

Bij dit verslag zal de volgende indeling gebruikt worden:

- 1) Korte algemene inleiding over ontwikkeling phtaalzuuranhydride bereiding. Gebruik, toepassingen en prijzen.
- 2) Moderne technische bereidingswijzen van phtaalzuuranhydride.

Hierna zal onder 3 het door ons uitgevoerde proces uitvoeriger behandeld worden. Deze bespreking zal als volgt onderverdeeld worden:

- 3) a) Motivering gekozen fabricatiemethode;
b) Capaciteit te ontwerpen fabriek;
c) Bespreking en motivering gekozen variant van de onder a) beschreven methode;
d) Beschrijving proces. Apparatuur enz.;
- e) Berekening warmte-uitwisselaar;
- f) Geraadpleegde literatuur.

1.) Algemene inleiding:

De productie van phtaalzuuranhydride nam pas een grote vlucht tegen het einde van de eerste wereldoorlog toen voor het eerst de katalytische oxydatie van naftaleen in dampvorm met lucht werd toegepast. Als katalysator diende V_2O_5 . Voordien werd de oxydatie van naftaleen uitgevoerd met rokend zwavelzuur in aanwezigheid van Hg zouten als katalysator.

Het belang van Phtaalzuuranhydride ontleent dit product aan zijn gebruik in de kleurstofindustrie waar het gebruikt wordt voor de bereiding van eosine, erythrosine, phenolphtaleïne en anthrachinonderivaten, zoals alizarine.

Als weekmaker (plasticiser) in de lak en plastica industrie wordt phtaalzuuranhydride de laatste jaren veel gebruikt. Door condensatie met polyalcoholen vormt het de z.g. alkydharsen van veel belang in de lakindustrie. Sommige esters van phtaalzuuranhydride, zoals het dimethylphtalaat worden als insectendoders gebruikt.

Het stijgende belang van phtaalzuuranhydride, gepaard gaande met een aanzienlijke prijsdaling van het product illustreert het onderstaande staatje uit Chem.& Met.Eng. Aug.1946, betrekking hebbende op de V.S.:

Jaar	productie in lbs.	prijs per lb.
1917	138.857	\$ 4.23
1940	57.946.415	\$ 0.14
1945	123.301.944	\$ 0.12 ⁵

Het gebruik verdeeld over de verschillende industriën wordt weergegeven door de volgende tabel uit Am.Paint J. 29, No 27, 60, 64, 66, 68 (1948). Gebruik in % van totale hoeveelheid:

als weekmaker:	60%	voedsel en medicijnen:	2%
synthetische harsen:	31%	allerlei:	1%
kleurstoffen:	6%		

2.) Momenteel technisch toegepaste bereidingswijzen:

- a) oxydatie van naftaleen in dampphase met lucht over een vaste katalysator;
- b) katalytische oxydatie van naftaleen met een katalysator in „fluid-bed“ toestand;
- c) oxydatie van orthoxyleen.

a) Naftaleen is resistent tegen oxydatie zodat hiervoor een overmaat O_2 , hoge temperatuur en een katalysator nodig is. Door deze omstandigheden juist te kiezen, is het mogelijk technisch de oxydatie zo te voeren dat met een doorgang over de katalysator volstaan kan worden. Temperatuur van de oxydatie ligt tussen de 400° en 500° C, terwijl de katalysator meestal bestaat uit V_2O_5 op een drager van kiezelguhr. In enkele gevallen wordt aan de katalysator een promotor toegevoegd zoals b.v. 20-25% K_2SO_4 .

De oxydatie van naftaleen is een exotherme reactie. Theoretisch zijn 9 atomen zuurstof nodig op een molecuul naftaleen. In de praktijk wordt om buiten de explosiegrenzen te blijven ^{ten}minstens een 3 x overmaat aan O_2 gebruikt hetgeen dus betekent dat per molecuul naftaleen ^{ten}minstens $4.5 \times 3 \times \frac{100}{21} = \pm 60$ mol lucht nodig zijn.

De theoretische ontwikkelde hoeveelheid warmte bij deze oxydatie bedraagt 3330 Kg.cal/Kg.naftaleen. Doordat de oxydatie echter steeds verder gaat dan phtaalzuuranhydride en een gedeelte van de naftaleen tot CO, CO₂ en maleïnezuuranhydride wordt geoxydeerd, is de vrijgekomen warmte groter en bedraagt in de praktijk dan ook 5550 Kg.cal/Kg.naftaleen.

De gegevens over dit proces worden uitvoerig beschreven in B.I.O.S., C.I.O.S. en F.I.A.T. rapporten. Zie gebruikte literatuur 1 t/m 6.

Bij deze processen wordt de gebruikte naftaleen na smelten voorgezuiverd door te mengen met Norit en daarna te filtreren. Hierna wordt de gesmolten naftaleen in verdampers met hete lucht in damp omgezet. De hoeveelheid naftaleen-lucht wordt nauwkeurig geregeld.

Dit mengsel naftaleendamp-lucht wordt voorverwarmd en gaat nu naar de convertor waarin het door een serie buizen stroomt opgevuld met katalysator in vorm van pillen. Deze buizen worden uitwendig gekoeld door er een gesmolten zoutoplossing langs te laten circuleren. Meestal wordt als gesmolten zout ^{+KNO₂ + NaNO₂} Na NO₃ gebruikt. Het regelen van de temperatuur tijdens de reactie en het voorkomen van plaatselijke oververhittingen is een van de grootste moeilijkheden van dit proces. De reactie temperaturen variëren bij de verschillende fabrieken in Duitsland, maar liggen in de buurt van 400° C.

De oxydatieproducten gaan via een warmte-uitwisselaar naar de condensors. Behalve phtaalzuuranhydride, CO₂, CO en H₂O ontstaan ook kleine hoeveelheden bijproducten zoals onomgezet naftaleen, naphtoquinon en maleïnezuur. In de condensors wordt het phtaalzuuranhydride afgezet, terwijl de gassen na het passeren van een cyclon door een schoorsteen de lucht ingestuurd worden. Het gevormde phtaalzuuranhydride heeft een maximale zuiverheid van 97% en wordt nog verder gezuiverd. Deze zuivering geschiedt in tegenstelling tot de oxydatie niet continu.

De convertoren, in Duitsland gebruikt, hadden een capaciteit van 80-100 ton/maand. Totaal werd per maand ongeveer 1200 ton phtaalzuuranhydride bereid. De prijs van het product bedroeg in

hcc?

Koeling met kwik

ook maleïnezuur wordt gewonnen

1939 R.M. 1.30 per kilo, terwijl gedurende de oorlog de prijs van het gezuiverde product daalde tot 50 pf/Kg.

b. Oxydatie van naftaleen met lucht m.b.v. een katalysator in fluid bed.:

Dit proces wordt beschreven door J.A.Lee: Chem. & Met.Eng. July 1945 p.100 (7) en in U.S. patent 2.373.008 (8), Brit.patent 583.032 (9) en U.S. patent 2.453.740 Nov.16, 1948 (10).

Naftaleen wordt bij deze processen in de reactor geïnjecteerd als een vloeistof en verdampt in de reactor. De katalysator bestaat uit een zeer fijn poeder van V_2O_5 en kiezelguhr. In de reactor wordt de katalysator in „fluid” toestand gehouden door de opwaarts stromende lucht. De vloeibare naftaleen verdampt door contact met de hete katalysator massa. Het lucht-naftaleen mengsel gaat opwaarts door het katalysatorbed en wordt hier geoxydeerd tot phtaalzuuranhydride, CO, CO_2 en H_2O . Deze gassen verlaten de reactor via een cycloon, waar de resten meegevoerde katalysator worden verwijderd, en gaan dan naar de condensors. Hier zet zich het phtaalzuuranhydride af, terwijl de gevormde CO, CO_2 en H_2O dampen, na een wasinstallatie te zijn gepasseerd, de lucht worden ingestuurd.

