Applying the gas-solid fluidized to continuous multi-stage chemical reactor, residence time distribution of catalyst and or reactant particles must be known.

Different residence time distribution functions would result different reactor performance for the identical apparatus and conditions.

Generally multi-stage fluidized bed are preferred, because the range of residence time of particles, in the bed is narrow downed, compared to that of the single-stage fluidized bed.

The theoretical equations of discharge probability and residence time distribution were derived in the case of multi-stage fluidized bed partitioned by internal walls with hole, and result were checked experimentally.

### 緒論

流動層을 多段連續反應裝置로서 使用할 경우 各層內의 反應에 關與하는 粒子의 滯留時間은 一種의 統計의 量이며 그 分布形은 流動層의 流動化狀態에 密接한 關係를 가지고 있을 것이다.

單一流動層에 連續的으로 投入된 粒子가 溢流管으로 부터 排出되기 까지의 各粒子의 滯留時間이 均一하지 않음으로 流動化粒子가 反應物質인 경우 未反應排出比率을 적게 하기 위해서는 平均滯留時間を 平均反應完結必要時間의 數十倍로도 하지 않으면 안될 경우도 있다. 이렇게 되면 長時間反應層內에 滯留하는 粒子가 많게 된다. 이 結果 裝置의 單位時間當 處理容量은 低下되고 製品의 品質이 不均一하게 되는 不利한 結果를 招來한다.

流動層의 長點을 유지하고 上記한 바와 같은 缺點을 补充하기 위해서는 流動層의 多段化方式이 生覺된다.

流動層에 있어서 均一粒徑으로 되어있는 粒子群의 滯留時間에 關한 既往의 研究로서는 矢木, 國井<sup>1)</sup>, 神谷<sup>2)</sup>, Amundson<sup>3)</sup>等의 研究報告를 들 수 있는데, 層內는 近似的으로 完全混合의 狀態에 있는 것이 實證되었다. 即 矢木等은 單一流動層에 있어서 粒子排出比率分布函數를 誘導해서 粒子의 平均滯留時間を 求해 이 것을 實驗的으로 確認했고, 神谷는 多段流動層에서 流動層排出確率의 式을 誘導하여 滯留時間에 對한 粒子排出確率을 實驗的으로 檢討했다. 不均一粒徑의 粒子群에 對해서도 坂井<sup>4)</sup>等의 研究가 있는데 粒徑이 다른 二種群을 混合시킨 試料를 使用해서 實驗한 結果 層內에 있어서 大粒子의 比率이 供給時의 것보다 增加하는 傾向을 見하였다.

本研究에서는 神谷가 粉體混合速度에 對한 因子를 全히 生覺지 않았다는 點에 着目하여 著者等이 測定한 粉粒體混合速度<sup>5)</sup>  $W[\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}]$ 를 包含하는 混合供給速度比  $F\left(=\frac{W_{d_2}}{F}\right)$ 를 パラメ타로 한 理論式을 誘導하여 粒子의 滯留時間分布를 求하고 實驗的으로 確認했다.

\* 1965年 7月 26日 受理

\*\* 漢陽大學校 工科大學 化學工學科

## 理 論 式

各槽 내 粉體의 重量을  $M$ , 各隣接槽間의 開孔面積을  $a_\phi$ , 單位開孔面積當單位時間當의 粉體의 混合速度를  $W$ , 各槽의 tracer 分配率를  $z_i$ , 粉體의 供給速度를  $F$  카 할 때, 粉體混合方程式은 各槽의 物質收支式으로부터 다음과 같다.

$$\begin{aligned} M \frac{dz_1}{d\theta} &= Wa_\phi(z_2 - z_1) + F(z_0 - z_1) \\ &\vdots \\ M \frac{dz_j}{d\theta} &= Wa_\phi(z_{j-1} + z_{j+1} + 2z_j) + F(z_{j-1} - z_j) \quad (1) \\ &\vdots \\ M \frac{dz_N}{d\theta} &= Wa_\phi(z_{N-1} - z_N) + F(z_{N-1} - z_N) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} x &= \frac{M}{Wa_\phi} & z &= \frac{M}{F} \\ \theta &= \frac{\theta}{x} & F &= \frac{x}{z} = \frac{Wa_\phi}{F} \quad (2) \end{aligned}$$

