Uvećanje sušionika s fluidiziranim slojem

Klarić, Dario

Master's thesis / Diplomski rad

2015

Degree Grantor / Ustanova koja je dodijelila akademski / stručni stupanj: **University of Zagreb, Faculty of Chemical Engineering and Technology / Sveučilište u Zagrebu, Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije**

Permanent link / Trajna poveznica: https://urn.nsk.hr/urn:nbn:hr:149:428047

Rights / Prava: In copyright / Zaštićeno autorskim pravom.

Download date / Datum preuzimanja: **2024-03-29**

FKITMCMXIX

Repository / Repozitorij:

Repository of Faculty of Chemical Engineering and Technology University of Zagreb

zir.nsk.hr

dabar
DIGITALNI AKADEMSKI ARHIVI I REPOZITORIJI

SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
FAKULTET KEMIJSKOG INŽENJERSTVA I TEHNOLOGIJE
SVEUČILIŠNI DIPLOMSKI STUDIJ

DARIO KLARIĆ

Uvećanje sušionika s fluidiziranim slojem

DIPLOMSKI RAD

Voditelj rada: Prof. dr. sc. Aleksandra Sander

Članovi ispitnog povjerenstva:

Prof. dr. sc. Aleksandra Sander

Izv. prof. dr. sc. Jasna Prlić Kardum

Doc. dr. sc. Igor Dejanović

Zagreb, srpanj 2015.

Sažetak

Prilikom uvećanja procesa potrebno je provesti eksperimente u više geometrijski sličnih uređaja, nakon čega slijedi određivanje kriterija uvećanja. Dimenzijska analiza se ne može uspješno primijeniti na sušenje zbog utjecaja velikog broja parametara na kinetiku sušenja i zbog istovremenog odvijanja procesa prijenosa količine gibanja, topline i tvari. Kompleksna hidrodinamika fluidiziranog sloja često dovodi do neujednačenih hidrodinamičkih uvjeta strujanja. Režim strujanja bitno se razlikuje u sušionicima različitih dimenzija.

U ovom radu je eksperimentalno istražena kinetika sušenja sferičnih čestica u dva laboratorijska geometrijski slična sušionika radi pronalaženja kriterija uvećanja. Mjerenja su provedena pri različitim brzinama strujanja zraka, temperaturama zraka te visinama mirujućeg sloja čestica. Eksperimentalno je određena minimalna brzina fluidizacije u oba sušionika. Promjer sušionika utječe na režim strujanja i fluidizacije, što za posljedicu ima sasvim drugačiju kinetiku sušenja. Kinetika sušenja opisana je Pageovim modelom, a parametri modela dovedeni su u vezu s uvjetima sušenja i promjerom sušionika. Na temelju dobivenih rezultata izvedeni su kriteriji uvećanja za fluidizaciju te kinetiku sušenja.

Ključne riječi: kinetika sušenja, kriterij uvećanja, minimalna brzina fluidizacije, sušenje s fluidiziranim slojem

Summary

When scaling-up a process the most common approach is to do experiments in several geometrically similar devices, after which the scale-up rules are determined. Dimensional analysis cannot be successfully applied to drying processes because of the simultaneous transfer of momentum, heat and matter and because the drying kinetics is influenced by a large number of parameters. Complex hydrodynamics in a fluidized bed often leads to uneven hydrodynamic flow conditions. The flow regime is significantly different in dryers of different dimensions.

In this work drying kinetics is experimentally determined for spherical particles in two geometrically similar laboratory dryers for the purpose of determining scale-up criteria. The experiments were carried out at different superficial gas velocities, temperatures and particle bed heights. Minimum fluidization velocity was experimentally determined in both dryers. Dryer's diameter influences the flow and fluidization regime which in result has effect on drying kinetics. The drying kinetics was described with the Page model and the model parameters were correlated with the drying conditions and dryer diameter. Also, based on the results, scale-up criteria for fluidization and drying kinetics were established.

Key words: drying kinetics, scale-up criteria, minimum fluidization velocity, fluidized bed drying

Sadržaj rada:

1. UVOD 1
2. TEORIJSKI DIO 3
2.1. Sušenje 3
2.1.1. Bilanca tvari i topline 3
2.2. Fluidizacija 5
2.2.1. Režimi fluidizacije 6
2.2.2. Klasifikacija praškastih materijala 8
2.2.3. Primjena fluidizacije 9
2.2.4. Dizajn uređaja s fluidiziranim slojem 10
2.2.5. Sušenje u fluidiziranom sloju 15
2.2.6. Definiranje radnog područja brzina strujanja zraka 16
2.3. Kinetika sušenja 19
2.3.1. Matematičko modeliranje kinetike sušenja 20
2.3.2. Procjena ukupnog koeficijenta prijenosa tvari 21
2.4. Uvećanje procesa 22
2.4.1. Razvoj procesa u fluidiziranom sloju 22
2.4.2. Princip sličnosti 24
2.4.3. Uvećanje procesa sušenja u fluidiziranom sloju 25
3. EKSPERIMENTALNI DIO 28
3.1. Svrha 28
3.2. Opis aparature 28
3.3. Materijal 29
3.4. Uvjeti provedbe procesa 29
3.5. Karakterizacija materijala 30
3.5.1. Rendgenska difrakcija 30
3.5.2. Mjerenje gustoće uzoraka 30
3.5.3. Tvrdoća 31
3.5.4. Određivanje specifične površine i raspodjele veličina pora 32
3.5.5. Određivanje poroznosti čvrstih čestica 34
3.5.6. Morfologija čestica i elementarna analiza 34
3.6. Metodika proračuna 35

3.6.1. Psihrometrijska metoda 35
4. REZULTATI 37
4.1. Karakterizacija materijala 37
4.2. Definiranje radnog područja 43
4.3. Kinetičke krivulje sušenja 46
4.4. Matematičko modeliranje procesa sušenja 50
4.5. Procjena ukupnog koeficijenta prijenosa tvari 56
4.6. Prenošenje rezultata u veće mjerilo 58
5. RASPRAVA 60
6. ZAKLJUČCI 67
7. POPIS SIMBOLA 68
7. LITERATURA 71
8. PRILOG 74
9. ŽIVOTOPIS 75

1. UVOD

Uvećanje procesa se primjenjuje kad se razvija novi proces ili nova procesna oprema s ciljem dimenzioniranja uređaja na industrijskoj razini proizvodnje koji će osigurati željenu kvalitetu proizvoda. Veličina procesne opreme utječe na provedbu procesa. Poznat je slučaj uvećanja Fischer-Tropschovog procesa u Njemačkoj 1925. kada je na temelju eksperimenata u reaktorima promjera 0,10m, 0,20m i 0,30m reaktor uvećan na sedam metara, no iskorištenje u velikom reaktoru je bilo tek 50% iskorištenja u manjim reaktorima.[1] Taj problem proizlazi djelomično i iz činjenice da se radi o procesu u fluidiziranom sloju koji je zbog svoje kompleksne hidrodinamike teško prenijeti u veće mjerilo.

Procesi koji se provode u fluidiziranom sloju nalaze veliku primjenu u industriji. Sušenje u fluidiziranom sloju česta je metoda sušenja čestičnih materijala [2]. Tijekom sušenja odvijaju se istovremeno procesi prijenosa količine gibanja, topline i tvari. Složena hidrodinamika procesa sušenja u fluidiziranom sloju otežava prenošenje rezultata iz laboratorijskog u veće mjerilo (poluindustrijsko i industrijsko) [3]. Ne postoji jedinstveno pravilo uvećanja, a njegovo određivanje svodi se na provođenje velikog broja eksperimenata u uređajima različitih veličina i definiranja uvjeta u kojima se dobiva željeni rezultat. Uvećanje procesa sušenja, kao i sušenja u fluidiziranom sloju u velikoj se mjeri oslanja na eksperimentalna istraživanja i iskustvena pravila, a dobiveni su rezultati direktno povezani i primjenljivi na istraživani sustav i odgovarajuće radne uvjete.

Razvoj pravila uvećanja započinje u laboratorijskom mjerilu. Laboratorijsko mjerilo služi za određivanje bitnih parametara procesa, bezdimenzijskih značajki i simpleksa koji se, prema pravilu sličnosti, moraju u svim mjerilima održavati konstantnima. Međutim, postoje procesi kod kojih se izvedena pravila uvećanja ne mogu primijeniti, jer geometrijska sličnost ne osigurava dinamičku, toplinsku i koncentracijsku sličnost. Sušenje je proces na koji utječe veliki broj parametara pa nije moguće provesti dimenzijsku analizu koja bi rezultirala korelacijskom jednadžbom, odnosno pravilom uvećanja. Zbog složenog višefaznog strujanja, hidrodinamika je vrlo kompleksna pa se uobičajena pravila uvećanja ne mogu primijeniti. Režimi strujanja nisu isti u svim mjerilima, zbog čega su različiti i režimi fluidizacije [4]. Kao posljedica toga, isti uzorak u sušionicima različitih promjera ima različite minimalne brzine fluidizacije. Literatura nudi kriterije uvećanja koji uglavnom ne sadrže član koji se odnosi na geometrijske karakteristike sušionika, odnosno faktor uvećanja *R*. Novija istraživanja temelje

se na teoriji kaosa zbog kaotičnog gibanja čestica u fluidiziranom sloju [5]. Za definiranje kriterija uvećanja sušionika s fluidiziranom sloju neophodno je poznavanje utjecaja uvjeta provedbe procesa na kinetiku sušenja, što uključuje provođenje velikog broja eksperimenata i matematičko modeliranje kinetike sušenja. Potrebno je istražiti utjecaj brzine strujanja zraka, temperature i relativne vlažnosti zraka te visine sloja čestica na kinetiku i parametre matematičkog modela. Provođenjem eksperimenata u više (dva ili tri) geometrijski sličnih uređaja u laboratorijskom mjerilu dobiva se pouzdaniji kriterij uvećanja.

U ovom radu istraživan je utjecaj uvjeta provedbe procesa na kinetiku sušenja sferičnih čestica katalizatora različitih veličinskih frakcija. Mjerenja su provedena u dva geometrijski slična sušionika različitih promjera u svrhu definiranja kriterija uvećanja. Eksperimentalni podaci su aproksimirani odabranim matematičkim modelima te je određen utjecaj uvjeta provedbe procesa i veličine sušionika na parametre matematičkih modela. Na taj je način omogućeno predviđanje minimalne brzine fluidizacije i kinetičke krivulje sušenja u većem mjerilu.

2. TEORIJSKI DIO

2.1. Sušenje

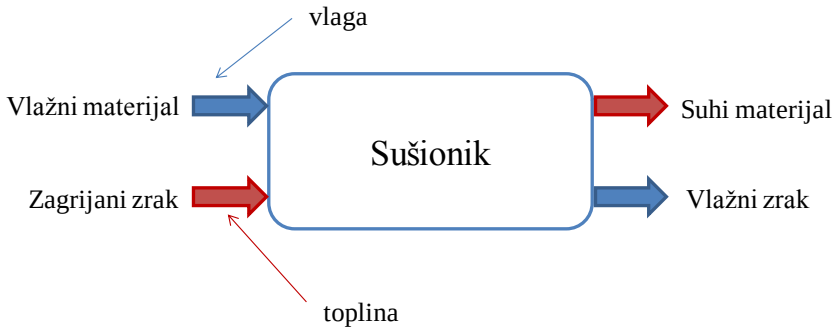
Sušenje je toplinski proces uklanjanja vlage iz vlažnog materijala dovođenjem topline u svrhu dobivanja suhog čvrstog proizvoda. Materijal s određenim postotkom vlage te zagrijani zrak, koji donosi toplinu, ulaze u sušionik. Dolazi do prijenosa tvari i topline. Iz sušionika izlazi suhi materijal i vlažni zrak. Suhi materijal je predao svoju vlagu zraku te na sebe preuzeo toplinu, dok je vlažni zrak preuzeo vlagu s materijala. Sušenje je izrazito složeni proces koji se koristi u mnogim industrijskim granama. Za vrijeme sušenja dolazi do već spomenutih procesa prijenosa tvari (do površine materijala i isparavanje u okolinu) i topline (isparavanje površinske vlage i zagrijavanje materijala), te do procesa prijenosa količine gibanja (zbog strujanja zraka) kao i do promjene fizikalnih svojstava. Zbog toga se istraživanja temelje na eksperimentalno dobivenim podacima te postavljanju odgovarajućih matematičkih modela za opis kinetike sušenja.

Na proces sušenja osim, procesnih uvjeta, utječe i sam sušionik. Procesni uvjeti uključuju svojstva materijala i zraka. Bitna svojstva materijala su poroznost, oblik čestica, raspodjela veličina čestica, početni sadržaj vlage te stabilnost materijala, a bitna svojstva zraka su temperatura i tlak zraka, vlažnost i brzina strujanja zraka. Što se tiče sušionika,bitne su geometrijske karakteristike sušionika, princip rada sušionika, način dovođenja topline te stanje materijala, odnosno da li je materijal u fluidiziranom sloju, na pokretnoj traci ili u mirujućem sloju. Sušionik može biti šaržni ili kontinuirani, a toplina se materijalu može dovoditi konvekcijski, kondukcijski, radijacijski ili korištenjem visokofrekventnog elektromagnetskog polja prilikom mikrovalnog i infracrvenog sušenja [6].

2.1.1. Bilanca tvari i topline

Osnovni proračun procesa sušenja uključuje proračun bilance tvari i topline, potrošnju zraka te potrošnju energije kao i metodu uštede energije.

Bilanca tvari za bilo koji sušionik polazi od dvije pretpostavke. Prva pretpostavka je da se koristi potpuno izolirani proces, adijabatski proces, što znači da za vrijeme rada nema gubitaka topline. Druga pretpostavka je da nema odnošenja materijala sa zrakom. To znači da su maseni protoci suhog materijala i suhog zraka isti na ulazu i na izlazu iz sušionika. Shematski prikaz sušionika s ulaznim i izlaznim strujama prikazan je na slici 1.



Slika 1. Shematski prikaz sušionika

Masa vlage koju materijal izgubi tijekom sušenja jednaka je masi vlage koju je zrak primio na sebe tijekom sušenja. To je prikazano u jednadžbi (1) koja vrijedi za stacionarno stanje.

$$X_0 \cdot m_{sm} + Y_0 \cdot m_{sz} = X_{kon} \cdot m_{sm} + Y_{kon} \cdot m_{sz} \tag{1}$$

Brzina isparavanja vode može se odrediti gravimetrijski, preko mase suhoga materijala ili psihrometrijski, preko mase suhoga zraka.

$$m_v = m_{sm} \cdot \left(X_0 - X_{kon}\right) = m_{sz} \cdot \left(Y_{kon} - Y_0\right) \tag{2}$$

Bilanca topline postavlja se uz uvjet da nema gubitaka. Onoliko koliko je topline potrošeno na zagrijavanje materijala i isparavanje vode toliko je topline moralo biti dovedeno zrakom.

$$\begin{aligned} &m_{sm} \cdot \left[\left(H_{sm}\right)_0 + X_0 \cdot \left(H_{vode}\right)_0 - \left(H_{sm}\right)_{kon} - X_{kon} \cdot \left(H_{vlage}\right)_{kon}\right] = \\ &m_{sz} \cdot \left[\left(H_{sz}\right)_0 + Y_0 \cdot \left(H_{vode}\right)_0 - \left(H_{sz}\right)_{kon} - Y_{kon} \cdot \left(H_{vlage}\right)_{kon}\right] \end{aligned} \tag{3}$$

Za sustav voda – zrak – vlažni materijal može se pisati:

$$\begin{aligned} &m_{sm} \cdot \left[c_{p,sm} \cdot \left(T_{sm} - T_0\right) + X_{kon} \cdot \left(H_{vode}\right)_{kon} - X_0 \cdot \left(H_{vode}\right)_0\right] = \\ &m_{sz} \cdot \left[c_{p,z} \cdot \left(T_{z0} - T_{zkon}\right) + Y_0 \cdot \left(H_{vode}\right)_0 - Y_{kon} \cdot \left(H_{vode}\right)_{kon}\right] \end{aligned} \tag{4}$$

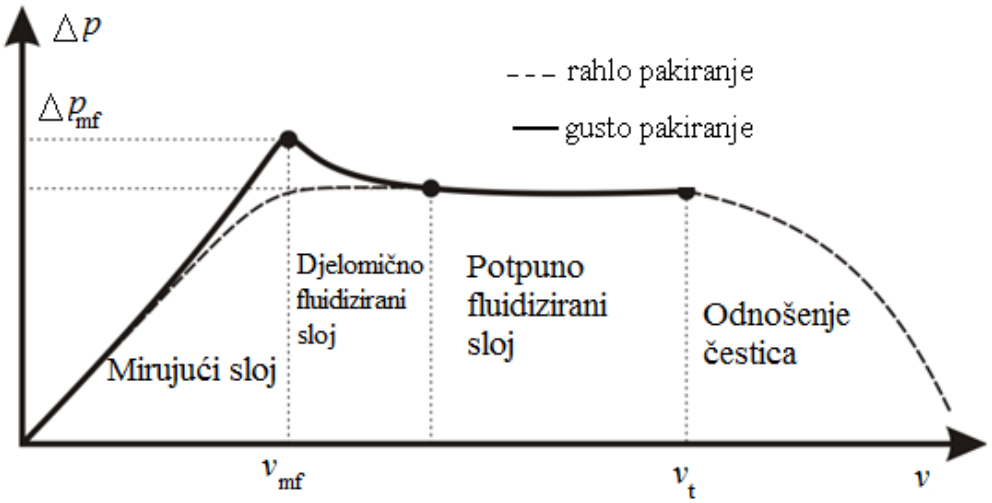
Kombinacijom bilance tvari i bilance topline dolazi se do pojednostavljenog izraza koji omogućuje izračun količine topline potrebne za proces poznavanjem svojstava zraka:

$$Q = m_{sm} \cdot \left\{ \begin{matrix} c_{p,sm} \cdot (T_{sm} - T_0) + X_0 \cdot c_{p,vode} \cdot (T_v - T_0) + \\ X_{kon} \cdot c_{p,vode} \cdot (T_{kon} - T_v) + (X_0 - X_{kon}) \cdot \left[\lambda_{T_v} + c_{p,vode(g)} \cdot (T_{kon} - T_v) \right] \end{matrix} \right\} = \\ m_{sz} \cdot \left\{ \left[c_{p,z} + Y_0 \cdot c_{p,vode(g)} \right] \cdot (T_{z0} - T_{zkon}) \right\} \quad (5)$$

2.2. Fluidizacija

Fluidizacija je jedinična operacija kojom se sloj čvrstih čestica prevodi u pseudohomogeni sustav i takvim se održava. Takav sustav karakterizira ponašanje smjese kao fluida, te intenzivno miješanje čestica unutar sloja kao i njihovo miješanje sa sredstvom za fluidizaciju (kapljevinom ili plinom). Fluidizacija se postiže uzlaznim strujanjem plina ili kapljevine kroz sloj praškastog ili granuliranog materijala postavljenog na nosač.

Fluidizacija se može postići i mehaničkim putem tako da se čestice pobude vibracijama. To omogućuje fluidizaciju bez strujanja ili sa smanjenom brzinom strujanja fluida. Stvaranje mjehurića u fluidiziranom sloju, koji smanjuju površinu prijenosa tvari i topline, može se uvelike smanjiti u odnosu na nepotpomognutu fluidizaciju. Prašci skloni aglomeriranju također pokazuju bolju fluidizaciju pri upotrebi vibro-fluidizacije [7] Ova tehnika se koristi komercijalno u sušenju i drugim primjenama. [8]



Slika 2. Dijagram pada tlaka fluidizacije

Sloj čestica dovodi se u fluidizirano stanje kada se sila otpora strujanju zraka kroz mirujući sloj izjednači s težinom čestica:

$$\Delta p_{fs} \cdot A = A \cdot L_{fs} \cdot (1 - \varepsilon_{fs}) \cdot g \tag{6}$$

Pritom, sloj čestica počinje ekspandirati jer se čestice u njemu počinju pregrupirati kako bi pružale što manji otpor strujanju fluida. Kao što se vidi na slici 2., ostvaruju se dvije vrste pakovanja: gusto (ε_S), pri povećanju površinske brzine i rahlo (ε_L). Ako brzina i dalje raste pojedine čestice se razdvajaju i počinju lebdjeti u fluidu. Daljnje povećanje brzine strujanja fluida uzrokuje daljnje razdvajanje čestica pri čemu je pad tlaka u sloju konstantan [9].

Prijelaz u stanje fluidizacije pri minimalnoj brzini određen je ravnotežom pada tlaka fluidizacije i pada tlaka u poroznom sloju. Pri laminarnom strujanju kroz sloj sitnih čestica (Re< 20) uzima se u obzir samo prvi član Ergunove jednadžbe pa je minimalna brzina kod koje počinje fluidizacija:

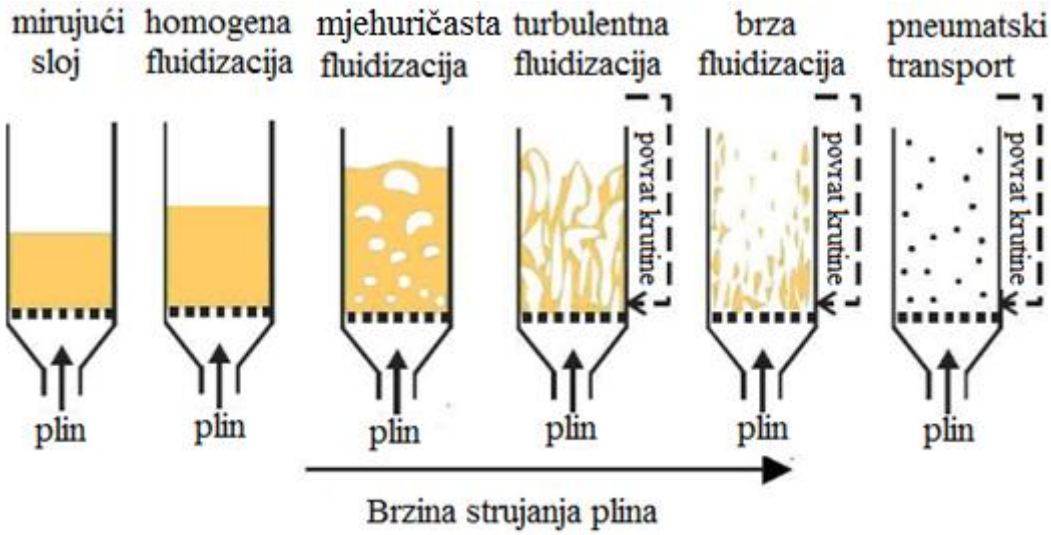
$$v_{mf} = \frac{1}{150} \frac{(\rho_d - \rho_f) x_{ST}^2 g}{\eta} \frac{\varepsilon_{mf}^3}{1 - \varepsilon_{mf}} \tag{7}$$

2.2.1. Režimi fluidizacije

Procesi prijenosa tvari i topline u velikoj mjeri ovise o uvjetima strujanja i kvaliteti miješanja unutar sloja koji su posljedica različitih režima fluidizacije. Ovisno o brzini strujanja fluida, te svojstvima fluida i čvrstih čestica, ustanovljeni su različiti režimi fluidizacije koji su ilustrirani na slici 3.

Porastom brzine strujanja plina kroz mirujući sloj čestica pad tlaka kroz sloj raste sve do postizanja minimalne brzine fluidizacije kada je pad tlaka dovoljno velik da podigne i fluidizira čestice. Stanje fluidiziranosti počinje pri minimalnoj brzini fluidizacije v_{mf}. Prvi režim fluidizacije naziva se *početna* ili *homogena fluidizacija*. Takav režim fluidizacije karakterizira ekspanzija fluidiziranog sloja te jednolika raspodjela plina i čestica po čitavom volumenu fluidiziranog sloja. Kako brzina strujanja plina raste dolazi do *mjehuričastog režima fluidizacije*, odnosno agregativne fluidizacije. Ovaj režim počinje kada se dosegne minimalna brzina potrebna za stvaranje mjehurića, v_{mb} (engl. *minimal bubbling velocity*). Na dnu fluidiziranog sloja počinju se stvarati mjehurići zraka pa se mogu prepoznati dvije faze u

fluidiziranom sloju: mjehurići zraka i fluidizirani sloj (emulzijska faza). Kako se mjehurići dižu prema gore rastu i pucaju na površini fluidiziranog sloja izbacujući čestice u slobodni prostor posude za fluidizaciju.



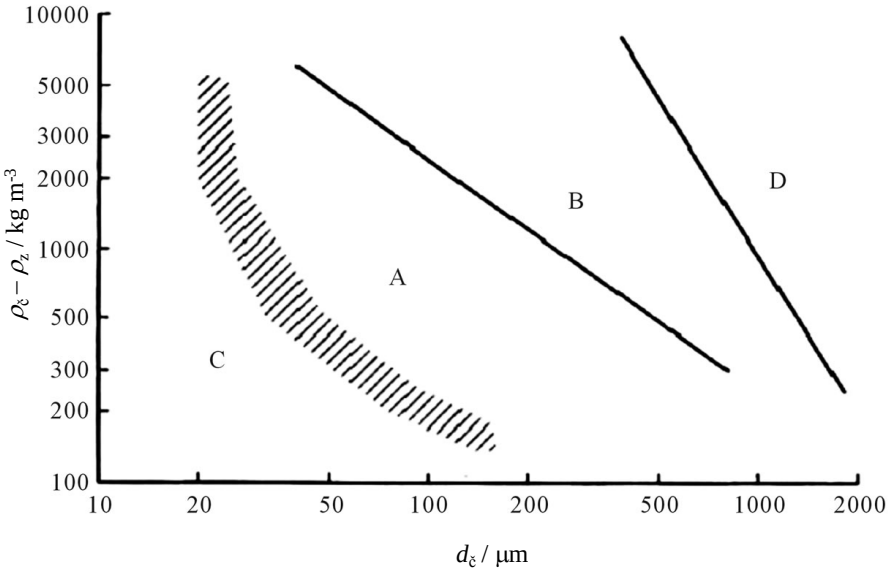
Slika 3. Režimi fluidizacije

Turbulentni režim se doseže kada se postigne brzina, v_c, pri kojoj čestice ne padaju natrag u fluidizirani sloj, već se odnose u slobodni prostor posude za fluidizaciju gdje dostignu visinu TDH (engl. *Terminal Disengagement Height*) i vraćaju se natrag u fluidizirani sloj. Pri takvim uvjetima, unatoč tome što mjehurići često izgube oblik, fluidizirani slojevi s jasno definiranom granicom faza nazivaju se turbulentni fluidizirani slojevi. *Brza fluidizacija* je režim fluidiziranja koji karakterizira veći udio plinovite faze dok granica između fluidiziranog sloja i slobodnog prostora postaje slabo definirana zbog povećanog protoka plina. Prijelazna brzina iz turbulentnog režima u brzu fluidizaciju se naziva *transportna brzina*, v_{tr}. *Pneumatski transport* je postignut kada dolazi do odnošenja čestica sa strujom plina. Ovisno o željenom efektu, uređaj s fluidiziranim slojem može raditi u bilo kojem režimu fluidizacije. Najčešće se koristi fluidizirani sloj u turbulentnom režimu zbog prednosti nad mjehuričastim i režimom brzog transporta. Te prednosti su dinamični kontakt plina i čestica, brza izmjena plina između mjehurića i emulzijske faze te relativno jednolika fluidizacija. [10]

Tijekom fluidizacije materijali ne prolaze kroz sve režime fluidizacije, što ovisi o fizikalnim svojstvima sustava (veličina čestica, gustoća čestica i fluida).

2.2.2. Klasifikacija praškastih materijala

Ponašanje čvrstih čestica fluidiziranih plinom prema Geldartu [11] može se klasificirati u četiri jasno prepoznatljive grupe koje karakterizira razlika gustoća (ρ_s - ρ_f) i srednja veličina čestica, slika 4.



Slika 4. Geldartova klasifikacija praškastih materijala

Materijali grupe A su prašci male gustoće (manje od približno 1,4 g/cm^3) i/ili male srednje veličine (20-100μm). U tu grupu spada većina komercijalnih katalizatora za reaktore s fluidiziranim slojem, a tipičan primjer je katalizator za katalitički kreking nafte. Do ekspanzije sloja čestica dolazi nakon postizanja minimalne brzine fluidizacije te prije početka stvaranja mjehurića.

Grupa B sadrži većinu materijala srednje veličine i gustoća u rasponu 40μm<d<500μm, 4 g/cm^3>ρ>1,4 g/cm^3. Pijesak je tipičan primjer materijala koji spada u grupu B. U suprotnosti od grupe A, formiranje mjehurića počinje pri ili samo malo iznad minimalne brzine fluidizacije. Sloj ekspandira u maloj mjeri, a nakon prestanka dobave plina vrlo brzo se smiri. Veličina mjehurića se linearno povećava s eksces brzinom strujanja plina (v – v_{mf}) i koalescencija je dominantni fenomen. Veličina mjehurića ne ovisi o srednjoj veličini čestica i raspodjeli veličina čestica.

