# ارائهٔ یک روش جهت طراحی رآکتور ستون حبابی برای فرایند تبدیل گاز طبیعی به سوخت مایع

**محمد ایرانی*، رضا حیاتی**

*ایران، تهران، پژوهشگاه صنعت نفت، پژوهشکده گاز، صندوق پستی ۱۳۷-۱۴۶۶۵

نویسنده مسئول ایمیل: iranim@ripi.ir

تاریخ دریافت: ۱۳۹۸/۰۹/۲۱ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۸/۱۱/۲۸

**چکیده**

یکی از رآکتورهای مورداستفاده در فرایند تبدیل گاز طبیعی به سوخت مایع (GTL)[1] رآکتور دوغابی ستون حبابی (SBCR)[2] است. این رآکتور علی‌رغم مزایای زیادی که نسبت به رآکتورهای مورداستفاده دارد، طراحی و افزایش مقیاس آن مشکل است. با توجه به پدیده‌های پیچیدهٔ موجود در این رآکتور و تجارب کسب‌شده توسط نویسندگان مقاله، در این تحقیق یک روش در قالب یک الگوریتم، جهت طراحی این نوع رآکتور پیشنهاد شده است. روش پیشنهادی برای طراحی یک رآکتور با ظرفیت هزار بشکه در روز که مشابه آن در شرکت Petro-SA آفریقای جنوبی وجود دارد، به کار رفت. ابعاد به‌دست‌آمده برای رآکتور از طراحی با استفاده از روش پیشنهادی با دقت بسیار خوبی با ابعاد رآکتورِ در حال بهره‌برداری مطابقت داشت. با توجه به نتایج، با استفاده از روش طراحی تأییدشدهٔ این تحقیق، می‌توان جهت طراحی رآکتورهای ستون حبابی با دقت خوب استفاده کرد.

1. Gas To Liquid
2. Slurry Bubble Column Reactor

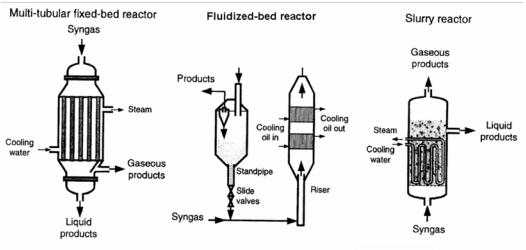
**کلمات کلیدی: رآکتور ستون حبابی، LTG، طراحی**

**۱- مقدمه**

ایران با دارابودن بخش بزرگی از ذخایر گاز طبیعی دنیا، پس از کشور روسیه مقام دوم را دارد. روش‌های زیادی برای استفاده از گاز طبیعی برای مصرف وجود دارد (تبدیل به سوخت، خط لوله و LNG). تبدیل گاز طبیعی به محصولات مایع، مشکلات سیاسی‌امنیتی ناشی از انتقال گاز را با خط لوله نخواهد داشت. با توجه به بالابودن قیمت نفت خام در سال‌های اخیر، تحقیقات دربارهٔ تبدیل گاز به مایع رونقی خاص یافته است. فرایند GTL شامل سه مرحلهٔ تبدیل گاز طبیعی به گاز سنتز، انجام واکنش‌های فیشر-تروپش[3] و تولید هیدروکربن‌های مایع از گاز سنتز، و مرحلهٔ هیدروکراکینگ محصولات رآکتور FT و تولید سوخت مایع است.

3. Fischer_Tropsch (FT)

در این فرایند، رآکتورهای مختلفی از جمله رآکتور بستر ثابت[4]، رآکتور بستر سیال[5] و رآکتور دوغابی[6] جهت انجام واکنش استفاده شده است (شکل ۱).