$$z_0 = \frac{m}{F} \delta(\theta)$$

$\theta = 0$  일 때

$$z_1 = 0 \quad z_2 = \dots \dots z_N = 0$$

(1)式을 初期條件에 對하여 풀면

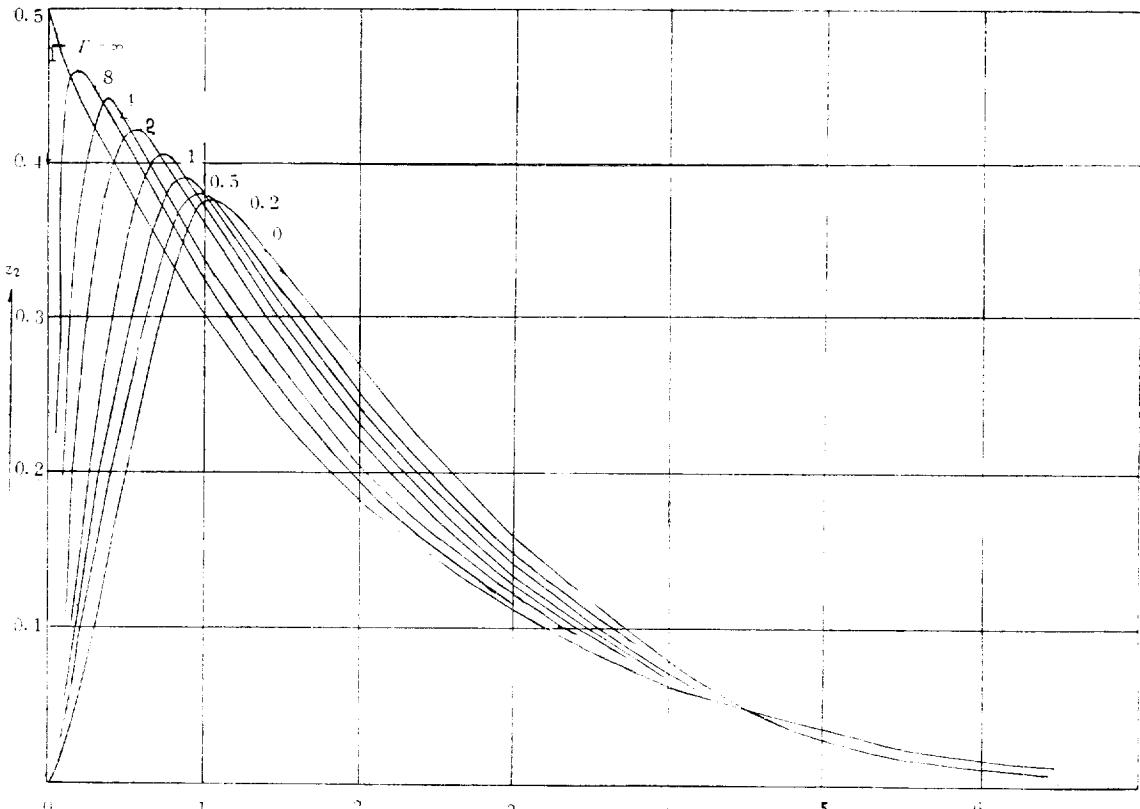


Fig. 1.  $z_2$  vs  $\theta$

$N=2$  일 때

$$\begin{aligned} z_1 &= e^{-(F+1)\theta} \cos h \sqrt{F^2 + F} \theta \\ z_2 &= \sqrt{1 + \frac{1}{F}} e^{-(F+1)\theta} \sin h \sqrt{F^2 + F} \theta \quad (3) \end{aligned}$$

$N=3$  일 때

$$\begin{aligned} z_1 &= \frac{1}{2} e^{-(F+1)\theta} + \frac{1}{2} e^{-(\frac{3}{2}F+1)\theta} [\cos h \sqrt{\frac{9}{4}F^2 + 2F} \theta \\ &\quad + \frac{F}{2\sqrt{\frac{9}{4}F^2 + 2F}} \sin h \sqrt{\frac{9}{4}F^2 + 2F} \theta] \\ z_2 &= -\frac{(F+1)}{\sqrt{\frac{9}{4}F^2 + 2F}} e^{-(\frac{3}{2}F+1)\theta} \sinh \sqrt{\frac{9}{4}F^2 + 2F} \theta \quad (4) \\ z_3 &= \frac{F+1}{2F} e^{-(\frac{3}{2}F+1)\theta} (\cosh \sqrt{\frac{9}{4}F^2 + 2F} \theta \\ &\quad + \frac{F}{2\sqrt{\frac{9}{4}F^2 + 2F}} \sinh \sqrt{\frac{9}{4}F^2 + 2F} \theta) - e^{-(F+1)\theta} \end{aligned}$$