Volgens het artikel van Lee is de vrijgekomen warmte bij dit proces 5560 Kg.cal/Kg.naftaleen. De opbrengst aan phtaalzuuranhydride is 75 Kg op 100 Kg naftaleen.

Dit „fluid bed” proces biedt de volgende voordelen boven de oxydatie met een vaste katalysator:

- a) Door het fluid bed bestaat er een beter contact tussen katalysator en naftaleendampen zodat het vormen van z.g. „hot spots” tegengegaan kan worden. Hierdoor is het mogelijk een constante temperatuur over het gehele bed te houden en is de reactie beter in de hand te houden.
- b) Doordat de reactie regelmatiger zal verlopen en de warmte-afvoer beter is dan in een vast bed, is het explosiegevaar geringer en daardoor is de benodigde overmaat lucht aanzienlijk minder. Gevormde explosiewolken zullen sneller gebroken worden.

c) Door de bovengenoemde oorzaken zal het gevormde product een grotere zuiverheid bezitten, terwijl doordat minder lucht gebruikt wordt de sublimatie van het gevormde phtaalzuuranhydride makkelijker zal gaan.

c. Bereiding phtaalzuuranhydride door oxydatie van orthoxyleen:

Dit proces wordt beschreven door John R. Callahan in Chem. & Met. Eng. Augustus 1946 blz. 116-119 (11) en o.a. in U.S. Patent 2.416.350.

Als uitgangproduct wordt orthoxyleen gebruikt uit de "hydroforming" installaties van de petroleum industrie. Dit wordt met een 10 overmaat lucht, na beide te zijn voorverwarmd, in de convertor over een vaste katalysator geleid.

Hierna worden de gassen naar de condensatiekamers gevoerd. De convertoren zijn een soort warmte-uitwisselaars. De katalysator is op V_2O_5 basis en de buizen waarin de reactie optreedt worden met een gesmolten zoutoplossing gekoeld.

Bij deze oxydatie is de theoretisch vrijgekomen warmte geringer dan bij de vorige processen, namelijk 2528 Kg.cal/Kg orthoxyleen

Practisch is de warmte-ontwikkeling echter veel groter. De omzetting zou 70% van de theoretische bedragen.

3.) Motivering Keuze te gebruiken proces:

Wanneer wij deze processen beschouwen, vervalt al dadelijk voor Nederland de bereiding uit orthoxyleen.

De Nederlandse aardolie bevat geen xylenen terwijl de hoeveelheden xyleen in steenkolenteer slechts enige procenten van de hoeveelheid naftaleen bedraagt.

Bij de nog resterende mogelijkheden, namelijk de oxydatie van naftaleen met vast en fluid katalysator zien wij, dat de eerste het voordeel heeft van een hogere opbrengst.

Bij een fluid bed kan naast de onder 2^b genoemde voordelen, doordat het eindproduct zuiverder is (99%), de zuivering echter komen te vervallen. Ook de condensatiekosten zullen geringer zijn.

Niettegenstaande de lagere opbrengsten wordt het product hierdoor niet duurder, terwijl de hoop bestaat dat de rendementen van



van dit nog nieuwe proces verhoogd zullen kunnen worden.

In de B.I.O.S. rapporten worden de volgende prijzen gegeven voor de bereiding uit naftaleen met een vast katalysator bed:

ruwe phtaalzuuranhydride	38 pf/Kg.	De opbrengst is 86%.
zuivere phtaalzuuranhydride	50 pf/Kg.	

Bij een opbrengst van 65% zou de prijs dus $\frac{86}{65} \times 38 = 50$ pf/Kg. worden. Dit is juist de prijs van het gezuiverde product terwijl bij een fluid bed geen zuivering nodig is.

4.) Te produceren hoeveelheid:

Bij de berekening van de te produceren hoeveelheid phtaalzuuranhydride werd uitgegaan van de volgende twee factoren:

- hoeveelheid aanwezige naftaleen in Nederland;
- Nederlandse behoefte aan phtaalzuuranhydride.

Gedacht werd de fabriek te plaatsen annex aan een bedrijf met cokes ovens.

- Nemen wij als een dergelijk bedrijf in Nederland de cokesfabriek Maurits van de Staatsmijnen. De verwerkingscapaciteit tegen het einde van dit jaar zal zijn van 7500 ton kolen/dag = 2.700.000 ton/jaar (gegevens verstrekt tijdens T.G. excursie). Per ton kolen komt ongeveer 25 Kg koolteer vrij. Deze teer bestaat volgens ruwe schatting voor 50% uit pek; 25% anthraceenolie; 12% naftaleenolie en 8% wasolie. De naftaleenolie bevat ongeveer 65% ruwe naftaleen.

Dit zou een jaarlijkse opbrengst aan naftaleen geven van:

$$2.700.000 \times \frac{25}{100} \times \frac{12}{100} \times \frac{65}{100} = 5265 \text{ ton/jaar.}$$

Daar 1 gewichtsdeel naftaleen 0.75 gew.delen phtaalzuuranhydride geven, zou dus dit een jaarlijkse productie aan phtaalzuuranhydride geven van $\frac{5}{4} \times 5265 = 3949$ dus ongeveer 4000 ton/jaar.

- Voor een bepaling van de Nederlandse behoefte kunnen wij een vergelijking maken met de Verenigde Staten. In 1945 was hier de productie aan phtaalzuuranhydride 56.000 ton/jaar. Dit zou bij een inwoners-verhouding tussen de V.S. en Nederland van 15:1 een productie voor Nederland geven van $\frac{1}{15} \times 56.000 = 3744$ ton/jaar.

*hier draagt een
productie van
omg. wat is het
bedrag?*

Daar de productie sinds 1945 gestegen is mogen wij volgens deze beschouwing een overeenkomstige productie voor Nederland van 4000 ton/jaar aannemen.

Beide ruwe schattingen komen overeen zodat wij besloten, een maximum capaciteit voor de te ontwerpen fabriek van 4000 ton phtaalzuuranhydride per jaar te nemen.

3 c.) Bespreking en motivering gekozen variant van onder 3a beschreven methode.

Het artikel van Lee (7) geeft weinig gegevens over apparatuur. Wel omstandigheden, omzetting enz. De volgende gegevens vonden wij in dit artikel:

vrijgekomen warmte: 5560 Kg.cal/Kg naftaleen. Omzetting 65%.
 Reactor: 1.53 diameter en 9.15 hoog. Capaciteit 50.5 gr./sec.
 Reactietemperatuur 480° C. reactietijd 1 sec..
 Zuiverheid eindproduct: 99%.

Voor gegevens over de apparatuur zijn wij dus wat de convertor betreft aangewezen geweest op patentliteratuur en voor de rest van de fabricatiemethode op B.I.O.S. en C.I.O.S. rapporten, (lit. 1 t/m 6) die betrekking hebben op de oxydatie van naftaleen met fixed bed. De drie gebruikte patenten, alle van de Standard Oil Coy, zijn gegeven onder lit. 8, 9, 10.

In patent (9) wordt een gedeelte van de katalysator uit de convertor afgevoerd, gekoeld en terug geleid en weer met de gassen ingevoerd. Dit recylen van de katalysator geeft extra apparatuur moeilijkheden. In patent (8) en (10) blijft de katalysator grotendeels in de reactor. In het laatste patent wordt een inwendige koeling van de reactor toegepast, die het dense bed niet verstoort.

De dilute phase aan de bovenkant van de reactor wordt hierbij sterk gekoeld en hierdoor worden ongewenste bijreacties tegen gegaan. De bovenkant van de reactor is verbreed zodat hierdoor de snelheid van het gas verminderd en de hoeveelheid meegevoerde katalysator tot een minimum wordt beperkt. Door deze omstandigheden leek ons deze convertor voordeel bieden boven de anderen. Tevens geeft dit patent de meeste gegevens.

Daar de convertor te beschouwen is als het hart van het proces werd hieraan speciale aandacht besteed. Tevens zijn enige gegevens die hiervoor berekend werden nodig voor het opzetten van het gehele proces.