**شکل ۱- رآکتورهای مورداستفاده در فرایند F-T**

4. Fixed-bed
5. Fluidized Bed
6. Slurry

### ۱-۱- رآکتور بستر ثابت

از رآکتور بستر ثابت برای واکنش فیشر-تروپش در دمای پایین به‌منظور تولید هیدروکربن‌هایی با جرم مولکولی بالا و به‌طور عمده جهت تولید واکس استفاده می‌شود. از مزایای این رآکتور افزایش مقیاس مطمئن آن است (افزایش مقیاس با افزایش تعداد لوله‌ها انجام می‌شود). سرعت پایین جریان گاز از محدودیت‌های این سیستم است که این امر سبب کم‌شدن ضریب انتقال حرارت و در نتیجه لزوم افزایش سطوح انتقال حرارت می‌شود، این عمل یک محدودیت مهم در افزایش ظرفیت این نوع رآکتورها است. به‌دلیل جلوگیری از افت فشار در رآکتور بستر ثابت، کاتالیست‌ها با استفاده از فرایند اکسترودکردن ساخته می‌شوند؛ در نتیجه فضای خالی در رآکتورهای بستر ثابت زیاد شده و تعداد رآکتورهای بستر ثابت (که به‌صورت لوله‌های مختلف هستند) بیشتری مورد نیاز است. تعداد لولهٔ زیاد، وزن رآکتور و هزینهٔ ساخت آن را بالا می‌برد. از دیگر معایب این نوع رآکتور توقف فرایند هنگام تعویض کاتالیست است [۱].

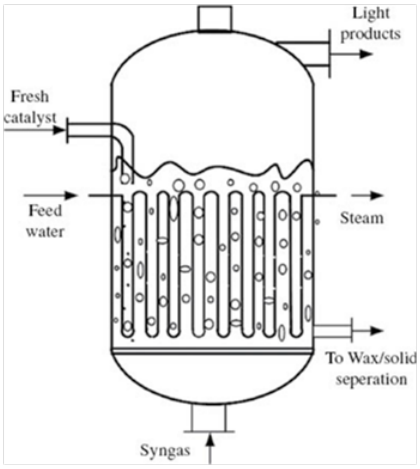
### ۱-۲- رآکتور بستر سیال

از رآکتورهای بستر سیال جهت سنتز فیشر-تروپش در دمای بالا (محدودهٔ ۳۲۰ تا ۳۵۰ درجهٔ سانتی‌گراد) استفاده می‌شود که هدف آن تولید بنزین و اولفین‌های سبک است. از معایب این رآکتورها پیچیدگی رآکتور و ساییدگی شدید کاتالیست‌ها است. به‌علت اینکه کاتالیست در این نوع رآکتور ساییده و خرد شده و همراه جریان خروجی خارج می‌شود، در این رآکتورها از کاتالیست کبالت (به‌علت گران‌بودن نسبت به آهن) استفاده نمی‌شود و در عمل در این رآکتورها عمدتاً از کاتالیست آهن استفاده می‌شود. همچنین در این رآکتورها نیاز به سیستم چرخش کاتالیست است که هزینه‌ها را به‌شدت بالا می‌برد. به‌جهت انتقال حرارت مناسب، سیال‌سازی بستر و افت فشار بستر در این نوع رآکتور حجم فضای خالی تقریباً ۰/۹ است که باعث حجم زیاد رآکتور (در مقایسه با رآکتورهای بستر ثابت و بستر سیال) شده و از کارایی رآکتور می‌کاهد [۱و۲].