排出確率은

$N=2$  일 때

$$\begin{aligned} \rho_2 &= \int_{-\infty}^{\infty} z_2 d\theta \\ &= 1 - e^{-(F+1)\theta} \end{aligned}$$

$$[\sqrt{1+1/\Gamma} \operatorname{Sinh} \sqrt{\Gamma^2+\Gamma} \theta + \operatorname{Cos} h \sqrt{\Gamma^2+\Gamma} \theta] \quad (5)$$

$N=3$  일 때

$$\rho_3 = \int_{\sigma}^{\theta} z_3 d\theta$$

$$= 1 + \frac{1}{2\Gamma} e^{-(\Gamma+1)\theta} - e^{-(\frac{3}{2}\Gamma+1)\theta} \left[ \frac{2\Gamma+1}{2\Gamma} \right].$$

$$\operatorname{Cosh} \sqrt{\frac{9}{4}\Gamma^2+2\Gamma} \theta + \frac{6\Gamma+5}{4\sqrt{\frac{9}{4}\Gamma^2+2\Gamma}}.$$

$$\operatorname{Sinh} \sqrt{\frac{9}{4}\Gamma^2+2\Gamma} \theta]$$

式 (3), (4), (5) 및 (6)을 Fig 1, 2, 3 및 4에 그렸다.