Grupa C sadrži kohezivne praške koje je teško prevesti u fluidizirano stanje. Prašak se podiže kao čep s kanalima malih promjera koji se protežu od dna sloja do površine sloja kroz koje plin struji. Takvo ponašanje proizlazi iz činjenice da su međučestične sile vezanja veće od sila koje plin može narinuti na njih. Tako snažne veze su često posljedica veoma malene

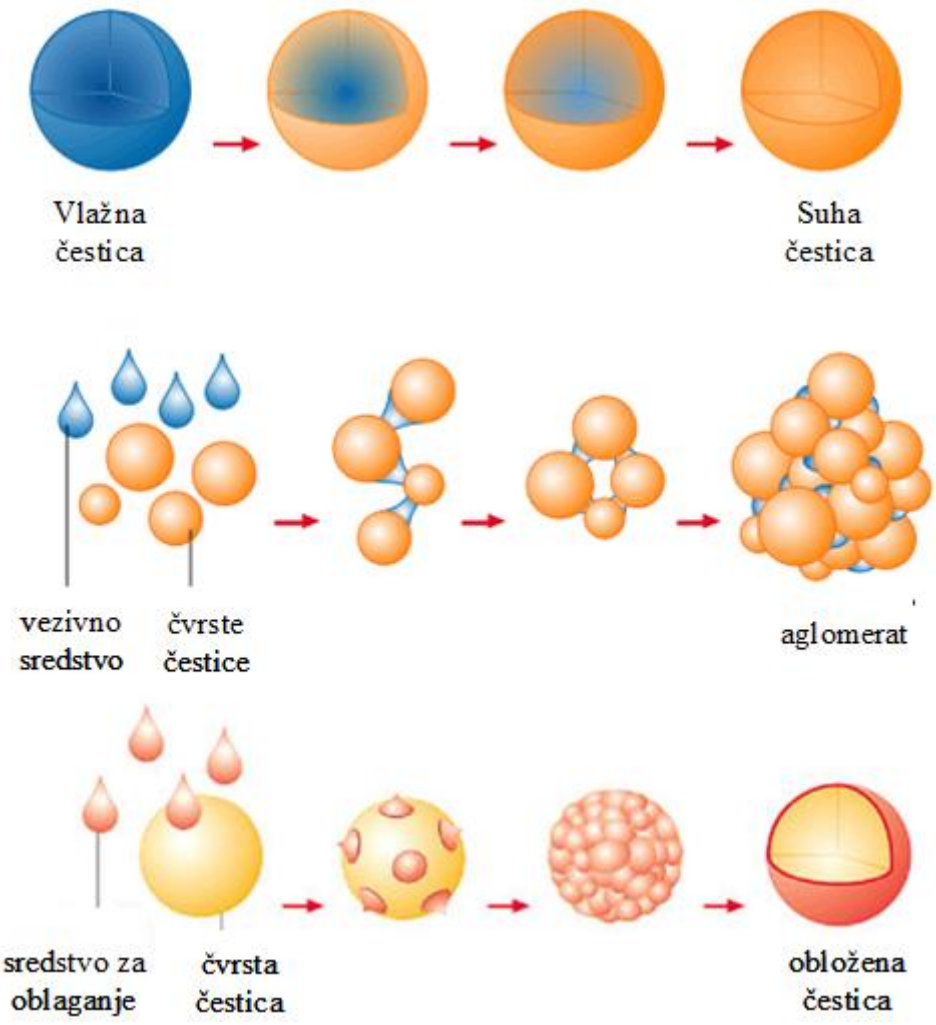
veličine čestica, snažnog elektrostatskog naboja ili prisutnosti veoma vlažnog ili ljepljivog materijala unutar sloja. Kao posljedica toga, miješanje čestica i prijenos tvari i topline je znatno lošiji od materijala grupe A ili B. Fluidizacija se može poboljšati ili potaknuti pomoću mehaničkih miješala unutar sloja ili vibrirajućih tijela koja razbijaju stabilne kanale.

Grupa D se odnosi na čestice velikih dimenzija i većih gustoća. Svi osim najvećih mjehurića se dižu kroz sloj sporije od međučestične brzine strujanja plina, tako da plin struji u bazu mjehurića i izlazi na vrh, pokazujući način strujanja plina koji je različit od onog za grupu A ili B. Brzina strujanja plina unutar sloja je velika, a miješanje čestica je slabo. Režim strujanja oko čestica grupe D može biti turbulentan, što uzrokuje trošenje čestica i nastajanje finog praška koji se izdvaja iz sloja. Ukoliko se struja plina uvodi kroz središnje smještenu mlaznicu, materijale grupe D se može natjerati da tvore mlazni način fluidiziranja [11].

2.2.3. Primjena fluidizacije

Fluidizacija ima široku primjenu kao proces kontaktiranja u svakom procesu u kojem je potreban intenzivni prijenos tvari i energije, kao što su procesi oblaganja, aglomeriranja, granuliranja (slika 5) i sušenja, te u reakcijskim procesima gdje se primjenjuje praškasti katalizator u reaktorima s fluidiziranim (vrtložnim) slojem.

Brzina strujanja radnog fluida je definirana sustavom s kojim se radi. Proces fluidizacije je energetski intenzivan proces jer sav radni medij mora biti u stanju potrebnom za provođenje procesa (grijanje, hlađenje, odvlaživanje...), a kako protoci često nisu mali tada su i energetske potrebe za pripremu radnog medija velike. [8]



Slika 5. Neke primjene procesa s fluidiziranim slojem

2.2.4. Dizajn uređaja s fluidiziranim slojem

Glavni dijelovi uređaja s fluidiziranim slojem su:

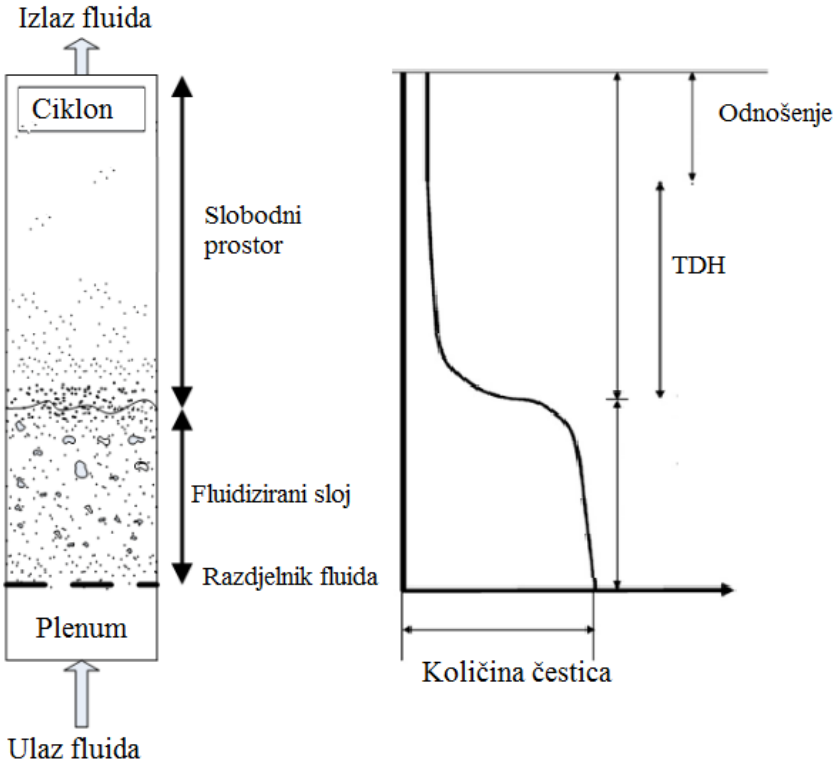
1. Posuda za fluidizaciju (kolona)
    a. Dio za fluidizirani sloj
    b. Slobodni prostor iznad fluidiziranog sloja (engl. *Disengagement space*)
    c. Razdjelnik plina
2. Otvor za ulaz krutine
3. Otvor za izlaz krutine
4. Separator prašine za izlazne plinove
5. Instrumentacija
6. Dobava plina

Najčešći oblik posude za fluidizaciju je vertikalni cilindar, no nema ograničenja oblika. Specifični dizajn varira u ovisnosti o uvjetima provedbe procesa, dostupnom prostoru i upotrebi. Izbjegava se uporaba pomičnih dijelova radi jednostavnije izvedbe. Jedna od češćih izvedbi je posuda s kosim stijenkama. Poput posude za vrenje kapljevine, posuda za fluidizaciju mora imati prostor za vertikalnu ekspanziju krutine i prostor iznad fluidiziranog sloja koji osigurava da se materijal koji je izbačen iz fluidiziranog sloja vrati natrag. Poprečni presjek kolone određuje volumetrijski protok zraka te minimalnu brzina fluidizacije i brzinu odnošenja čestica. Maksimalni protok zraka definiran je brzinom odnošenja, što je povezano i s dimenzijama slobodnog prostora iznad fluidiziranog sloja.

Visinu fluidiziranog sloja određuje niz faktora kao što su:

1. Vrijeme kontakta plina s krutinom
2. *H/D* omjer
3. Prostor potreban za unutarnje izmjenjivače topline
4. Vrijeme zadržavanja krutina (za kontinuirane procese)

Mnogi procesi u fluidiziranom sloju se provode pri povišenim temperaturama, stoga je za tu uporabu čelik obložen reflektirajućom plohom najekonomičniji odabir. Reflektirajuća ploha ima dvije uloge: (1) izolira metal od povišenih temperatura i (2) štiti metal od abrazije krutinom, posebice pri vrhu fluidiziranog sloja, gdje mjehurići koji se uzdižu iz sloja prsnu i šalju čestice velikim brzinama prema stijenci. Toplinska izolacija igra bitnu ulogu ne samo zbog smanjenja gubitka topline već i zbog sprječavanja pojavljivanja hladnih točaka (engl. *cold spots*) na kojima može doći do kondenziranja vode i velike brzine korozije. [1]



Slika 6. Podjela prostora za fluidizaciju [12]

Tablica 1. Korelacije za izračun *TDH* [13]

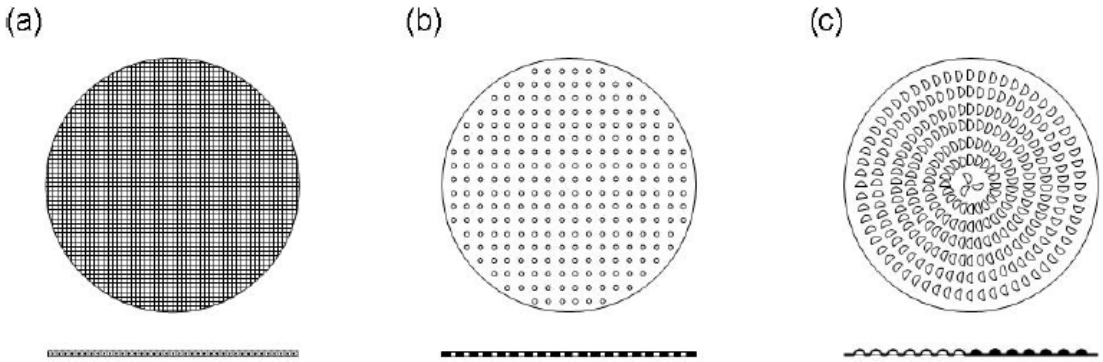
Jednadžba	Autori
1 $TDH = 0{,}85 \cdot v \cdot (7{,}33 - 1{,}2 \log v)$	Chan i Knowlton (1984.)
2 $TDH = 1000 \frac{v^2}{g}$	Fournol et al. (1973.)
3 $TDH = 18{,}2 d_b$	George i Grace (1978)
4 $TDH = 13{,}8 d_b$	Fung i Hamdullahpur (1993)
5 $TDH = 1500 \frac{H_b \, \mathrm{Re}_p}{Ar}$	Sciazko et al. (1991.)

Slobodni prostor iznad fluidiziranog sloja (engl. *disengagement space; freeboard*) čini visina između vrha fluidiziranog sloja i vrha kolone. U fluidiziranom sloju razvijaju se mjehuri fluida koji putuju prema vrhu fluidiziranog sloja. Kada mjehur dosegne gornju plohu fluidziranog sloja, fluid se probija kroz tanki gornji sloj čestica i odnosi dio njih izvan sloja. Praznina u obliku kratera se brzo popunjava fluidiziranim česticama i kada se te čestice susretnu u sredini praznine, one se potisnu prema gore. Na čestice djeluje gravitacija i sila

otpora fluida. Udaljenost od fluidiziranog sloja na kojoj količina odnošenih čestica postaje konstantna naziva se *transport disengagement height, TDH* (slika 6). Cikloni i izlaz za plin se nalaze iznad *TDH*. *TDH* ovisi o svojstvima čestica, dimenzijama sušionika, fluidiziranog sloja i uvjetima strujanja. Postoji niz korelacija za procjenu *TDH* koje su prikazane u tablici 1.

Razdjelnik plina

U uređaju s fluidiziranim slojem razdjelnik plina je dio kolone (posude za fluidizaciju) koji odjeljuje fluidizirani sloj od plenuma, prostora ispod fluidiziranog sloja. Razdjelnik plina (često nazivan rešetka) služi i kao nosač fluidiziranog sloja te ima veliki utjecaj na hidrodinamičke uvjete strujanja. Dobro dizajnirani razdjelnik plina osigurava jednoliku i stabilnu fluidizaciju kroz čitav poprečni presjek, sprječava pojavu nefludiziranih dijelova sloja na rešetci, radi duge vremenske periode (godinama) bez začepljenja ili kidanja, minimizira upadanje materijala u plenum, minimizira trošenje materijala u fluidiziranom sloju i podržava težinu sloja pri uhodavanju i gašenju pogona. [14]



Slika 7. Vrste razdjelnika plina:
a) razdjelnik od metalne mreže, b) porozni razdjelnik i c) perforirani razdjelnik [14]

Prilikom mjehuričaste fluidizacije razdjelnik plina ima značajan utjecaj na veličinu mjehurića, ovisno o tipu razdjelnika i dimenzijama te količini rupica po jediničnoj površini. Na razdjelniku nastaju inicijalni mjehurići koji uzdizanjem kroz sloj rastu, koalesciraju i pucaju na površini. Dimenzije inicijalnih mjehurića određuju dimenzije mjehurića kroz sloj. Razvijen je niz korelacija za proračun dimenzija inicijalnih mjehurića od kojih je najkorištenija autora Miwa et al. [15] Dimenzije mjehurića ovise o vrsti razdjelnika plina (slika 7), stoga postoji korelacija

$$d_0 = 0{,}00376 \cdot (v - v_{mf})^2 \tag{8}$$

za porozni razdjelnik plina i

$$d_0 = 0{,}00376 \cdot \left(\frac{A(v - v_{mf})}{n} \right)^{0,4} \tag{9}$$

gdje je *A* površina poprečnog presjeka razdjelnika, a *n* broj otvora na poroznom razdjelniku plina.

Darton et. al daje korelaciju za predviđanje promjera mjehurića

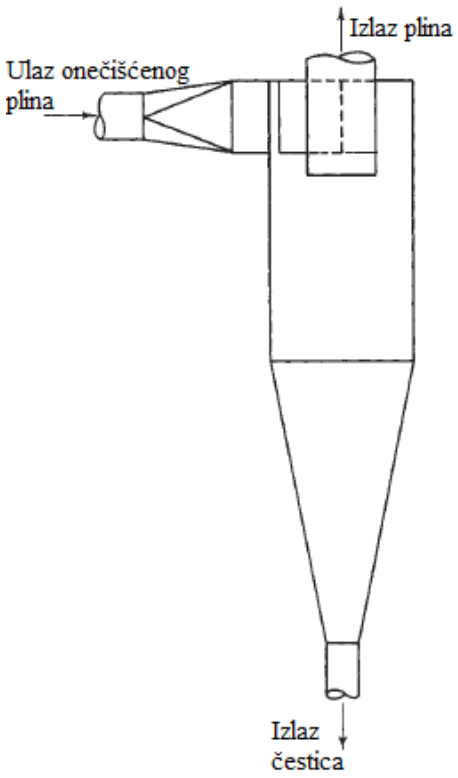
$$d_b = \frac{0{,}54(v - v_{mf})^{0,4} \left(h + 4\sqrt{A_t / N_0} \right)^{0,8}}{g^{0,2}} \tag{10}$$

koji je funkcija visine na kojoj se nalazi mjehurić u fluidiziranom sloju, *h,* razlike između brzine strujanja i minimalne brzine fluidizacije te površine dristributora po otvoru, A_t / N_0. [15]

Separator prašine za izlazne plinove

Krutine koje su odnesene sa strujom plina potrebno je ukloniti iz plina radi kontrole zagađenja zraka, da bi se zaštitila oprema koja slijedi nakon uređaja s fluidiziranim slojem te da bi se spriječio gubitak materijala koji se može recirkulirati u fluidizirani sloj. Najčešće korišteni uređaj je ciklon (slika 8) kojim se uklanjaju veće čestice, nakon kojega može slijediti filtar za zrak. Moguća je primjena filtara bez ciklona.

Ciklon se sastoji od ulazne komore i konusnog dijela u kojem se odvija intenzivno vrtloženje, sabirne komore za prah te izlazne cijevi za plin koja je uronjena u unutrašnjost ciklona prikazane na slici. Onečišćeni plin uvodi se tangencijalno, što uzrokuje rotacijsko gibanje plina i čestica. Stvara se dvostruki vrtlog u kojem plin kreće najprije na periferiji aparata spiralno odozgo prema dolje, a onda kroz sredinu komore odozdo gore pa kroz izlaz za plin. Centrifugalna sila nosi čvrste čestice prema zidu ulazne i konusne komore s koje se gibaju prema komori za sakupljanje čestica. [9]



Slika 8. Shematski prikaz ciklona

Instrumentacija

Instrumentacija uključuje mjerne instrumente potrebne za praćenje procesa unutar uređaja s fluidiziranim slojem. Specifični procesi zahtijevaju određenje instrumente, no općenito moraju biti prisutni instrumenti za mjerenje temperature, tlaka i protoka. [1]

2.2.5. Sušenje u fluidiziranom sloju

Sušionicima s fluidiziranim slojem se mogu sušiti različiti materijali. Starije izvedbe su omogućavale sušenje prašaka i granula, no novije izvedbe (sušionici s vibrirajućim elementima, mehaničkim miješanjem,...) omogućuju i sušenje muljeva, suspenzija i pasta. Tako širok raspon materijala dovodi do primjene u nizu industrija kao što su prehrambena, farmaceutska, keramička, polimerna, poljoprivredna i za obradu otpadnih muljeva, slika 9.

Sušionici s fluidiziranim slojem mogu se koristiti kao zasebni sušionici, ali često se primjenjuju i kao pomoćni uređaji za dosušivanje, npr. sušionik s fluidiziranim slojem koji dodatno osuši tvar nakon njenog sušenja u sušioniku s raspršivanjem.



Slika 9. Industrijska primjena procesa s fluidiziranim slojem

Neke od prednosti korištenja sušionika s fluidiziranim slojem su:

- velike brzine sušenja
- visoka toplinska efikasnost
- niži troškovi u usporedbi s rotirajućim sušionicima
- jednostavna kontrola procesa

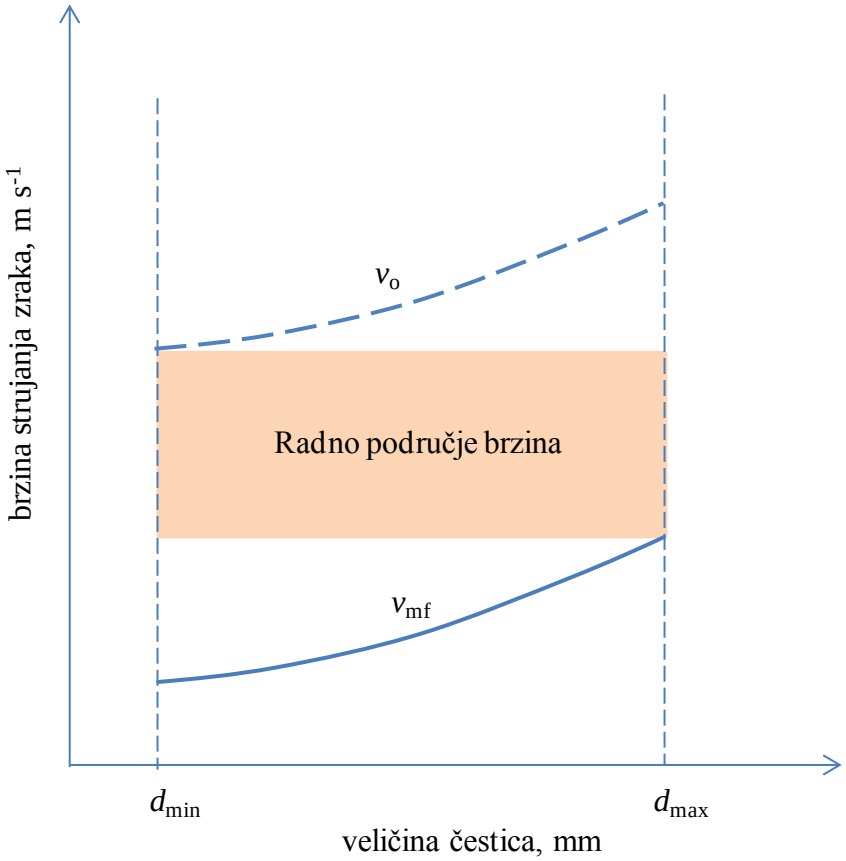
Nedostatci primjene sušionika s fluidiziranim slojem uključuju:

- veliku potrošnju energije zbog velikog pada tlaka i pripreme radnog medija
- nastanak velike količine otpadnog zraka
- mogućnost loma čestica
- nisu pogodni za uklanjanje organskih otapala [8,16]

2.2.6. Definiranje radnog područja brzina strujanja zraka

Za proces sušenja u fluidiziranom sloju vrlo je bitno odrediti granične brzine strujanja zraka. Tijekom cijelog procesa sušenja sve čestice moraju biti u fluidiziranom stanju. Dakle,

brzina strujanja mora biti dovoljno velika da fluidiziraju najveće mokre čestice, a da istovremeno ne dolazi do odnošenja najmanjih suhih čestica, slika 10.



Slika 10. Radno područje brzina strujanja zraka

Za procjenu minimalne brzine fluidizacije literatura nudi niz korelacijskih jednadžbi koje se zasnivaju na ovisnosti $Re_{mf} = f(Ar)$ [13]:

$$Re_{mf} = \sqrt{C_1^2 + C_2 \cdot Ar} - C_1 \qquad (11)$$

Konstante u jednadžbi (11) predložene od različitih autora dane su tablici 2:

Tablica 2. Konstante u jednadžbi (11)

Autori	C_1	C_2
Wen i Yu, 1966	33,70	0,0408
Chitester et al., 1984	28,70	0,0494
Hilal et al., 2001	13,07	0,0263

Brzina odnošenja ne može se procijeniti jer ovisi o uvjetima provedbe procesa, svojstvima čestica te geometrijskim karakteristikama čestica i sušionika. Kao jedan od

kriterija uzima se da je gornja granica brzine strujanja zraka brzina taloženja čestica, pa se sušenje u fluidiziranom sloju mora provoditi u intervalu brzina većih od minimalne brzine fluidizacije i manjih od brzine taloženja. Ovisno o vrijednosti Reynoldsove i Arhimedove značajke, primjenjuju se sljedeće jednadžbe:

Laminarni režim strujanja:

$$\mathrm{Re}_t < 0,3, \qquad \mathrm{Ar} < 32,9 \qquad \mathrm{Re}_t = \frac{\mathrm{Ar}}{18} \tag{12}$$

Prijelazno područje:

$$0,3 < \mathrm{Re}_t < 500, \qquad 32,9 < \mathrm{Ar} < 106520 \qquad \mathrm{Re}_t = 0,153 \cdot \mathrm{Ar}^{0,71} \tag{13}$$

Turbulentni režim strujanja:

$$500 < \mathrm{Re}_t < 2 \cdot 10^5, \quad \mathrm{Ar} > 106520 \qquad \mathrm{Re}_t = 1,74 \cdot \mathrm{Ar}^{0,5} \tag{14}$$

Izrazito turbulentno strujanje:

$$\mathrm{Re}_t > 2 \cdot 10^5, \qquad \mathrm{Re}_t = 3,65 \cdot \mathrm{Ar}^{0,5} \tag{15}$$

Osim navedenih brzina, bitno je i znati brzine koje ograničavaju mjehurićastu, turbulentnu i izrazito brzu fluidizaciju. Donja granica turbulentnog režima fluidizacije definira se najčešće sljedećim izrazima [13]:

Cai et al., 1989:

$$\mathrm{Re}_c = 0,57 \cdot \mathrm{Ar}^{0,46} \tag{16}$$

Horio, 1990:

$$\mathrm{Re}_c = 0,936 \cdot \mathrm{Ar}^{0,472} \tag{17}$$

Gornja se granica procjenjuje korištenjem sljedećih izraza:

Canada, 1978:

$$\mathrm{Re}_k = 1,46 \cdot \mathrm{Ar}^{0,472} \tag{18}$$

Yerushalmi et al., 1978:

$$\mathrm{Re}_k = 1,41 \cdot \mathrm{Ar}^{0,56} \tag{19}$$

Perales et al., 1990:

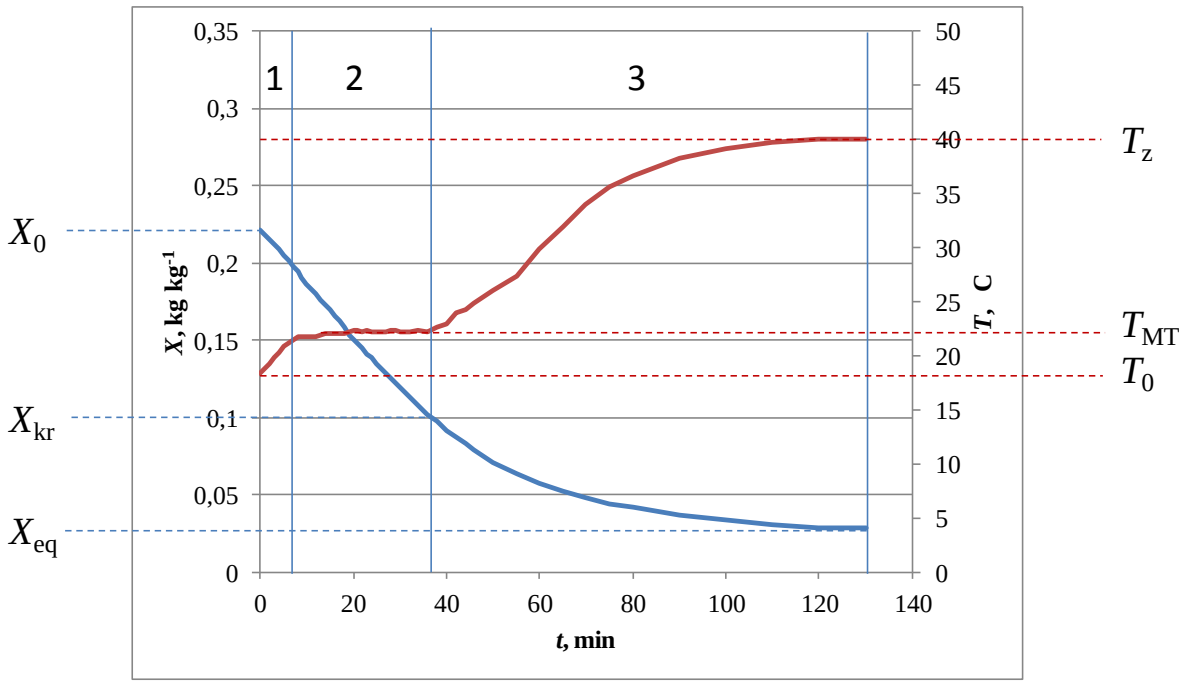
$$\mathrm{Re}_k = 1,95 \cdot \mathrm{Ar}^{0,453} \tag{20}$$

2.3. Kinetika sušenja

Kinetika sušenja opisuje promjenu sadržaja vlage i temperature materijala tijekom sušenja. Tijek sušenja definiran je vrstom i svojstvima materijala, vrstom prisutne vlage (slobodna, vezana), odabranim načinom i uvjetima sušenja.

Tijekom toplinskog sušenja, kada dovodimo toplinu vlažnome materijalu, dva se procesa odvijaju istovremeno: prijenos tvari i prijenos topline. Brzina kojom će se materijal sušiti ovisi o brzini ta dva procesa. Toplina se do površine vlažnog materijala može dovesti iz okoline konvekcijom, kondukcijom, radijacijom ili kombinacijom tih metoda. Kroz poroznu se strukturu materijal dalje zagrijava kondukcijski.

Kinetika sušenja može se pratiti gravimetrijskom ili psihometrijskom metodom. Gravimetrijskom metodom prati se promjena mase vlažnog materijala tijekom sušenja, dok se psihometrijskom metodom prati stanje zraka mjerenjem dvije veličine, temperature i relativne vlažnosti zraka. Korištenjem jednadžbe 2, može se izračunati sadržaj vlage materijala.



Slika 11. Kinetičke krivulje sušenja

Na slici 11 je prikazano kako se sadržaj vlage i temperatura materijala mijenjaju tijekom sušenja. Tri su osnovna perioda sušenja: period stabilizacije (1), period konstantne brzine sušenja (2) i period padajuće brzine sušenja (3). Tijekom perioda stabilizacije materijal

izgubi malo vlage, a temperatura njegove površine dosegne temperaturu mokrog termometra. U tom trenutku počinje period konstantne brzine sušenja, za koji je karakteristično da je površina materijala u potpunosti prekrivena vlagom, a brzina sušenja ovisi o vanjskim uvjetima. Dokle god je brzina prijenosa vlage kroz unutrašnjost materijala dovoljno velika da se osigura neprekinut sloj vlage na površini materijala, brzina sušenja je konstantna. Pojavom prvih suhih mjesta na površini materijala započinje period padajuće brzine sušenja. Sadržaj vlage koji dijeli period konstantne i period padajuće brzine sušenja naziva se kritični sadržaj vlage materijala, X_{kr}. Sušenje traje do postizanja ravnotežnog sadržaja vlage materijala, X_{eq}, u danim uvjetima sušenja [6].

2.3.1. Matematičko modeliranje kinetike sušenja

Da bi se poboljšao proces sušenja važno je na raspolaganju imati odgovarajuće matematičke modele kojima se može opisati krivulja sušenja kod različitih uvjeta. Ovisno o primjenjivanoj jednadžbi modeli se mogu podijeliti na teoretske, poluempirijske i empirijske modele.

Često se koriste jednostavniji modeli za opisivanje krivulje sušenja koji mogu s potrebnom točnošću opisati eksperimentalne rezultate, ali parametri tih modela nemaju nikakvog fizikalnog značenja [17-19].

Najčešće korištene poluempirijske jednadžbe su Lewisova i Pageova. Lewisova jednadžba, često nazvana eksponencijalni zakon sušenja, pretpostavlja da je brzina sušenja proporcionalna razlici stvarnog srednjeg sadržaja vlage materijala i ravnotežne vrijednosti u danim procesnim uvjetima. Prema Lewisu se prijenos tvari tijekom sušenja može promatrati na način analogan prijenosu topline pri hlađenju čvrstog tijela.

$$\psi = \frac{X(t) - X_{eq}}{X_0 - X_{eq}} = e^{-K \cdot t} \tag{21}$$

Page modificira Lewisovu jednadžbu uvodeći eksponent na vrijeme u cilju što boljeg slaganja mjernih i računskih podataka te uvodi još jedan empirijski parametar, *n*.

$$\psi = \frac{X(t) - X_{eq}}{X_0 - X_{eq}} = e^{-k \cdot t^n} \tag{22}$$

Na sličan način i Overhults, White, Hamilton i Ross modificiraju Pageov model.

$$\psi = \frac{X(t) - X_{\text{eq}}}{X_0 - X_{eq}} = e^{-(k \cdot t)^n} \tag{23}$$

Ovi empirijski modeli daju nam direktnu vezu između prosječnog sadržaja vlage i vremena sušenja, ali oni zanemaruju osnove procesa sušenja i njihovi parametri nemaju nikakvog fizikalnog značenja. Zbog tih razloga, ti modeli nam ne mogu dati uvid u bitne procese koji se događaju tijekom sušenja, iako dobro opisuju eksperimentalne podatke.