### ۱-۳- رآکتور دوغابی

رآکتورهای دوغابی جهت تولید فراورده‌های میان تقطیر و واکس با استفاده از سنتز فیشر-تروپش استفاده می‌شوند. ساخت این رآکتورها نسبت به رآکتورهای بستر ثابت و بستر سیال ساده‌تر بوده و هزینهٔ آن کمتر است. همچنین افت فشار در رآکتور کمتر از ۱ بار است، بنابراین امکان کارکردن در فشار کمتر (حدود ۲۰-۲۵ بار) در آن‌ها وجود دارد. رآکتورهای دوغابی با توجه به نحوهٔ حرکت و اندازهٔ حباب‌های گاز می‌توانند رژیم‌های جریانی آشفته[1] و حبابی داشته باشند. در رژیم جریانی حبابی، اندازهٔ حباب‌ها ۱ تا ۱۰ میلی‌متر است ولی با افزایش سرعت گاز، حباب‌ها به همدیگر پیوسته و حباب‌های بزرگ‌تر (در محدودهٔ ۲۰ تا ۷۰ میلی‌متر) تشکیل می‌دهند و بدین ترتیب، منجر به ایجاد رژیم جریان آشفته می‌شوند. در رژیم حبابی، حباب‌ها مسیر رو به بالا طی می‌کنند، در صورتی که در رژیم آشفته، مایع در وسط رآکتور مسیر رو به بالا و در کنار دیواره‌ها مسیر رو به پایین دارد و در نتیجه حباب‌ها متأثر از مایع چنین مسیری را طی می‌کنند [۱و۳]. رژیم جریان مطلوب در رآکتورهای دوغابی، رژیم آشفته است چرا که در این حالت، انتقال حرارت در آن مناسب بوده و دمای مخلوط واکنش تقریباً ثابت می‌ماند و گرادیان‌های دمایی شعاعی و محوری که مختص به رآکتورهای لوله‌ای است به‌شدت کاهش می‌یابد؛ در نتیجه امکان عملیات در دمای بالاتر فراهم می‌شود. در دمای بالا سرعت واکنش بیشتر شده و تبدیل در هر عبور جریان افزایش می‌یابد. البته در افزایش دما یک محدودیت وجود دارد چون دمای بیشتر از ۲۸۰ درجهٔ سانتی‌گراد باعث شکستن[2] محصول مایع به محصولات سبک‌تر می‌شود. در این نوع رآکتورها سوسپانسیون محصول مایع و کاتالیست - به‌علت اندازهٔ بسیار ریز کاتالیست (حدوداً ۵۰ میکرون) - کاملاً همگن می‌شوند. رژیم جریانی آشفته منجر به تماس مناسب بین گاز سنتز و ذرات کاتالیست می‌شود که در نتیجهٔ آن سرعت تولید بالاتـــر می‌رود که البته این امر علی‌رغم وجود مقدار کاتالیست کمتر در این نوع رآکتور در مقایسه با رآکتور بستر ثابت است. مصرف کاتالیست به‌ازای واحد تن محصول، در رآکتور دوغابی فقط حدود ۲۰ تا ۳۰ درصد رآکتور بستر ثابت است و امکان تعویض و اضافه کردن کاتالیست بدون توقف واحد برای رآکتور دوغابی فراهم است. به‌طور کلی، رآکتورهای دوغابی برای یک ظرفیت خاص، فضای کمتری را اشغال کرده، در نتیجه وزن کمتری دارند. مصرف انرژی کمتر برای گردش گاز، استهلاک کمتر کاتالیست و عملکرد و نگهداری ساده‌تر از مزایای این نوع رآکتور است که خودبه‌خود باعث کمترشدن هزینهٔ ساخت و عملکرد بهتر آن نیز می‌شود.

7. Churn Turbulent
8. Cracking




**شکل ۲- شماتیک رآکتور اسلوری**

با توجه به تجربیاتی که در زمینهٔ فرایند FT تابه‌حال کسب شده و با توجه به تحقیقات و مقالاتی که در این زمینه وجود دارد، می‌توان نتیجه‌گیری کرد که رآکتور دوغابی در مقایسه با سایر رآکتورهای به‌کاررفته در فرایند فیشر-تروپش بهترین عملکرد و بالاترین تبدیل را داراست. در کنار مزایای ذکرشده برای رآکتور دوغابی، این رآکتور دارای برخی معایب از جمله وجود جریان برگشتی و خروج کاتالیست به‌همراه محصول است، ولی در مجموع مزایای این رآکتور بر معایب آن غالب است، به همین دلیل استفاده از آن توجیه فنی و اقتصادی دارد [۴].