Bij een gewenste jaarlijkse productie van 4000 ton phtaalzuur anhydride = $\frac{4}{3} \times 4000 = 5333$ ton naftaleen/jaar zal er per seconde

$$\frac{5.333.000}{360 \times 24 \times 60 \times 60} = 0.170 \text{ Kg naftaleen verwerkt worden.}$$

De volgende gegevens uit het artikel van Lee en U.S.P.

2.453.740 staan ons ter beschikking:

reactietemperatuur = 480°C . verticale snelheid lucht: $61-91$ cm/sec.

7760 l lucht/Kg naftaleen.

dichtheid katal. zonder lucht: $0.56-0.64$ g/cm³

in dense phase: $0.24-0.16$ g/cm³

contacttijd: $1-2\frac{1}{2}$ sec. Kat.deeltjes grootte: $10-100$ μm

spanning lucht bij intreden convertor: $1-1\frac{1}{2}$ atm.

Toegepast op ons geval:

Voor verbranding nodig: $0.170 \times 7760 = 1320$ l lucht/sec. N.T.P.

vol.naftaleen: $\frac{170}{128} \times 22.4 = 29.7$ l/sec.

1350 l gas/sec. N.T.P.

Bij reactietemperatuur van 480°C is het volumen:

$$v_t = v_o (1 + \alpha t) = 1350 (1 + \frac{480}{273}) = \underline{3720 \text{ liter/sec.}}$$

Gekozen opwaartse snelheid gas: 90 cm/sec. contacttijd: $1\frac{1}{2}$ sec.

Dus dense phase: $1\frac{1}{2} \times 90 = \underline{135 \text{ cm.}}$

Gekozen dichtheid katalysator zonder lucht: 0.64 g/cm³;

met lucht in dense phase 0.16 g/cm³.

dus $\frac{5}{4}$ blijft voor gas over.

Gekozen opwaartse gassnelheid: 90 cm/sec.

Uit deze gegevens kunnen wij een schatting maken van de grootte voor de te gebruiken convertor:

De in (lit.10) gegeven convertor heeft een doorsnede van 90 cm. en een oppervlak van 63.3 dm². Het koelend oppervlak voor de gegeven convertor bestaat uit zeven buisjes met een doorsnede van 2 inch. De doorsnede van deze koelbuisjes zal dus zijn:

$$7 \times 2 \pi \times 1 \text{ inch} = \underline{110.2 \text{ c.m.}}$$

In ons geval stijgt 3720 liter gas 90 cm/sec.; dus oppervlak

$$\frac{3720}{90} = 413 \text{ dm}^2 \quad \text{Totaal ingenomen oppervlak lucht + katal.} =$$

$$\frac{4}{3} \times 413 = \underline{551 \text{ dm}^2}.$$

We kiezen de doorsnede van onze convertor op 250 cm. hetgeen een oppervlak geeft van $\pi \times (125)^2 = \underline{490 \text{ dm}^2}$.

Het koelend oppervlak bij de te kiezen convertor zal dus:

$$\frac{490}{63.3} \times 110 = \underline{851 \text{ cm}^2} \text{ moeten zijn.}$$

Nemen wij buisjes met $r = 7\frac{1}{2}$ cm. dan zal het koelend oppervlak per buisje in doorsnede zijn $2 \pi r = \underline{47 \text{ cm}}$.

Dus nodig $\frac{851}{47} = \underline{18}$ buisjes met doorsnede 15 cm.

Het oppervlak van deze 18 buisjes zal zijn:

$$18 \pi r^2 = \pi \cdot (7\frac{1}{2})^2 \times 18 = \underline{31.8 \text{ dm}^2}.$$

Het totale volumen gas + katalysator per sec. verwerkt =

$$\frac{4}{3} \times 3720 = \underline{4960 \text{ liter/sec.}}$$

Nuttig oppervlak convertor: $490 - 32 = \underline{458 \text{ dm}^2}$. (Oppervlak koelbuisjes afgetrokken).

Dit geeft een opwaartse snelheid van $\frac{4960}{458} = \underline{108 \text{ cm/sec.}}$

De maximum toelaatbare snelheid is: 90 cm/sec. Om deze snelheid te verlagen voeren wij de lucht onder druk in en wel minimaal

$$\frac{108}{90} \times 1 \text{ atm.} = \underline{1.2 \text{ atm.}}$$

Het drukverval per 10 meter wordt gegeven en is 0.16 atm. Nemen wij 3 meter dense bed dan zal hierin het drukverval

$$\frac{3}{10} \times 0.16 = \underline{0.048 \text{ atmosfeer zijn.}}$$

Wij voeren dus de lucht in bij $1.2 + 0.048 = \underline{1.25 \text{ atm. in.}}$

~~Voor~~ De ruimte boven het dense bed de z.g. disengaging ruimte is volgens de patentliteratuur 4-5 ft. Wij kiezen 1.50 m.

Uit deze ruwe berekening volgen dus de volgende door ons te gebruiken gegevens:

hoogte convertor tot aan afvoerbuis gasmengsel: 3 m (dense bed + 2.16 m (= $1.25 \sqrt{3}$ daar onderste punt hoeken van 60° maakt) + 1.50 (disengaging ruimte) = 6.66 m.

Doorsnede convertor 2.50 m. Druk in te voeren lucht 1.25 atm. Daar wij slechts een hoogte van het dense bed nodig hebben van

1.35 m. zal het naftaleen op verschillende hoogten ingevoerd moeten kunnen worden.

De koelbuizen zijn zo gekozen dat het vol. door binnenbuis = vol. tussen binnen- en buitenbuis. Dus oppervlak binnen buis = $\frac{1}{2}$ doorsnede buitenbuis.

Daar wij als straal buitenbuis $7\frac{1}{2}$ namen geldt dus:

$$\frac{1}{2}\pi \times (7\frac{1}{2})^2 = \pi R^2$$

$$R = 5.3 \text{ cm.}, \text{ dus } \emptyset \text{ binnenbuis} = 10.6 \text{ cm.}$$

Nemen wij als wanddikte ± 2.5 cm., dan zal \emptyset binnenbuis = 10 cm. worden.

3 d. Beschrijving proces. Apparatuur enz. Schaal schema 1:25.

Aan de hand van het getekende fabrieksschema zal de door ons gebruikte fabricatiemethode beschreven worden. De cijfers achter de beschreven apparaten hebben betrekking op de in de tekening gevolgde nummering. -

Als uitgangsstof wordt gebruikt naftaleen zoals die door de cokesfabrieken wordt geleverd. Deze wordt verkregen uit de middelste fractie bij de destillatie van koolteer. Deze middel- of kreesootolie is de fractie die tussen 200° en 270° C overkomt. Behalve naftaleen bevat de kreesootolie ook phenolen en kresolen. Het naftaleen wordt door gefractioneerde koeling hieruit gewonnen en door centrifugeren afgescheiden. In vele gevallen vindt hierna nog een verdere zuivering plaats door sublimatie. Het product heeft dan de vorm van schilfers. Wij gaan uit van een product dat niet gesublimeerd is en als kristalblokken wordt aangevoerd.

1. De naftaleen wordt gestort in een groot silo (1). De bodem is 3×3 m, terwijl de hoogte 14 m bedraagt zodat de inhoud 125 m^3 is. Deze silo zal dus ruim 100 ton kunnen bevatten. Dit is dus voldoende voor 6 dagen productie (dagelijks 14.8 ton naftaleen nodig). Bij de afvoerpijp van de silo is uitwendig een electrisch schokmechanisme aangebracht om verstoppingen te voorkomen.

2. Uit de silo komen de naftaleenkristallen in een z.g. crusher (2) waar ze door een om een verticale as draaiende conische schijf worden fijngemalen. De capaciteit van deze crusher werd genomen op

Met onder 1.

20 ton per dag zodat hij maximaal 835 Kg naftaleen per uur moet kunnen verwerken.