Mehanizam prijenosa vlage kroz materijal je složen proces. Često se kod pronalaženja modela koji opisuje kinetiku sušenja u periodu padajuće brzine sušenja koristi pretpostavka da je difuzija glavni mehanizam prijenosa tvari kroz materijal. Zbog te pretpostavke difuzijski koeficijent, koji se procijeni iz eksperimentalnih podataka, je parametar koji uključuje poznate teoretske i nepoznate fenomene prijenosa tvari.
Pretpostavljajući izotropnost krutine i uzimajući u obzir difuzivnost vode, proces prijenosa tvari može se opisati Fickovim zakonom kombiniranim s mikroskopskim bilancama prijenosa tvari[17,19].

$$\frac{\partial X}{\partial t} = D_{eff} \cdot \frac{\partial^2 X}{\partial x^2} \tag{24}$$

Kada se proces prijenosa tvari prati kod uzoraka malih dimenzija, odnosno materijala kod kojih je otpor prijenosu kroz unutrašnjost materijala manji nego na vanjskoj površini, vrijednosti Biotove značajke su vrlo male (Bi<0,1), pa je analitičko rješenje II Fickovog zakona za sferičnu česticu:

$$\frac{X - X_{eq}}{X_0 - X_{eq}} = \frac{\sin\left(\sqrt{3 \cdot Bi} \cdot R\right)}{\sqrt{3 \cdot Bi} \cdot R} \cdot e^{-3 \cdot Bi \cdot Fo} \tag{25}$$

2.3.2. Procjena ukupnog koeficijenta prijenosa tvari

Ukupni koeficijent prijenosa tvari računa se korištenjem kinetičke jednadžbe za prijenos tvari.

$$\dot{m}_{\text{v}} = K_m \cdot A \cdot \left(Y_{\text{zas}} - Y_{\text{z}}\right) \tag{26}$$

Ukupni koeficijent prijenosa tvari računa se za period konstantne brzine sušenja jer je tijekom tog perioda površina materijala u potpunosti prekrivena vodom, a zrak uz samu površinu materijala je zasićen. Time je definirana pokretačka sila za proces prijenosa tvari. Vrijednosti koeficijenta prijenosa tvari mogu se koristiti za izračun Sherwoodove značajke, te

u ovisnosti o Reynoldsovoj značajki može se govoriti o utjecaju hidrodinamičkih uvjeta na prijenos tvari.

$$\mathrm{Sh} = f\left(\mathrm{Re}\right) \tag{27}$$

2.4. Uvećanje procesa

Laboratorijski, pilot i polu-industrijski modeli procesa koriste se kada se proučava i u veće mjerilo prenosi proces kod kojega proračuni i simulacije nisu pouzdani zbog velikog broja varijabli i osjetljivosti sustava na početne uvjete. Modeli su najčešće manji nego krajnji dizajn. Umanjeni model omogućava testiranja dizajna prije same izgradnje, a u mnogo slučajeva je kritični korak u razvoju procesa.

Izrada modela mora biti popraćena identifikacijom svih fizikalnih veličina koje utječu na proces. Za proces sušenja u fluidiziranom sloju to su brzina strujanja zraka, temperatura ulaznog zraka, sadržaj vlage ulaznog zraka, tlak i sadržaj vlage materijala. Odabiru se veličine čiji će se utjecaj istraživati, a ostale se drže konstantnima.

2.4.1. Razvoj procesa u fluidiziranom sloju

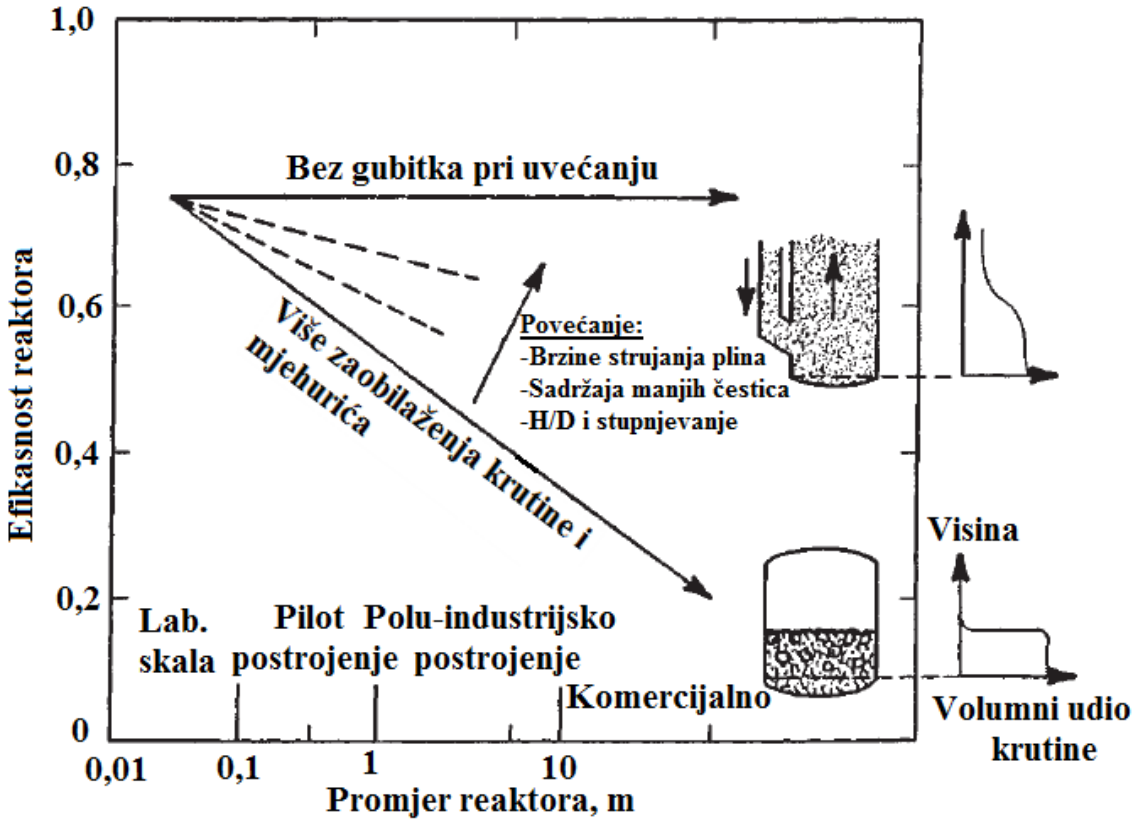
Fluidizirani sloj je prvi put industrijski korišten u Njemačkoj za uplinjavanje ugljena i proizvodnju sinteznog plina. Problemi uvećanja procesa su bili beznačajni ili nisu bili publicirani. Tijekom Drugog svjetskog rata, katalitičko krekiranje nafte je uspješno komercijalizirano iz pilot-postrojenja promjera nekoliko centimetara u industrijsku veličinu od nekoliko metara. Nisu primijećeni problemi u uvećanju zbog brze kinetike reakcija. Prvi problemi pri uvećanju primijećeni su pri proizvodnji benzina iz prirodnog plina Fischer-Tropschovim postupkom. Koristeći pilot-postrojenja promjere od 0,10 m, 0,20 m i 0,30 m rezultati su uvećani na postrojenje promjera 7 m gdje je iskorištenje reakcije bilo svega 50% postignutog na pilot-postrojenjima. Fischer-Tropschova sinteza je razmjerno spore kinetike reakcije, stoga je kontakt plina i krutine veoma bitan. [1]

Razvijeni su mnogi modeli od kojih su osnovni i najbitniji dvofazni model i model mjehurića. Dvofazni model podrazumijeva postojanje dvije faze: emulzije i mjehurića. Čitav plin prolazi kroz fluidizirani sloj u obliku mjehurića koji ne sadrže krutinu. Krutine čine gustu

emulzijsku fazu u kojoj se plin i čestice miješaju prema koeficijentu aksijalne disperzije. Izmjena tvari između dvije faze se predviđa koeficijentom prijenosa tvari. [20]

Konverziju određuju reakcija i difuzija. Moguće je da je reakcija ograničavajući korak u pilot-postrojenju dok su mjehurići maleni, a da difuzija dominira u industrijskom postrojenju. Ova promjena ograničavajućeg procesa čini uvećanje teškim.

Postoji nekoliko metoda koje omogućuju smanjenje problema u uvećanju procesa, koje su prikazane na slici 12.



Slika 12. Metode smanjenja gubitka efikasnosti prilikom uvećanja procesa

Efikasnost reaktora s fluidiziranim slojem se u pravilu smanjuje s povećanjem promjera reaktora. To se može minimizirati korištenjem velike brzine strujanja plina, većim udjelom manjih čestica, dizajniranjem reaktora sa stupnjevitim fluidiziranim slojevima i velikim omjerima *H/D*. Velika brzina strujanja održava uvjete u uređaju u turbulentnom režimu strujanja gdje se mjehurići plina često raspadaju i zaobilaženje krutine je manje učestalo. Manje čvrste čestice rezultiraju manjim veličinama mjehurića i promiču nestabilnost velikih mjehura. Visok omjer *H/D* minimizira zaobilaženje krutine, kao i korištenje razbijala

u uređaju. Ovim tehnikama kompanija Mobil je uvećala svoje postrojenje za proizvodnju metanola bez velikih poteškoća. [1]

2.4.2. Princip sličnosti

Prilikom uvećanja procesa potrebno je da svaka procesna jedinica poštuje princip sličnosti. Princip sličnosti bazira se na činjenici da se u sličnim uvjetima moraju javiti i slične posljedice, stoga ako su dva fizikalna sustava slična, može se iz poznavanja jednog predvidjeti ponašanje drugog. [21]

Prilikom uvećanja treba obratiti pažnju na četiri vrste sličnosti:

- geometrijsku
- mehaničku: statičku, kinematičku i dinamičku
- termičku
- koncentracijsku

Svaka od ovih sličnosti pretpostavlja onu iznad same sebe. Dva sustava su termički slična, ako su slična geometrijski i mehanički.

Geometrijska sličnost

Geometrijska sličnost je postignuta ukoliko za svaku točku u jednom sustavu postoji odgovarajuća točka u drugom sustavu. Sličnost se može izraziti odnosom karakterističnih veličina. Za uvećanje sušionika s fluidiziranim slojem odabrana je cilindrična kolona. Geometrijska sličnost je postignuta jer cilindrična kolona sadrži jednu karakterističnu veličinu (promjer kolone), dok visina kolone nije bitna dokle god je visina znatno veća od visine fluidiziranog sloja.

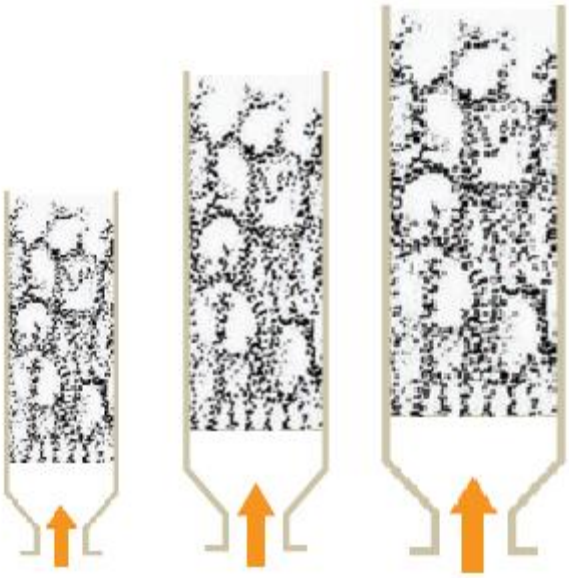
Kinematička sličnost

Kinematička sličnost odnosi se na geometrijski slične sustave u gibanju, koji su kinematički slični kada odgovarajuće točke prelaze geometrijski slične putove. Ovaj tip sličnosti se postiže kada čestice u fluidiziranom sloju opisuju slične putove. To se događa ukoliko je u svakom sušioniku režim fluidizacije isti. Katalizator korišten u sušenju spada u D grupu prema Geldartovoj klasifikaciji, te može fluidizirati samo u turbulentnom režimu.

Dinamička sličnost

Geometrijski slični sustavi su i dinamički slični kada su odnosi odgovarajućih sila u odgovarajućim točkama konstantni. Dinamička sličnost podrazumijeva postavljanje odnosa između inercijske sile (F_i) i sile koja je karakteristična za neku prijenosnu pojavu. [21]

Za sušionik s fludiziranim slojem karakterističan omjer je Reynoldsov broj koji predstavlja omjer inercijske sile i sile otpora, te Froudeov broj koji je omjer inercijske i gravitacijske sile. Vrijednosti Froudovog broja će biti konstante dokle god se koristi isti uzorak, a Reynoldsov broj će biti konstantan ako se isti uzorak izloži istoj brzini strujanja. Na slici 13 su prikazana tri slična sušionika.



Slika 13. Geometrijski, kinematički i dinamički slični sušionici s fluidiziranim slojem

2.4.3. Uvećanje procesa sušenja u fluidiziranom sloju

Sušenje spada u toplinske procese u kojima se istovremeno događa prijenos tvari i topline. Zbog toga nije začuđujuće da je to složen proces koji se nikad nije rješavao dimenzijskom analizom, nego su iskustvo i intuicija bili glavni alati za dimenzioniranje industrijskog postrojenja. U isto vrijeme postoje matematički modeli koji rješavaju pojedine procesne korake (npr. prijenos tvari iz materijala na zrak, prijenos topline na česticu materijala, bilanca vlage,...) prisutne tijekom sušenja.

Dobar kriterij uvećanja je od veće važnosti za proces sušenja nego za većinu drugih operacija. To je zbog toga jer sušenje direktno utječe na više svojstava proizvoda, kao što su gustoća, raspodjela veličina čestica, vlažnost, okus, boja i drugi [22].

Razvijani su mnogi numerički modeli koji se temelje na principima sušenja. Postoji širok raspon modela od jednostavnih jednodimenzijskih do kompleksnih višedimenzijskih dinamičkih modela. Modeli su od velike pomoći u obradi podataka i određivanju korelacija, ali niti jedan od modela ne može predvidjeti sve procesne uvjete. Dok se bolje ne razviju osnovni fizikalni modeli i jednadžbe koje se koriste za opisivanje hidrodinamike, prijenosa tvari i energije unutar fluidiziranog sloja, numerički modeli ne mogu se pouzdano koristiti kao alat za uvećanje [13].

Postoji nekoliko pristupa razvoju točnih odnosa za uvećanje. Najdirektniji pristup je bezdimenzijska analiza najvažnijih jednadžbi. Cilj bezdimenzijske analize je da bezdimenzijski parametri modela imaju iste vrijednosti za laboratorijsko i industrijsko postrojenje. Alternativni pristup dizajniranju modela sušionika je da omjeri svih važnih sila u modelu i većem postrojenju budu isti i da geometrija većeg postrojenja bude slična modelu. Ako su omjeri sila jednaki u oba slučaja, hidrodinamika čestica bi trebala biti slična.
Važni omjeri sila i parametri u fluidiziranom sloju čestica :

$$\frac{\rho_S v_0 d_č}{\eta}, \frac{\rho_f v_0 x}{\mu}, \frac{v_0^{\,2}}{g \cdot x}, \frac{\rho_S}{\rho_f}, \frac{m_S g}{\rho_S v_0}, \frac{H}{D}, \text{RVČ}, \varphi$$

U većini slučajeva ne može se očekivati da će svi parametri biti od jednake važnosti. Reduciranjem broja parametara koji su potrebni za opisivanje modela moguće je dimenzioniranje većeg sušionika na temelju manjeg modela. Pojednostavljenja uključuju međučestične interakcije kod rubnih područja, tj. malih i velikih Re vrijednosti. Ako se pokaže da pojednostavljenja vrijede kod oba rubna slučaja, može se pretpostaviti da će pojednostavljenja vrijediti kroz čitavo područje vrijednosti Re značajke [13].

Za izračunavanje minimalne brzine fluidizacije nema korelacija koje uzimaju u obzir utjecaj debljine sloja i promjera kolone, koji su važni faktori kada se radi o manjim modelima sušionika. Može se pretpostaviti da se sloj čestica u koloni sastoji od dva dijela: unutarnje jezgre, za koju se može reći da joj je poroznost konstantna i anularnog dijela, kod kojeg poroznost sloja veća i varira zbog utjecaja stijenke. Zbog razlike u poroznosti sloja između dijelova u koloni brzina također varira po presjeku kolone [23].

Uvećanje sušionika s fluidiziranim slojem s laboratorijskog mjerila na komercijalne industrijske veličine uzrokuje promjenu u hidrodinamičkim uvjetima, koje uzrokuju u mnogim slučajevima gubitak učinkovitosti. Iako su provedena neka istraživanja utjecaja promjera kolone na ukupnu učikovitost i ponašanje sustava, kao npr. miješanje i karakteristike mjehurića, općenita pravila za uvećanje nisu pronađena [13].

3. EKSPERIMENTALNI DIO

3.1. Svrha

Istraživan je utjecaj uvjeta provedbe procesa na kinetiku sušenja čvrstih čestica različitih geometrijskih karakteristika u sušioniku s fluidiziranim slojem. Eksperimentalni su podaci aproksimirani pomoću četiri matematička modela, a parametri modela dovedeni su u vezu s uvjetima provedbe sušenja. Procijenjeni su koeficijenti prijenosa tvari. U svrhu pronalaženja odgovarajućeg kriterija uvećanja, mjerenja su provedena u dva geometrijski slična sušionika.

3.2. Opis aparature



Slika 14. Laboratorijski sušionici s fluidiziranim slojem

Mjerenja su provedena na dva laboratorijska sušionika s fluidiziranim slojem različitih dimenzija (D_1 = 3,7 cm; Z_1 = 73cm, D_2 = 5,5 cm**;** Z_2 = 65 cm), slika 14. Sušionici se sastoje od cilindrične kolone, puhala zraka, grijača, mjerila protoka (prigušna pločica i anemometar), dva manometra (uspravni i kosi), te mjerila stanja zraka. Na vrhu kolone nalazi se ciklon za separaciju izlaznog zraka i eventualno odnesenih čvrstih čestica, s posudom za prihvat čvrstih čestica. Temperatura zraka na ulazu u sušionik mjerena je digitalnim termometrom. S obzirom da se kinetika sušenja pratila psihrometrijskom metodom, na izlazu iz sušionika mjerena je temperatura i relativna vlažnost zraka pomoću digitalnog higro-termometra.

3.3. Materijal

Odabrana su tri sferična katalizatora nepoznatog sastava i različitih veličinskih frakcija. Uzorci su prosijani između dva sita kako bi se dobile uske veličinske frakcije, te kako bi se osiguralo dovoljno široko radno područje brzina strujanja zraka, unutar kojeg bi fluidizirale i najkrupnije mokre čestice, a ne bi bile odnošene najsitnije suhe. Što je raspon veličina čestica ($d_{min} - d_{max}$) veći, uže je radno područje brzina strujanja zraka.

3.4. Uvjeti provedbe procesa

Mjerenja su provedena pri različitim temperaturama i brzinama strujanja zraka te visinama sloja čvrstih čestica. U tablici 3. dani su svi istraživani uvjeti sušenja.

Zbog ograničenja aparature i nemogućnosti kondicioniranja ulaznog zraka sadržaj vlage ulaznog zraka i tlak nisu kontrolirane veličine. Pri provedbi procesa i kasnije obrade podataka mnogo pažnje se posvetilo odabiru podataka sličnih uvjeta sušenja.

Tablica 3. Uvjeti provedbe procesa sušenja u fluidiziranom sloju

Uzorak	$d_{sr,č}$, cm	Temperatura, °C	Brzina strujanja zraka, m/s	(H/D), -
Uzorak 1	0,155	50, 57, 65	1,50 i 3,13	0,91; 1,36; 1,82
Uzorak 2	0,155		3,13	
Uzorak 3	4,050		1,86; 2,50; 3,13; 4,50	0,96; 1,46; 1,64
	5,375		2,11; 3,13	

3.5. Karakterizacija materijala

3.5.1. Rendgenska difrakcija

Rendgenska difrakcija praha je metoda pri kojoj se zraka karakterističnog rendgenskog zračenja usmjerava na površinu fino usitnjenog materijala smještenog na nosač uzorka. Mjeri se intenzitet rendgenskog zračenja difraktiranog s uzorka u ovisnosti o kutu difrakcije. Metoda se koristi za određivanje strukture materijala, u ovom slučaju za identifikaciju kristalnih faza.



Slika 15. Rendgenski difraktograf Philips PW1830

Analiza uzorka katalizatora izvršena je rendgenskom difrakcijskom analizom na uređaju Philips PW1830 (slika 15) s okomitim goniometrom u području kuteva 2θ = 5-50°, uz karakteristično zračenje bakra valne duljine, λ (CuKalfa) = 0,15418 nm. Radni napon generatora iznosi 40 kV, struja 30 mA, dok je korak goniometra iznosio 0.02 stupnja, a vrijeme prikupljanja signala 1 ili 2s.

3.5.2. Mjerenje gustoće uzoraka

Gustoća uzoraka određena je gravimetrijskom metodom. S obzirom da se radi o sferičnim česticama, volumen čestica određen je mjerenjem promjera kuglica.

$$V_{č} = \frac{4}{3} \cdot r_{č}^{3} \cdot \pi \qquad (28)$$

Kuglice su vagane na analitičkoj vagi Kern ALJ 220-4 NM preciznosti ± 0.0001 g te je izračunata njihova gustoća. Da bi se odredila gustoća mokrih kuglica, uzorci su ostavljeni u čaši s vodom 1 sat, te su vagani. Kako je za fluidizaciju bitan tzv. hidrodinamički volumen (slika 16), neovisan o poroznosti čestica, gustoća je izračunata iz izmjerenih vrijednosti:

$$\rho_{č} = \frac{m_{č}}{V_{č}} \tag{29}$$



Slika 16. Hidrodinamički volumen čestica

3.5.3. Tvrdoća

Određivanje tvrdoće je provođeno na uređaju Erweka TBH 30 koji je prikazan na slici 17. Uređaj omogućuje određivanje tvrdoće materijala debljine 1,5-12 mm, tvrdoće 3-500 N i promjera 3-30mm. Namjenjen je za određivanje tvrdoće, debljine i promjera tableta, obloženih tableta i sličnih proizvoda. Uređaj određuje i standardnu devijaciju serije podataka dobivenih mjerenjem dvanaest uzoraka.

U jednoj seriji mjerenja moguće je karakterizirati dvanaest uzoraka. Debljina se određuje pomoću linearnog potenciometra. Promjer se mjeri brojem koraka koje napravi stepeni elektromotor. Mjerna točnost je 0,05 mm za mjerenje debljine i promjera. Tvrdoća se određuje pomoću težinske ćelije s mjerenjem naprezanja žice.



Slika 17. Uređaj Erweka TBH30

Podaci dobiveni određivanjem tvrdoće služe kao mjera otpornosti zrna katalizatora prema pojavi pucanja i oštećenja (gubljenja) vanjskog dijela zrna.

3.5.4. Određivanje specifične površine i raspodjele veličina pora

Specifična površina uzoraka određena je BET (Brunauer-Emmett-Teller) metodom koja se temelji na višeslojnoj adsorpciji inertnog plina (najčešće dušika) na površini zrna. Ovom metodom mogu se odrediti površine od 1 do 1200 m^2 g^{-1}. Metoda polazi od pretpostavke da su sve pore cilindričnog oblika. Mjeri se volumen plina, u ovom slučaju dušika, adsorbiranog u porama u ovisnosti o parcijalnom tlaku pri konstantnoj temperaturi. Kako bi se snimila i desorpcijska krivulja ovaj se proces ponavlja, ali obrnutim slijedom pri čemu se dobije adsorpcijsko-desorpcijska izoterma dušika.

Ova metoda predstavlja Langmuirovu teoriju adsorpcije primjenjenu na višeslojnu adsorpciju, a kao rezultati se dobivaju izoterme karakterističnog *S* oblika. Moguće je primjenom izraza (27) i (28), odrediti volumen dušika koji je potreban za popunjavanje monosloja i izračunati specifičnu površinu adsorbata.

$$\frac{p}{V(p_0 - p)} = \frac{1}{V_m c} + \frac{(c-1)p}{cV_m p_0} \tag{30}$$

$$S_g = \frac{V_m N_A}{22400} \alpha_{BET} \tag{31}$$

Kako su u stvarnim sustavima pore rijetko idealnog cilindričnog oblika, promjer pora se izražava ekvivalentnim promjerom iz volumena plina, *V*, i površine pora, *A*, prema

$$d_{ekv} = 4\frac{V}{A} \tag{32}$$

Iz podataka o raspodjeli veličina pora može se odrediti udio pojedine veličine pora i njihova srednja veličina, što može ukazati na prisutne mehanizme prijenosa vlage kroz katalizator.

Značajke su određene na Micrometrics ASAP 2000 uređaju (slika 18), a obrada podataka je obuhvaćala BET analizu specifične površine i raspodjelu veličine pora (Barett-Joyner-Halende model) [24].



Slika 18. Uređaj ASAP 2000

3.5.5. Određivanje poroznosti čvrstih čestica

Poroznost čvrstih čestica određena je iz podataka dobivenih određivanjem raspodjele veličina pora, te gravimetrijski. Na temelju ukupnog specifičnog volumena pora, gustoće čvrstih čestica i mase uzorka na kojem je vršena analiza može se izračunati poroznost uzoraka prema izrazu:

$$\varepsilon = \frac{V_{\text{pora}}}{V_{\text{uk}}} = \frac{V_{\text{s,pora}} \cdot m_{\text{u}}}{\frac{m_{\text{u}}}{\rho_{\text{č}}}} \tag{33}$$

Gravimetrijska metoda uključuje mjerenje mase i volumena suhih i mokrih čestica, te proračun poroznosti. Uz pretpostavku da su sve pore ispunjene vodom, razlika u masi između mokre i suhe čestice definira volumen pora.

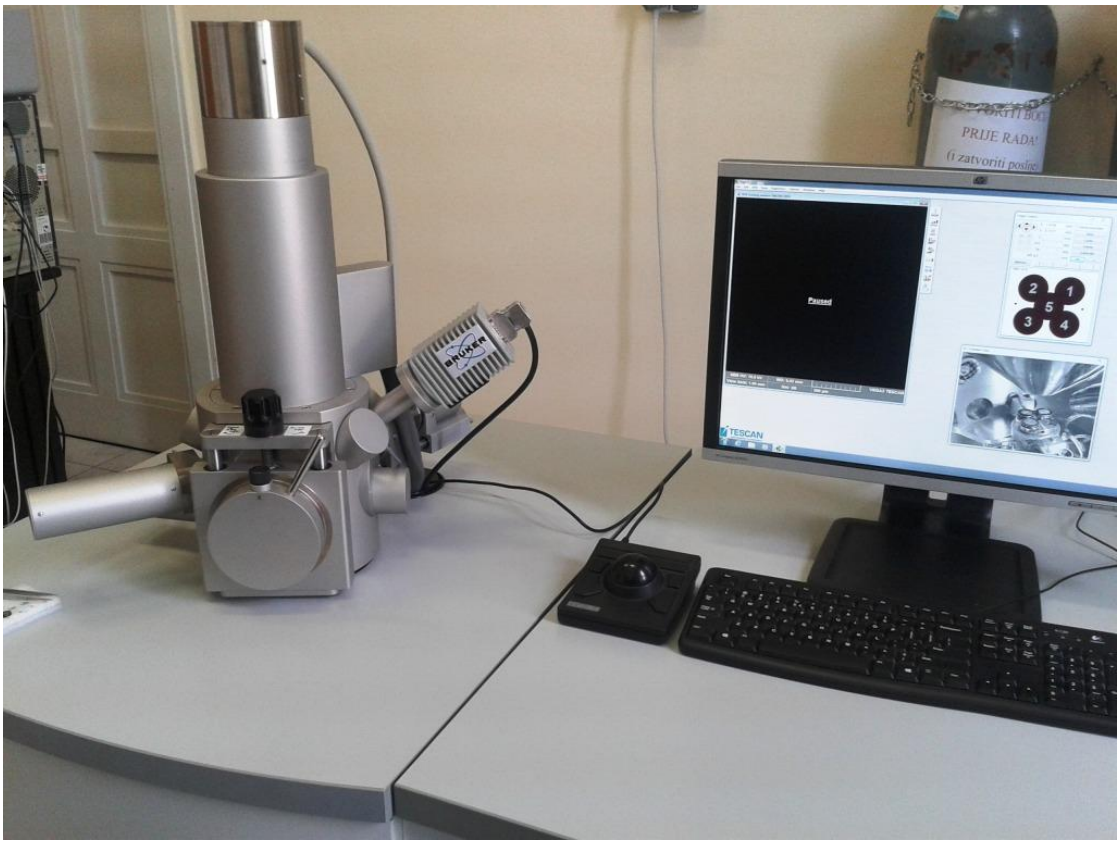
$$V_{pora} = \frac{m_{\text{mč}} - m_{\text{sč}}}{\rho_{\text{v}}} \tag{34}$$

Uvrštenjem u jednadžbu (33) može se izračunati poroznost.

3.5.6. Morfologija čestica i elementarna analiza

Za bolju karakterizaciju i upoznavanje s površinom i unutrašnjosti uzoraka korišten je pretražni elektronski mikroskop, SEM – TESCAN VEGA 3 SBH Easy Probe, slika 19. Zbog toga što uzorci nisu vodljivi prethodno su napareni zlatom i paladijem. Svaki uzorak je prvo fotografiran tako da se vidi cijelo zrno uzorka (vanjska površina sferičnih čestica), te njihov presjek. Cijelo zrno nije bilo moguće fotografirati kod uzorka 3 zbog veličine samoga uzorka. Korištena uvećanja su 50, 100, 200 i 500 puta [25].

Ovisno o namjeni, pretražni elektronski mikroskopi rade pod vakuumom između 10^{-2} do 10^{-8} Pa. Pomoću sistema elektromagnetskih leća elektroni se usmjeravaju prema površini uzorka, a razlučivanje i dubina prodiranja ovise o naponu, materijalu uzorka i veličini spota (presjek snopa na mjestu dodira s uzorkom). Tipični promjer fokusirajućeg elektronskog snopa je promjera 5 nm i struja snopa oko 10-11 A. Upadni elektroni se vraćaju bilo kao primarno raspršeni prema natrag ili kao sekundarno raspršeni, koji se najviše koriste za istraživanje površina.



Slika 29. Pretražni elektronski mikroskop

Sekundarni elektroni su niskih energija (manje od 50 eV), tako da samo oni stvoreni nekoliko nanometara ispod površine uzorka mogu izaći i biti detektirani. Primarni elektroni mogu također pobuditi karakterističnо rendgensko zračenje kojim se analizira kemijski sastav uzorka. Najlakše se detektiraju sekundarni elektroni jer su vrlo brojni i malih energija. Kako udarni presjek ovisi o površini, različiti atomi će uzrokovati različiti kontrast na detektoru te će omogućiti elementarnu/kemijsku analizu materijala. Ako snop pretražuje površinu, podaci se mogu pretvoriti u vidljivu skenirajuću sliku i time napraviti analizu reljefa površine (topografija) ili kemijski sastav, što se može lako uočiti ako se svakom elementu pridruži druga boja [26].