بنابراین با توجه به مزایای ذکرشده برای رآکتور دوغابی نسبت به سایر رآکتورهای موجود، داشتن یک مدل برای طراحی مناسب و دقیق ضروری است. با توجه به اینکه رژیم جریان در رآکتور اسلوری از نوع چندفازی، چندجزئی با انتقال جرم و حرارت بین‌فازی است پیچیدگی‌های خیلی زیادی دارد. در این فرایند تعداد اجزا خیلی زیاد است و برای محاسبهٔ مقدار انتقال جرم و حرارت بین‌فازی باید به‌ازای هر جزء، دو معادلهٔ انتقال، یکی در فاز مایع و دیگری در فاز گاز حل شود. برای محاسبهٔ میزان انتقال جرم و حرارت بین‌فازی باید محاسبات تعادلی انجام شده و شار جرم و حرارت بین‌فازی محاسبه شود [۵و۶]. با توجه به خطاهای اجتناب‌ناپذیر در محاسبات عددی و همچنین مدل ترمودینامیکی به نظر می‌رسد روش پیشنهادی برای طراحی این رآکتورها با درصد اطمینان قابل‌قبولی مناسب است. گفتنی است که رآکتورِ اسلوریِ فرایندِ GTL در آفریقای جنوبی با این روش طراحی شد که نتایج با دقت خوبی با واقعیت تطابق داشت.

## ۲- عوامل مؤثر بر حجم و اندازهٔ رآکتور

به‌طور کلی، در رآکتور اسلوری فرایند GTL، سه فاز مایع، جامد (کاتالیست) و گاز وجود دارد. علاوه بر آن ادوات انتقال حرارت، فیلتر و توزیع‌کنندهٔ گاز نیز از اجزای تشکیل‌دهندهٔ رآکتور است. برای به‌دست‌آوردن حجم رآکتور، فضایی که هرکدام از موارد فوق‌الذکر در رآکتور اشغال می‌کند محاسبه شده و حجم نهایی محاسبه می‌شود.

۱. برای محاسبهٔ حجم واکنش (حجم مایع + کاتالیست)، با توجه به میزان یکنواختی (همزدگی) رآکتور دوغابی (شکل ۱)، با رآکتور همزده (Well-mixed) تخمین زده شد [۷] که حجم رآکتور از رابطهٔ ۱ محاسبه گردید.

$$V_r = \frac{F_{A0} X_A}{r_A} \qquad (۱)$$

در رابطهٔ بالا $X_A$ درصد تبدیل و $F_{A0}$ فلوی مولی خوراک و $r_A$، نرخ تبدیل مونوکسیدکربن بر واحد جرم کاتالیست بر واحد زمان است. در محاسبات انجام‌گرفته برای تخمین حجم واکنش از یک معادلهٔ ریت معتبر که در مراجع آمده استفاده می‌شود.

۲. از محاسبات هیدرودینامیک، کسر حجمی گاز در داخل رآکتور محاسبه می‌شود که در این خصوص از رابطهٔ ۲ استفاده شده است [۸]. گفتنی است که رژیم جریانی رآکتور اسلوری از نوع Churn Turbulent است و این رژیم جریانی در سرعت ظاهری خاصی اتفاق می‌افتد؛ بنابراین اندازهٔ سرعت ظاهری گاز به‌عنوان ورودی مسئله محسوب می‌شود.

$$\varepsilon_g = 0.62 U_g^{0.564} \left(\frac{\sigma_w}{\sigma}\right)^{0.15} \left(\frac{\mu_w}{\mu}\right)^{0.15} \left(\frac{\rho_G}{\rho_a}\right)^{0.15} \left(\frac{\rho_w}{\rho_L}\right)^{0.15} \qquad (۲)$$

در رابطهٔ بالا $\rho_g$، $\rho_a$ به‌ترتیب دانسیتهٔ گاز و هوا، و $\sigma$، $\sigma_w$ به‌ترتیب کشش سطحی آب و پارافین دانسیتهٔ گاز، $\rho_L$، $\rho_W$ به‌ترتیب دانسیتهٔ پارافین و آب، $U_g$ سرعت ظاهری گاز، $\mu$، $\mu_W$ به‌ترتیب ویسکوزیتهٔ پارافین و آب هستند.