De gemalen naftaleen gaat via een Jacobs ladder (3) naar een voorraadtank (hopper)- (4) voor gemalen naftaleen. De inhoud van deze hopper is 20 ton zodat hij een hoeveelheid voldoende voor een dagverbruik kan bevatten.

Na deze voorraadtank komt het naftaleen in een weegtank (5). Deze is voorzien van een automatische weeginstallatie die telkens charges van 500 Kg afweegt. In 24 uur moet deze weegtank 15 ton verwerken, dus zal in een etmaal 30 charges moeten afwegen. De toevoer moet dus zo geregeld zijn dat elke 45 minuten ($\frac{24}{30} \times 60$) een hoeveelheid van 500 Kg aan de smelttank (6) kan worden toegevoegd.

Deze smelttank, evenals de andere apparatuur en de leidingen, zijn in staal uitgevoerd. De inhoud van deze smelttank is 4.5 m^3 . Het vullen geschiedt periodiek terwijl het smelten continu plaats vindt. De verhitting van de naftaleen geschiedt door een inwendig in de tank aangebrachte stoomspiraal. Indien het naftaleen nog veel onzuiverheden bevat kan tijdens het smelten Norit worden toegevoegd. Om goede menging te bereiken en het smelten te bevorderen is een roerder aangebracht. Oxydatie van de naftaleen wordt voorkomen door onder een N_2 atmosfeer te werken. Hiertoe is boven in de kop van de tank een invoer voor N_2 aangebracht. Onder aan de tank is een afvoer aangebracht die dient om tijdens de periodieke schonmaakverontreinigingen te verwijderen. De doorsnede van de tank werd op 1.60 m. genomen, hoogte 1.80 m. De gesmolten naftaleen wordt op $\frac{1}{3}$ van de hoogte afgevoerd naar de bezinktanks (7). Deze afvoer geschiedt periodiek.

De afvoerbuizen evenals alle leidingen in dit proces gebruikt waardoor gesmolten product wordt gevoerd moeten zeer sterk geïsoleerd zijn om vast worden van het naftaleen, dus verstoppingen, te voorkomen.

In de bezinktanks moet het gesmolten naftaleen gedurende 6 uur bezinken. Hierbij zet zich het grootste gedeelte van de verontreinigingen af. Gebruikt worden 3 bezinktanks met een nuttige inhoud ieder van 2 m^3 (d= 1.30 m. en hoogte tot afvoer 1.50 m.).

Indien wij aannemen dat het vullen van een tank 30 minuten in beslag neemt en wij de afvoer zodanig regelen dat iedere tank in $1\frac{1}{2}$ uur wordt afgetapt dan zal per tank voor het verwerken van een vulling 8 uur gemoeid gaan met vullen, bezinken en aflaten. Iedere tank kan dus drie maal in de 24 uur worden gebruikt. Daar er drie tanks aanwezig zijn die tezamen 15 ton/dag moeten verwerken, zal dus iedere tank 5 ton moeten verwerken. Dus per charge zal $\frac{1}{3} \times 5 = 1.67$ ton verwerkt moeten worden. Iedere tank zal dus om de 8 uur afgetapt worden. De stroom afgevoerde naftaleen zal dus niet geheel continu zijn. De bezinktanks worden ook met een stoommantel verwarmd. Er wordt ook gewerkt onder een N_2 atmosfeer.

Na het bezinken van de gesmolten naftaleen wordt deze met een door stoom verwarmde centrifugaalpomp (8) naar de hoger gelegen filters gepompt.

De maximale capaciteit van deze pomp zal moeten zijn 1.67 ton in $1\frac{1}{2}$ uur = 1.1 ton/uur tegen een opvoerhoogte van 9 meter.

Om het gesmolten naftaleen van de laatste resten onzuiverheden en het tijdens het smelten toegevoerde Norit te bevrijden wordt het gefiltreerd. Hiertoe worden 2 filters gebruikt. Filter (9) is een stalen filter met papierpulp van 25 mm dikte als filtermedium. Inhoud $1\frac{1}{2}$ ton. Doorsnede 2 m., hoogte 50 cm. De filter is ook door een stoommantel omringd. Maximaal moet dus 1.67 ton in $1\frac{1}{2}$ uur verwerkt worden.

Filter (10) is van kleinere inhoud. Inhoud $0.5 m^3$. Hoogte 1.5 m., doorsnede 65 cm.

Hierin worden de nog eventuele door de vorige filter doorgelaten deeltjes achtergehouden. Beide filters zijn van het Nutsche type. De vloeistofstroom heeft plaats door zwaartekracht.

Doordat het proces tot aan hiertoe niet geheel continu verloopt en de oxydatie van naftaleen wel continu wordt uitgevoerd wordt nu een voorraadtank (11) voor gesmolten en gefiltreerde naftaleen gebruikt. Een voordeel van deze voorraadtank is tevens dat het hiermede mogelijk is eventuele bedrijfsstoringen bij de voorzuivering op te vangen, zodat de continuïteit van de oxydatie niet behoeft te worden verstoord. Ook deze voorraadtank is voorzien van

filtreren gesmolte naftaleen?

*Waarom geen
ruisige doorwa-
kinge sublimatie
koud gekoeld?*

een stoommantel en de naftaleen wordt eveneens onder N_2 bewaard.

De naftaleen wordt door pomp (12) van hetzelfde type als pomp (8) naar de convertor gepompt. In de leiding is een rotameter geplaatst om de naftaleenstroom te kunnen meten en de hoeveelheid toe te voeren naftaleen te kunnen regelen.

De naftaleen kan op verschillende hoogten in de convertor (13) gevoerd worden. De invoerhoogte kan afhankelijk van de hoogte van het dense bed en de gang van de reactie geregeld worden. In de convertor vindt de oxydatie van het naftaleen met de onder in de reactor gepompte lucht plaats. Vorm en grootte van de convertor werd reeds uitvoeriger in 3c beschreven.

De koeling geschiedt met Dowtherm die snel rond circuleert door de koelbuizen. Daar de Dowtherm door de opgenomen warmte zal verdampen is het wenselijk de vloeibare Dowtherm door de binnenbuizen te doen stromen terwijl de dampen door de buitenbuizen omhoog stijgen. Daar de bekende Dowthermen slechts tot $\pm 350^\circ C$ kunnen worden verwarmd zal het waarschijnlijk noodzakelijk zijn zoveel mogelijk warmte door uitstraling af te voeren. Het zou in dit geval nuttig zijn de convertor buiten op te stellen en te koelen door er water langs te laten stromen. Als katalysator wordt V_2O_5 op silica gel gebruikt. Als activator wordt K_2SO_4 toegevoegd. (lit. 2, 4, 5). Grootte katalysator deeltjes: $10 - 100 \mu$.

De lucht voor de oxydatie nodig wordt aangezogen door een centrifugaal-compressor (17). De capaciteit van deze compressor zal moeten zijn $1320 \text{ l/sec. N.T.P.}$ (reeds bij berekening convertor gebruikt) dus per uur $3600 \times 1320 = 4750 \text{ m}^3$

Wij nemen een compressor die tegen $\frac{1}{2}$ atm. druk een maximum capaciteit van $10.000 \text{ m}^3/\text{uur}$ zal hebben.

De lucht wordt voordat hij door de compressor wordt aangezogen gereinigd van meegevoerde stofdeeltjes en dergelijke. Hiertoe dient het filter (16). Gebruikt wordt een droge-lucht filter volgens Perry, blz. 1880.

Als filtermedium worden doeken van katoen gebruikt die om het oppervlak te vergroten in zigzag vorm zijn gespannen.

De reactiegassen en de overmaat lucht die na de reactie de

converter verlaten zullen nog deeltjes katalysator meevoeren. Alvo-
rens verder verwerkt te worden moeten de gassen van de katalysa-
tordeeltjes worden bevrijd. Hiertoe worden de gassen door een
multicloon (14) gevoerd. Daar de deeltjes zeer kleine afmetingen
bezitten, namelijk tussen 10 en 100 μ , kan hiervoor niet een
cycloon gebruikt worden. Een multicloon kan beschouwd worden als
een serie parallel geschakelde cycloon eenheden (Perry, p.1864).