3.6. Metodika proračuna

3.6.1. Psihrometrijska metoda

Kinetika sušenja čvrstih čestica u fluidiziranom sloju mjerena je psihrometrijskom metodom. Psihrometrijska metoda uključuje praćenje stanja zraka na izlazu iz sušionika tijekom sušenja. Izmjerene vrijednosti temperature i relativne vlažnosti zraka te okolišnog

tlaka unesene su u računalni program *Humidity*, koji proračunava sva svojstva zraka. Apsolutna vlažnost zraka definira se kao:

$$Y = \frac{m_v}{m_{sz}} \tag{35}$$

Za svaki vremenski interval potrebno je izračunati masu vode uklonjene iz materijala.

Maseni protok suhog zraka računa se iz volumnog protoka zraka, koji se očita iz baždarnog dijagrama, $V=f(\Delta h)$ i gustoće zraka.

$$m_{vz} = V \cdot \rho \tag{36}$$

Maseni protok suhog zraka, kg/s:

$$m_{sz} = (1 - y) \cdot m_{vz} \tag{37}$$

Maseni udio vode u zraku računa se iz apsolutne vlažnosti zraka:

$$y = \frac{Y}{1 + Y} \tag{38}$$

Masa vode uklonjena iz materijala u određenom vremenskom intervalu sada se računa:

$$\Delta m_v(t) = \Delta Y(t) \cdot m_{sz} \tag{39}$$

Gdje je:

$$\Delta Y(t) = Y_2(t) - Y_0 \tag{40}$$

Ako s *i* označimo vremenske intervale, tada je na početku sušenja: za t=0 min, i=0.

Za svaki vremenski interval t_i, može se izračunati masa vode koju vlažni materijal sadrži:

Masa vode koju je zrak na sebe primio izračunata je prethodno, $\Delta m_v(t)$.

Masa vode prisutna u vlažnom materijalu:

$$m_v(t_{i+1}) = m_v(t_i) - \Delta m_v(t_{i+1}) \tag{41}$$

Na primjer za prvi vremenski interval, i=1

$$m_{v1} = m_v(t_o) - \Delta m_v(t_1) = m_{v0} - \Delta m_{v1} \tag{42}$$

Za sljedeći interval:

$$m_{v2} = m_v(t_1) - \Delta m_v(t_2) = m_{v1} - \Delta m_{v2} \tag{43}$$

Sadržaj vlage materijala:

$$X_i = \frac{m_{vi}}{m_{dm}} \tag{44}$$

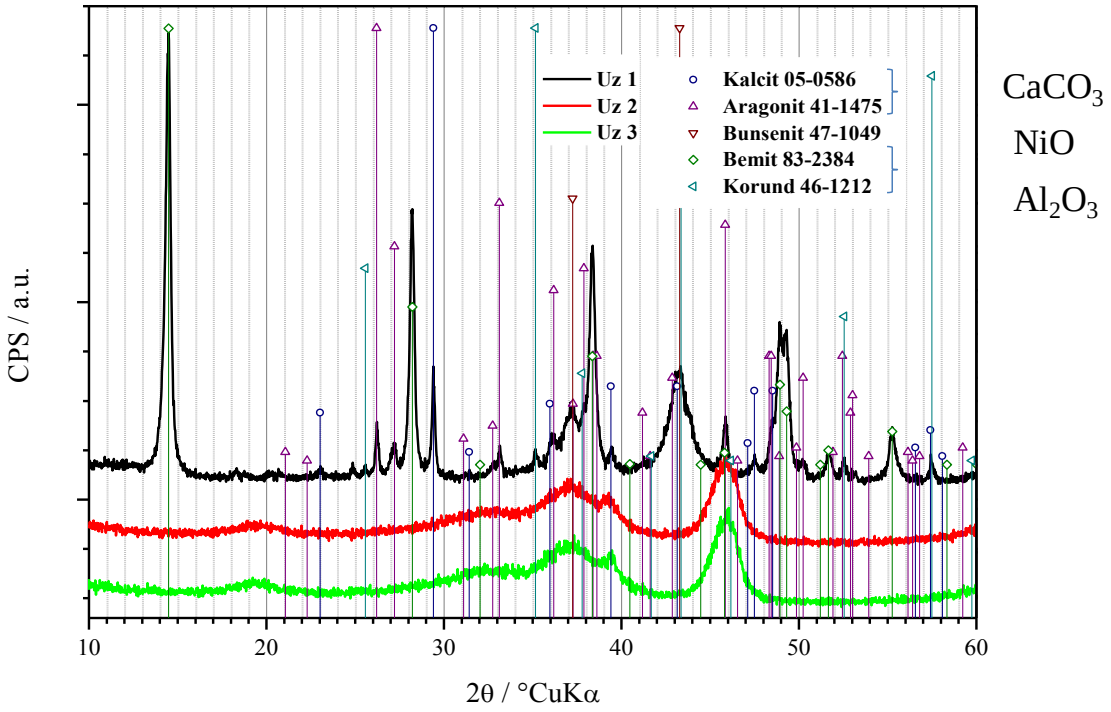
[6]

4. REZULTATI

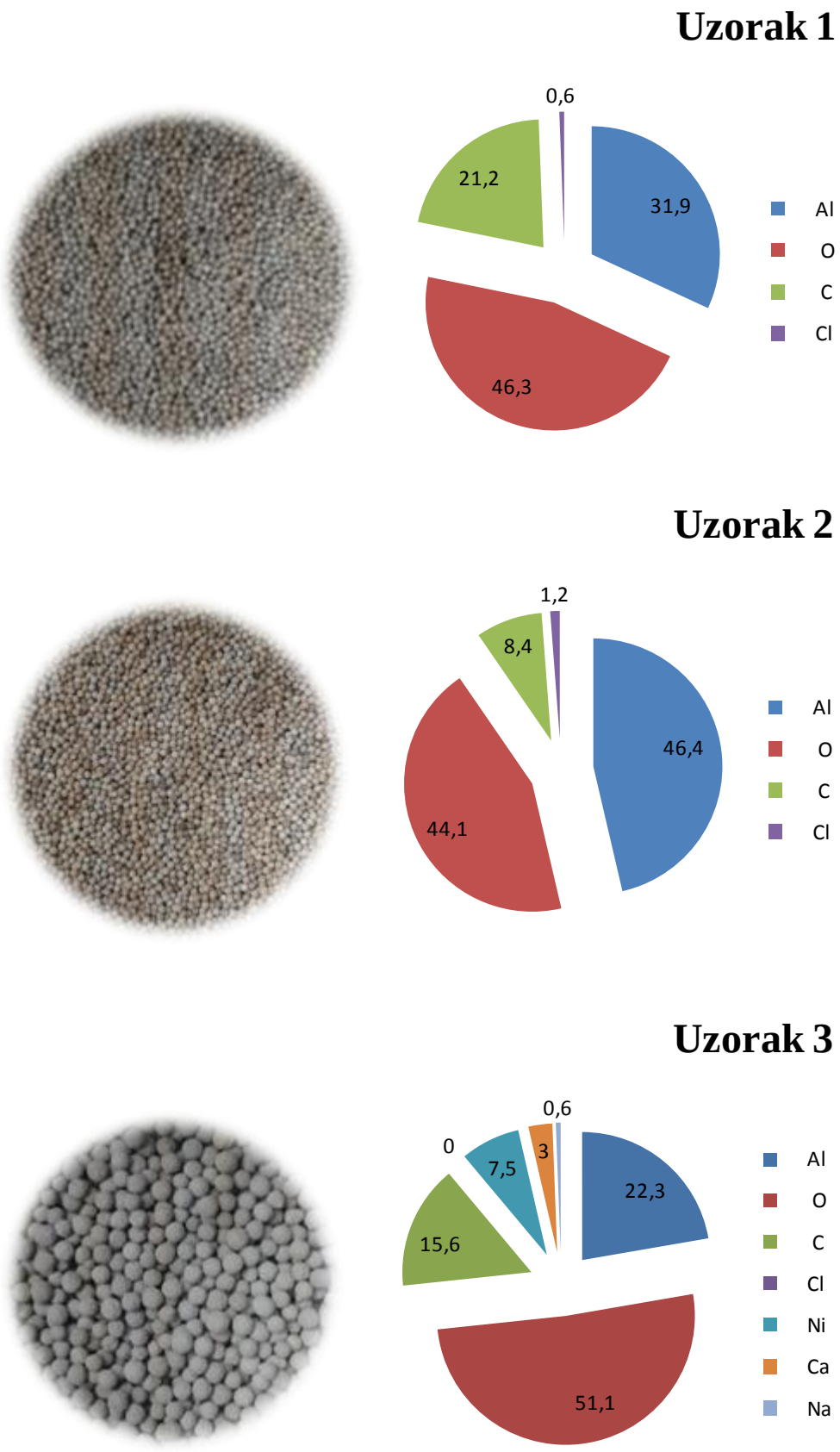
Rezultati su podijeljeni u šest poglavlja:

- ✓ Karakterizacija materijala
- ✓ Definiranje radnog područja
- ✓ Kinetičke krivulje sušenja
- ✓ Matematičko modeliranje procesa sušenja
- ✓ Procjena ukupnog koeficijenta prijenosa tvari
- ✓ Prenošenje rezultata u veće mjerilo

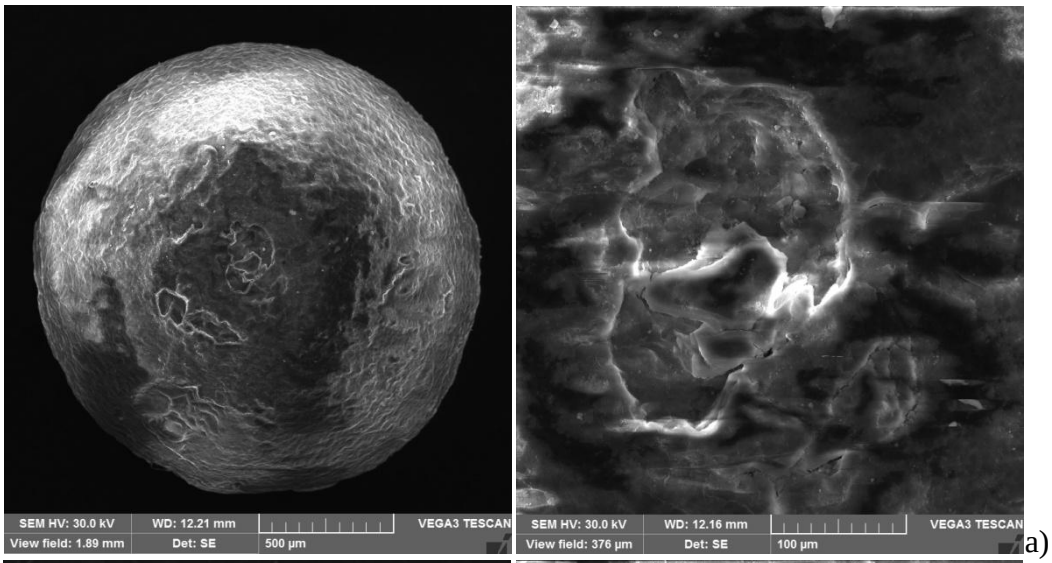
4.1. Karakterizacija materijala



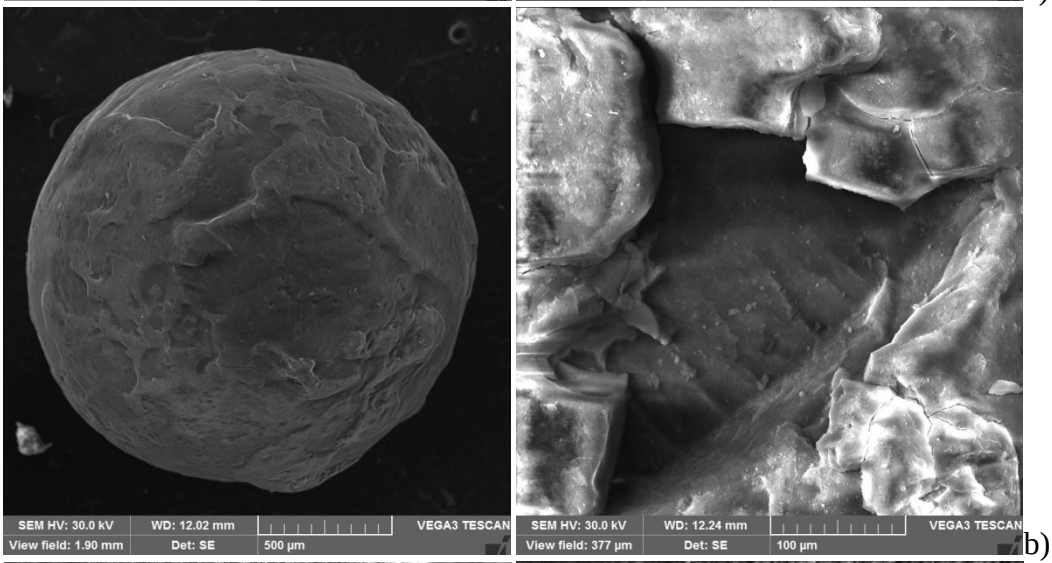
Slika 20. Rendgenski difraktogram istraživanih sferičnih uzoraka



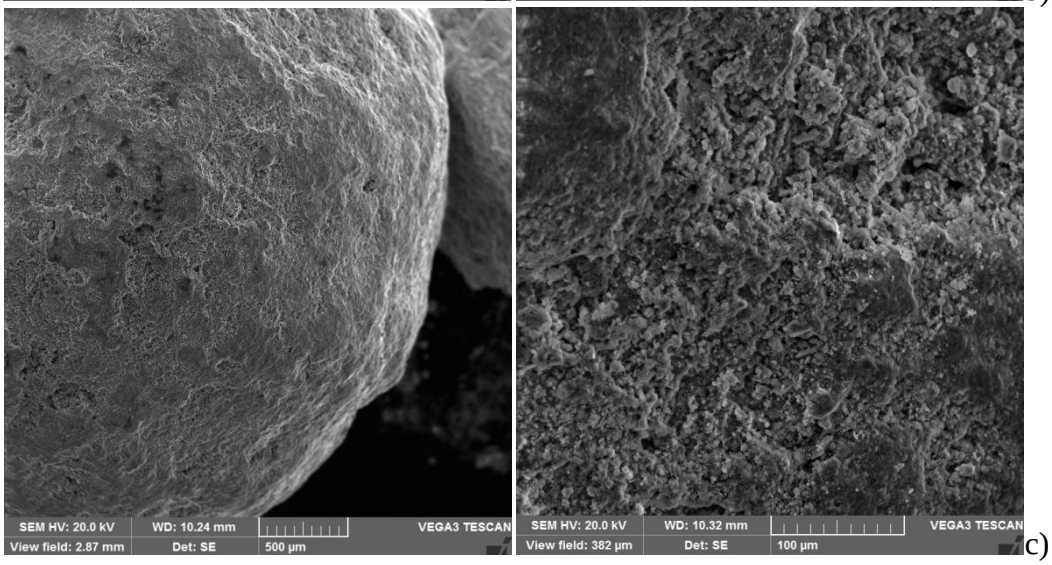
Slika 21. EDS analiza uzoraka



a)



b)

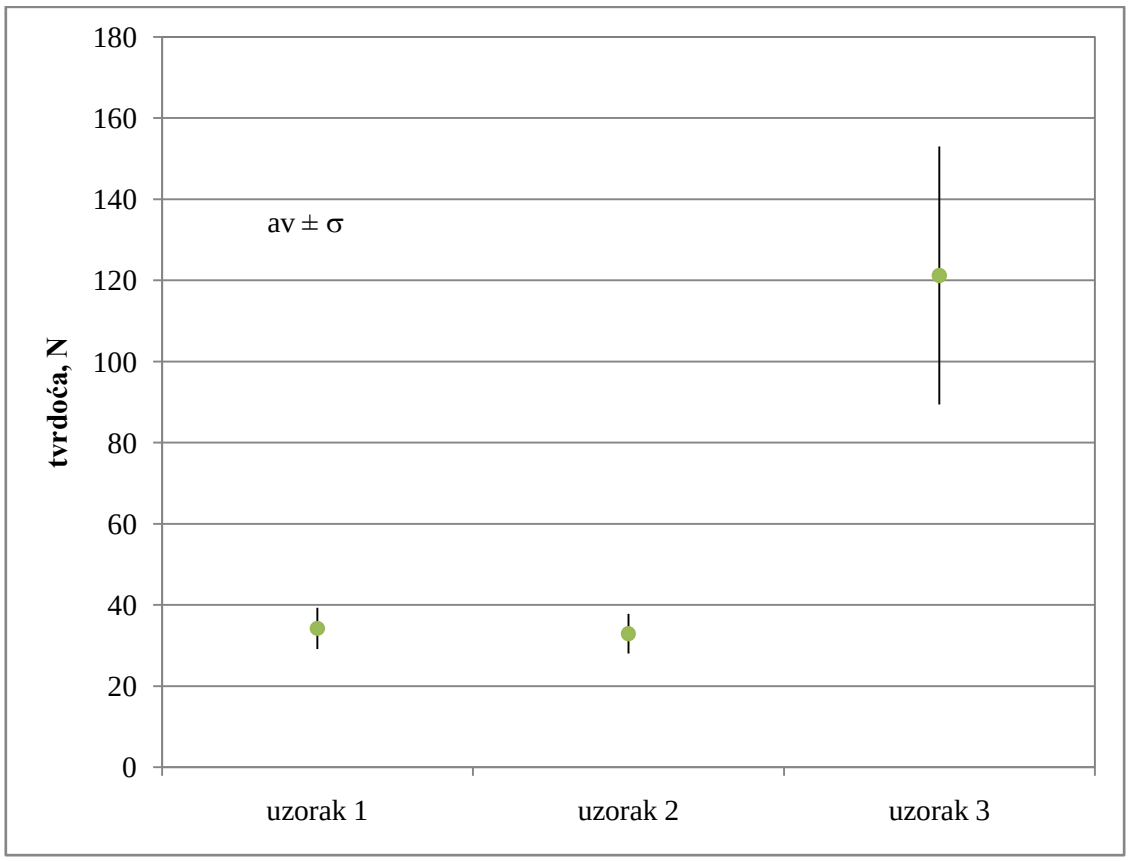


c)

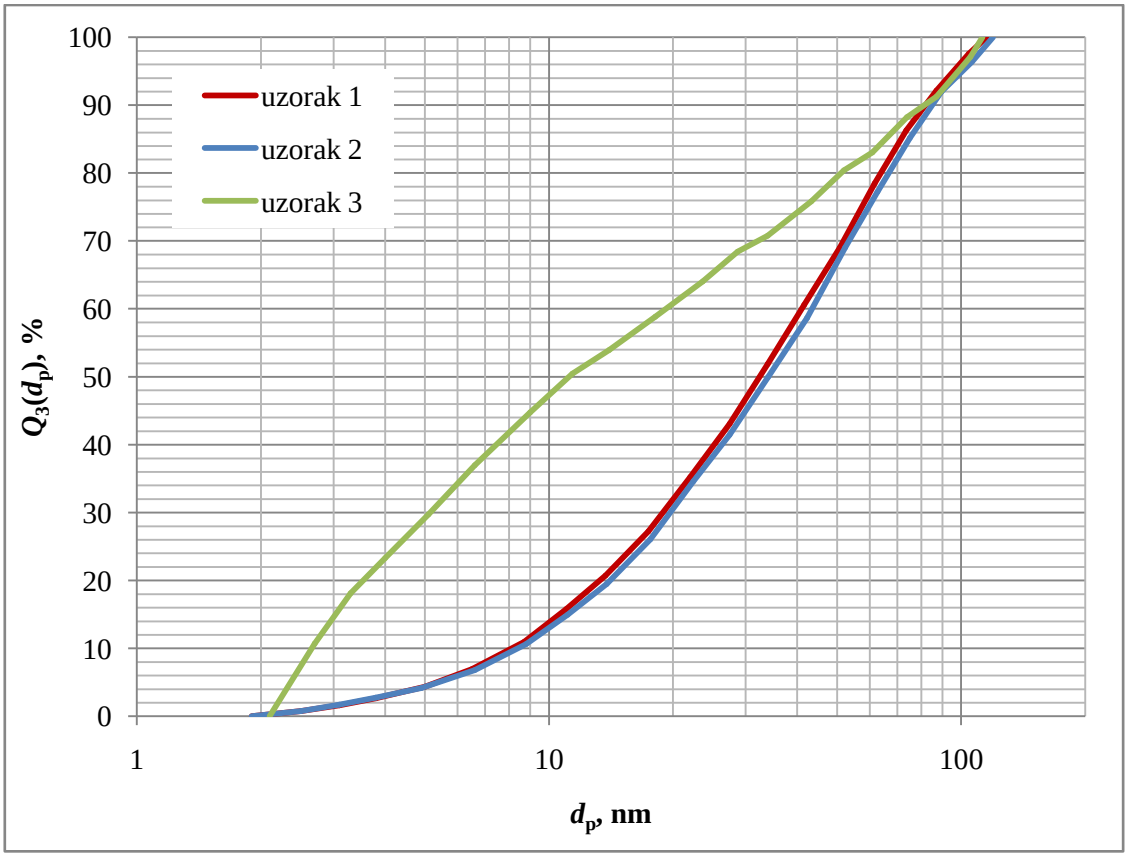
Slika 22.SEM fotografije vanjske površine i presjeka uzoraka: a) uzorak 1; b) uzorak 2; c) uzorak 3

Tablica 4. Gustoće suhih i mokrih uzoraka

	Uzorak 1	Uzorak 2	Uzorak 3
$\rho_{sč}$/ g cm^{-3}	1,25	1,19	1,71
$\rho_{mč}$/g cm^{-3}	2,05	2,56	2,25



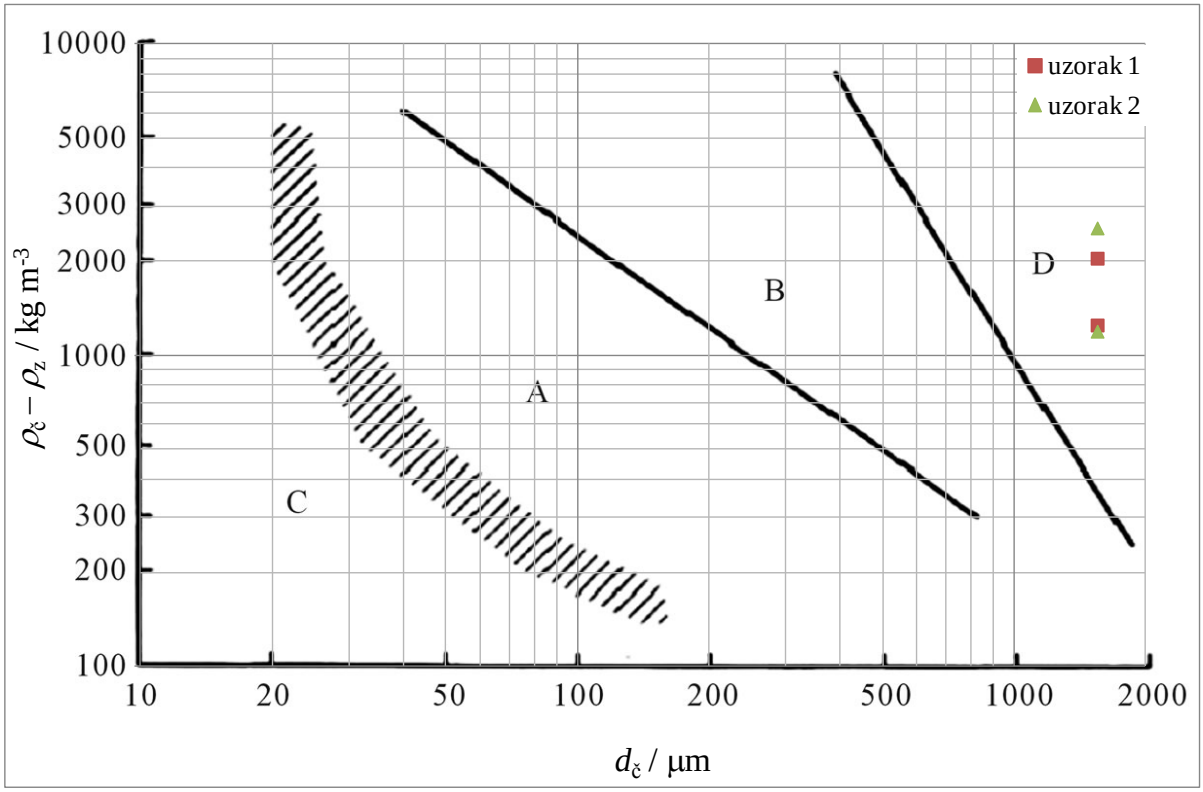
Slika 23. Tvrdoća istraživanih uzoraka



Slika 24. Raspodjela veličina pora istraživanih uzoraka

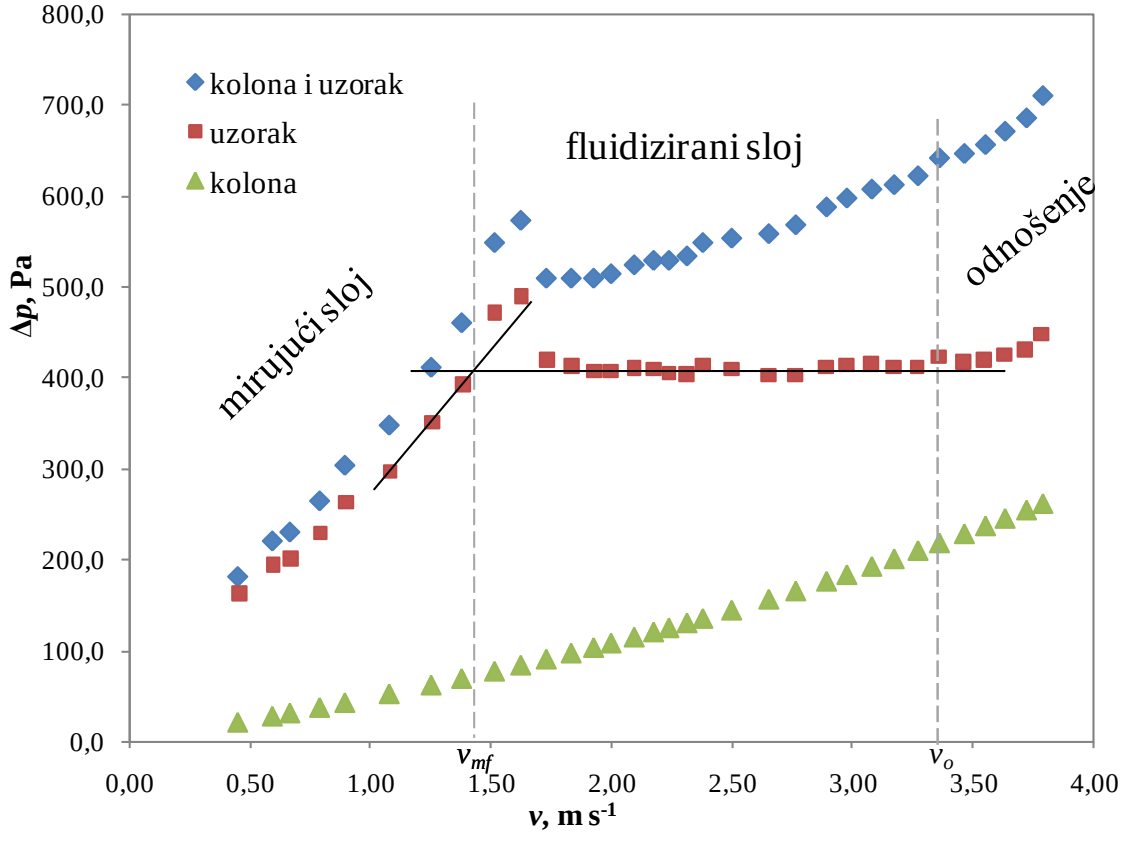
Tablica 5. BET površina, specifični volumen pora i srednji promjer pora istraživanih uzoraka

	Uzorak 1	Uzorak 2	Uzorak 3
S_{BET} / $cm^2\ g^{-1}$	187,52	181,62	101,23
V_p / $cm^3\ g^{-1}$	0,8519	0,8584	0,1308
d_p / nm	17,15	17,70	5,09

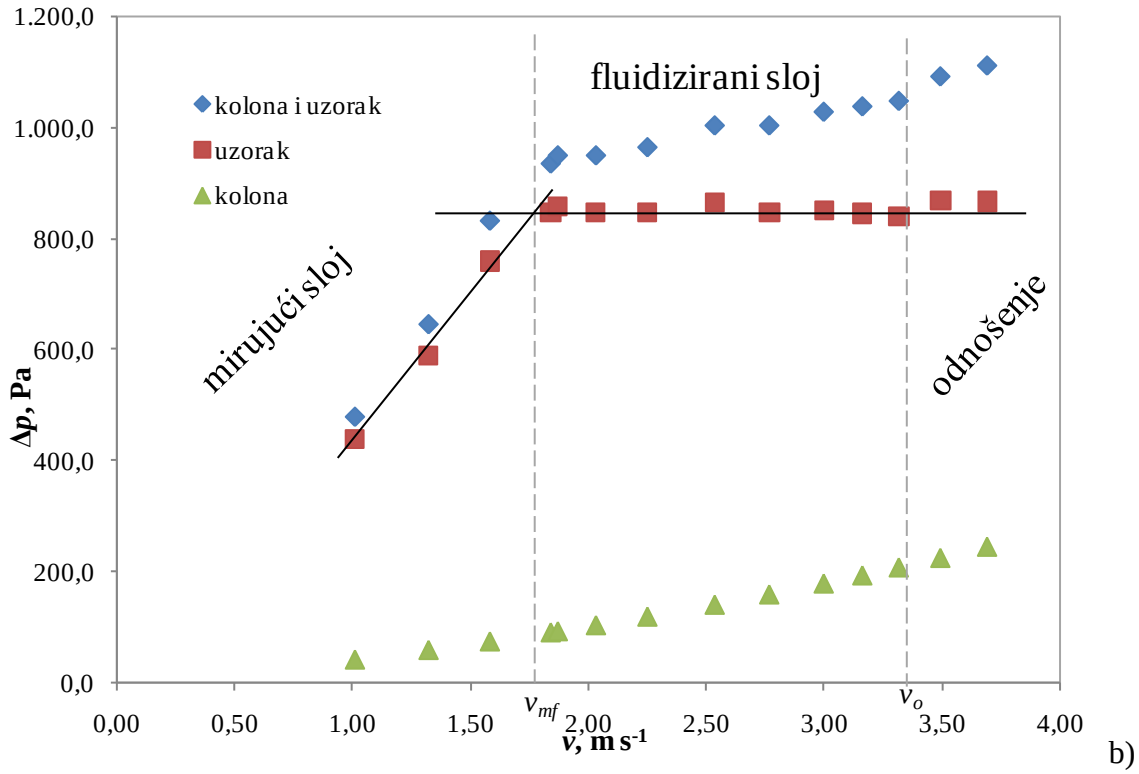


Slika 25. Geldartova klasifikacija uzoraka s ucrtanim uzorcima 1 i 2

4.2. Definiranje radnog područja



a)



b)

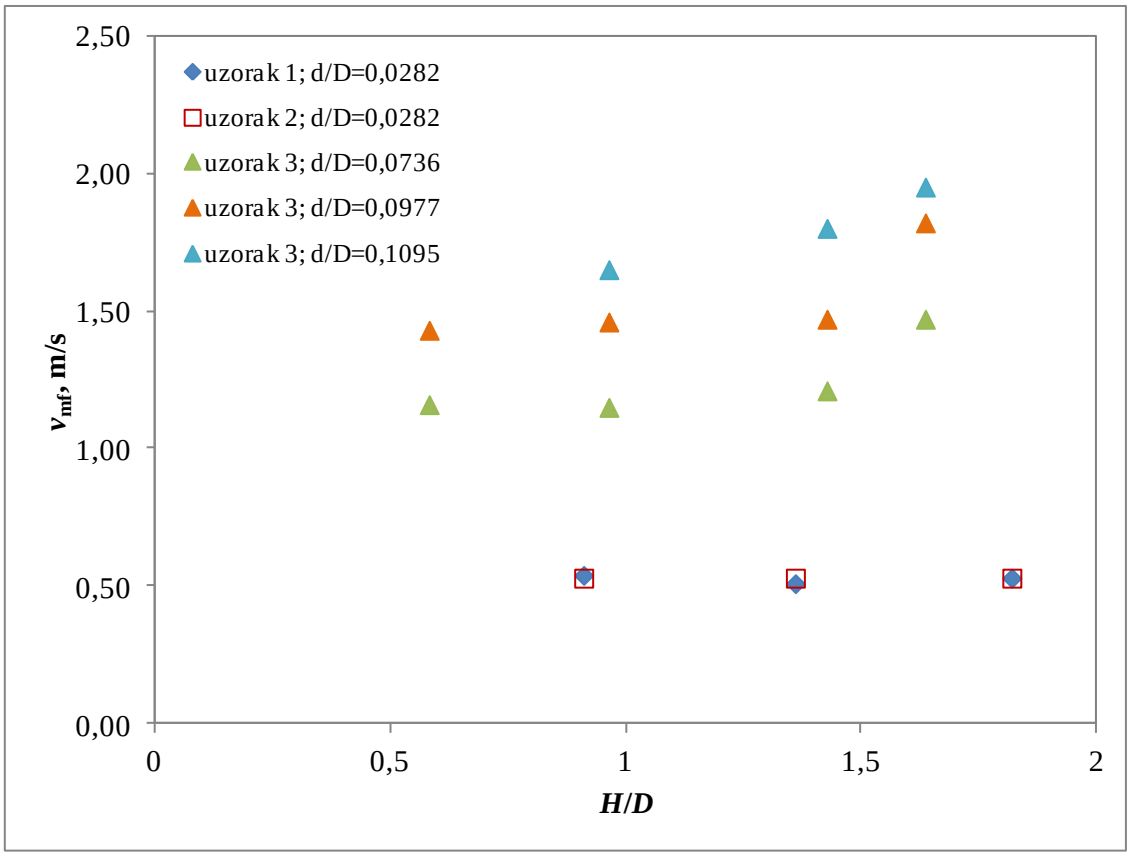
Slika 26. Eksperimentalno određivanje minimalne brzine fluidizacije:

a) uzlazna krivulja fluidizacije uzorka 3 *H/D*=0,58;

b) silazna krivulja fluidizacije uzorka 3 *H/D*=1,64.

