

# Characterization of rising gas bubbles in fluidized beds by means of statistical tools

**Doctoral Thesis**

**Author(s):**

Rüdisüli, Martin

**Publication date:**

2012

**Permanent link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-007089625>

**Rights / license:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

Diss. ETH No. 20209

# Characterization of rising gas bubbles in fluidized beds by means of statistical tools

A dissertation submitted to  
ETH ZURICH

for the degree of  
DOCTOR OF SCIENCES

presented by  
MARTIN RÜDISÜLI  
dipl. Umwelt-Ing. ETH  
born 24 February 1979  
citizen of Amden SG and Zürich ZH

accepted on the recommendation of  
Prof. Dr. Alexander Wokaun, examiner  
Prof. Dr. Ive Hermans, co-examiner  
Dr. Serge M. A. Biollaz, co-examiner  
Dr. Tilman J. Schildhauer, co-examiner

2012

# Summary

The production of synthetic natural gas (SNG) from wood is a novel and promising technology with the future potential to contribute to the reduction of CO<sub>2</sub>-emissions and the replacement of fossil energy carriers. Primary advantages of SNG are on the one hand versatile application possibilities and on the other hand an already existing gas supply infrastructure. In the process, wood is first gasified to a product gas mainly composed of CO and H<sub>2</sub>, but also CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, etc. In a subsequent step, this product gas is catalytically converted to SNG in a methanation reactor.

For the relevant scales of 10 - 100 MW, the methanation step advantageously takes place in a fluidized bed reactor equipped with heat exchanger tubes to remove the heat of reaction from the exothermic methanation. In a fluidized bed reactor, reagent gas is fed through a porous distributor plate into a (catalyst) particle bed. The rising gas lifts the bed and keeps it in suspense. This mechanism is called fluidization. The main advantages of fluidized bed reactors in the production of SNG are their homogeneous temperature distribution and excellent gas-particle mixing which enable the used nickel catalyst to cope with C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> in the product gas.

If more gas than for minimum fluidization is introduced into the particle bed, gas bubbles rising upwards in the fluidized bed are generated. These gas bubbles are on the one hand important for proper gas-particle mixing and on the other hand detrimental for the chemical conversion of the fluidized bed reactor, since they may act as a bypass for reagent gas if they grow too large. On these grounds, it is important to understand and properly describe the growth of rising gas bubbles. In particular, with regard to the scale-up of fluidized bed reactors to an industrial scale, a proper understanding of bubbles and their interactions with internals (e.g., heat exchanger tubes) is essential for the performance of the reactor.

The objective of this thesis is to investigate the bubble growth in fluidized beds with vertical internals such as to facilitate the future scale-up of methanation reactors. In order to study the bubble growth, experimental measurements are conducted in a lab-scale cold flow model with optical and piezo-electric probes. By means of a statistical evaluation of their measurements, the bubble size and the bubble rise velocity are derived as a function of the bed height.

Optical probes emit light into the dense phase of a fluidized bed and measure the reflected light intensity. From the reflected light intensity, rising gas bubbles can be detected. The advantage of optical probing is that the whole distribution of the bubble size and the bubble rise velocity is captured in a very local and easily interpretable way. On the other hand, optical probe measurements are biased, since only the chord length of a pierced bubble is measured and this chord length is typically smaller than the actual (centerline) bubble diameter. Furthermore, small bubbles are less likely pierced than larger ones, thus the representativity of optical probe measurement is further distorted. By the aid of Monte Carlo simulations it is, however, shown that due to these two counteracting distortions, the measured mean chord length is a good approximation of the mean bubble size in the bed. Moreover, it is shown in sensitivity studies that the accuracy of optical probe measurements also depends on the parameter choice in the evaluation algorithm.