De katalysatordeeltjes verlaten de multicloon aan de onder-
kant en worden weer naar de reactor "gerecycled" door de ingevoer-
de lucht.

Na het verlaten van de multicloon worden de hete gassen door
een warmte-uitwisselaar (15) gestuurd. Hierin worden zij afgekoeld
terwijl de afgestane warmte gebruikt wordt om de voor de oxydatie
benodigde lucht te verwarmen. De gebruikte warmte-uitwisselaar be-
staat uit een serie parallele buizen waardoor het gasmengsel wordt
gevoerd terwijl de lucht om de pijpen wordt gevoerd. Beide gasstro-
men stromen in tegenstroom terwijl met een doorgang door de warmte-
uitwisselaar wordt volstaan (single pass). Om de snelheid en turbu-
lentie van de stroom om de pijpen te vergroten zijn een aantal
transversale keerplaten of baffles aangebracht. Voor de afmetingen
van deze warmte-uitwisselaar verwijzen wij naar de hierop volgende
berekening.

Na het verlaten van de warmte-uitwisselaar gaan de gassen
naar de condensatie-inrichting. Dit gedeelte van het proces werd
niet door ons behandeld en zal dus zeer summier worden aangegeven.

De condensatie van het phtaalzuuranhydride uit de reactiegas-
sen geschiedt in grote rechthoekige kamers waar het phtaalzuuran-
hydride zich op de bodem en tegen de wanden afzet. Dit door subli-
matie verkregen product heeft een grote zuiverheid en behoeft
slechts door koken in kookpannen van eventuele resten ~~water die~~
~~tot vorming van phtaalzuur aanleiding hebben gegeven~~ worden be-
vrijd. Het gesmolten phtaalzuuranhydride wordt dan over grote rote-
rende cylinders geleid, die inwendig gekoeld worden, alwaar het
product vast wordt. Aan de onderkant van de cylinders wordt het
vaste product afgeschraapt en is dan zonder eenige verdere zuive-

*dit is al een
condensatie?*

ring na verpakking voor de verkoop gereed. (99% zuiver).

Daar tijdens de gehele fabricage een grote hoeveelheid stoom wordt gebruikt is in het schema nog aangegeven hoe een gedeelte van de tijdens de reactie in de reactor ontstane warmte nuttig gebruikt kan worden om deze benodigde stoom te produceren. Dit is van essentieel belang voor de warmte-economie van het proces.

Voor de stoomproductie worden de hete Dowthermgassen die de convertor verlaten langs de pijpen van een verticale waterpijpketel (20) gestuurd. In deze stoomketel zonder geforceerde circulatie staan de warme Dowthermdampen hun warmte af aan het water dat in de pijpen staat en gedeeltelijk tot stoom zal worden omgezet.

De stoomketel is van een pijlglas om de waterstand te controleren en een veiligheidsklep voorzien. De Dowtherm zal geheel of gedeeltelijk condenseren en wordt onder aan de stoomketel afgevoerd. Hier wordt hij opgepompt door een centrifugaalpompje (21) en via een koeler (22) weer teruggevoerd naar de convertor.

De koeler (22) wordt gekoeld met water en is in principe van dezelfde constructie als de warmte-uitwisselaar (15). Eventuele meegevoerde Dowthermdampen zullen hierin ook condenseren. Uit een voorraadtank (23) voor Dowtherm kan de in de convertor in te voeren hoeveelheid indien nodig aangevuld worden. -

Verder zijn in het schema nog enige controle-apparaten aangegeven: (18) is een automatische temperatuurcontroleur. Loopt de temperatuur van de uit de warmte-uitwisselaar tredende lucht te hoog op dan wordt automatisch een klep in de invoerleiding van de reactiegassen versteld zodat een gedeelte van deze gassen zonder de warmte-uitwisselaar te passeren direct naar de condensatie-inrichting stromen.

Bij (19) is een flowmeter en een manometer aangebracht om de druk en snelheid van de in te voeren lucht te controleren.

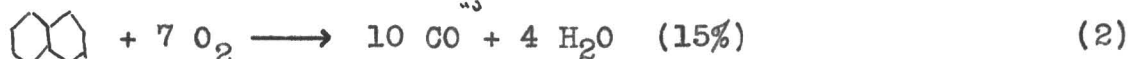
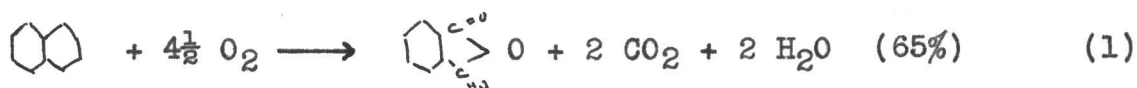
3 c. Berekening warmte-uitwisselaar.

Doordat het niet mogelijk was de reactor te berekenen en de samenstelling van de reactieproducten hierdoor niet geheel bekend was, moesten enige gegevens aangenomen worden om deze berekening uitvoerbaar te maken.

De aangenomen grootheden werden zoveel mogelijk in overeenstemming gebracht met bekende literatuurgegevens.

De warmte-uitwisselaar moet dienen om met de warme verbrandingsgassen uit de reactor de voor de verbranding benodigde lucht voor te verwarmen. Deze lucht treedt bij 18° C binnen en willen wij verwarmen tot 200° C. De temperaturen van het gasmengsel uit de convertor nemen wij aan op 400° C en $p = 1.2$ atm. Deze gassen mogen niet lager afgekoeld worden dan 200° C daar wij het vormen van vast phtaalzuuranhydride willen voorkomen.

Het gasmengsel bestaat uit lucht, phtaalzuuranhydride, CO, CO₂ en H₂O. Gegeven is dat de omzetting van naftalen tot phtaalzuuranhydride 65% bedraagt terwijl wij aannemen dat 20% naftaleen verbrandt tot CO₂ en H₂O en 15% tot CO en H₂O. De reactievergelijkingen voor deze reacties zijn:



Verdere gegevens die aangenomen worden:

druk gasmengsel bij intreden warmte-uitwisselaar: $p = 1.2$ atm.

temper. gasmengsel bij intreden warmte-uitwissel.: $t = 400^\circ \text{C}$.

Voor de luchtsamenstelling nemen wij 20% O₂ en 80% N₂ (in volumina).

De lucht wordt ingevoerd bij 18° C en een druk van 1.25 atm.

Voor de hoeveelheid naftaleen die verwerkt werd vonden wij reeds:

0.170 Kg/sec.

Hiervoor is een hoeveelheid lucht voor verbranding nodig van:

1.700 Kg/sec.

*Kan ook niet
alleen bij phtaalzuuranhydride*

Uit de drie reactievergelijkingen voor de verbranding volgt dat op 100 mol. naftaleen ontstaan:

65 mol. phtaalzuuranhydride;
 330 mol. CO₂;
 150 mol. CO;
 270 mol. H₂O.

Per sec. wordt echter slechts 170 gr. naftaleen = $\frac{170}{12800}$ moleculen verwerkt. Bedenken wij verder dat 77.77 gew.% van de benodigde lucht uit stikstof bestaat dan is hieruit de samenstelling van het gas dat de reactor verlaat te berekenen. Wij geven hieronder deze samenstelling van het gas met nog eenige te gebruiken grootheden in tabelvorm weer.

(gram CO₂ per sec. = $330 \times \frac{170}{12800} \times 44 = 193$ g/sec. enz.)

	g/sec.	C _p _{300°} (cal/g °C)	cal/sec °C	spec.vol (l/g)	vol frac-tie (l)
CO ₂	193	0.255	49.4	0.504	97.3
H ₂ O	65	0.48	31.2	1.250	81.4
CO	55	0.258	14.2	0.800	1100.8
N ₂	1321	0.255	336.8		74.9
O ₂	107	0.239	25.6	0.700	22.4
phtaal-z.anh.	128	0.315 (geschat)	40.3	0.175	
	1870 g/sec.	(Driebergen blz. 87)	497.5		1376.8 l.