Tablica 6. Eksperimentalne i procjenjene vrijednosti minimalne brzine fluidizacije i brzine odnošenja

Uzorak 1; $d_č$ = 1,550 mm; Ar (suhi) = $1{,}66 \cdot 10^5$; Ar (mokri) = $2{,}72 \cdot 10^5$							
v_{mf}, ms^{-1}						v_o, ms^{-1}	
eksperimentalna			Chitester	Hilal	Wen & Yu	eksperimentalna	procjena
suhi	*H*/*D*		0,64	0,53	0,54	3,00	4,57
	0,91	0,54					
	1,36	0,51					
	1,82	0,53					
mokri	*H*/*D*		0,88	0,71	0,75	-	5,78
	0,91	0,70					
	1,36	0,75					
	1,82	0,69					
Uzorak 2; $d_č$ = 1,550 mm; Ar (suhi) = $1{,}58 \cdot 10^5$; Ar (mokri) = $3{,}41 \cdot 10^5$							
v_{mf}, ms^{-1}						v_o, ms^{-1}	
eksperimentalna			Chitester	Hilal	Wen & Yu	eksperimentalna	procjena
suhi:	*H*/*D*		0,65	0,51	0,52	3,1	4,47
	0,91	0,53					
	1,36	0,53					
	1,82	0,53					
mokri:	*H*/*D*		1,02	0,81	0,87	-	6,10
	0,91	0,58					
	1,36	0,73					
	1,82	0,75					
Uzorak 3; $d_č$ = 4,050 mm; Ar (suhi) = $4{,}05 \cdot 10^6$; Ar (mokri) = $5{,}33 \cdot 10^6$							
v_{mf}, ms^{-1}						v_o, ms^{-1}	
eksperimentalna			Chitester	Hilal	Wen & Yu	eksperimentalna	procjena
suhi:	*H*/*D*		1,57	1,17	1,39	-	8,18
	0,58	1,16					
	0,96	1,15					
	1,46	1,21					
	1,64	1,47					
mokri:	*H*/*D*		1,81	1,35	1,62	-	9,34
	0,58	1,44					
	0,96	1,47					
	1,46	1,49					
	1,64	1,51					
Uzorak 3; $d_č$ = 5,375 mm; Ar (suhi) = $9{,}47 \cdot 10^6$; Ar (mokri) = $1{,}25 \cdot 10^7$							
v_{mf}, ms^{-1}						v_o, ms^{-1}	
eksperimentalna			Chitester	Hilal	Wen & Yu	eksperimentalna	procjena
suhi:	*H*/*D*		1,84	1,37	1,66	-	9,29
	0,58	1,43					
	0,96	1,46					
	1,46	1,47					
	1,64	1,82					
mokri:	*H*/*D*		2,13	1,57	1,91	-	10,60
	0,58	1,71					
	0,96	1,71					
	1,46	1,81					
	1,64	1,81					

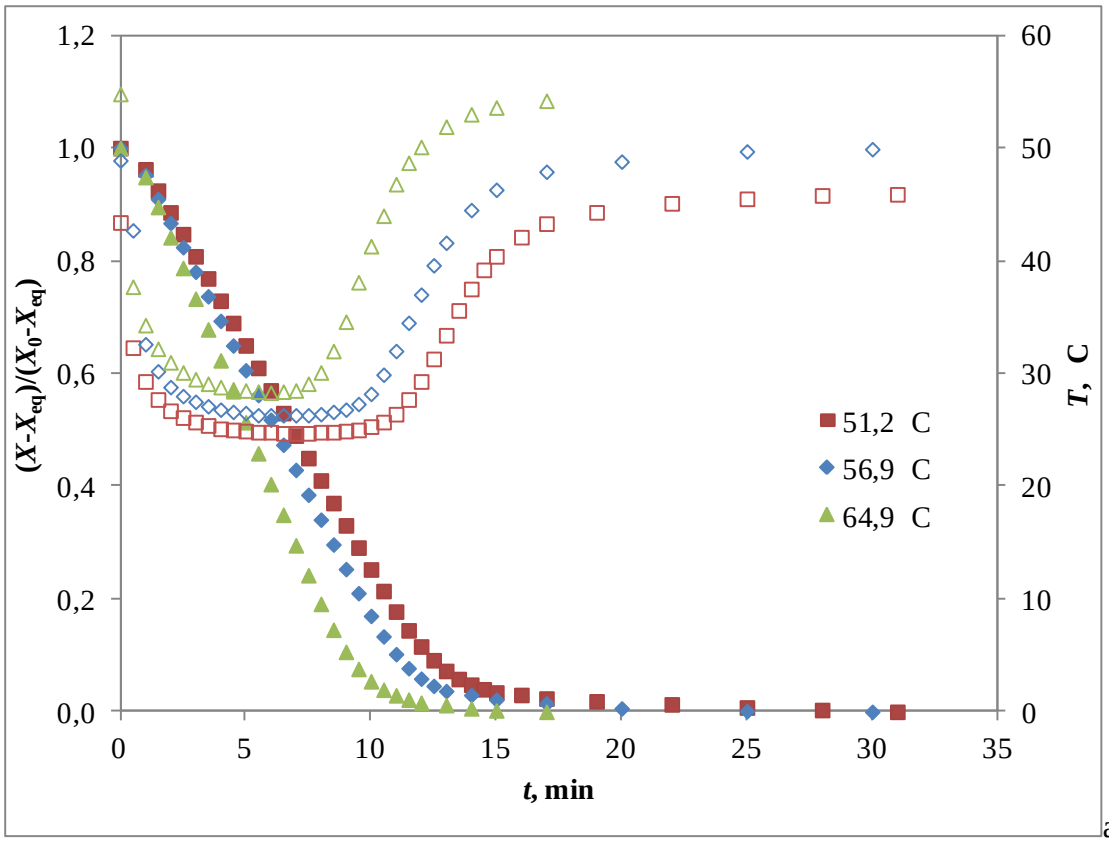


Slika 27. Utjecaj (H/D) i (d/D) na minimalnu brzinu fluidizacije

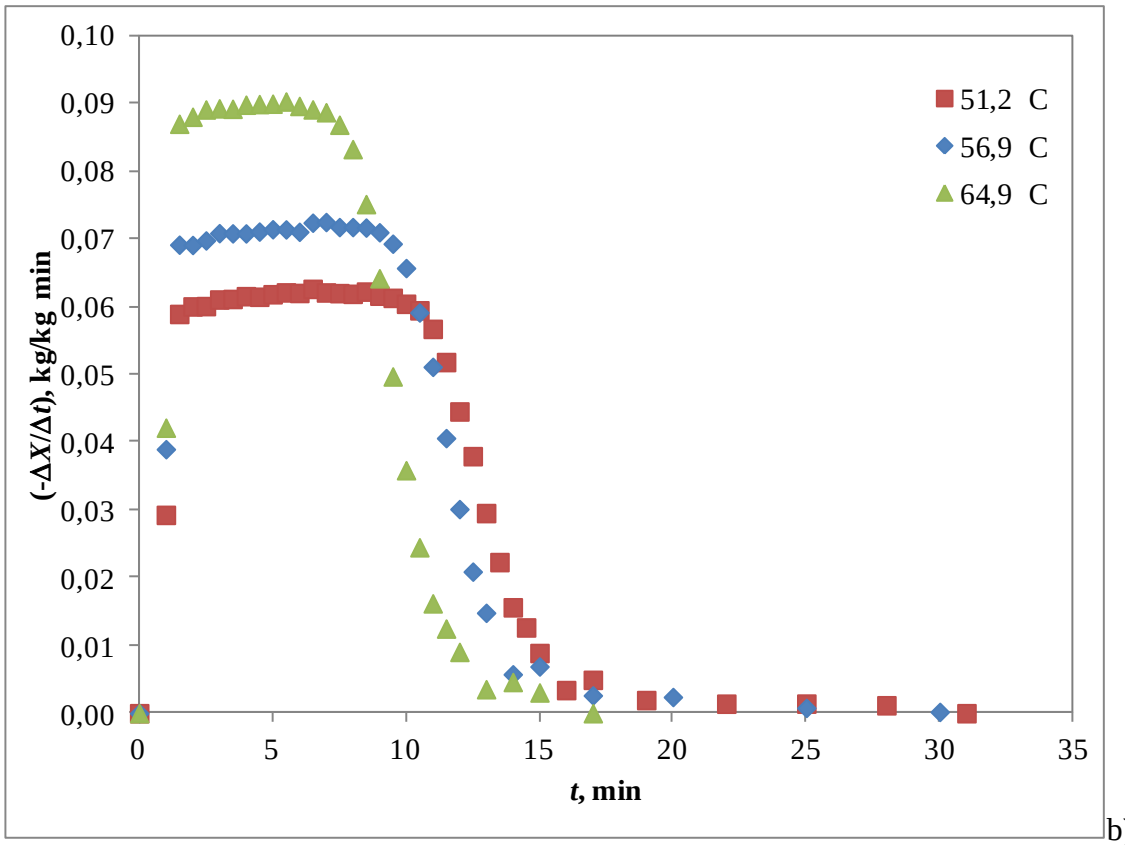
Tablica 7. Granične brzine za turbulentni režim fluidizacije

	Uzorak 1; $d_č$ = 1,550 mm; Ar (suhi) = $1{,}66 \cdot 10^5$; Ar (mokri) = $2{,}72 \cdot 10^5$				
	v_c, ms^{-1}			v_k, ms^{-1}	
	Horio	Cai	Canada	Yerushalmi	Perales
suhi:	2,66	1,40	4,14	11,52	4,40
mokri:	3,36	1,76	5,23	15,19	5,51
	Uzorak 2; $d_č$ = 1,550 mm; Ar (suhi) = $1{,}58 \cdot 10^5$; Ar (mokri) = $3{,}41 \cdot 10^5$				
	v_c, ms^{-1}			v_k, ms^{-1}	
	Horio	Cai	Canada	Yerushalmi	Perales
suhi:	2,59	1,37	4,05	11,23	4,31
mokri:	3,73	1,95	5,82	17,25	6,10
	Uzorak 3; $d_č$ = 4,050 mm; Ar (suhi) = $4{,}05 \cdot 10^6$; Ar (mokri) = $5{,}33 \cdot 10^6$				
	v_c, ms^{-1}			v_k, ms^{-1}	
	Horio	Cai	Canada	Yerushalmi	Perales
suhi:	4,59	2,33	7,17	26,39	7,17
mokri:	5,23	2,64	8,15	30,77	8,11
	Uzorak 3; $d_č$ = 5,375 mm; Ar (suhi) = $9{,}47 \cdot 10^6$; Ar (mokri) = $1{,}25 \cdot 10^7$				
	v_c, ms^{-1}			v_k, ms^{-1}	
	Horio	Cai	Canada	Yerushalmi	Perales
suhi:	5,17	2,59	8,06	31,99	7,93
mokri:	5,88	2,94	9,17	37,30	8,98

4.3. Kinetičke krivulje sušenja

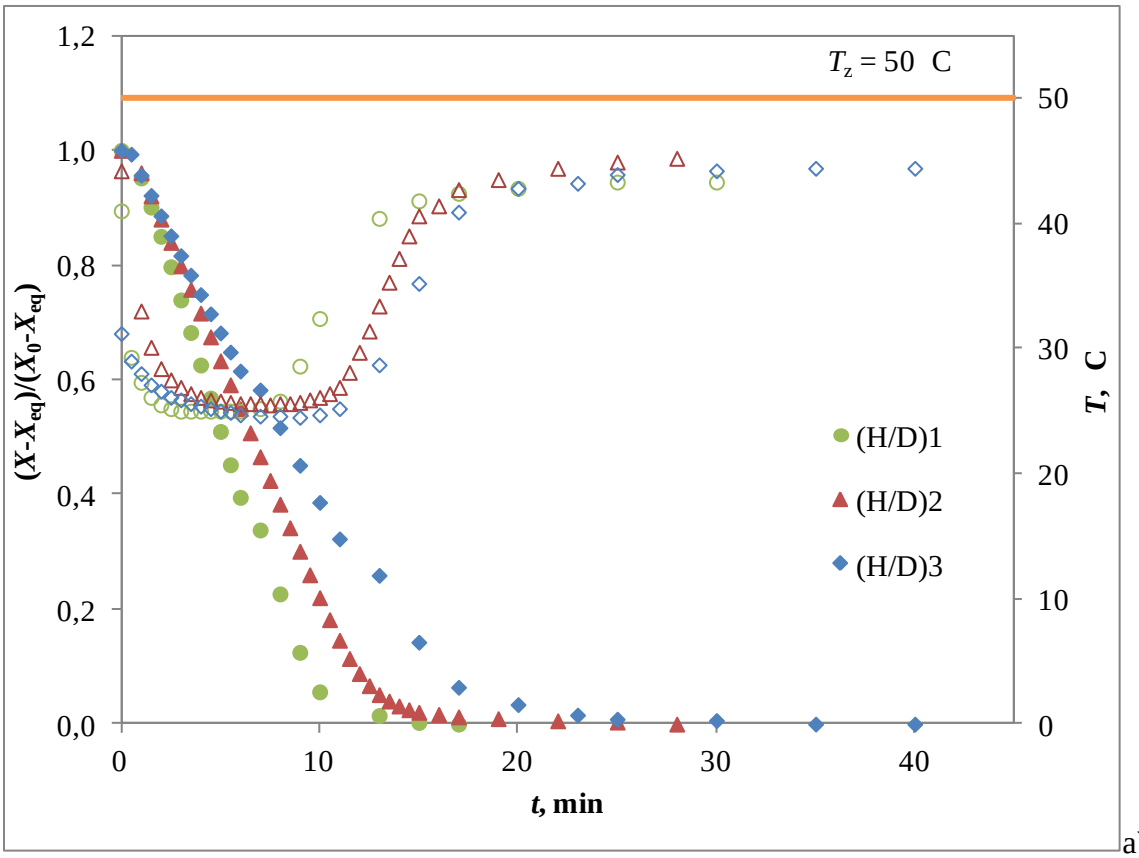


a)

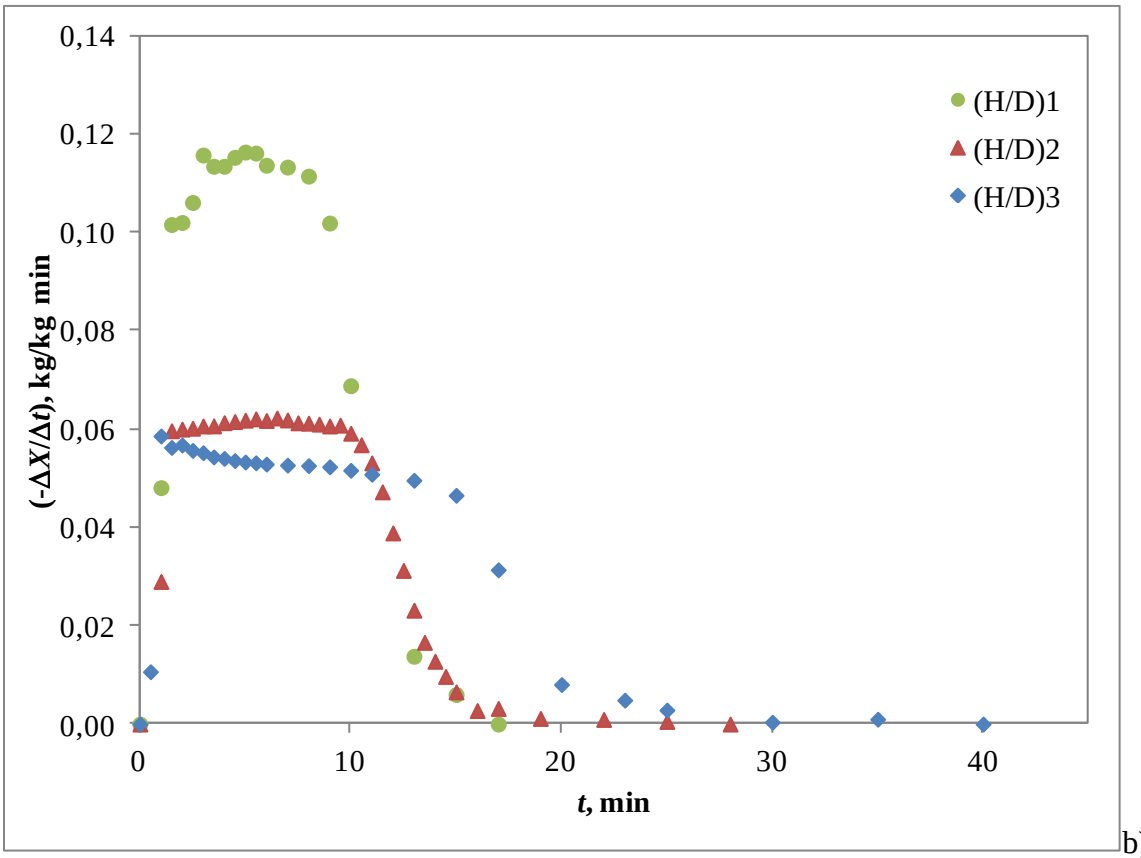


b)

Slika 28. Utjecaj temperature na kinetiku sušenja (uzorak 1; (H/D)=1,36; *v* = 3,13 m/s)

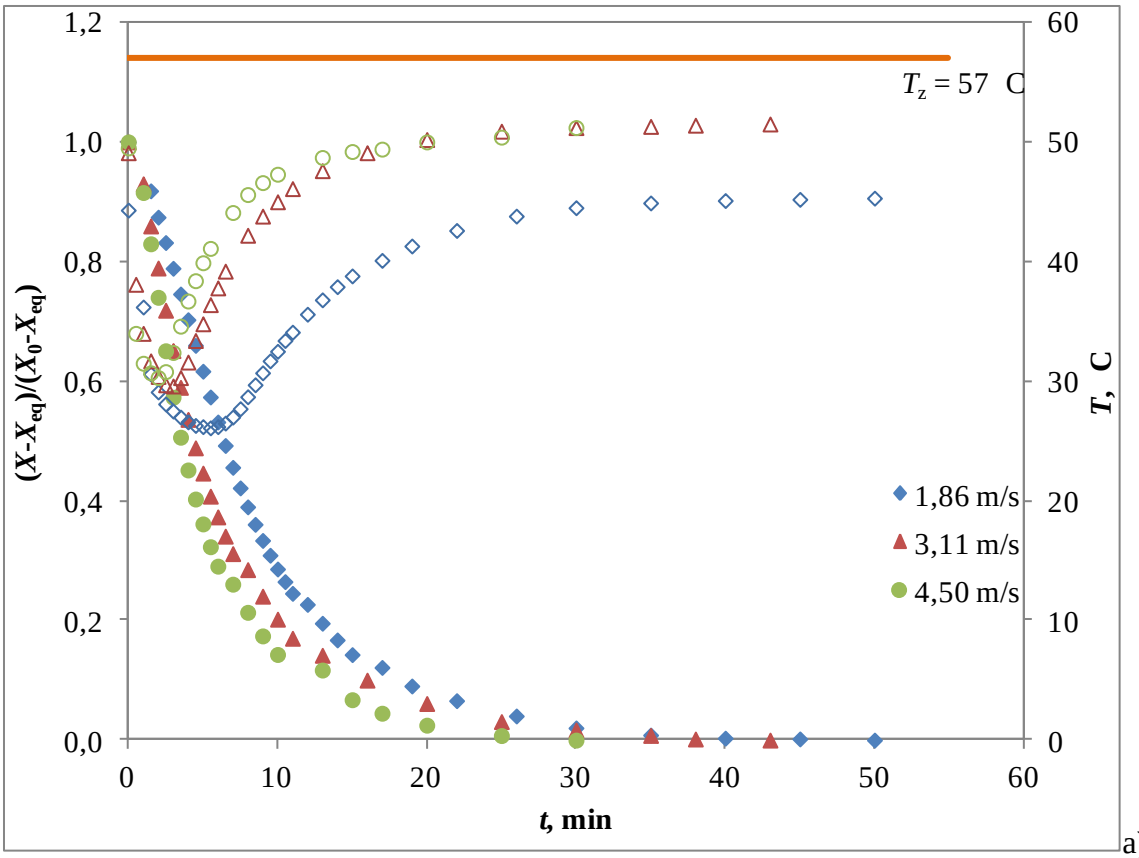


a)

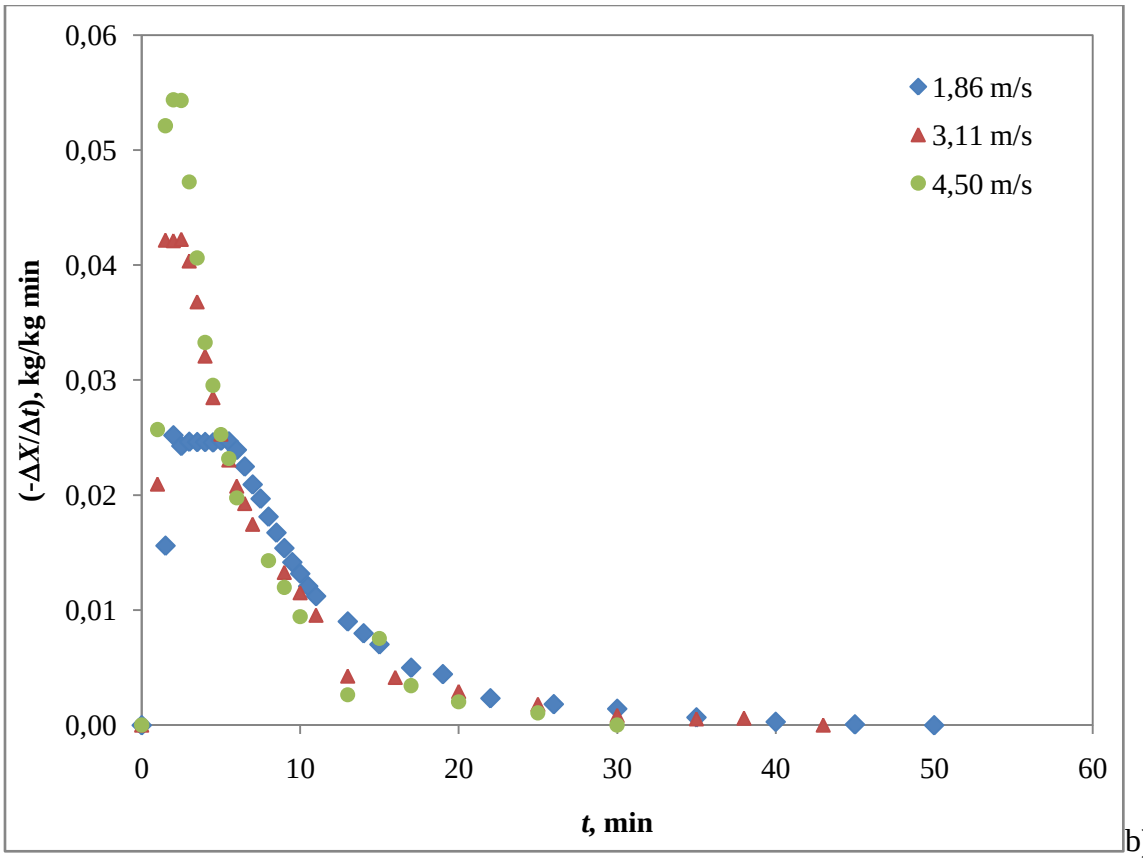


b)

Slika 29. Utjecaj visine mirujućeg sloja čestica na kinetiku sušenja (uzorak 2; *T*=50 °C; *v*=3,13 m/s)

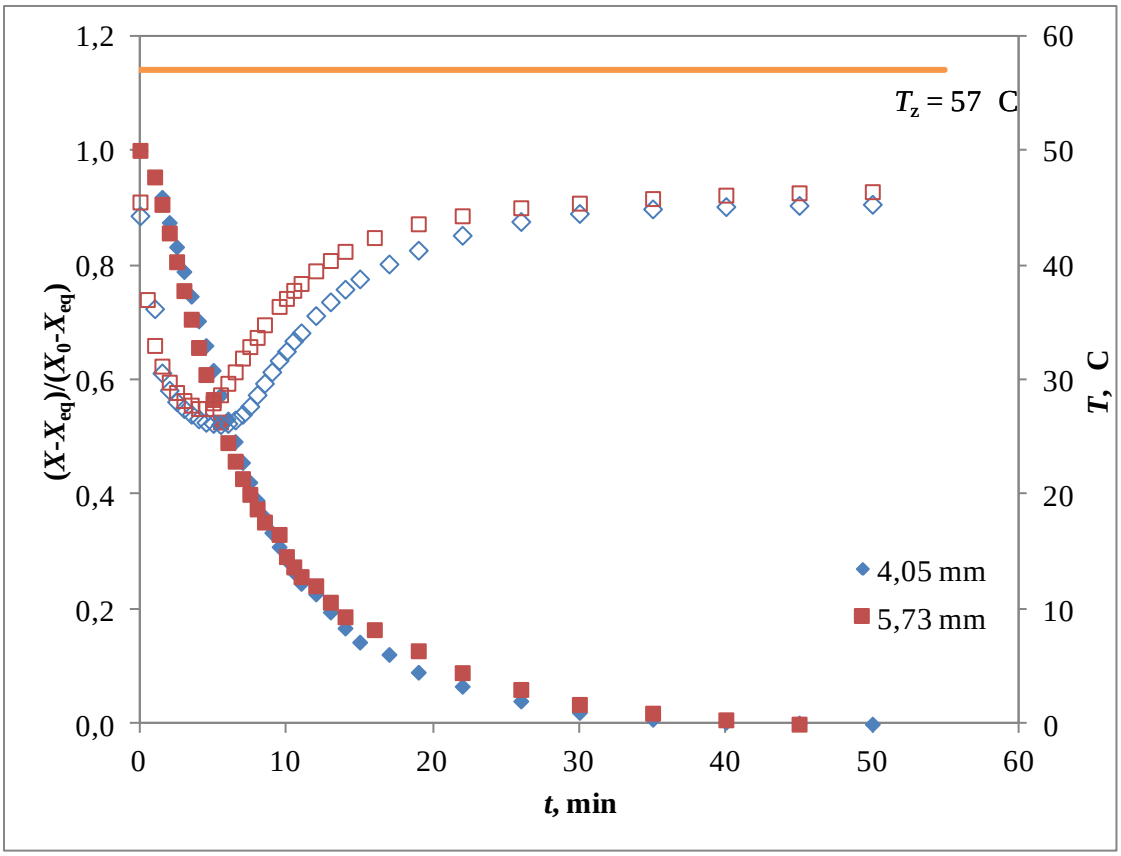


a)