با درنظرگرفتن رابطهٔ زیر و محاسبهٔ حجم مایع و جامد در مرحلهٔ قبل، حجم گاز محاسبه می‌شود.

$$\varepsilon_g = \frac{V_g}{(V_g + V_r)} \qquad (۳)$$

۳. برای محاسبهٔ سطح انتقال حرارت، ابتدا از معادلهٔ ریت واکنش مقدار مونوکسیدکربن و مقدار گرمای واکنش و همچنین مقدار گرمای تولیدی به دست آمد. با استفاده از رابطهٔ ۴، مقدار سطح انتقال محاسبه شد.

$$Q = UA\Delta T \quad (۴)$$

$$U = 0.1u_g^{0.25}\rho_S^{0.75}C_{P,S}^{0.5}g^{0.25}\mu_S^{-0.25}K_S^{0.5} \quad (۵)$$

رابطهٔ ۵ ضریب انتقال حرارت کلی است که توسط آقای دکور [۷] پیشنهاد شد. با استفاده از رابطهٔ ۳ سطح انتقال حرارت به دست می‌آید. انتقال حرارت واکنش از طریق لوله انجام می‌گیرد بنابراین با درنظرگرفتن ملاحظات انتقال حرارت، قطر لوله (D) مشخص می‌شود و با داشتن کل سطح انتقال حرارت، طول لوله به دست می‌آید (رابطهٔ ۶). از رابطهٔ ۷ می‌توان حجمی را که ادوات انتقال حرارت اشغال می‌کند به دست آورد و در محاسبهٔ حجم رآکتور لحاظ کرد. از مجموع حجم‌های محاسبه‌شده حجم کلی رآکتور محاسبه می‌شود [۸].

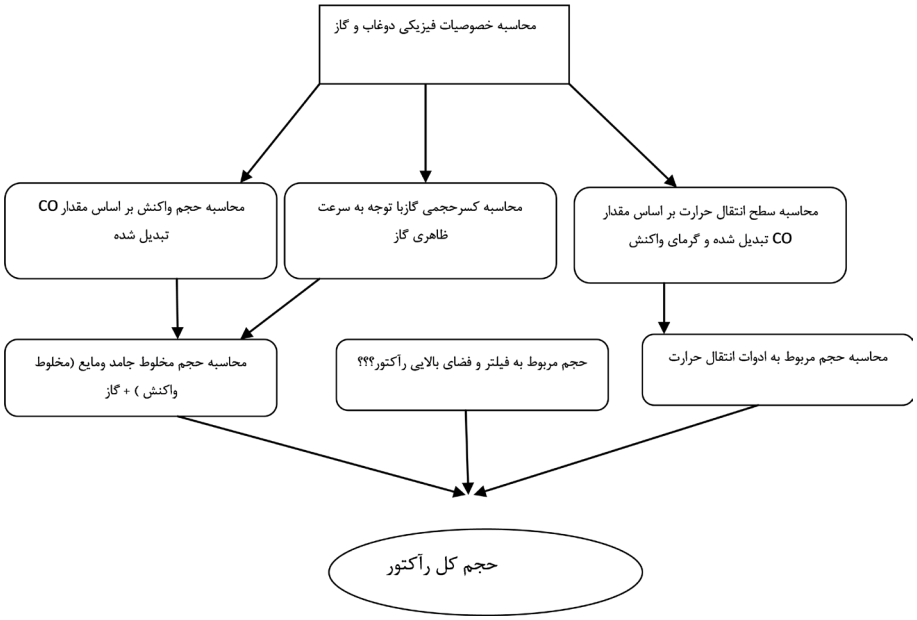
$$A = \pi DL \quad (۶)$$

$$V_{HT} = \frac{\pi}{4}D^2L \quad (۷)$$

$$V_{total} = V_{HT} + V_r + V_g + V_{filter} \quad (۸)$$

در ادامه فلوچارت محاسبهٔ حجم رآکتور آمده است:

**شکل -۳ فلوچارت محاسبات طراحی رآکتور**




همان طور که در( شکل۳) دیده می‌شود، الگوریتم محاسبات طراحی رآکتور به‌شرح زیر است:

۱. ابتدا بر اساس ریت واکنش موجود حجم واکنش ($V_r$) محاسبه می‌شود.