De gemiddelde $\overline{C_p}_{300^\circ}$ voor dit gasmengsel is dus:

$$\overline{C_p}_{300^\circ} = \frac{497.5}{1870} = 0.266 \text{ cal/g } ^\circ\text{C.}$$

De gemiddelde dichtheid: $\overline{\rho}_{\text{N.T.P.}} = \frac{1870}{1377} = 1.36 \text{ g/l.}$

Nu is de warmte opgenomen door de lucht om van 18° tot 200° C verwarmd te worden = afgestane warmte gas. Dus:

voor lucht: $1700 \times 0.241 \times (200 - 18) = 74400 \text{ cal/sec.}$

$$C_{p\text{lucht } 100^\circ} = 0.241.$$

En voor het gasmengsel:

$$497.5 \times \Delta T \text{ cal/sec.} = 74.4 \cdot 10^3 \text{ cal/sec.} \quad \Delta T = 149.5^\circ \text{ C.}$$

Het gasmengsel zal dus afkoelen van 400° tot 250.5° C.

400 Loo
 Baten $\int c_p dt$
 in 18

Het gasmengsel wordt door de pijpen gevoerd terwijl de lucht om de pijpen wordt gestuurd.

Als overall coefficient mogen wij ^{in eerste instantie} aannemen 2-6 B.T.U./hr.sq.ft. (Perry blz.1000) °F.

Omgerekend op het z.g. praktische maatstelsel:
11.7-34 J/m²sec.°C.

We nemen voor onze voorlopige berekening:

$$U = 20 \text{ J/m}^2\text{sec.}^\circ\text{C.}$$

$Q = U \times F \cdot \Delta \bar{T}$ Voor $\Delta T_{\text{gem.}}$ nemen wij het log.temp.gemiddel-

de: $\Delta T = \frac{232-200}{\ln \frac{232}{200}} = \frac{32}{2.303 \log 1.16} = \frac{32}{2.303 \cdot 0.0646} = \frac{212^\circ \text{C}}{\text{(Perry 969)}}$

Dus $F = \frac{Q}{U \times \Delta T} = \frac{74.400 \times 4.19}{20 \times 212} = \underline{\underline{73.5 \text{ m}^2}}$

Daar wij in de warmte-uitwisselaar voor een gunstige warmte-overdracht turbulente stroom willen hebben moet dus een hoog Reynolds getal aanwezig zijn.

Nemen wij om zeker van een turbulente stroom te zijn een

R_e getal = 4000.

$$R_e = 4000 = \frac{V \cdot D}{\nu} \quad (1)$$

$$\bar{\rho}_{300^\circ\text{C}} = 1.36 \frac{273}{573} \times \frac{1.2}{1} = 0.78 \text{ g/l} = \text{Kg/m}^3 \text{ (gem. } \rho \text{ bij } 300^\circ \text{C en } 1.2 \text{ atm.)}$$

Voor de viscositeit nemen wij een geschatte waarde overwegende dat het gasmengsel voor het grootste gedeelte uit N₂ bestaat:

$$= 28 \cdot 10^{-6} \text{ N sec/m}^2 \quad (1 \text{ N} = \text{Kg m/sec}^2) \quad (\text{Technische Tabellen Ir.Driebergen blz.112}).$$

$$= 28 \cdot 10^{-6} \text{ Kg/m sec.}$$

Dit in (1) geeft: $V D = \frac{4000 \times 28 \cdot 10^{-6}}{0.78} = 144 \times 10^{-3} \text{ m}^2/\text{sec.}$

Nemen wij de inwendige doorsnede der pijpen $\phi_1 = 1'' = 0.0254 \text{ m}$ dan

wordt de gemiddelde snelheid: $\bar{V} = \frac{1.44 \cdot 10^{-3}}{25.4 \times 10^{-3}} = \underline{\underline{5.68 \text{ m/sec.}}}$

De hoeveelheid gas door deze ene pijp gestuurd per sec. bedraagt

dus: gem.snelh. \times ^{doorsnede} opp.pijp:

$$\bar{V} \times \frac{\pi}{4} D^2 = 5.68 \frac{\pi}{4} 6.48 \times 10^{-4} = \underline{\underline{28.8 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{sec.}}}$$

Daar de gemiddelde dichtheid van het gasmengsel 0.78 is, zal het gewicht van deze hoeveelheid gas die per sec. door de pijp gaat zijn

$$28.8 \times 10^{-4} \times 0.78 = 2.24 \times 10^{-3} \text{ Kg/sec.}$$

Er moet echter per sec. door 1.87 Kg.

Dus benodigde aantal buizen om deze hoeveelheid te verwerken:

$$\frac{1.87}{2.24} \times 10^3 = 835$$

De omtrek van een buis met inw. ϕ van 1" en $\phi_{\text{uitw.}} \frac{5}{4}$ " ($\frac{5}{4}$ " / 1") zal zijn: $\pi \times \frac{5}{4} \times 0.0254 = 0.100 \text{ m.}$

Als totaal koelend oppervlak vonden wij 73.5 m².

Dus $835 \times 0.100 \times l = 73.5$

$$l = \frac{73.5}{835} = 0.088 \text{ m.}$$

Dit geeft een veel te korte warmte-uitwisselaar. Dus minder en langere pijpen nemen. Stel lengte pijpen 3 m. De snelheid zal bij minder pijpen groter worden en R_e stijgen hetgeen dus gunstig is.

Bij $l = 3 \text{ m}$ wordt het aantal pijpen:

$$F = l \times .D \times n = 3 \times 0.1 \times n = 73.5$$

$$n = \frac{73.5}{0.3} = 245$$

De doorsnede van de warmte-uitwisselaar vinden wij uit:

$$D_{\text{shell}} = 1.15 d \sqrt{n} \quad (\text{Clarke blz.259}).$$

D = shell diameter.

d = afstand center pijpen = 2 D genomen.

n = aantal pijpen.

$$D_{\text{shell}} = 1.15 \cdot 2.5 \times 0.0254 \sqrt{245} = 1.14 \text{ m.}$$

Door een pijp gaat een hoeveelheid gas van

$$\frac{1.87}{245} = 7.69 \times 10^{-3} \text{ Kg/sec. (= 57 lbs/hr.)}$$

Volgens tabel in Perry p.805 is in dit geval het drukverval in de pijpen $\Delta p = 0.3$ " H₂O per ft. pijp.

Voor 3 m pijp is het drukverval dus 3" H₂O = 7½ cm H₂O hetgeen een zeer kleine (toelaatbare) waarde is. *Deze is te klein*

Berekening van de filmcoëfficiënten.

A. in de buis: Hiertoe passen wij de algemene formule van

Mc.Adams toe.

(Mc.Adams p.168).

$$\frac{h D}{k} = 0.023 \left(\frac{D v \rho}{\eta} \right)^{0.8} \left(\frac{c_p \eta}{k} \right)^{\frac{1}{3}}$$

Waarin:

h = inw.filmcoëfficiënt
D = inwendige diameter buis
k = thermische geleidbaarheid
 η = viscositeit
 ρ = dichtheid
v = snelheid gasstroom
 c_p = soortelijke warmte

Term 1 is het Nusselt getal;
term 2 is het Reynoldsgetal;
term 3 is het Prandtlgetal.