By means of piezo-electric probes, pressure fluctuations in a fluidized bed are measured. These pressure fluctuations stem from various hydrodynamic phenomena and propagate at variable velocities. Fast and globally measurable pressure fluctuations originate primarily from bubble formation, bubble coalescence, and bubble eruption, whereas slow and local pressure fluctuations originate mainly from bubble passage. Through the spectral decomposition of pressure fluctuation measurements into their slow (incoherent) and fast (coherent) components, the characteristic length scale – which is proportional to the average bubble size – can be derived. The actual proportionality is evaluated from comparisons with optical probe measurements and common literature correlations. For sufficiently high gas velocities and for given particle properties, the proportionality is constant and in good agreement with a theoretically determined value of  $\sqrt{3}$ .

Vertical tubes in fluidized bed reactors are used as heat exchanger tubes. By means of the previously developed methods – optical probing and pressure fluctuation measurements – the influence of vertical tubes on the bubble growth is investigated. For all tube bank configurations in terms of the tube diameter, the tube-to-tube spacing, and the tube arrangement, a significant bubble size reduction is measured. For the bubble rise velocity an influence of the vertical tubes is also measured, however, this influence is not constant, but depending on the gas velocity and the bed height. Although all investigated tube bank configurations achieve a bubble size reduction, the most efficient reduction is accomplished with small tube diameters and a narrow tube-to-tube spacing (i.e., a large number of tubes per cross-sectional area). The tube arrangement in squares or triangles, in turn, does not show a significant difference.

Radial measurements of the spatial bubble distribution between vertical tubes show that bubbles rise in preferential pathways. By tendency, bubbles rise along the column wall in the lower portions of the bed, while they gradually move towards the center axis of the bed in the upper portions. Since the bubble rise is closely linked to the particle motion in a fluidized bed, radial bubble growth measurements indirectly also describe this particle motion: Particles rise in the wake of bubbles, while they descend in zones of less bubble activity.

Measurements of the bubble growth at slightly elevated pressure do not show a distinct influence, both in an industrial-scale fluidized bed reactor and a lab-scale fluidized bed unit. However, the absolute pressure and the pressure change in both fluidized beds is only small such that a bubble size reduction and a smoother fluidization – such as often stated in the literature – cannot be measured with the available methods.

The scale-up of fluidized bed reactors to an industrial-scale is still a complex and risky endeavor. Since many hydrodynamic parameters are scale-dependent, a simple linear scale-up is impossible. Even computer models are in this regards still not powerful enough. On these grounds, in the literature a set of dimensionless numbers (e.g., Reynolds, Froude, etc.) is defined which has to be kept constant at all scales and thereby hydrodynamic similarity between the cold lab-scale and the reactive industrial-scale fluidized bed may be achieved. However, also this traditional scaling approach based on the total reactor diameter has recently been questioned, particularly if scale changes between the two units are large. Therefore, in this thesis a modified approach based on the hydraulic diameter of an autonomous sector of vertical tubes is presented. With this approach, fluidized beds with vertical tubes can be scaled independently of the total reactor diameter. First measurements with this sectoral scaling approach have shown promising results.

# Zusammenfassung

Die Produktion von synthetischem Erdgas (SNG) aus Holz ist eine neue und vielversprechende Technologie, die in Zukunft einen Beitrag zur Reduktion von  $\text{CO}_2$ -Emissionen und als Ersatz von fossilen Energieträgern leisten soll. Die primären Vorteile von SNG sind einerseits vielseitige Einsatzmöglichkeiten und andererseits ein bereits bestehendes Gasverteilnetz. Holz wird dabei zuerst in einem Vergaser in ein Produktgas hauptsächlich bestehend aus  $\text{CO}$  und  $\text{H}_2$ , aber auch  $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_4$ , etc. umgewandelt. In einem anschliessenden Schritt wird dieses Produktgas katalytisch in einem Methanisierungsreaktor zu SNG weiterverarbeitet.