۲. بر اساس کسر حجمی گاز (εg) محاسبه‌شده و حجم واکنش محاسبه‌شده در مرحلهٔ ۱ حجم گاز ($V_g$) نیز محاسبه می‌شود.

۳. با توجه به مقدار مصرف‌شدهٔ مونوکسیدکربن، حرارت حاصل از واکنش به دست می‌آید که در نتیجه مقدار حجم ادوات انتقال حرارت ($V_{HT}$) به دست می‌آید.

۴. حجم ادوات فیلتر، اسپارژر [۹] و همچنین حجم فضای بالایی جهت گرفتن مایعات حمل‌شده توسط گاز نیز محاسبه می‌شوند.

در ادامه، رآکتور اسلوری شرکت Sasol از آفریقای جنوبی با ظرفیت هزار بشکه در روز که ابعاد آن موجود است طراحی می‌شود و مقایسه صورت می‌گیرد. برای آنکه مطمئن باشیم رژیم جریانی ما Churn–Turbulent است سرعت ظاهری ۰/۲ m/S در نظر گرفته شد. در (جدول ۱) شرایط عملیاتی، خصوصیات فیزیکی و پارامترهای لازم جهت طراحی آورده شده است.

جدول ۱- شرایط عملیاتی، خصوصیات فیزیکی و پارامترهای لازم جهت طراحی

| Design Parameters | 220 | Calculated parameters | |
|---|---|---|---|
| Ptot | 25 | D(m) | 2.47 |
| T | 220 | εg | 0.201 |
| Rho-skelletal | 2030 | $V_r$[m$^3$] | 130.23 |
| Rho-liq | 640 | $V_g$[m$^3$] | 32.608 |
| catalyst volume fraction | 0.11 | $V_{\text{Hex-eq}}$[m$^3$] | 10.35 |
| catalyst weight fraction | 0.3 | Length[gas + HEX-equip + liquid + catalyst] (m) | 36.14 |
| Surface tension [N/m] | 0.01 | Length[filter + sparger +…] (m) | 2.86 |
| viscosity-parafin-cP | 0.3122 | Total length (m) | 39 |
| mu-slurry-Cp | 0.47943 | | |
| rho-slurry-WF | 792.9 | | |
| CO molar flow (mol/min) | 14818.67 | | |
| Conversion | 0.6 | | |
| PH2/Pco-in | 2 | | |
| Superficial gas velocity (m/s) | 0.2 | | |

- با استفاده از رابطهٔ ۱ حجم واکنش که شامل مایع و جامد ($V_r$=136.33m$^3$) می‌شود به دست می‌آید.
- از رابطهٔ ۲ کسر حجمی گاز محاسبه شده و از رابطهٔ ۳ حجم گاز ($V_g$=618.817m$^3$) استخراج می‌شود.
- با توجه به کاتالیست استفاده‌شده، از معادلهٔ ریت واکنش [۱۰] استفاده شد و میزان CO مصرف‌شده به دست آمد. با استفاده از میزان مصرف‌شدهٔ CO و میزان حرارت واکنش به‌ازای هر مول آن در واکنش FT (165000J/mol CO) مقدار کل حرارت آزادشده محاسبه می‌شود [۱۱]. با استفاده از روابط ۴ و ۵، مقدار سطح و در نتیجه حجم اشغال‌شده توسط ادوات انتقال حرارت (رابطهٔ ۶ و ۷) محاسبه می‌شود.
- مجموع فضاهای محاسبه‌شده در بالا به‌علاوهٔ حجم فیلتر و فضای خالی بالای فیلتر جهت گرفتن مقطرات مایعی که احتمالاً همراه گاز باشند، حجم رآکتور را تشکیل می‌دهند (رابطهٔ ۸).