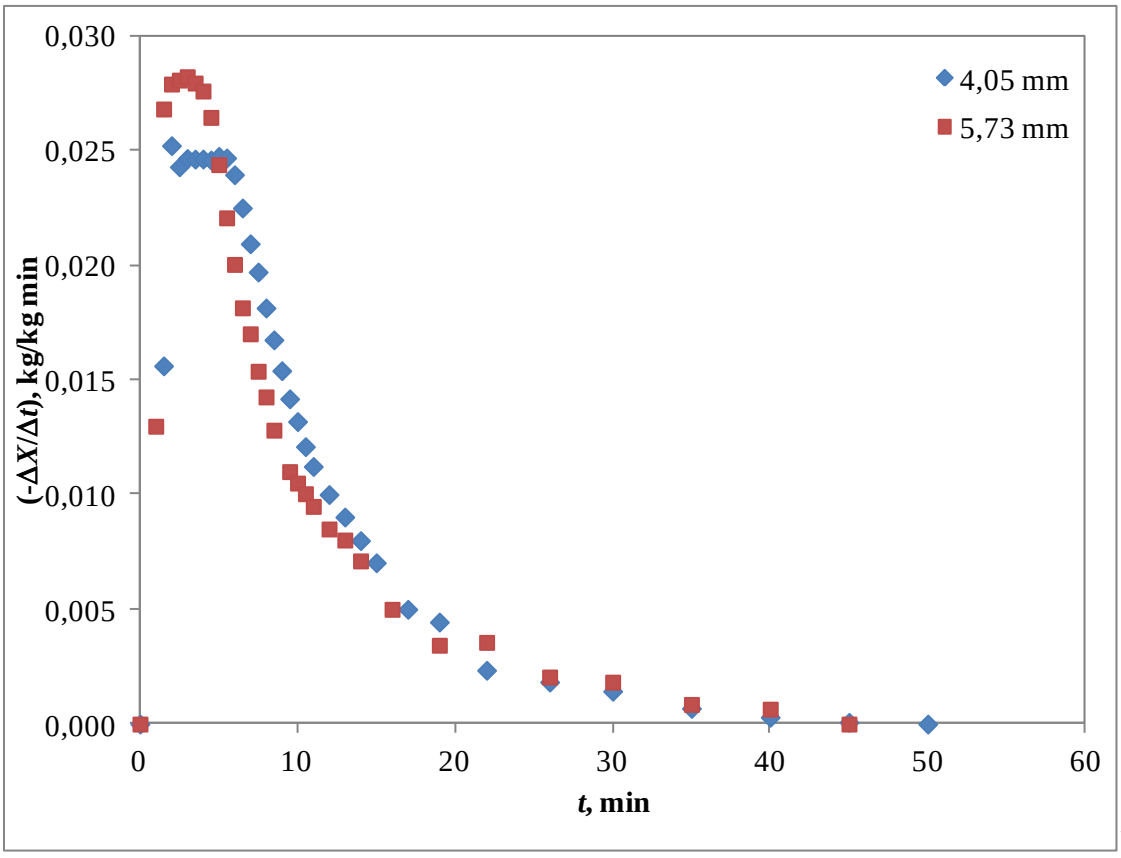


b)

Slika 30. Utjecaj brzine strujanja zraka na kinetiku sušenja (uzorak 3; *d*=4,05 mm; *T*=57 °C; (*H*/*D*)=1,46)



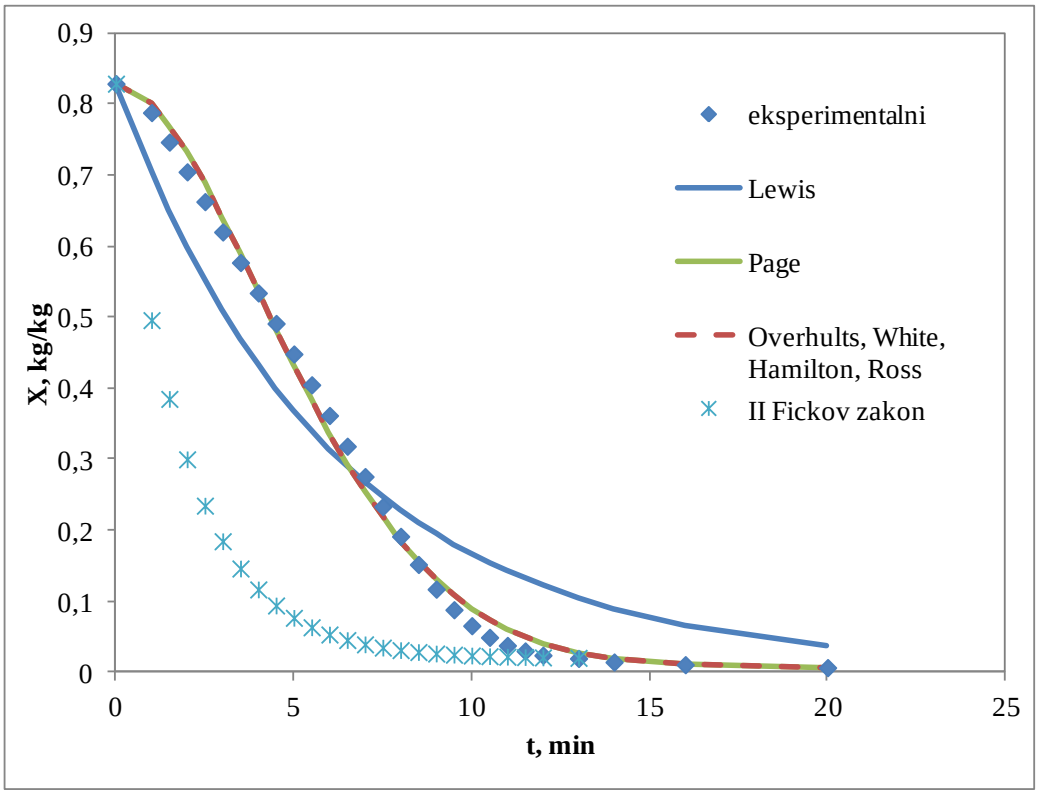
a)



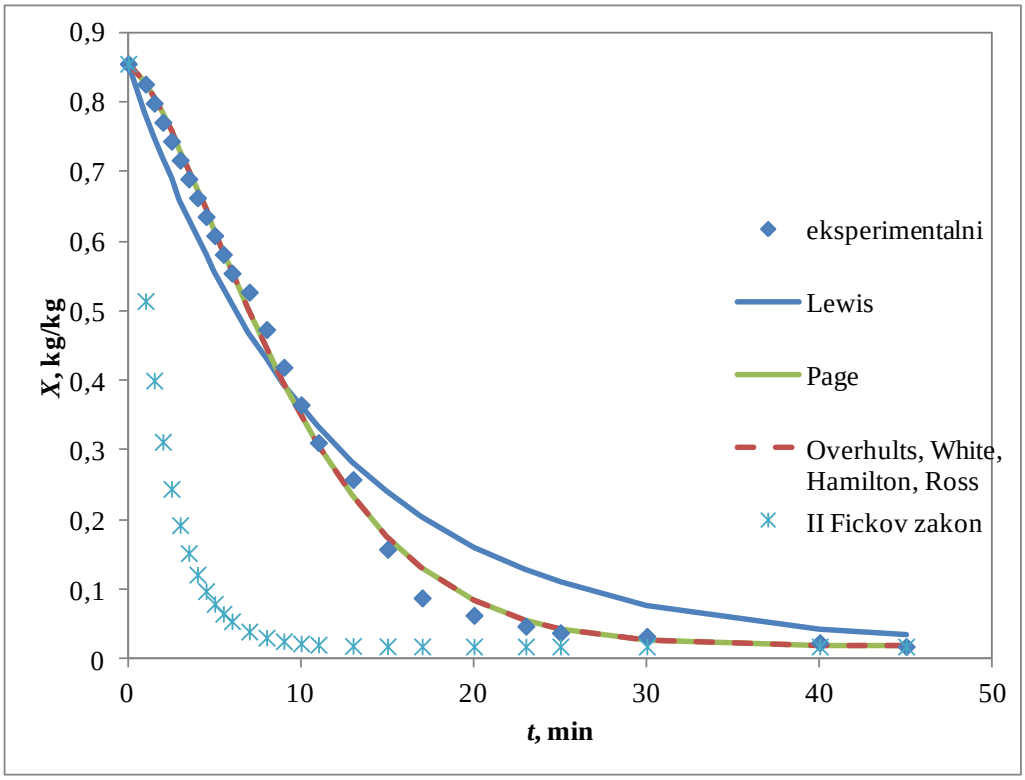
b)

Slika 31. Utjecaj veličine čestica na kinetiku sušenja (uzorak 3; *T*=57 °C; (*H*/*D*)=1,46; *v* = 3,13 m/s)

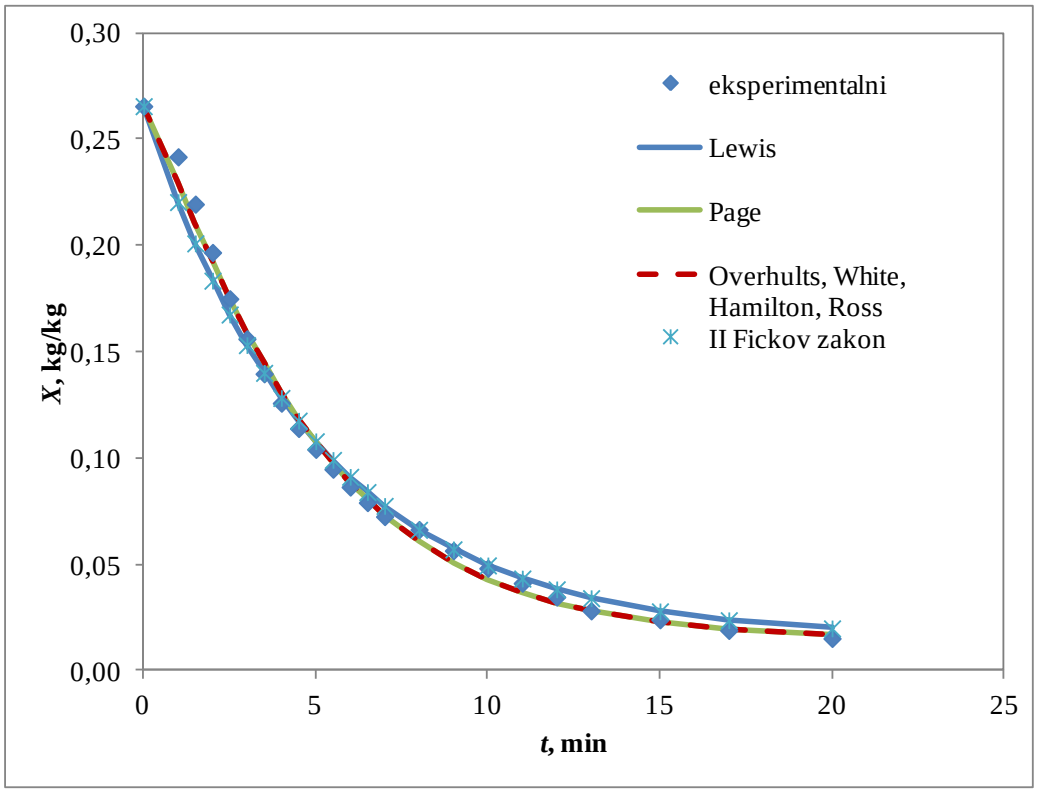
4.4. Matematičko modeliranje procesa sušenja



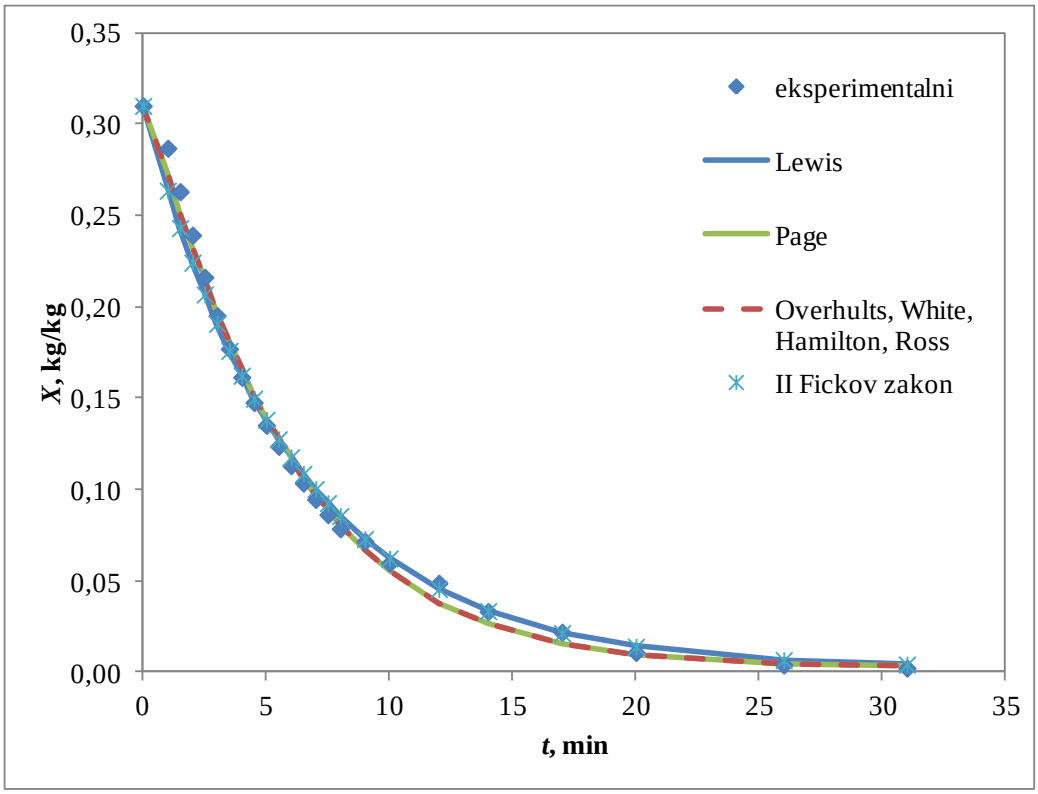
Slika 32. Aproksimacija eksperimentalnih podataka odabranim matematičkim modelima (uzorak 1; (*H*/*D*)=1,36; *T*=65°C; *v*=3,13 m/s)



Slika 33. Aproksimacija eksperimentalnih podataka odabranim matematičkim modelima (uzorak 2; (*H*/*D*)=1,82; *T*=50°C; *v*=3,13 m/s)



Slika 34. Aproksimacija eksperimentalnih podataka odabranim matematičkim modelima (uzorak 3; d=4,05 mm; (H/D)=0,96; T=50°C; v=3,13 m/s)



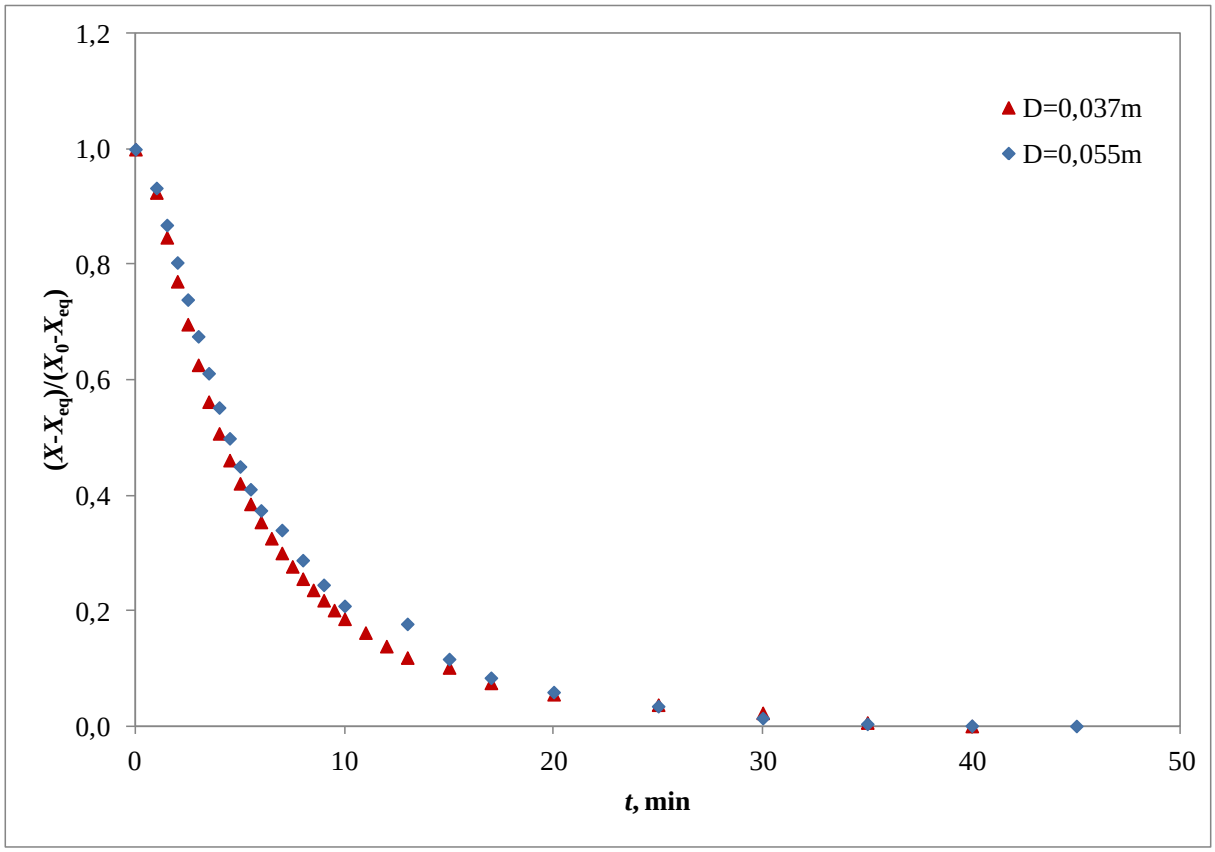
Slika 35. Aproksimacija eksperimentalnih podataka odabranim matematičkim modelima (uzorak 3; d=5,375 mm; (H/D)=1,64; T=65°C; v=3,13 m/s)

Tablica 8. Parametri Pageovog i OWHR modela za uzorke 1, 2 i 3

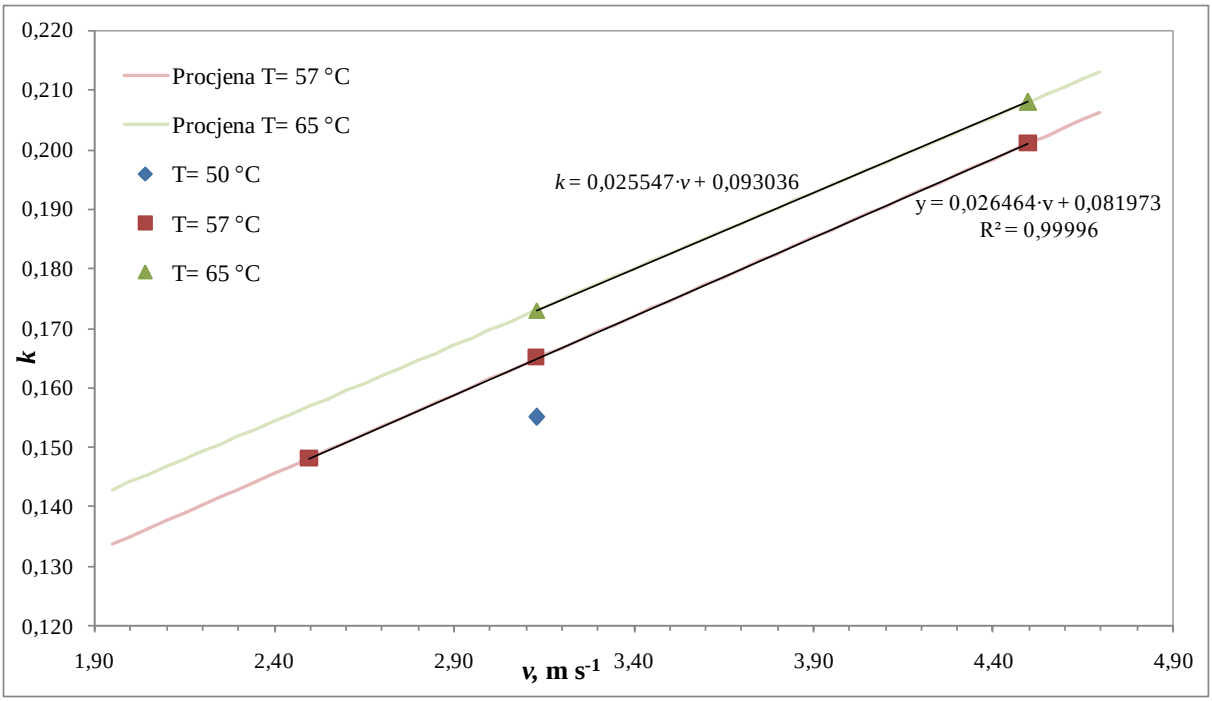
D		(*H*/*D*)	*v*, m/s	*T*, °C	X_0, kg/kg	Y_0, kg/kg	X_{eq}, kg/kg	Page		OWHR	
								k	n	k	n
D = 0,055 m	Uzorak 1	0,91	3,13	49,4	1,0209	0,0051	0,0209	0,044	1,71	0,161	1,71
				50,0	0,7533	0,0046	0,0318	0,037	1,78	0,158	1,78
				56,5	1,0648	0,0048	0,0169	0,051	1,76	0,184	1,76
				57,0	0,7624	0,0037	0,0188	0,089	1,59	0,221	1,59
				65,5	0,7582	0,0043	0,0163	0,063	1,88	0,229	1,88
			1,50	50,1	0,7693	0,0059	0,0285	0,027	1,49	0,089	1,49
		1,36	3,13	52,3	0,7616	0,0041	0,0206	0,026	1,77	0,128	1,77
				57,3	0,8389	0,0046	0,0102	0,028	1,78	0,135	1,78
				57,3	0,7709	0,0046	0,0175	0,044	1,53	0,130	1,53
				66,7	0,8286	0,0026	0,0069	0,036	1,81	0,158	1,81
		1,82	3,13	52,2	0,8211	0,0030	0,0226	0,037	1,43	0,100	1,43
	Uzorak 2	0,91	3,13	50,0	0,7592	0,0044	0,0245	0,053	1,66	0,171	1,66
				50,2	0,7375	0,0073	0,0253	0,058	1,63	0,175	1,63
				50,3	1,0982	0,0055	0,0163	0,052	1,59	0,155	1,59
				57,0	0,8467	0,0057	0,0214	0,051	1,69	0,173	1,69
				57,1	1,1824	0,0045	0,0121	0,061	1,62	0,178	1,62
				65,8	0,8597	0,0022	0,0075	0,071	1,72	0,214	1,72
		1,36	3,13	51,2	0,7951	0,0032	0,0175	0,025	1,75	0,123	1,75
				56,9	0,8240	0,0028	0,0114	0,031	1,75	0,136	1,75
				64,9	0,8441	0,0047	0,0167	0,045	1,59	0,142	1,59
		1,82	3,13	52,4	0,8549	0,0031	0,0184	0,032	1,46	0,095	1,46
	Uzorak 3; d=4,050 mm	0,96	3,13	50,3	0,3081	0,0061	0,0122	0,134	1,10	0,161	1,10
				50,6	0,2656	0,0047	0,0152	0,155	1,15	0,199	1,15
				57,1	0,2800	0,0049	0,0095	0,240	0,98	0,233	0,98
				57,1	0,3112	0,0049	0,0095	0,165	1,08	0,187	1,08
				64,9	0,3273	0,0048	0,0093	0,179	1,02	0,187	1,02
				66,7	0,3048	0,0027	0,0068	0,173	1,22	0,238	1,22
			2,5	56,7	0,3266	0,0077	0,0125	0,148	1,11	0,150	1,11
			4,5	58,2	0,3094	0,0043	0,0086	0,201	1,10	0,233	1,10
				64,9	0,3217	0,0032	0,0071	0,208	1,16	0,256	1,16
		1,46	3,13	51,3	0,3058	0,0052	0,0152	0,112	1,12	0,141	1,12
				57,3	0,2999	0,0077	0,0102	0,121	1,11	0,156	1,11
				59,1	0,3089	0,0043	0,0095	0,127	1,09	0,162	1,09
				65,6	0,3423	0,0027	0,0107	0,138	1,11	0,150	1,11
			1,86	57,1	0,2961	0,0049	0,0098	0,055	1,35	0,117	1,35
			4,5	57,2	0,3146	0,0049	0,0106	0,156	1,12	0,191	1,12
				64,9	0,3470	0,0040	0,0087	0,169	1,15	0,213	1,15
		1,64	3,13	50,4	0,2897	0,0088	0,0119	0,092	1,12	0,118	1,12
				52,2	0,3062	0,0047	0,0115	0,094	1,16	0,132	1,16
				59,1	0,3617	0,0038	0,0099	0,097	1,18	0,139	1,18
				65,5	0,3178	0,0033	0,0048	0,114	1,18	0,161	1,18
				67,6	0,3855	0,0017	0,0059	0,123	1,08	0,144	1,08
	Uzorak 3; d=5,375 mm	0,96	3,13	50,5	0,2996	0,0044	0,0170	0,187	0,94	0,168	0,94
				57,0	0,2756	0,0080	0,0116	0,155	1,06	0,173	1,06
				57,4	0,2739	0,0051	0,0199	0,166	1,10	0,197	1,10
				65,0	0,2949	0,0063	0,0080	0,181	1,00	0,184	1,00
				66,4	0,3222	0,0025	0,0015	0,182	1,00	0,184	1,00
		1,46	3,13	52,5	0,2912	0,0051	0,0163	0,154	0,99	0,151	0,99
				58,5	0,2838	0,0042	0,0071	0,139	1,04	0,152	1,04
				66,9	0,3332	0,0026	0,0056	0,143	1,07	0,164	1,07
			2,11	57,0	0,2875	0,0048	0,0074	0,081	1,17	0,119	1,17
		1,64	3,13	52,2	0,2845	0,0042	0,0099	0,115	1,05	0,127	1,05
				59,0	0,3348	0,0034	0,0069	0,123	1,04	0,132	1,04
				65,4	0,3394	0,0024	0,0038	0,115	1,04	0,125	1,04
				66,9	0,3100	0,0019	0,0023	0,133	1,11	0,165	1,11

Nastavak Tablice 8.

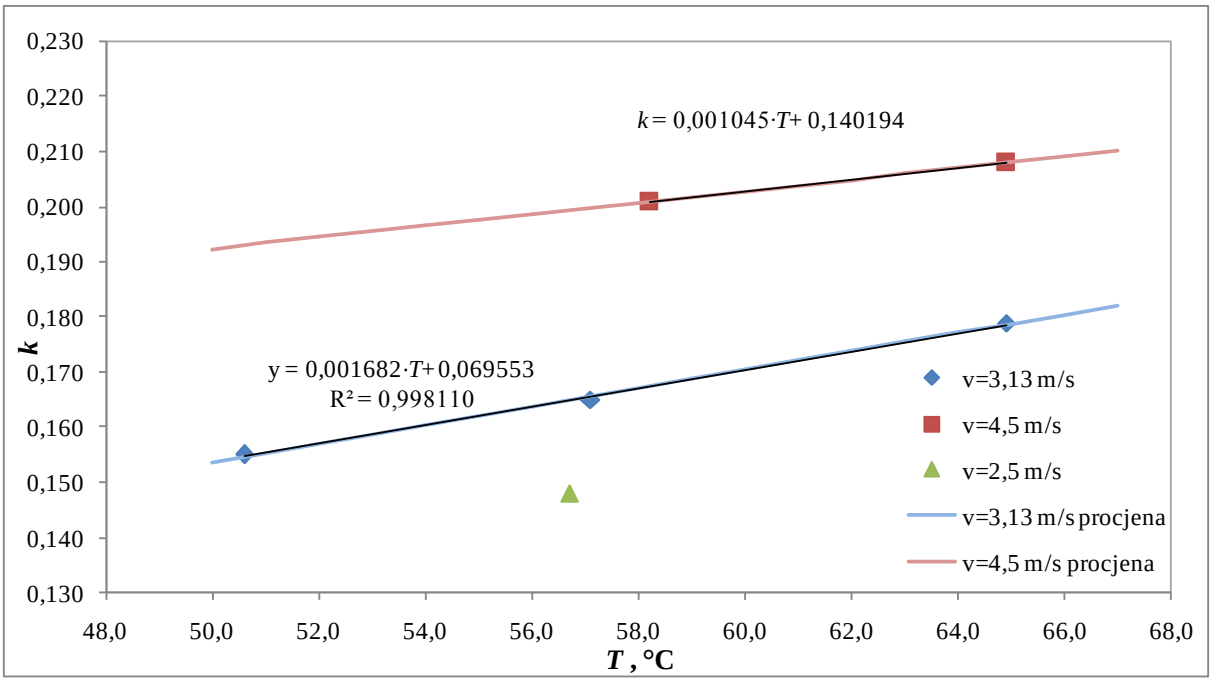
D		(*H*/*D*)	*v*, m/s	*T*, °C	X_0, kg/kg	Y_0, kg/kg	X_{eq}, kg/kg	Page		OWHR	
								k	n	k	n
D = 0,037 m	Uzorak 3; d=4,050 mm	0,96	3,13	57	0,3807	0,0068	0,0098	0,169	1,11	0,205	1,11
		1,46	2,5	50	0,3403	0,0080	0,0176	0,124	1,09	0,151	1,09
				57	0,3381	0,0068	0,0102	0,104	1,26	0,167	1,26
				65	0,3458	0,0066	0,0075	0,172	1,15	0,217	1,15
			3,13	50	0,3403	0,0086	0,0176	0,125	1,09	0,151	1,09
				57	0,3547	0,0086	0,0127	0,142	1,09	0,165	1,09
				65	0,3523	0,0086	0,0114	0,151	1,09	0,199	1,09
			4,5	50	0,3158	0,0087	0,0183	0,148	0,93	0,127	0,93
				57	0,2700	0,0081	0,0126	0,183	0,98	0,176	0,98
				65	0,3060	0,0080	0,0091	0,179	0,93	0,146	0,93
		1,64	3,13	57	0,3588	0,0080	0,0104	0,114	1,14	0,149	1,14



Slika 36. Usporedba krivulja sušenja uzorka 3 ((*H*/*D*)=1,36; *T*=57°C; *v*=3,13 m/s)