Für Anlagen im relevanten Bereich von 10 - 100 MW findet die Methanisierung mit Vorteil in einem Wirbelschichtreaktor mit Wärmetauscherrohren zur Entfernung von Reaktionswärme der exothermen Methanisierung statt. In einem Wirbelschichtreaktor wird (Edukt-)Gas von unten durch einen porösen Verteilboden in ein Bett aus (Katalysator-)Partikeln geleitet. Durch das aufsteigende Gas wird das Bett angehoben und in Suspension gebracht. Diesen Vorgang nennt man Fluidisierung. Die grundlegenden Vorteile von Wirbelschichtreaktoren in der Produktion von SNG sind deren homogene Temperaturverteilung und exzellente Gas-Partikel Durchmischung, die es dem verwendeten Nickel-Katalysator erlaubt mit dem  $\text{C}_2\text{H}_4$  im Produktgas zurecht zu kommen.

Wird mehr Gas als für die minimale Fluidisierung in das Partikelbett geleitet, so entstehen Gasblasen, die im fluidisierten Bett hochsteigen. Gasblasen sind einerseits wichtig für eine gute Durchmischung von Gas and Partikeln, und andererseits nachteilig für den Umwandlungsgrad des Wirbelschichtreaktors, da sie bei zu grosser Grösse als Bypass für Eduktgas dienen. Aus diesem Grund ist es wichtig das Wachstum der aufsteigenden Gasblasen zu kennen und richtig zu beschreiben. Vor allem hinsichtlich einer Hochskalierung von Wirbelschichtreaktoren auf einen industriellen Massstab ist ein genaues Verständnis der Gasblasen und deren Interaktionen mit Reaktoreinbauten (z.B. Wärmetauscherrohre) entscheidend für den Erfolg der Anlage.

Das Ziel dieser Dissertation ist es das Gasblasenwachstum in einer Wirbelschicht mit vertikalen Einbauten zu untersuchen, sodass die zukünftige Hochskalierung von Methanisierungsreaktoren vereinfacht werden kann. Um das Blasenwachstum zu untersuchen, werden in einem Labor-massstabsmodell experimentelle Messungen mit optischen und piezo-elektrischen Sensoren durch-

geführt. Durch eine statistische Auswertung der Messungen können die Blasengrösse und die Blasensteiggeschwindigkeit in Abhängigkeit der Betthöhe bestimmt werden.

Optische Sensoren senden Licht in die Dichtephase der Wirbelschicht und messen die reflektierte Lichtintensität. Anhand der reflektierten Lichtintensität können aufsteigende Gasblasen erkannt werden. Der Vorteil von optischen Messungen ist, dass die gesamte Verteilung der Blasengrösse und der Blasensteiggeschwindigkeit in einer sehr lokalen und einfach interpretierbaren Weise erfasst wird. Andererseits sind optische Messungen verzerrt, da nur die Sekantenlänge einer Blase gemessen wird und diese typischerweise kürzer als der eigentliche Blasendurchmesser ist. Weiter werden kleine Blasen weniger oft gemessen als grosse, was die Aussagekraft von optischen Messungen ebenfalls verzerrt. Anhand von Monte Carlo Simulationen wird allerdings gezeigt, dass durch diese zwei entgegengerichteten Verzerrungen die gemessene durchschnittliche Sekantenlänge eine gute Näherung der mittleren Blasengrösse im Bett ist. Ausserdem wird in Sensitivitätsstudien gezeigt, dass die Genauigkeit von optischen Messungen auch von der Parameterwahl im Evaluierungsalgorithmus abhängt.

Mittels piezo-elektrischen Sensoren können Druckfluktuationen in einer Wirbelschicht gemessen werden. Diese Druckfluktuationen gründen auf verschiedenen hydrodynamischen Phänomenen und breiten sich mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten aus. Schnelle und global messbare Druckfluktuationen entstehen primär durch die Blasenbildung, die Blasenkoaleszenz und die Blasenruption, währenddem langsame und lokale Druckfluktuationen hauptsächlich durch den Blasenauftstieg entstehen. Mittels spektraler Zerlegung von Druckfluktuationsmessungen in den langsamen (inkohärenten) und schnellen (kohärenten) Teil, kann die charakteristische Länge – die proportional zur durchschnittlichen Blasengrösse ist – bestimmt werden. Die genaue Proportionalität wird durch einen Vergleich mit optischen Messungen und üblichen Literaturkorrelationen bestimmt. Für genügend hohe Gasgeschwindigkeiten und für gegebene Partikeleigenschaften ist diese Proportionalität konstant und in guter Übereinstimmung mit einem theoretisch bestimmten Wert von  $\sqrt{3}$ .