## ۳- نتیجه‌گیری

رآکتورهای ستون حبابی با داشتن مزایای بسیار در صنعت کاربردهای زیادی دارند. در این تحقیق، کاربرد این رآکتور در فرایند GTL بررسی شد. همان طور که گفته شد، پدیده‌های پیچیده و فراوانی در این نوع رآکتورها وجود دارد که طراحی و افزایش مقیاس آن‌ها را مشکل می‌سازد. از طرفی، شبیه‌سازی دقیق این رآکتورها کاری بسیار سخت و زمان‌بر است. با استفاده از روش پیشنهادی، رآکتور دوغابی ستون حبابی شرکت Petro-SA طراحی شد که با دقت خوبی نتایج طراحی با ابعاد رآکتور هم‌خوانی دارد. از روش طراحی تأییدشده در این تحقیق می‌توان برای طراحی رآکتورهای ستون حبابی استفاده کرد.

## ۴- مراجع


1. Sie, S.T., R. Krishna, “Fundamentals and selection of advanced Fischer–Tropsch reactors”, Applied Catalysis A: General 186, 55–70, 1999.
2. Krishna, R., S.T. Sie, “Design and scale-up of the Fischer–Tropsch bubble column slurry reactor”, Fuel Processing Technology 64, 73–105, 2000.
3. Maretto, C., R. Krishna, “Modelling of a bubble column slurry reactor for Fischer–Tropsch synthesis”, Catalysis Today 52, 279–289 (1999).
4. Steynberg, A.P., M.E. Dry, “Fischer-Tropsch Technology”, Elsevier Science & Technology Books, 2004.
5. Irani, M., R. Bozorgmehry, M.R. Pishvaie, A. Tavassoli, “Impact of thermodynamic non-idealities and mass transfer on multiphase hydrodynamics”, Journal of Scientia.
6. Irani, M., R. Bozorgmehry, M.R. Pishvaie, A. Tavassoli, “Investigating the effects of mass transfer and mixture non-ideality on multiphase flow hydrodynamics using CFD methods”, IJCCE.
7. Maretto, C., Krishna, R., “Design and optimisation of a multi-stage bubble column slurry reactor for Fischer–Tropsch synthesis”, Catalysis Today 66, 241–248 (2001).
8. Joshi, J.B., U.V., Parasu; C.V.S., Prasad, D.V., Phanikumar, N.S., Deshpande, B.N., Thorat, “Gas holdup structure in bubble column reactors”, PINSA 64,A, 1998.
9. Anand V. Kulkarni, Shrikant V. Badgandi, Jyeshtharaj B. Joshi, “Design of ring and spider type spargers for bubble column reactor: Experimental measurements and CFD simulation of flow and weeping”, chemical engineering research and design 87, 1612–1630, 2009.
10. Mousavi, S., A. Zamaniyan, M. Irani, M. Rashidzadeh, “Applied Catalysis A: General Generalized kinetic model for iron and cobalt based Fischer-Tropsch synthesis catalysts: review and model evaluation”, Appl. Catal. A, Gen, 506, 57-66, 2015.
11. Deckwer, W.D., “Bubble Column Reactors”, Wiley, 1992.

# Provide a Method for Designing a Bubble Column Reactor for the Converting Natural Gas to Liquid Fuel

**Mohammad Irani*, Reza Hayati**

Iran, Tehran, Research Institute of Petroleum Industries (RIPI), Gas Division, 137-14665

Corresponding Author, Email: iranim@ripi.ir

**Abstract**

*One of the reactors used in the process of converting the natural gas into liquid fuel (GTL)is the Slurry Bubble Column Reactor (SBCR). Despite the many advantages of SBCR, it is difficult to design and scale up. Given the complex phenomena in the reactor and experiences acquired by the authors, in this paper a method is proposed in the form of an algorithm to design this reactor type. The proposed method was used for designing a reactor with a capacity of 1000 barrels per day is similar to that in the Petro - SA company of South Africa. The obtained dimensions for the reactor using the proposed method were in good agreement with the size of the reactor at operation. According to the results, the validated design method in this study can be used to design bubble column reactors with good accuracy.*

**Keywords:** *Slurry Bubble Column Reactor, Gas to Liquid (GTL), Design.*