Slika 37. Utjecaj brzine strujanja zraka na parametar *k* Pageovog modela

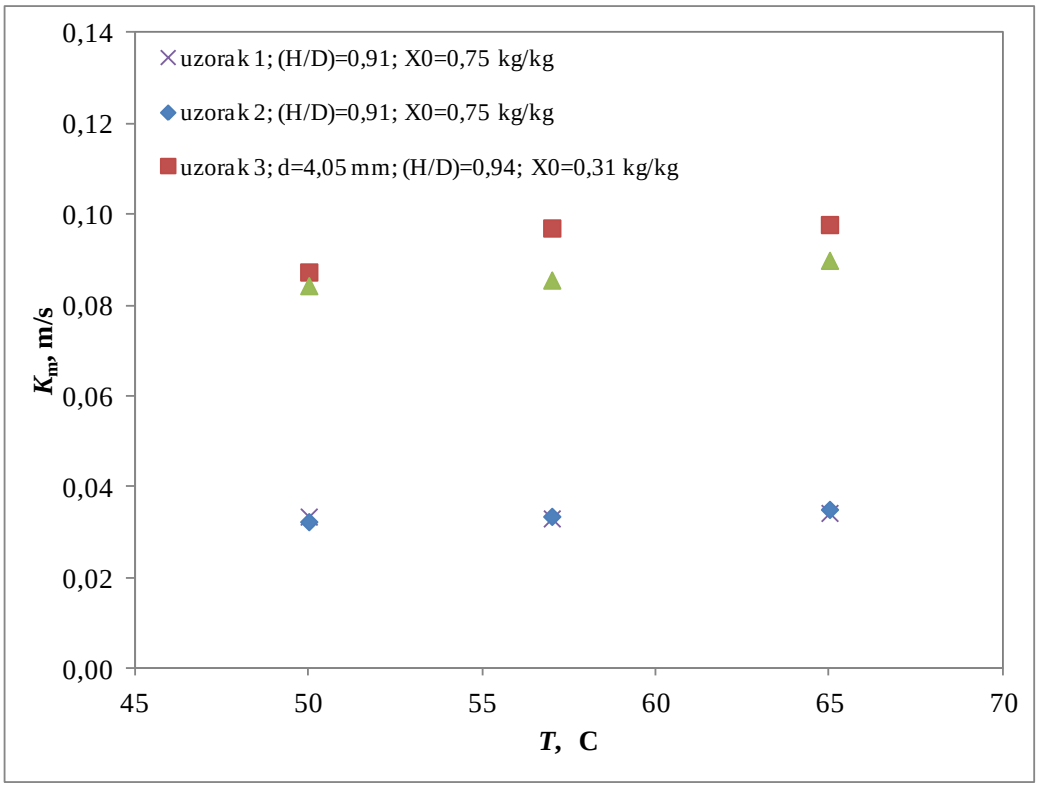


Slika 38. Utjecaj temperature ulaznog zraka na parametar *k* Pageovog modela

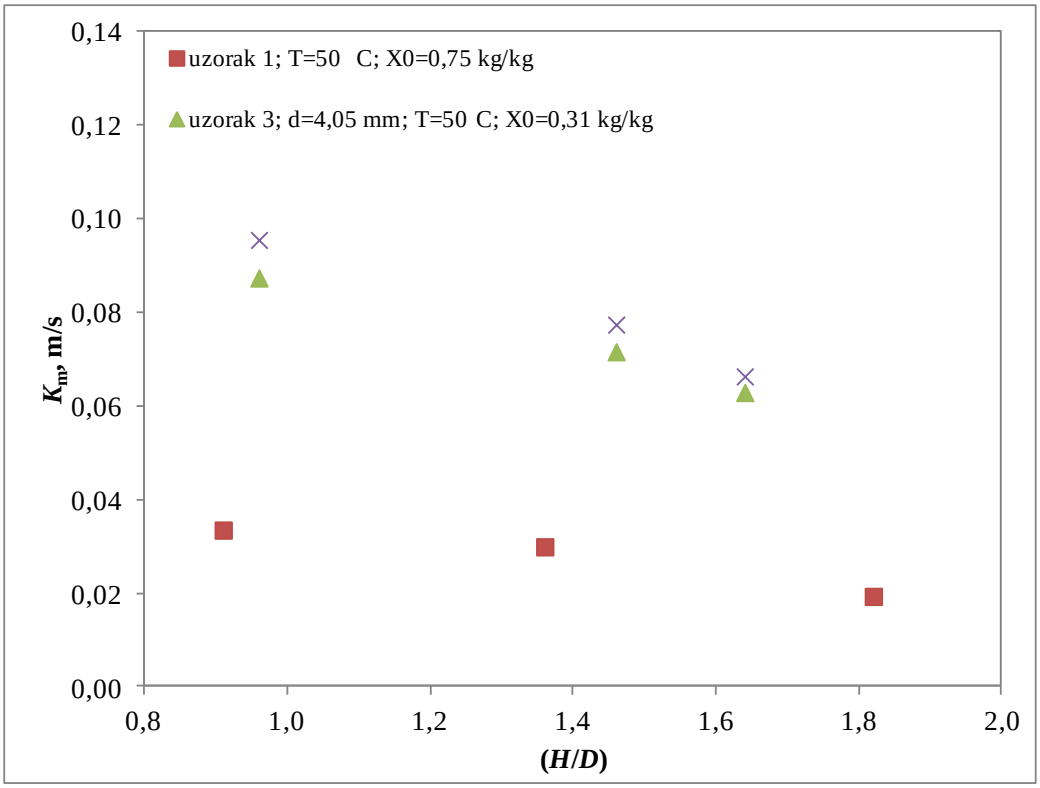
Tablica 9. Parametri Lewisovog modela i prijenosna svojstva za uzorak 3

D	uzorak							Lewis	II Fickov zakon		
		(*H*/*D*)	*v*, m/s	*T*, °C	X_0, kg/kg	Y_0, kg/kg	X_{eq}, kg/kg	K	Bi	D_{ef},·10^8 m^2/s	k_m, ,·10^6 m/s
D = 0,055 m	Uzorak 3; d=4,050 mm	0,96	3,13	50,3	0,3081	0,0061	0,0122	0,159	0,08	4,62	1,78
				50,6	0,2656	0,0047	0,0152	0,199	0,08	5,43	2,23
				57,1	0,2800	0,0049	0,0095	0,233	0,09	5,92	2,62
				57,1	0,3112	0,0049	0,0095	0,186	0,08	5,14	2,09
				64,9	0,3273	0,0048	0,0093	0,187	0,08	5,17	2,10
				66,7	0,3048	0,0027	0,0068	0,242	0,08	6,72	2,73
			2,5	56,7	0,3266	0,0077	0,0125	0,148	0,08	3,82	1,60
			4,5	58,2	0,3094	0,0043	0,0086	0,232	0,09	5,82	2,61
				64,9	0,3217	0,0032	0,0071	0,257	0,08	7,62	2,89
		1,46	3,13	51,3	0,3058	0,0052	0,0152	0,138	0,07	4,55	1,56
				57,3	0,2999	0,0077	0,0102	0,147	0,07	4,98	1,70
				59,1	0,3089	0,0043	0,0095	0,154	0,08	4,33	1,73
				65,6	0,3423	0,0027	0,0107	0,161	0,08	4,72	1,81
			1,86	57,1	0,2961	0,0049	0,0098	0,111	0,04	7,01	1,24
			4,5	57,2	0,3146	0,0049	0,0106	0,189	0,08	5,52	2,12
				64,9	0,3470	0,0040	0,0087	0,212	0,09	5,58	2,38
		1,64	3,13	50,4	0,2897	0,0088	0,0119	0,117	0,04	6,40	1,32
				52,2	0,3062	0,0047	0,0115	0,129	0,05	5,87	1,45
				59,1	0,3617	0,0038	0,0099	0,137	0,06	2,14	1,53
				65,5	0,3178	0,0033	0,0048	0,159	0,08	4,63	1,79
				67,6	0,3855	0,0017	0,0059	0,142	0,07	4,53	1,59
	Uzorak 3; d=5,375 mm	0,96	3,13	50,5	0,2996	0,0044	0,0170	0,169	0,08	8,06	2,52
				57,0	0,2756	0,0080	0,0116	0,172	0,09	7,99	2,57
				57,4	0,2739	0,0051	0,0199	0,197	0,09	8,45	2,94
				65,0	0,2949	0,0063	0,0080	0,184	0,09	7,93	2,74
				66,4	0,3222	0,0025	0,0015	0,184	0,09	7,83	2,74
		1,46	3,13	52,5	0,2912	0,0051	0,0163	0,151	0,08	7,65	2,25
				58,5	0,2838	0,0042	0,0071	0,150	0,08	7,58	2,25
				66,9	0,3332	0,0026	0,0056	0,163	0,08	7,78	2,43
			2,11	57,0	0,2875	0,0048	0,0074	0,116	0,08	6,54	1,72
		1,64	3,13	52,2	0,2845	0,0042	0,0099	0,126	0,07	6,94	1,88
				59,0	0,3348	0,0034	0,0069	0,131	0,07	7,10	1,96
				65,4	0,3394	0,0024	0,0038	0,124	0,07	6,91	1,85
				66,9	0,3100	0,0019	0,0023	0,163	0,08	7,72	2,44
D = 0,037 m	Uzorak 3; d=4,050 mm;	0,96	3,13	57	0,3807	0,0068	0,0098	0,207	0,06	8,05	2,32
		1,46	2,5	50	0,3403	0,0080	0,0176	0,149	0,09	4,00	1,69
				57	0,3381	0,0068	0,0102	0,162	0,08	4,73	1,82
				65	0,3458	0,0066	0,0075	0,218	0,06	8,86	2,46
			3,13	50	0,3403	0,0086	0,0176	0,149	0,09	4,00	1,69
				57	0,3547	0,0086	0,0127	0,165	0,10	3,64	1,85
				65	0,3523	0,0086	0,0114	0,202	0,07	6,67	2,27
			4,5	50	0,3158	0,0087	0,0183	0,128	0,05	3,51	1,45
				57	0,2700	0,0081	0,0126	0,177	0,08	3,07	1,99
				65	0,3060	0,0080	0,0091	0,159	0,08	2,80	1,79
		1,64	3,13	57	0,3588	0,0080	0,0104	0,147	0,07	2,70	1,65

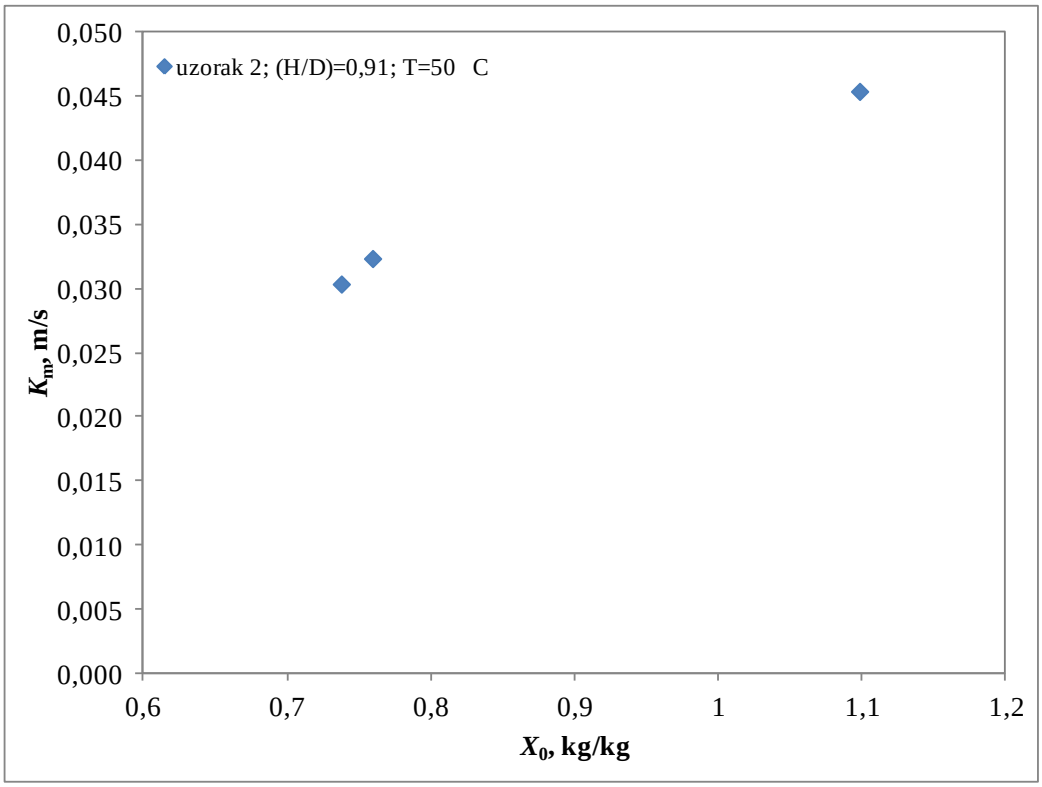
4.5. Procjena ukupnog koeficijenta prijenosa tvari



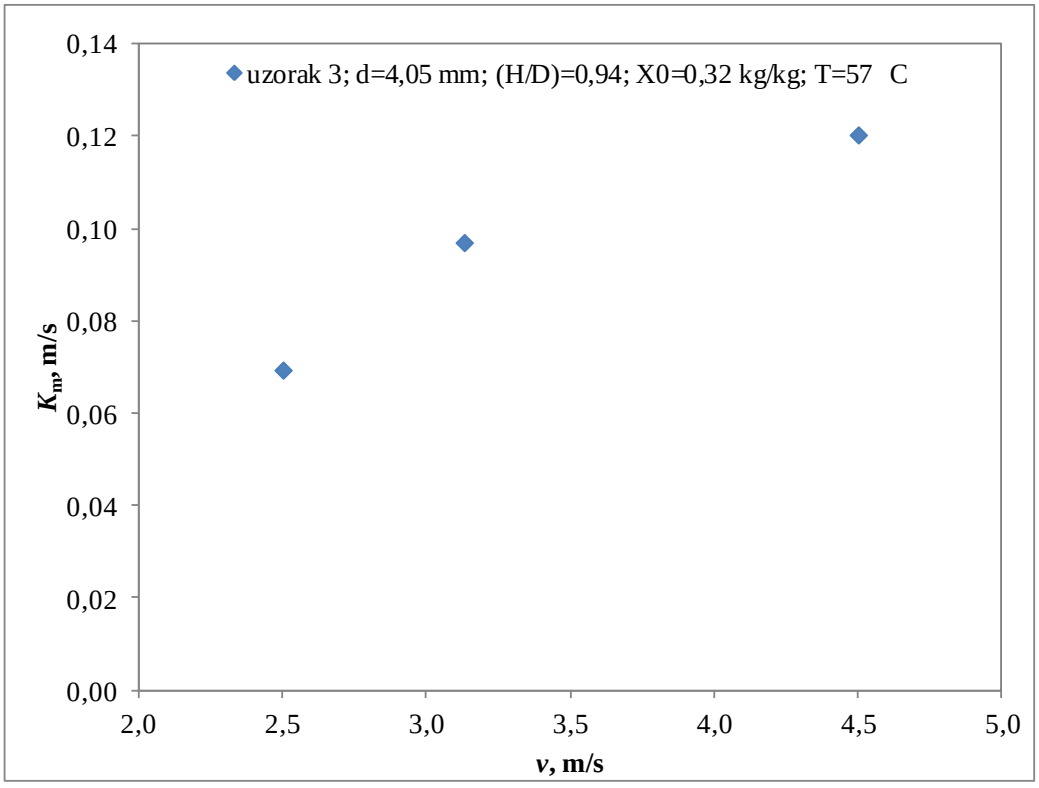
Slika 39. Utjecaj temperature na ukupni koeficijent prijenosa tvari



Slika 40. Utjecaj visine mirujućeg sloja čestica na ukupni koeficijent prijenosa tvari

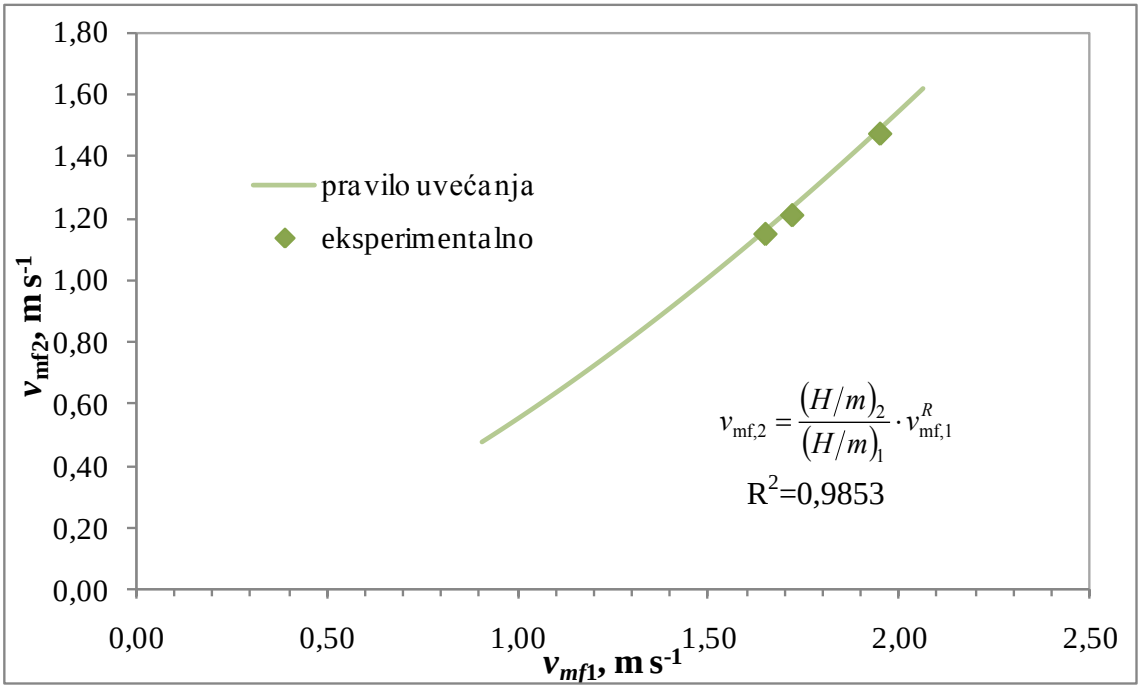


Slika 41. Utjecaj početnog sadržaja vlage materijala na ukupni koeficijent prijenosa tvari

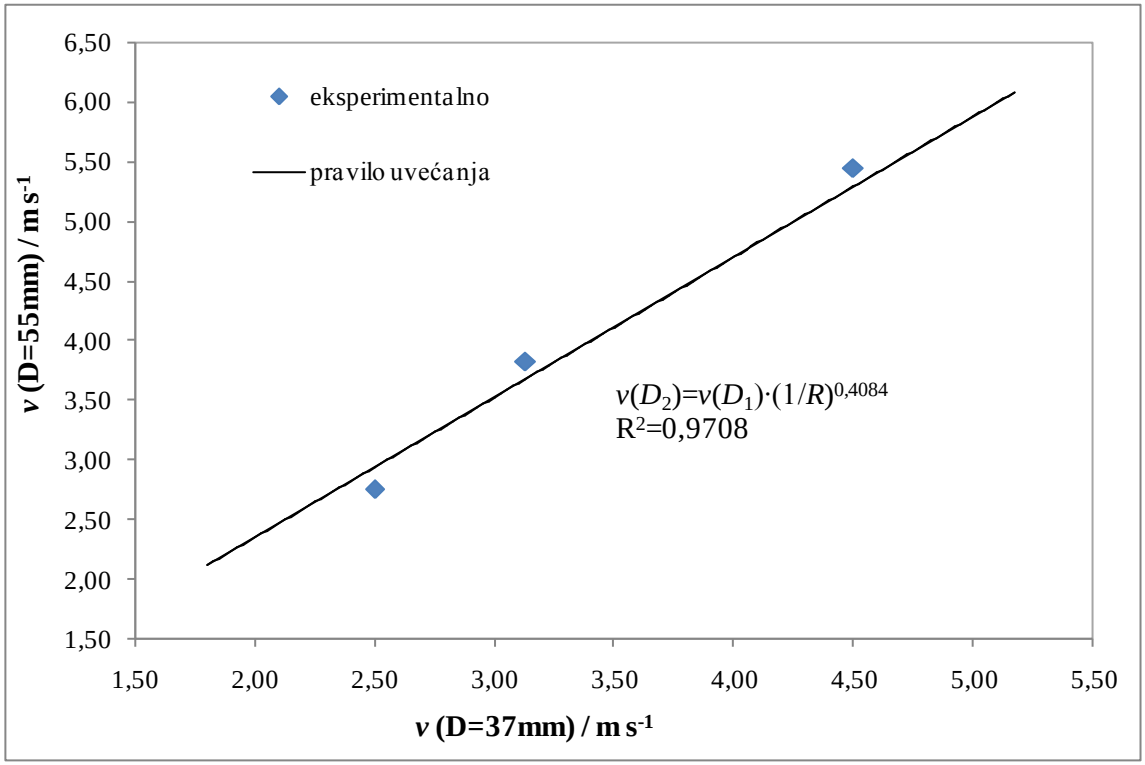


Slika 42. Utjecaj brzine strujanja zraka na ukupni koeficijent prijenosa tvari

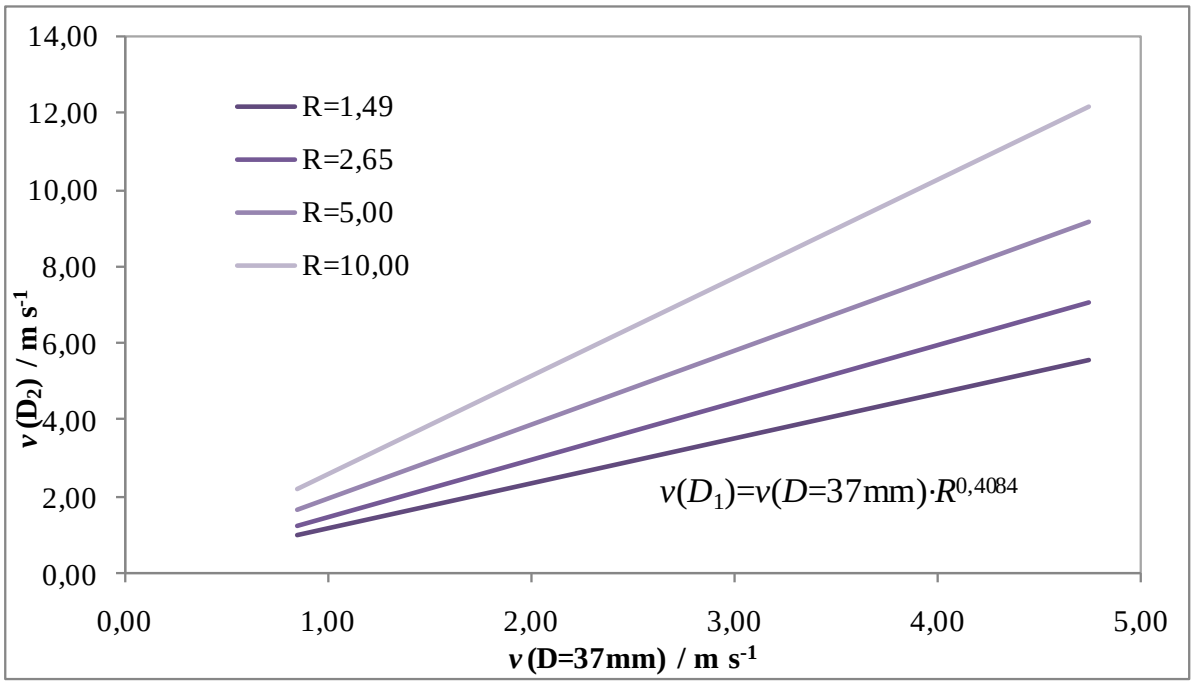
4.6. Prenošenje rezultata u veće mjerilo



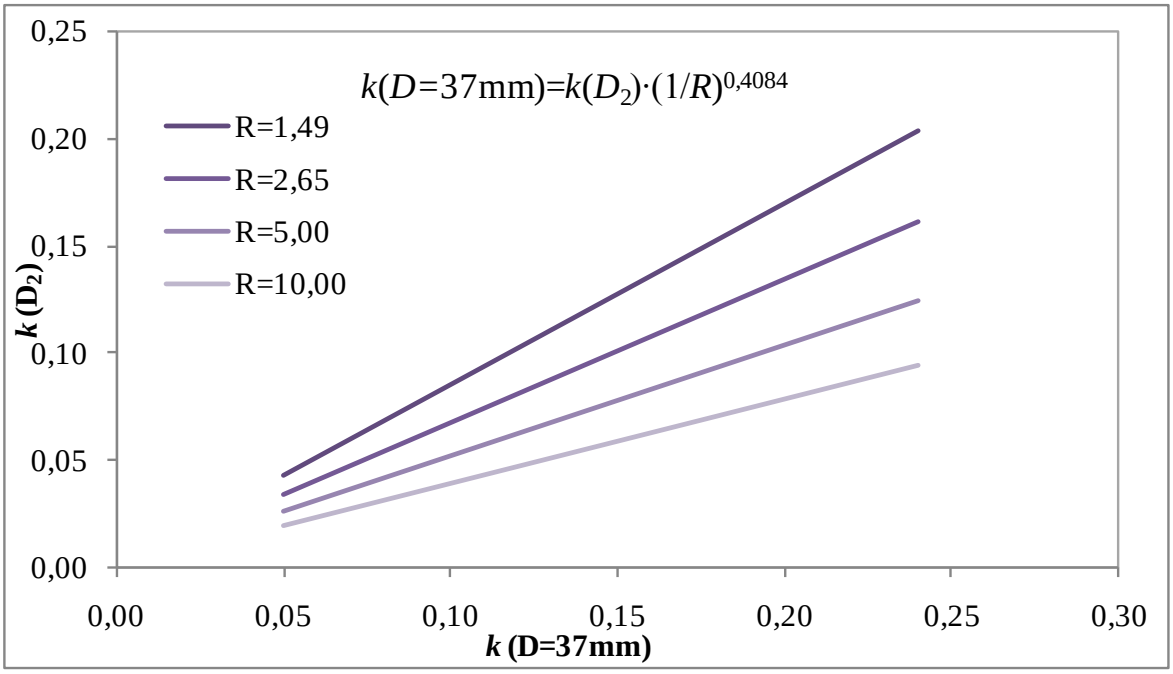
Slika 43. Pravilo uvećanja za minimalnu brzinu fluidizacije



Slika 44. Ovisnost brzine strujanja zraka u sušioniku promjera 55mm o brzini strujanja zraka u sušioniku promjera 37mm da bi se postigla ista vrijednost parametara *k* Pageovog modela



Slika 45. Ovisnost brzine strujanja zraka u većoj skali o brzini strujanja zraka u manjoj skali za različita uvećanja *R* da bi se postigla ista vrijednost parametra *k* Pageovog modela



Slika 46. Ovisnost vrijednosti parametra *k* Pageovog modela u većem mjerilu o vrijednosti parametra *k* u manjem mjerilu za istu brzinu strujanja zraka pri različitim uvećanjima *R*

5. RASPRAVA

Karakterizacija materijala

U svrhu definiranja sastava katalizatora snimljeni su rendgenski difraktogrami uzoraka, slika 20. Uzorci 1 i 2 imaju identični difraktogram, a njihova je struktura mješovita (amorfno-kristalinična) te je nemoguće utvrditi o kojem se spoju radi. Karakteristični pikovi kristaliničnog uzorka 3 odgovaraju smjesi Al_2O_3, NiO i $CaCO_3$.

Morfologija čestica i kemijski sastav uzoraka određeni su SEM/EDS analizom. Dobiveni su rezultati prikazani na slikama 21. i 22. Uzorci 1 i 2 odgovaraju Al_2O_3 onečišćenom ugljikom i klorom u tragovima. Uzorak 3 je smjesa Al_2O_3, NiO i $CaCO_3$ onečišćen klorom i natrijem u malim koncentracijama, čime je potvrđena XRD analiza. Na SEM fotografijama vanjske površine te presjeka uzoraka može se uočiti nepravilna vanjska površina svih uzoraka. Iz fotografija presjeka čestica vidi se da se uzorci sastoje od pora različitih veličina.

Kako bi se mogao predvidjeti mehanizam prijenosa vlage kroz unutrašnjost materijala tijekom sušenja, određena je raspodjela veličina pora (slika 24.). Promjeri pora u uzorcima odgovaraju promjerima za koje je karakterističan difuzijski tok, iako sva tri uzorka sadrže i mali udio pora većih od 10^{-7} m kroz koje se vlaga kreće kapilarnim tokom. U tablici 5. dani su rezultati analize adsorpcije i desorpcije dušika. BET površina, specifični volumen pora i srednji promjer pora uzoraka 1 i 2 su gotovo identični, a njihove su vrijednosti znatno veće od odgovarajućih vrijednosti dobivenih za uzorak 3. Uz pretpostavku da će se pore u potpunosti ispuniti vodom tijekom vlaženja, uzorak 3 će imati znatno manji početni sadržaj vlage od ostala dva uzorka.

Za sušenje u fluidiziranom sloju vrlo je bitno da se čestice ne troše i da ne dolazi do njihovog loma. U tu je svrhu izmjerena tvrdoća čestica. Tvrdoća je izmjerena za više od 50 čestica svakog uzorka, a na slici 23 prikazane su srednje vrijednosti uz naznačenu standardnu devijaciju. Tvrdoća uzorka 3 znatno je veća od tvrdoće uzoraka 1 i 2, ali je i veće odstupanje od srednje vrijednosti.

Gustoća suhih i mokrih čestica određena je gravimetrijskom metodom. Čestice su vagane i pomičnim mjerilom im je određen promjer. Mjerenja su napravljena za po 10 čestica od svakog uzorka, a srednje su vrijednosti prikazane u tablici 4. S obzirom da je za

fluidizaciju bitan hidrodinamički volumen čestica (volumen čestica s kojima fluid dolazi u kontakt) nije određena stvarna već prividna gustoća koja ne uzima u obzir poroznost čestica. Poroznost je bilo moguće odrediti samo za uzorak 3 (50%). Poroznost uzoraka 1 i 2 izračunata na temelju gravimetrijske metode te podataka dobivenih iz raspodjele veličina pora nije davala realne rezultate. Poroznost veća od 90 % ukazuje da dolazi do višeslojne adsorpcije i dušika i vode na vanjskoj površini uzoraka. S obzirom na promjer čestica te razliku gustoća čestica i zraka, svi uzorci pripadaju D klasi prema Geldartu. U Geldartov dijagram ucrtane su vrijednosti suhih i mokrih uzoraka 1 i 2. Zbog veličine čestica uzorak 3 nije bilo moguće ucrtati (slika 25).