Fig. 2.  $z_3$  vs  $\theta$

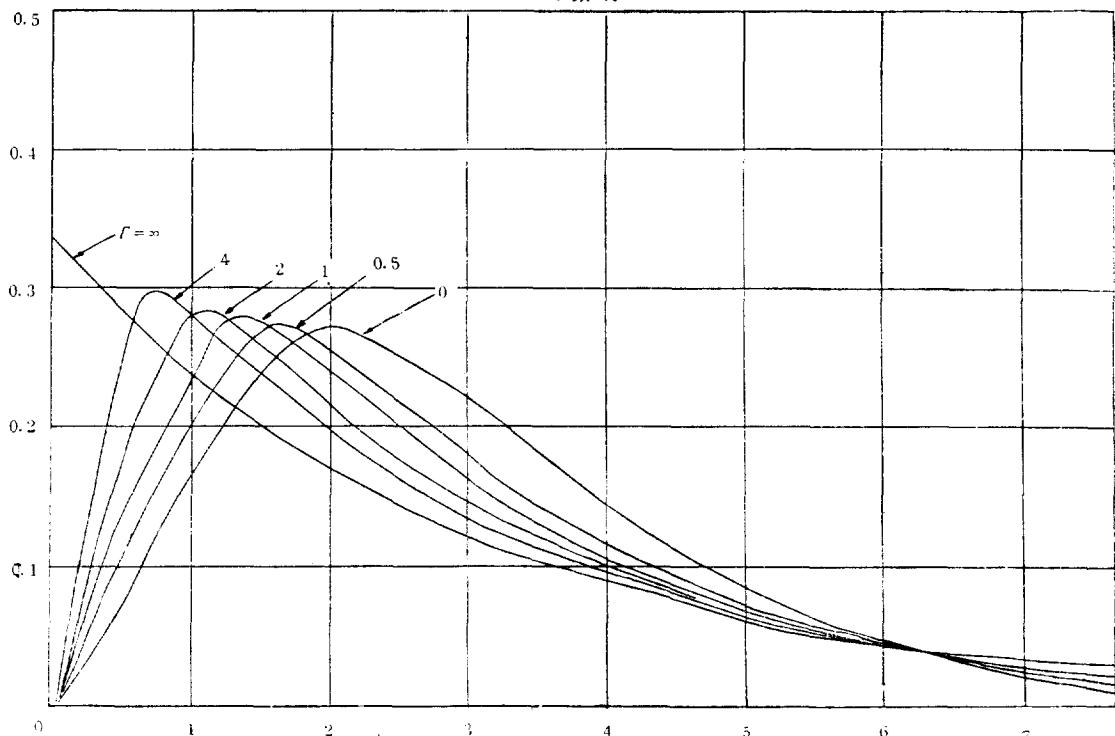


Fig. 3.  $\rho_2$  vs  $\theta$

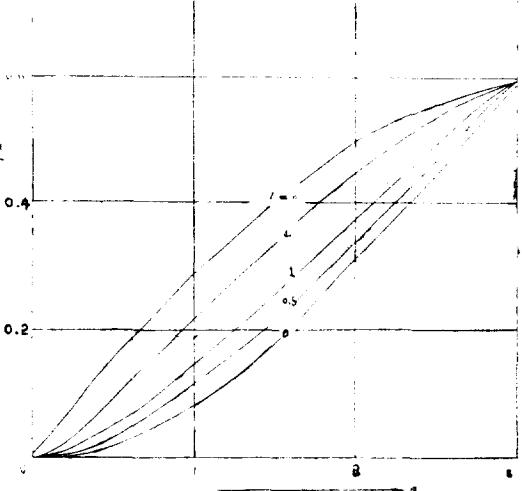
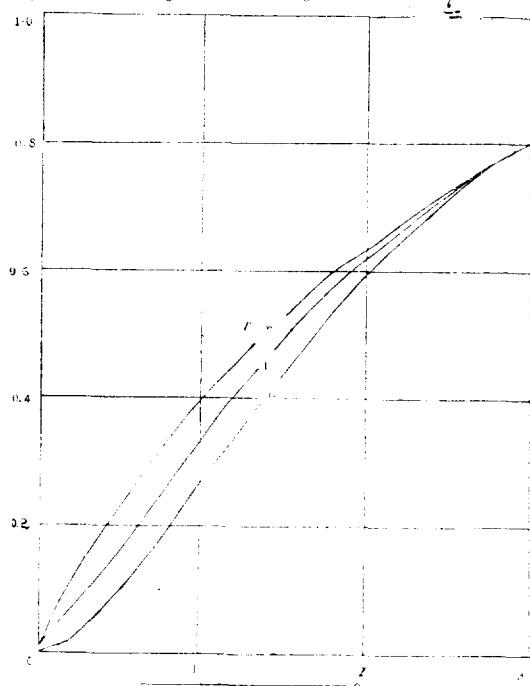


Fig. 4.  $\rho_3$  vs  $\theta$



## 實驗裝置와 方法

實驗裝置의 略圖는 Fig 5에 圖示하였다.

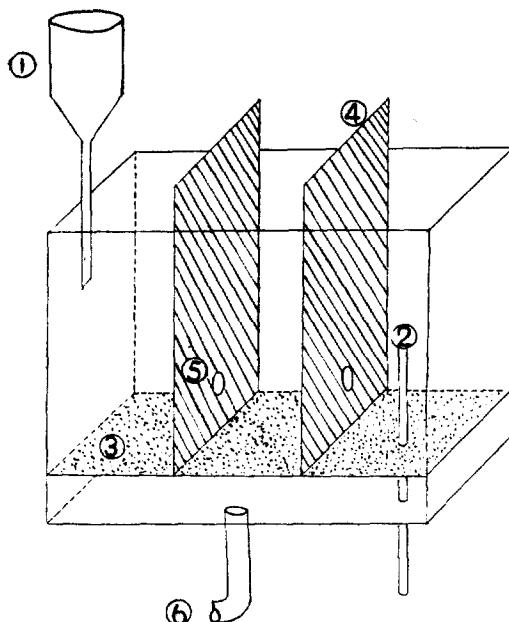


Fig. 5. Experimental Apparatus

- |                         |                  |
|-------------------------|------------------|
| ① Hopper                | ② Over flow pipe |
| ③ Distributor           | ④ Internal wall  |
| ⑤ Hole in internal wall | ⑥ Air inlet      |

粉體는 第 1 槽의 feeder로부터 連續的으로 供給시키고 第 N 槽의 溢流管으로부터 排出된다.

本 裝置의 크기는 높이가 60cm이며 1槽의 面積은  $6 \times 6\text{cm}^2$ 이고 溢流管은 內徑  $6\text{mm}$ 인 유리管을 整流板으로부터 9cm가 되었음 設置했다. 粉體의 靜止層高는 7cm이고 各槽間의 開孔은 整流板으로부터 3.5cm인 位置에 있고 開孔面積은  $3.14\text{cm}^2$ 로 했다.

本實驗에서 使用한 紛體는 sand로서 50~100mesh 및 100~150mesh의 것을 使用했으며 tracer도 粉體와 같은 粒徑의 NaCl을 使用했다.