Vertikale Rohre werden in Wirbelschichtreaktoren als Wärmetauscher eingesetzt. Mittels der zuvor entwickelten Methoden – optische Messung und Druckfluktuationsmessung – wird der Einfluss von solchen vertikalen Rohren auf das Blasenwachstum untersucht. Für alle Rohrkonfigurationen bezogen auf den Rohrdurchmesser, den Rohrabstand und die Rohranordnung wird eine signifikante Blasengrössenreduktion gemessen. Für die Blasensteiggeschwindigkeit ergibt sich zwar ebenfalls ein Einfluss der Rohre, dieser Einfluss ist aber nicht konstant, sondern abhängig von der Gasgeschwindigkeit und der Betthöhe. Obwohl alle untersuchten Rohrkonfigurationen eine Blasengrössenreduktion bewirken, sind kleine Rohrdurchmesser und enge Rohrabstände (und dadurch viele Rohre pro Querschnittsfläche) am effizientesten. Die Rohranordnung in Quadraten oder Dreiecken hingegen zeigt keinen signifikanten Unterschied.

Radiale Messungen der Blasenverteilung zwischen vertikalen Rohren zeigen, dass Blasen präferenzielle Aufstiegswege haben. Tendenziell steigen Blasen im unteren Bereich des Bettes der Wand entlang hoch, währenddem sie sich weiter oben mehr und mehr ins Zentrum des Bettes bewegen. Da der Blasenauftstieg stark mit der Partikelbewegung in einer Wirbelschicht verknüpft ist, kann

durch diese Messungen indirekt auch die Partikelbewegung in der Wirbelschicht beschrieben werden: Partikel steigen im Sog der Blasen hoch und bewegen sich in Gebieten mit weniger Blasenaktivität wieder nach unten.

Messungen des Blasenwachstums bei leicht erhöhtem Druck zeigen sowohl bei einem industriellen Wirbelschichtreaktor als auch in der Laborwirbelschicht keinen erkennbaren Einfluss. Allerdings ist der absolute Druck und die Druckerhöhung in beiden Wirbelschichten zu gering, sodass eine Blasengrößenreduktion und eine sanfter Fluidisierung – wie dies in der Literatur oft gezeigt wurde – mit den verwendeten Messmethoden nicht nachweisbar ist.

Das Hochskalieren von Wirbelschichtreaktoren auf einen industriellen Massstab ist immer noch ein kompliziertes und riskantes Unterfangen. Da viele hydrodynamische Parameter skalenabhängig sind, ist ein einfaches lineares Hochskalieren nicht möglich. Auch sind Computermodelle in dieser Hinsicht noch zu wenig leistungsfähig. Aus diesem Grund wird in der Literatur eine Gruppe von dimensionslosen Kennzahlen (z.B. Reynoldszahl, Froudezahl, etc.) definiert, die auf allen Skalen konstant gehalten wird und dadurch eine hydrodynamische Ähnlichkeit zwischen der kalten Laboranlage und der reaktiven Industrieanlage schaffen kann. Allerdings wurde dieser traditionelle Skalieransatz basierend auf dem totalen Reaktordurchmesser in letzter Zeit oft in Frage gestellt, vor allem wenn der Größenunterschied zwischen den zwei Anlagen gross ist. Aus diesem Grund wird in dieser Dissertation ein abgewandelter Ansatz basierend auf dem hydraulischen Durchmesser eines autonomen Sektors von vertikalen Rohren vorgeschlagen. Mit diesem Ansatz können Wirbelschichten mit vertikalen Rohren unabhängig vom totalen Reaktordurchmesser skaliert werden. Erste Messungen mit diesem sektoriellen Ansatz zeigen vielsprechende Resultate.