Za sušenje u fluidiziranom sloju potrebno je odrediti radno područje brzina strujanja zraka, ograničeno minimalnom brzinom fluidizacije najvećih mokrih čestica i brzinom odnošenja najmanjih suhih čestica. Minimalna brzina fluidizacije suhih i mokrih čestica određena je za sve uzorke pri tri visine mirujućeg sloja čestica. Pri različitim brzinama strujanja zraka (baždarni dijagram za prigušnu pločicu dan je prilogu ovog rada), mjeren je pad tlaka prazne kolone i kolone s čvrstim česticama. Razlika ta dva pada tlaka daje krivulju fluidizacije na kojoj je moguće odrediti minimalnu brzinu fluidizacije i brzinu odnošenja čestica. Minimalna brzina fluidizacije suhih i mokrih čestica određena je za sve uzorke, dok je zbog ograničenja aparature (maksimalni protok zraka puhala) bilo moguće odrediti brzinu odnošenja uzorka 1 i 2. Na slici 26 su prikazani dobiveni rezultati za različite omjere *H/D*. Povećanjem omjera *H/D* dolazi do pomaka minimalne brzine fluidizacije prema višim vrijednostima. Uzlazna krivulja fluidizacije (slika 26 a) je povećavanjem brzine strujanja zraka, a silazna krivulja (slika 26 b) je dobivena snižavanjem brzine strujanja zraka. Vidljivo je da postoje dvije vrste pakiranja u fiksnom sloju: gusto, pri povećanju površinske brzine i rahlo, pri smanjenju brzine. Na slici 27. može se uočiti da u sušioniku manjeg promjera do fluidizacije dolazi pri većim brzinama [23]. Literatura nudi velik broj korelacija za procjenu minimalne brzine fluidizacije. Korelacije ne uzimaju u obzir geometriju sušionika s obzirom da se brzina računa iz ovisnosti Re = *f* (Ar). Brzinu odnošenja nije moguće predvidjeti jer u velikoj mjeri ovisi o režimu fluidizacije, koji je bitno različit u kolonama različitih geometrijskih karakteristika. U tablici 5. dane su eksperimentalno određene i procijenjene vrijednosti minimalne brzine fluidizacije i brzine odnošenja. Kako za brzinu odnošenja ne postoji korelacija, kao gornja granica odabrana je brzina taloženja čvrstih čestica. Za suhe uzorke 1 i 2 može se za procjenu minimalne brzine fluidizacije primijeniti Wen&Yu, a za uzorak 3 Hilal-ova korelacija (tablica 6). Za mokre se uzorke eksperimentalno određene i

procijenjene vrijednosti minimalne brzine fluidizacije ne slažu (osim za uzorak 1). Razlog tome može biti da se uzorci tijekom mjerenja pada tlaka djelomično osuše pa je minimalna brzina fluidizacije manja. Korelacija za procjenu brzine taloženja nije primjenljiva za uzorke istraživane u ovom radu.

Kako bi se potvrdio turbulentni režim fluidizacije, izračunate su donja i gornja granica pomoću najčešće korištenih literaturnih korelacija, tablica 7. Za sve uzorke odabrana je za donju granicu turbulentnog režima Caieva, a za gornju Peralesova korelacijska jednadžba. Granične brzine u skladu su s vizualnim uočavanjem turbulentnog režima.

Povećanjem omjera *d/D* raste minimalna brzina fluidizacije zbog većeg utjecaja stjenke. Isto tako i povećanjem omjera *H/D* raste minimalna brzina fluidizacije (slika 27). Smanjenjem *D* veći dio čestica se nalazi uz samu stjenku što uzrokuje veći utjecaj stijenke. Porastom *D* utjecaj stijenke slabi i postaje zanemariv kako se *d/D* smanjuje.

Kinetika sušenja

Utjecaj temperature zraka

Na slici 28 prikazan je utjecaj temperature na promjenu sadržaja vlage materijala i temperaturu izlaznog zraka kod sušenja uzorka 2 pri brzini strujanja zraka 3,13, m/s i visini sloja mirujućih čestica od 1,36. Porastom temperature raste brzina sušenja, slika 28 b, te se smanjuje vrijeme trajanja procesa. Pri višoj temperaturi relativna vlažnost zraka je manja pa je veća pokretačka sila procesa prijenosa vlage. Veća temperatura i manja relativna vlažnost zraka povećavaju brzine prijenosa topline i tvari, čime raste i brzina sušenja. Maksimalna brzina sušenja veća je pri višoj temperaturi, a vrijeme trajanja perioda konstantne brzine sušenja se smanjuje.

Utjecaj visine mirujućeg sloja čestica

Povećanjem visine sloja mirujućeg čestica raste masa čestica u sušioniku, a s time i masa vlage koja se tijekom sušenja mora ukloniti iz vlažnog materijala. Iako su čestice u stalnom gibanju i sa svih strana okružene zrakom za sušenje, zrak primi veću količinu vlage kada je u sušionika veća masa vlažnog materijala, što smanjuje pokretačku silu za proces prijenosa tvari. To rezultira smanjenjem brzine sušenja i duljim vremenom trajanja procesa. Na slikama 29 a i 29 b prikazane su kinetičke krivulje sušenja čestica uzorka 2 pri 50 °C i

brzini strujanja zraka 3,13, m/s. Uočavaju se tri karakteristična perioda sušenja (stabilizacija, period konstantne i padajuće brzine sušenja). Period konstantne brzine sušenja sve je kraći što je veća masa materijala prisutna u sušioniku.

Utjecaj hidrodinamičkih uvjeta

Na slikama 30 a i 30 b prikazan je utjecaj brzine strujanja zraka za uzorak 3 (d=0,405 cm), visine sloja mirujućih čestica 1,46 te temperaturu zraka od 57 °C. Veća brzina strujanja zraka rezultira povoljnijim hidrodinamičkim uvjetima koji su posljedica smanjenja otpora prijenosu količine gibanja, topline i tvari, što za posljedicu ima veću brzinu sušenja materijala i kraće vrijeme trajanja procesa. Kod najveće istraživane brzine strujanja zraka period konstantne brzine traje tek 1 minutu, bez obzira na približno jednaki početni sadržaj vlage materijala.

Utjecaj veličine čestica

Utjecaj veličine čestica istražen je na uzorku 3 sa dvije veličinske frakcije, sušene pri visini sloja čestica 1,46, temperaturi zraka od 57 °C i brzini strujanja zraka 3,13, m/s. Srednja veličina čestica ne razlikuje se u velikoj mjeri tako da su i krivulje sušenja bliske, slike 31 a i 31 b. S obzirom da je masa suhih čestica, za istu visinu sloja čestica bila jednaka, čestice manjeg promjera biti će prisutne u većem broju pa je i površina čestica koja je u kontaktu sa zrakom veća. Osim toga vlaga prisutna u unutrašnjosti materijala mora prijeći kraći put do površine isparavanja. Zbog toga će čestice manjeg promjera za kraće vrijeme doseći ravnotežni sadržaj vlage. Međutim smanjenjem promjera čestica mijenja se i omjer vrijednosti unutrašnjeg i vanjskog otpora prijenosu tvari i topline što za posljedicu može imati suprotan efekt. Tijekom perioda konstantne brzine sušenja, kada je materijal u potpunosti prekriven vlagom, a na brzinu sušenja utječu vanjski uvjeti, veća je brzina sušenja čestica većeg promjera. To se može objasniti većom apsolutnom vlažnošću zraka za sušenje tijekom sušenja čestica manjeg promjera. Zrak nije bilo moguće kondicionirati prije ulaska u grijač, tako da postoje razlike u raspoloživoj pokretačkoj sili procesa prijenosa tvari pri istoj temperaturi sušenja. Tijekom perioda padajuće brzine sušenja, kada na brzinu sušenja utječu svojstva materijala i put difuzije odnosno promjer čestica, brzina sušenja manjih čestica je veća.

Primjenljivost matematičkih modela

Za opis kinetike sušenja sferičnih čestica katalizatora odabrana su tri empirijska (Lewis, Page i OWHR) i jedan teoretski (II Fickov zakon) matematički model. Na slikama 32 do 35 prikazani su rezultati aproksimacije eksperimentalnih podataka promjene sadržaja vlage materijala tijekom sušenja, odabranim matematičkim modelima, za sve istraživane uzorke. Kinetičke krivulje sušenja uzoraka 1 i 2 mogu se opisati Pageovim i OWHR modelom uz visok stupanj korelacije (>0,99). Lewisov model i analitičko rješenje II Fickovog zakona nisu pogodni s obzirom na relativno dugo trajanje perioda konstantne brzine sušenja. Za opis kinetike sušenja obje veličinske frakcije uzorka 3 mogu se koristiti sva četiri modela. Period konstantne brzine sušenja vrlo je kratak ili krivulje brzine sušenja imaju samo maksimum, pa je promjena sadržaja vlage materijala s vremenom tijekom gotovo cijelog procesa eksponencijalna.

Utjecaj uvjeta provedbe procesa na parametre matematičkih modela

U tablici 8 dane su vrijednosti parametara Pageovog i OWHR modela za sve provedene eksperimente, dok su u tablici 9 dane vrijednosti konstante sušenja (Lewis) te Biotove značajke, i prijenosnih svojstava za uzorak 3. Vrijednosti parametra k u Pageovom i OWHR modelu rastu kako raste i brzina sušenja, odnosno rastu s porastom temperature i brzine strujanja zraka (slika 37 i 38) te smanjenjem početnog sadržaja vlage materijala, i opadaju s porastom visine mirujućeg sloja čestica, promjera čestica te relativne vlažnosti zraka. Parametar *n* ovisi o vrsti i geometrijskim karakteristikama materijala. Na slici 36 prikazan je utjecaj promjera sušionika na kinetiku sušenja. U sušioniku manjeg promjera brzina sušenja je veća zbog znatno manje mase materijala pri istom omjeru (*H*/*D*) koji se suši, iako su otpori prijenosu količine gibanja, topline i tvari veći zbog nepovoljnijih hidrodinamičkih uvjeta uzrokovanih utjecajem stjenke.

Procjena koeficijenta prijenosa tvari

Koeficijent prijenosa tvari bilo je moguće procijeniti samo za period konstantne brzine sušenja tijekom kojeg je površina materijala u potpunosti prekrivena vlagom. Tada je površina materijala na temperaturi mokrog termometra a zrak neposredno uz površinu isparavanja zasićen, pa je moguće definirati pokretačku silu procesa prijenosa tvari i topline. Koeficijent prijenosa tvari procijenjen je iz kinetičke jednadžbe. Na slikama 39 do 42 prikazan je utjecaj

uvjeta provedbe procesa na vrijednost koeficijenta prijenosa tvari. Koeficijent prijenosa tvari raste s porastom temperature i početnim sadržajem vlage te opada s porastom visine sloja čestica.

Prenošenje rezultata u veće mjerilo

U svrhu pronalaženja kriterija uvećanja sušionika s fluidiziranim slojem, mjerenja su provedena i u manjem sušioniku. Odabrana je manja veličinska frakcija uzorka 3. Istražen je utjecaj temperature, visine mirujućeg sloja čestica i brzine strujanja zraka. U većem je sušioniku broj eksperimenata bio znatno veći, s obzirom da je potrebno pronaći uvjete u kojima se osigurava isti rezultat, a to su kod sušenja kinetičke krivulje. Najveći problem je bilo stanje okolišnog zraka, koje se znatno mijenjalo. Temperatura je bila približno jednaka (oko 21 °C), dok se apsolutna vlažnost zraka mijenjala od 0,0017 do 0,0088 kg/kg.

Prilikom uvećanja procesa sušenja u fluidiziranom sloju potrebno je definirati kriterij uvećanja minimalne brzine fluidizacije, s obzirom da ona ovisi o promjeru sušionika.

Literaturne korelacijske jednadžbe za procjenu minimalne brzine fluidizacije ne uzimaju u obzir geometriju sušionika s obzirom da se brzina računa iz ovisnosti Re = *f* (Ar). Međutim, Hilalova se korelacija (Hilal i sur., 2001) može koristiti za procjenu minimalne brzine fluidizacije za manje vrijednosti *d*/*D* te kada je *H*/*D*< 1,46, odnosno u slučajevima kada se utjecaj stjenke može zanemariti. S obzirom da minimalna brzina fluidizacije ovisi o promjeru sušionika potrebno je definirati kriterij uvećanja. Na temelju eksperimentalnih podataka u dva geometrijski slična sušionika izvedena je jednadžba koja omogućuje procjenu minimalne brzine fluidizacije:

$$v_{\mathrm{mf},2} = \frac{(H/m)_2}{(H/m)_1} \cdot v_{\mathrm{mf},1}^{R}$$

Pravilo uvećanja je prikazano grafički na slici 43. Dobivena jednadžba primjenljiva je za istraživane uvjete sušenja i odabrane sferične čestice.

Vezano za kinetiku sušenja željeni rezultat je točno definirana kinetička krivulja sušenja. Za izvođenje korelacijske jednadžbe odabran je Pageov model. Vrijednost parametra n jednaka je u oba istraživana sušionika. Na temelju ovisnosti parametra *k* o brzini strujanja zraka (slika 37 i 38), na temelju brzina strujanja zraka u sušioniku promjera kolone 37mm određene su brzine strujanja zraka za sušionik promjera kolone 55mm da bi se postigla ista

vrijednost parametra *k*. Odabrana su sušenja pri *H/D*=1,46 i *T*=57°C za koja je omjer brzina bio konstantan i iznosio oko 0,85. Kriterij uvećanja koji služi za procjenu parametra *k* Pageovog modela dan je sljedećim izrazom:

$$\frac{k_2}{k_1} = \frac{v_2}{v_1} \cdot \left(\frac{1}{R}\right)^{0,4084}$$

Iz grafičkog prikaza pravila uvećanja na slici 44 može se primjetiti da je za istu vrijednost parametra *k* u sušioniku većeg promjera kolone potrebno primjeniti veću brzinu strujanja zraka.

Na slici 45 prikazan je utjecaj povećanja faktora uvećanja *R* na brzinu strujanja u sušioniku većeg promjera kolone da bi se postigla ista vrijednost parametra *k* kao u sušioniku manjeg promjera kolone. Povećanjem faktora uvećanja, raste i nagib pravca. Da bi se postigla ista vrijednost parametra *k* potrebna je sve veća brzina strujanja zraka. Slika 46 pokazuje utjecaj skale na parametar *k* pri istoj primjenjenoj brzini strujanja zraka. Pri malim vrijednostima faktora uvećanja postiže se veći nagib pravca i time brže sušenje za istu primjenjenu brzinu strujanja zraka. Pri većim vrijednostima faktora uvećanja parametar *k* postiže niže vrijednosti, a time je i sušenje duže.

Kako se povećava promjer kolone sušionika, manje materijala se nalazi pod utjecajem stjenke te se zbog boljih hidrodinamičkih uvjeta poboljšava prijenos tvari i ubrzava sušenje, no kako se u sušioniku nalazi više materijala i vode koje je potrebno ukloniti trajanje sušenja se produljuje.

6. ZAKLJUČCI

Provedena su ispitivanja utjecaja temperature, visine mirujućeg sloja čestica, brzine strujanja zraka i promjera čestica na kinetiku sušenja u fluidiziranom sloju.

- Korištena su dva sušionika različitog promjera. U sušioniku manjeg promjera do fluidizacije dolazi pri većim brzinama.
- Porastom temperature raste brzina sušenja i smanjuje se vrijeme trajanja procesa zbog većih pokretačkih sila procesa prijenosa tvari i topline.
- Povećanjem visine mirujućeg sloja čestica smanjuje se brzina sušenja jer se veća masa vode mora ukloniti iz materijala.
- Veća brzina strujanja zraka rezultira povoljnijim hidrodinamičkim uvjetima, što rezultira većom brzinom sušenja i kraćim vremenom trajanja procesa.
- U sušioniku manjeg promjera ostvaruju se veće brzine sušenja jer je za isti *H/D* u sušioniku prisutna manja masa materijala.
- Kinetičke krivulje sušenja uzoraka s relativno dugim periodom konstantne brzine sušenja mogu se opisati Pageovim i OWHR modelom. Kinetičke krivulje sušenja vrlo kratkog perioda konstantne brzine sušenja mogu se aproksimirati svim odabranim matematičkim modelima.
- Uvjeti koji povećavaju brzinu sušenja rezultiraju višim vrijednostima parametara odabranih matematičkih modela. Parametar *n* ovisi o vrsti i geometrijskim karakteristikama materijala.
- Izvedeni su kriteriji uvećanja za minimalnu brzinu fluidizacije i kinetiku procesa sušenja na temelju odabranog matematičkog modela.

7. POPIS SIMBOLA

Simboli

A – površina, m^2
c – konstanta za BET metodu, -
$c_{p,sm}$ – specifični toplinski kapacitet suhog materijala, kJ/kg K
C_1,C_2 – konstante za procjenu minimalne brzine fluidizacije, -
D – promjer kolone, m
d – promjer čestica, m
D_{eff} – efektivni koeficijent difuzije, m^2/s
F – sila, N
g – gravitacijsko ubrzanje, m/s^2
H, L – visina sloja čestica, m
H_i – entalpija, kJ
H/D – omjer visine sloja čestica i promjera kolone, m/m
k, K – parametar Lewis, Page i OWHR modela, -
k_m – koeficijent prijenosa tvari, m/s
L_{fs} – visina fluidiziranog sloja čestica, m
m – masa, kg
$\dot{m}_v$ – maseni tok vode, kg/s
n – parametar Lewis i OWHR modela, -
N – broj, -
N_A – Avogadrov broj, -
p – tlak, Pa
Δp_{fs} – pad tlaka kroz fluidizirani sloj, Pa
$Q_3(d_p)$ – kumulativni udio pora promjera manjih od d_p, -
R, r – radijus, m
R – faktor uvećanja, -
S_g, S_{BET} – specifična površina, specifična površina dobivena BET metodom, m^2/g
T – temperatura, °C
v – brzina strujanja zraka, m/s
V – volumen, m^3
V_m – volumen dušika potreban da popuni monosloj, m^3
X – sadržaj vlage materijala, kg_v/kg_{sm}
x_{St} – Stokesov promjer čestica, m
x – karakteristična dimenzija, m
Y – sadržaj vlage zraka, kg_v/kg_{sz}
Z – visina kolone, m

Grčka slova

α – koeficijent prijenosa topline, W/m^2 K
α_{BET} – površina poprečnog presjeka molekule dušika, m^2
ε – poroznost, -
ε_L – poroznost rahlo pakovanog sloja, -
ε_S – poroznost gusto pakovanog sloja, -
η – dinamička viskoznost, Pa s
θ – kut, °
λ – koeficijent toplinske vodljivosti, W/m K
μ – kinematička viskoznost, m^2/s
ρ – gustoća, kg/m^3
σ – standardna devijacija
φ – sferičnost čestice, -
ψ – neostvarena promjena sadržaja vlage, -

Bezdimenzijske značajke

$\mathrm{Bi} = \frac{k_m \cdot d}{D_{\mathrm{ef}}}$ Biotova značajka

$Fr = \frac{v^2}{x \cdot g}$ Froudova značajka

$\mathrm{Re} = \frac{v \cdot d \cdot \rho}{\eta}$ Reynoldsova značajka

$Sh = \frac{k_m \cdot d}{D}$ Sherwoodova značajka

Indeksi

b – mjehurić
č – čestica
eq – ravnotežno
f – fluid
fs – fluidizirani sloj
i – inercija
kon – konačno
kr, k, c – kritično
max – maksimalno
mb – pri uvjetima minimalne mjehuričaste fluidizacije
mf – pri uvjetima minimalne fluidizacije
min – minimalno
MT – mokri termometar
o – otvor
p – pora

s – krutine *engl. solid*
sm – suhi materijal
sr – srednje
sz – suhi zrak
t – taloženje
tr – transport
v – voda
z – zrak
zas – zasićeno
0 – početno

Skraćenice

av – srednja vrijednost
BET – Brunauer, Emmett i Teller
EDS – elementarna analiza
OWHR – model Overhults, White, Hamilton i Rossa
RVČ – raspodjela veličina čestica
RVP – raspodjela veličina pora
SEM – pretražni elektronski mikroskop
TDH – terminalna visina, *engl. Terminal Disengagement Height*
XRD – difrakcija rendgenskih zraka

7. LITERATURA

1. Perry, R. H., Green, D. W., Perry's Chemical Engineers' Handbook: Fluidized-Bed Systems, New York: McGraw-Hill, sedmo izdanje, 1999., str. 17-2 – 17-17

2. Genskow, L.R., Guest Ed., Scale-up of Dryers, **12** (1994) 1–2

3. Briongosa, J. V., Guardiolab, J., New methodology for scaling hydrodynamic data from a 2D-fluidized bed, Chemical Engineering Science, **60** (2005) 5151 – 5163.

4. Nhi Dang, T.Y., Gallucci, F., van Sint Annaland, M., An experimental investigation on the onset from bubbling to turbulent fluidization regime in micro-structured fluidized beds, Powder Technology, **256** (2014) 166–174.

5. Schouten, J.C., van der Stappen, M.L.M., van den Bleek, C. M., Scale-up of chaotic fluidized bed hydrodynamics, Chemical Engineering Science, **51** (1996) 1991 – 2000.

6. Sander, A., Toplinski separacijski procesi (interna skripta); Jedinične operacije u ekoinženjerstvu; I dio, Zagreb 2011 str. 112

7. Ford, K. J., Gilchrist, J. F., Caram, H. S., Transition to vibro-fluidization in a deep granular bed, Powder Technology, **192** (2009) 33-39

8. Mujumdar, A. S., Handbook of Industrial Drying, CRC Press, Taylor & Francis Group, 2006. str. 177, 205.

9. Hraste, M., Mehaničko procesno inženjerstvo; Zagreb 2003. str. 115.-120., 92.-97.

10. Kunii, D., Levenspiel, O., Fluidization engineering: Introduction, Second Edition, Stoneham: Reed Publishing, 1991., str. 1-13.

11. Geldart, D., Types of Gas Fluidization, Powder Technology, **7** (1973) 285–292.

12. Abdelgawad, B., Design of a gas-solid fluidized bed reactor at high tmperature and high pressure: Fluidized bed principles, Université de Montréal, 2013., str. 3-5.

13. Yang, W.-C., Handbook of fluidisation and fluid-particle systems, Marcel Dekker Inc, New York, 2003., str. 122-133., 128., 136.

14. Wormsbecker, M., Pugsley, T. D., Tanfara, H., The Influence of Distributor Design on Fluidized Bed Dryer Hydrodynamics, The 12th International Conference on Fluidization, Vancouver, Canada, 2007., str. 815.

15. Karimipour, S., Pugsley, T., A critical evaluation of literature correlations for predicting bubble size and velocity in gas-solid fluidized beds, Powder Technology, **205** (2011) 1-14

16. Sander, A., Sušenje, Nastavni materijali, Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije, Zagreb

17. Femenia, S. S., Garau, A., Rossello, M. C.,Use of exponential, Page's and diffusional models to simulate the drying kinetics of kiwi fruit, Journal of Food Engineering, **66** (2005) 323–328.

18. Sander, A., Thin-layer drying of porous materials: Selection of the appropriate mathematical model and relationships between thin-layer models parameters, Chemical Engineering and Processing, **46** (2007) 1324–1331.

19. Perea-Flores, M.J., Garibay-Febles, V., i autori, Mathematical modelling of castor oil seeds (Ricinus communis) drying kinetics in fluidized bed at high temperatures, Industrial Crops and Products, **38** (2012) 64-71.

20. Philippsen, C. G., Faria Vilela, A. C., Zen, L. D., Fluidized bed modeling applied to the analysis of processes: review and state of the art, Journal of Material Research and Technology, **4** (2015) 208-216.

21. Glasnović, A., Prijenos tvari i energije, Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije, Zagreb, str. 38-40.

22. Zlokarnik, M., Scale-up in Chemical Engineering, Second, Completely Revised and Extended Edition, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2006., str. 205-211.

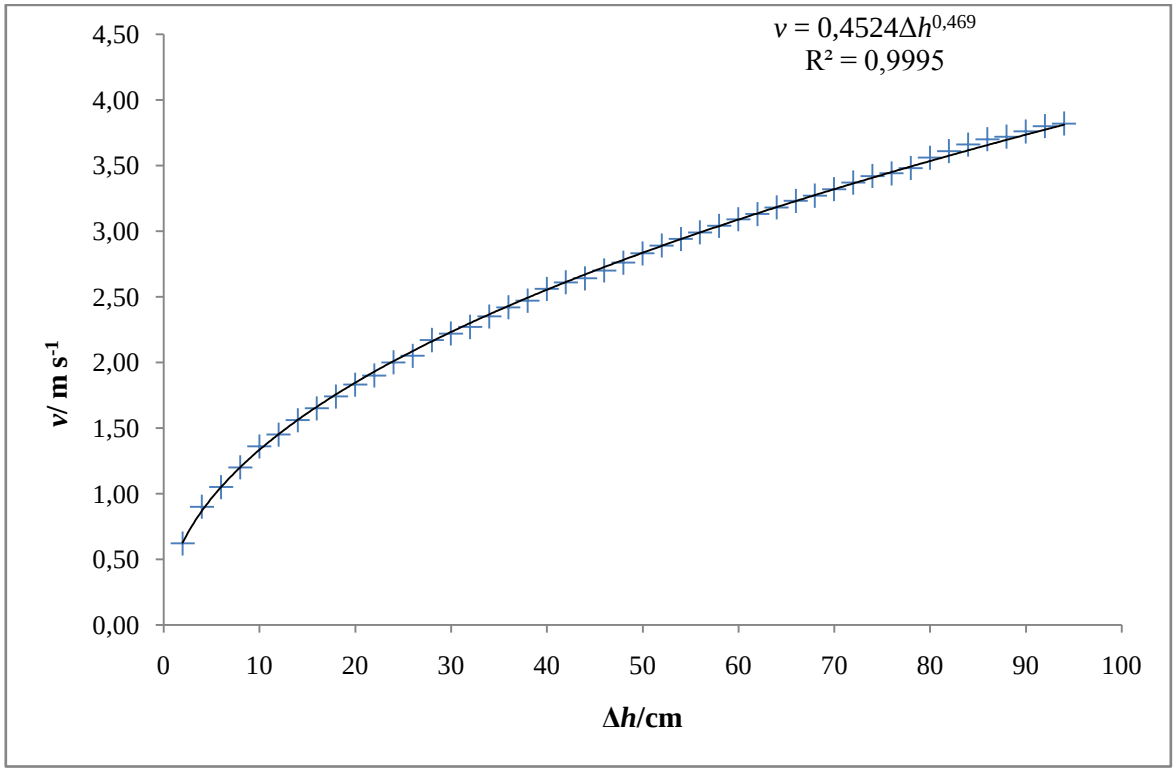
23. Rao, A., Curtis, J.S., Hancock, B.C., Wassgren, C., The Effect of Column Diameter and Bed Height on Minimum Fluidization Velocity, AIChE, **56** (2010) 2304-2311.

24. Rađenović, A., Malina, J., Matijašić, G., Slokar, Lj.,Kratofil Krehula, Lj., Površinska svojstva čađe obrađene anorganskim kiselinama, Polimeri, **34** (2013) 4-8.

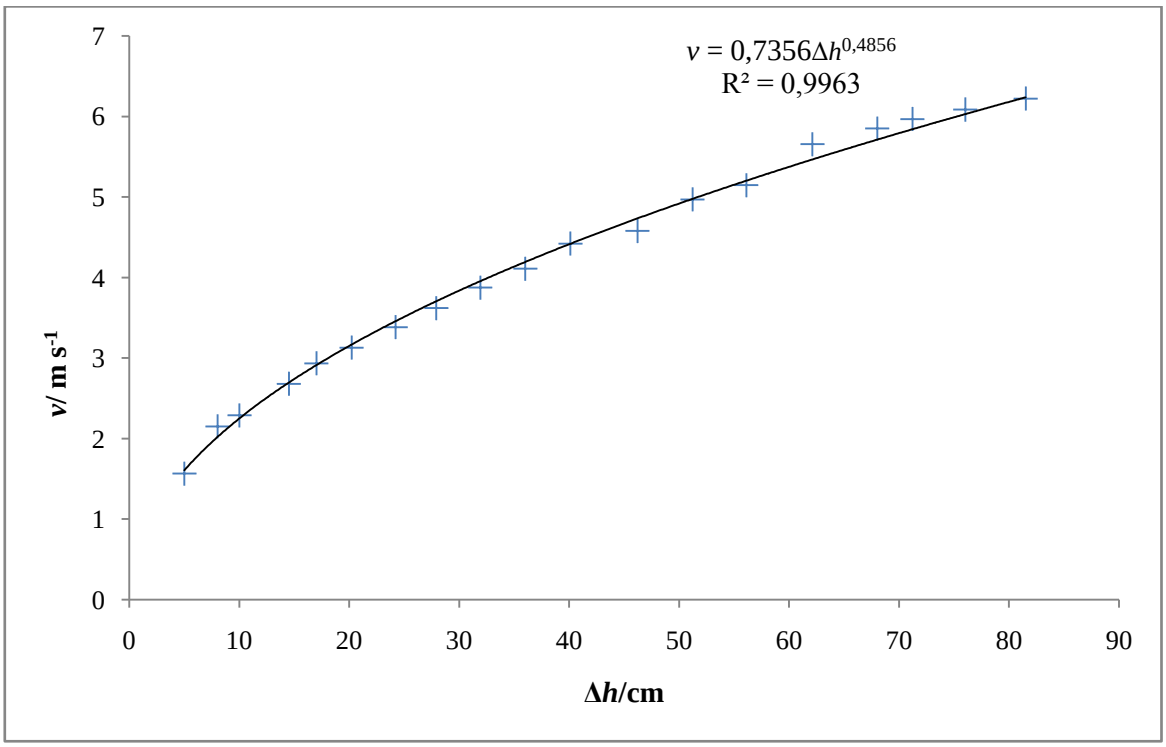
25. Analytical Scanning Electron Microscope, Vega 3 SEM, Instructons for use; 2011 TESCAN a.s. Bruno, Czech Republic

26. http://www.phy.pmf.unizg.hr/~atonejc/3-3%20Povrsinske%20metode.pdf

8. PRILOG



Slika 47. Baždarni dijagram prigušne pločice za veći sušionik



Slika 48. Baždarni dijagram prigušne pločice za manji sušionik

9. ŽIVOTOPIS

Dario Klarić je rođen 18. veljače 1991. u Zagrebu. Pohađao je osnovnu školu u Zaprešiću, a prirodoslovnu gimaziju je završio 2009. godine u Prirodoslovnoj školi Vladimira Preloga u Zagrebu. Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije upisao je 2009. godine, a preddiplomski studij Kemijskog inženjerstva je završio 2013. uz *magna cum laude* pohvalu. Završni rad je izradio kod prof. dr. sc. Marka Rogošića s temom "Heterogena azeotropna destilacija u sustavu voda – etanol – etil-acetat."

Diplomski studij Kemijsko-procesnog inženjerstva je upisao 2013. godine. Tokom studija obavljao je demonstrature iz kolegija Tehnička termodinamika, Osnove strojarstva i Kemijsko-inženjerska termodinamika. 2014. godine dobio je Rektorovu nagradu za rad Uvećanje sušionika s fluidiziranim slojem, te postao Plivin stipendist nakon čega obavlja studentske poslove u TAPI Pilot postrojenju.

U slobodno vrijeme se bavi volontiranjem u udruzi Mudrica za podučavanje osnovnoškolskih i srednjoškolskih učenika i učenjem stranih jezika. Koristi se engleskim, francuskim i njemačkim jezikom.