于先 粉體의 供給速度와 排出速度가 같은 定常狀態가 되었을 때 第一槽에 tracer를 impulse狀으로 投入한 다음 第 N槽의 溢流管으로부터 排出되는 tracer濃度의 時間의 變化를 測定하였다.

Tracer는 約 10g를 投入했으며 Tracer의濃度는  $\text{K}_2\text{CrO}_4$ 를 indicator로 하여  $N/10 \text{AgNO}_3$ 溶液으로 滴定했다.

## 實驗結果 및 考察

Sand 50~100 mesh 및 100~150 mesh의 粉體에 對

해서 實驗한 結果를 理論에서부터 어느 程度의 偏倚가 생기는가를 檢討하기 위해서 Fig. 6 및 Fig. 7에 plot 했다.

本 實驗에서는 流速을  $11[\text{cm sec}^{-1}]$ 로 유지시켰고 이 때 粉粒體의 混合速度는  $3[\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}]$ 이다.

Fig. 6은 二槽에 있어서의 排出確率對 還算時間( $\theta$ )을 plot 한 것이며 Fig. 7은 三槽에서의 排出確率對 還算時間을 plot 한 것이다.

Fig. 1과 Fig. 2에 의하면 parameter  $\Gamma$ 의 值  $\Gamma=0^*$ 과  $\Gamma=\infty^{**}$ 의 간격이 너무 좁아서 實驗데이터의 整理上 매우 fluctuate해서  $\Gamma$ 의 值을 確認하기가 困難했다. データ 整理上 比較的 원만한  $z_2$  및  $z_3$ 의 積分值인 排出確率에 對해서 還算時間을 plot 한 것이 Fig. 6 및 Fig. 7이다.

Fig. 6 및 Fig. 7에 의하면 比較的 smooth한 曲線을 얻을 수 있으므로  $\Gamma$ 의 值을 確認할 수 있었다.

Table 1에 의하면 計算值와 實驗值가 30%의 誤差範圍內에서 比較的 잘 一致함을 알 수 있다.

## 結論

粉體로서 Sand 50~100 mesh 및 100~150 mesh를 使用했을 경우 多段流動層의 排出確率에 關한 式 (5) (6)이 주어진 誤差範圍內에서 實驗結果와 잘 一致함을 알 수 있다.

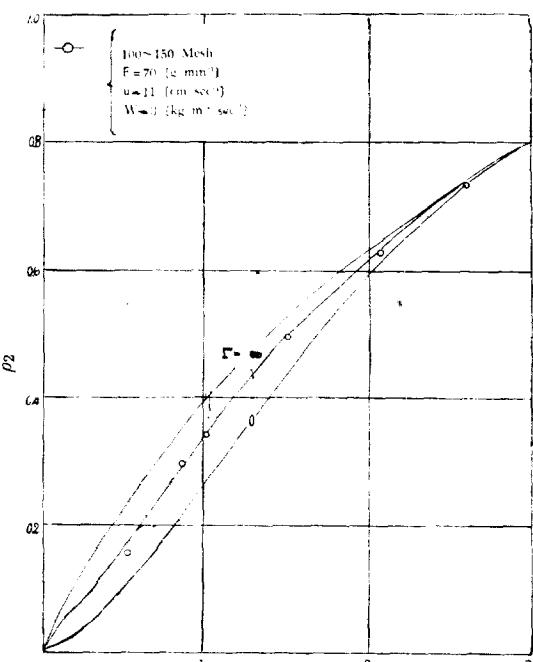


Fig. 6.  $\rho_2$  vs  $\theta$

\*  $\Gamma=0$  일 때는 神谷<sup>2)</sup>의 式과 같다.

\*\*  $\Gamma=\infty$  일 때는 單一槽의 경우의 流動層.

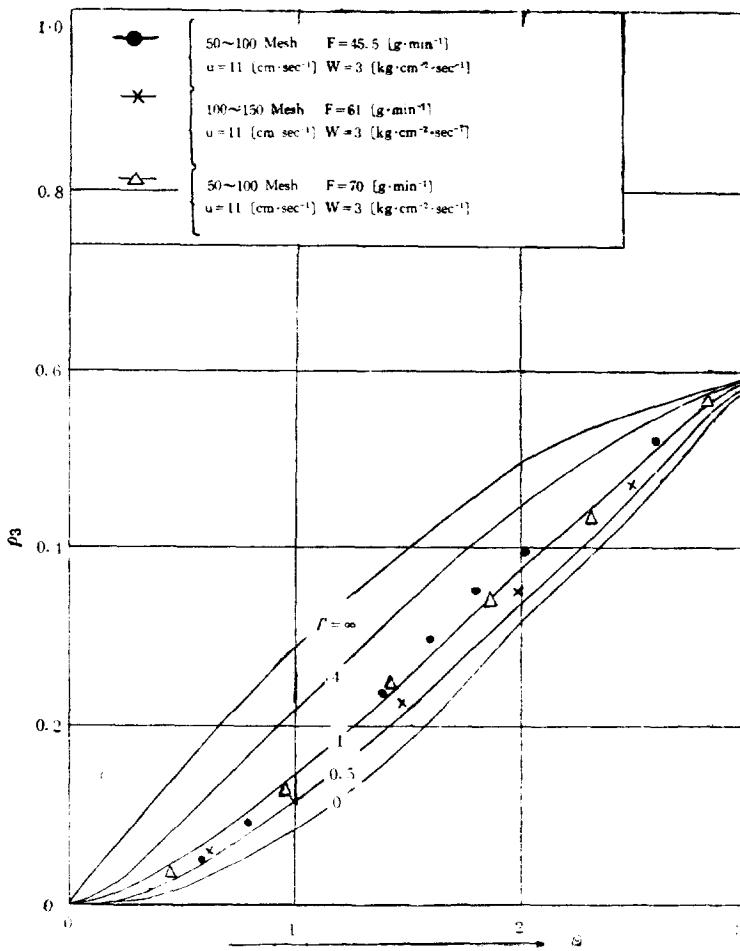


Fig. 7.  $\rho_3$  vs  $\Theta$

計算에 의해서 얻어진  $\Gamma_{cal}$  와 实驗에 의해서 얻어진  $\Gamma_{obs}$  를 比較한 것이 Table 1 이다.

Table 1. Comparison of  $\Gamma_{cal}$  and  $\Gamma_{obs}$ .

run	1	2	3	4
Partical size (mesh)	100~150	50~100	100~150	50~100
N	2	3	3	3
F g/min	70	45.5	61	70
$\Gamma_{cal}$	0.8	1.2	0.9	0.8
$\Gamma_{obs}$	1	1.5	0.7	1
$\frac{\Gamma_{obs} - \Gamma_{cal}}{\Gamma_{cal}} (\%)$	+25	+25	-30	+25

$$u=11[\text{cm}\cdot\text{sec}^{-1}] \quad W=3[\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}]$$

流动層을 多段化함으로서 粒子群의 流動特性을 피스톤流에 恰似하게 하려 할 때에는 各層內의 粒子混合速度를 把握할 必要가 있으며 이研究의 實驗範圍內에서는 미리 測定된 粒子混合速度로부터 算出된다. 테타  $\Gamma$  ( $= \frac{Wa_\phi}{F}$ ) 를 알 수 있어야 多段化時의 最終段流动層의 溢流管을 通하여 排出되는 粒子의 停留時間은 半理論的으로 豫測할 수 있음을 밝혔다.

### 記號 說明

$u$ : Linear gas velocity [ $\text{cm}\cdot\text{sec}^{-1}$ ]

$z_j$ : Trace fraction of j-th stage.

$W$ : Rate of solids mixing [ $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$ ]

$M$ : Mass of powder in unit stage [ $\text{kg}$ ]

$a_\phi$ : Opening area of hole of the internal wall [ $\text{m}^2$ ]

$\theta$ : Integral Time [sec]

$F$ : Rate of feeding [ $\text{g}\cdot\text{min}^{-1}$ ]

$\tau$ : Residence time [sec]

$$\tau = \frac{M}{F}$$

$\Gamma$ : Ratio of mixing and feeding rate

$$\Gamma = Wa_\phi/F$$

$\Theta$ : Reduced time

$$\Theta = \frac{\theta}{\tau}$$

$m$ : Mass of charged tracer [g]

$p_j$ : Discharge probability of jth stage.

### 参考文獻

1) 矢木, 口井: 化學工學(日本), 16, 283 (1952)

2) 神谷: 化學工學(日本) 19, 412, (1955)

3) Kasten, P. R., and Amundson, N. R.: Ind. Eng. Chem 42, 1341 (1950)

4) 中鹽, 坂井: 化學工學(日本), 24, 452 (1960)

5) 南宮, 鄭: 化學工學 2, 87 (1964)