Per pijp werd reeds berekend stroomt een hoeveelheid gas van

$$7.69 \times 10^{-3} \text{ Kg/sec.} \quad \text{Dus} \quad v \frac{\pi D^2}{4} \rho = 7.69 \times 10^{-3} \text{ Kg/sec.}$$

$$v D \rho = \frac{4 \times 7.69 \times 10^{-3}}{2.54 \times 10^{-2}} = 3.84 \times 10^{-1} = 0.384 \text{ Kg/sec.m.}$$

$$= 28 \cdot 10^{-6} \text{ Kg/m.sec.}$$

$$R_e = \frac{D v \rho}{\eta} = \frac{0.384}{0.28 \times 10^{-4}} = \underline{1.371 \times 10^4} \quad (\text{dus ruim boven de 4000 !})$$

$$(R_e)^{0.8} = 2.04 \times 10^3$$

Voor de berekening van het Prandtl getal:

$$c_p = 0.266 \text{ cal/g } ^\circ\text{C} = 1.12 \times 10^3 \text{ J/Kg } ^\circ\text{C.}$$

$$\eta = 28 \times 10^{-6} \text{ Kg/m.sec.}$$

$$k = 0.038 \text{ J/m.sec. } ^\circ\text{C} \quad (\text{geschat op grond van een mengsel rijk aan } \text{N}_2 \text{ met } \text{O}_2 \text{ en } \text{CO}_2: \text{ Driebergen blz.120})$$

$$Pr = \frac{c_p \eta}{k} = \frac{1.12 \times 10^3 \times 28 \times 10^{-6}}{0.038} = 0.82$$

$$(Pr)^{\frac{1}{3}} = 0.94$$

Deze waarden ingevuld geeft voor het Nusselt getal:

$$\frac{h D}{k} = 0.023 \times 2.04 \times 10^3 \times 0.94 = 43.7$$

$$h = \frac{43.7 \times 0.038}{0.0254} = \underline{65.4 \text{ J/m}^2\text{sec. } ^\circ\text{C}} \quad (= 11.5 \text{ B.T.U./sq.ft.hr. } ^\circ\text{F})$$

Als controle gebruiken wij de methode gevonden in Clarke: manual for Process engineering Calculations p.241.

Berekening mass velocity in lb/sec.sq.ft. : $v \times \rho$

Wij vonden reeds $v D \rho = 0.384 \text{ Kg/sec.m.}$

*Wombstrooms
dicht $\frac{1}{2}$ l.*

$$v = \frac{0.384}{0.0254 \times 0.78} = 19.3 \text{ m/sec.} = \pm 60 \text{ ft./sec.}$$

$$= 0.78 \text{ Kg/m}^3 = \frac{0.78}{16} = 0.0487 \text{ lb/sq.ft.}$$

$$D = 0.0254 \text{ m.}$$

$$\text{mass velocity: } 60 \times 0.0487 = 2.93 \text{ lb/sq.ft.sec.}$$

In de gegeven grafiek vinden wij door verbinden van deze mass velocity met de inwendige pijpdiameter van 1 inch voor:

$$\frac{h}{C_p} = 40 \text{ B.T.U./hr.sq.ft.}^{\circ\text{F}} / \text{ft.} / \text{B.T.U.lb.}^{\circ\text{F}}$$

$$\text{nu is } C_p = 1.12 \times 10^3 \text{ J/Kg }^{\circ\text{C}} = \frac{1.12 \cdot 10^3}{4.19 \cdot 10^3} = 0.268 \text{ B.T.U./lb.}^{\circ\text{F.}}$$

$$h = 40 \times 0.268 = 10.7 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^{\circ\text{F}} \quad (60.8 \text{ J/m}^2\text{sec.}^{\circ\text{C}})$$

Voor h_1 werd dus gevonden: volgens Mc.Adams:

$$\frac{11.5 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^{\circ\text{F.}}}{\text{-----}}$$

volgens Clarke:

$$\frac{10.7 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^{\circ\text{F.}}}{\text{-----}}$$

B. Berekening van de film-coëfficiënt buiten de buizen : h_o

Koude lucht wordt dus opgewarmd van 18° - 200° C.

hoeveelheid: 1.700 Kg/sec. druk 1.25 atm.

$$\bar{\rho} = 1.28 \times \frac{273}{373} \times \frac{1.25}{1} = 1.18 \text{ Kg/m}^3$$

We zetten de pijpjes in ^{gelijke} driehoekjes:



$$\phi_{\text{uitw.}} = D_o$$

afstand buitenkant

$$\text{buizen} = D_o$$

Per buis is een oppervlak beschikbaar van:

$$2 D_o D_o \sqrt{3} - \frac{\pi}{4} D_o^2 = (2 \sqrt{3} - \frac{\pi}{4}) D_o^2 = \frac{2.67 D_o^2}{\text{oppbuis}}$$

$$D_o = \frac{5}{4} \times 2.54 \cdot 10^{-2} = 3.18 \cdot 10^{-2} \text{ m.}$$

$$D_o^2 = 1.01 \times 10^{-3} \text{ m}^2$$

Dus per buis een oppervlak beschikbaar: $2.67 \times 1.01 \times 10^{-3} =$

$$2.70 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2.$$

Per sec. stroomt om het oppervlak om 245 pijpen 1.7 Kg lucht, dus per oppervlak om een buis $\frac{1.70}{245}$ Kg/sec.

De z.g. "mass rate" $v \int = G$ is dus $\frac{1.70/245}{2.70 \cdot 10^{-12}} = 2.6 \text{ Kg/m}^2\text{sec.}$

We kunnen ons de ruimte om iedere buis voorstellen als een buis met doorsnede $D_e = 2 r$.

Voor $2 r$ mogen we mathematisch schrijven: $2 r = \frac{4 \pi r^2}{2 \pi r}$

waarin r^2 = doorstroomde oppervlak en $2 \pi r$ = omtrek doorstroomde buizen.

Dus: $D_e = \frac{4 \times \text{doorstr. oppervlak}}{\text{omtrek doorstr. buizen}} = 4 \times \frac{2.67 D_o^2}{D_o} = 3.4 D_o =$

$$3.4 \times 3.18 \cdot 10^{-2} = \underline{0.108 \text{ m.}}$$

Volgens de methode van Clarke reeds bij de berekening van h_1 gebruikt geeft bij $G = 2.6 \text{ Kg/m}^2\text{sec.} = 2.6 \times \frac{1}{4.88} = 0.533 \text{ lb/sec. sq.ft.}$

een $h/c_p = 7.5$ (d = 0.108 m = 4 inch.)

Nu is C_p voor lucht = 0.220

$$\text{Dus } h_o = 7.5 \times 0.220 = 1.65 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^\circ\text{F.}$$

$$= \underline{9.4 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.}}$$

Daar de buizenwanden dun zijn en hun transmissiecoëfficiënt groot en dus weinig weerstand oplevert mogen wij voor U neerschrijven (Stoever p.43)

$$\frac{1}{U} = \frac{1}{h_1} + \frac{1}{h_o} \quad \text{Bij een aangenomen } U = 20 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.}$$

en een gemiddelde gevonden h_1 van $11.1 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^\circ\text{F} = 62.5 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.}$

zou de h_o moeten zijn: $\frac{1}{h_o} = \frac{1}{20} - \frac{10}{625} = \frac{425}{12500}$

$$h_o = \underline{29.5 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.}}$$

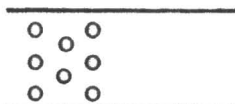
We moeten dus de h_o opvoeren van 9.4 tot $29.5 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.}$

Dit kan getracht worden door het aanbrengen van baffles (Keerplaten). De stroom zal nu loodrecht op de pijpen staan en volgens Stoever p.94 zal voor deze dwarsstroom gelden, indien de buizen "staggered" opgesteld worden dus als volgt:

*bespreken
Stoer in de
shell in stand
niet geschikt!*

*$C_p = 0.241$
Lucht*

*Muut is op de
aangenomen U worden
getracht?*



$$\text{voor } h = h_{st} \times 1.3$$

$$\text{Dus } h = 1.3 \times 29.5 = 38.4 \text{ J/m}^2 \text{ } ^\circ\text{C sec.}$$

$$= 34.0 \text{ Kcal/m}^2 \text{ } ^\circ\text{C h.}$$

Uit de grafiek gegeven in Der Chemie Ingenieur band I blz. 459 kunnen we de gemiddelde snelheid opzoeken die hoort bij de gevonden h . Hiertoe moeten wij eerst nog een drukfactor in rekening brengen daar er een druk heerst van 1.25 atm. Deze drukfactor is 1.1 dus de snelheid wordt opgezocht behorende bij een h van:

$$\frac{34.0}{1.1} = 30.8 \text{ Kcal/m}^2 \text{ } ^\circ\text{C h.}$$

Bij een aantal pijpen van meer dan 10; doorsnede 3 cm. en gemiddelde temperatuur van 200°C vinden wij een snelheid van 2.5 m/sec. Voor de doorsnede van de mantel van de warmte-uitwisselaar vonden wij reeds 1.14 m. Noemen wij de afstand tussen de twee baffles 1 dan zal het oppervlak van de tussenruimte tussen twee baffles zijn:

$$l \times \frac{1}{2} D_{shell} = 0.57 \text{ l m}^2.$$

Onder de gegeven omstandigheden gaat er door deze ruimte een hoeveelheid lucht van

$$1.70 \text{ Kg/sec.} \quad \rho_{\text{lucht}} = 1.18 \text{ Kg/m}^3$$

$$Q = \frac{1.70}{1.18} = 1.44 \text{ m}^3/\text{sec.}$$

$$\bar{V} = \frac{1.44}{0.57 l} = 2.5/l \text{ m/sec.}$$

Nemen wij $l = 1 \text{ m}$ dan komen wij dus inderdaad tot de noodzakelijke snelheid van 2.5 m/sec.

De warmte-uitwisselaar zal dus de volgende afmetingen hebben:

lengte pijpen 3 m

aantal pijpen 245

doorsnede mantel 1.14 m

Terwijl 2 baffles op afstand van 1 m van elkaar geplaatst zijn.

Deze warmte-uitwisselaar uit deze voorlopige berekening gevonden vertoont de volgende gebreken:

- 1) baffles staan te ver van elkaar;
- 2) verhouding lengte/doorsnede is te klein;
- 3) pijpen staan w.s. te ver van elkaar.

U kan dus vergroot worden en dus zal F kleiner kunnen worden.

De definitieve warmte-uitwisselaar zal dus kunnen verbeterd worden door:

- a) minder pijpen te nemen;
- b) baffles dichter op elkaar te plaatsen;
- c) pijpen dichter op elkaar te plaatsen.

Bij eenzelfde U zal de warmte-uitwisselaar dus langer worden. Echter zal door a de h_i stijgen en door b en c zal h_u groter worden. Hierdoor zal U dus stijgen en zullen de pijpen niet veel langer behoeven te worden. Deze lengte zullen wij uiteindelijk aanpassen. -

$$\text{Schatten wij de nieuwe } h_i = 60 \text{ J/m}^2 \text{ } ^\circ\text{C sec. } \frac{1}{U} = \frac{1}{60} + \frac{1}{45} = \frac{7}{180}$$

$$h_u = 45 \text{ J/m}^2 \text{ } ^\circ\text{C sec. } \quad U = \pm 26.$$

De U is dus $\pm 30\%$ gestegen dus we mogen het oppervlak ook 30% kleiner nemen.

II Berekening uiteindelijk project.

aantal pijpen (geschat) : 175

inwendige $\phi_i = 1''$ $D_i = 0.0254 \text{ m.}$

Opstelling pijpen
hexagonaal

uitwendige $\phi_o = 1\frac{1}{4}''$ $D_u = 0.0318 \text{ m.}$

afstand tussen de pijpen $1'' = 2\frac{1}{4}''$ tussen de centers.

De diameter van de mantel wordt:

$$D_{\text{shell}} = 1.15 d \sqrt{n}$$

$$D_{\text{shell}}/d = 1.15 \sqrt{n} = 15.2$$

$$D_{\text{shell}} = 15.2 d = 15.2 \times 2.25 \times 0.0254 = \underline{0.87 \text{ m.}}$$

a.) Berekening filmcoëfficiënt h_i binnen de buizen:

Hoeveelheid gas door buizen: 1.87 Kg/sec. ; $\bar{\rho}_{\text{N.T.P.}} = 1.36 \text{ g/l}$

$$\rho_{\substack{300 \\ 1.2 \text{ atm}}} = 0.78 \text{ Kg/m}^3$$

Passen wij weer de formule uit Mc.Adams (p.168) toe;

$$\frac{h D_i}{k} = 0.023 \left(\frac{D_i v \rho}{\eta} \right)^{0.8} \left(\frac{C_p \eta}{k} \right)^{1/3}$$

Per pijp gaat een hoeveelheid gas:

$$\frac{1.87}{175} = 1.07 \cdot 10^{-2} \text{ Kg/sec.}$$

Oppervlak van de doorsnede van een pijp is:

$$\frac{\pi}{4} D_i^2 = \frac{\pi}{4} 0.0254 = \underline{5.1 \times 10^{-4} \text{ m}^2}$$

De massa snelheid is:

$$G = \frac{1.07 \times 10^{-2}}{5.1 \cdot 10^{-4}} \text{ Kg/sec.} = \underline{21.0 \text{ Kg/m.sec.}} = v$$

$$\left(\frac{C_p \gamma}{k}\right)^{\frac{1}{3}} = 0.94 \text{ (reeds eerder gevonden).}$$

$$R_e = \frac{0.0254 \times 21.0}{28 \cdot 10^{-6}} = 19050 \quad \gamma = 28 \cdot 10^{-6} \text{ Kg/m.sec.}$$

$$\log R_e = 4.280$$

$$0.8 \log R_e = 3.424 = \log 2660$$

$$(R_e)^{0.8} = 2660$$

Ingevuld geeft:

$$\frac{h_i D_i}{k} = 0.023 \times 2660 \times 0.94 = 56.2$$

$$D_i = 0.0254 \text{ m.} \quad k = 0.038 \text{ J/m.sec.}^\circ\text{C}$$

$$h_i = \frac{56.2 \times 0.038}{0.0254} = 84.2 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.} \quad (=14.8 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^\circ\text{F})$$

Volgens de methode in Clarke:

$$\text{mass velocity: } 21.0 \text{ Kg/m}^2\text{sec.} = 21.0 \times \frac{1}{4.88} = 4.30 \text{ lbs/sq.ft.sec.}$$

$$\text{geeft: } \frac{h}{C_p} = 53 \quad C_p = 0.266 \text{ cal/g }^\circ\text{C} = 0.266 \text{ B.T.U./lb}^\circ\text{F.}$$

$$h_i = 53 \cdot 0.266 = 14.1 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^\circ\text{F} = \underline{80 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.}}$$

b.) Berekening h_u :

$$\text{Hoeveelheid lucht: } 1.70 \text{ Kg/sec.} \quad \int_{1.25 \text{ atm.}}^{100^\circ\text{C}} = 1.18 \text{ Kg/m}^3$$

$$D_{\text{shell}} = 0.87 \text{ m.}$$

$$1 \text{''} \quad \text{totale lengte niet door pijpen bezet op grootste}$$

$$\quad \quad \quad 1\frac{1}{4} \text{''} \quad \phi = \frac{1}{2\frac{1}{4}} \cdot 0.87 \text{ m} = \underline{0.386 \text{ m.}}$$

Nemen wij de afstand tussen twee baffles = 50 cm. = 0.5 m.

Oppervlak voor stroming \perp pijpen tussen twee baffles =

$$0.386 \times 0.5 = \underline{0.193 \text{ m}^2.}$$

$$v_{100^\circ\text{C}} = \frac{1.70}{1.18 \cdot 0.193} = \underline{7.5 \text{ m/sec.}}$$

Passen wij voor het vinden van h_u in stromingen \perp op de pijpen de formule van Colburn toe (Mc.Adams p.229):

$$\frac{h_o D_o}{k_f} = 0.33 \left(\frac{C_p \mu_f}{k_f} \right)^{1/3} \left(\frac{D_o G_{\max}}{f} \right)^{0.6} \quad \text{voor } R_e > 2000.$$

Het Pr getal is voor lucht = 0.74 (Mc.Adams p.226).

$$G_{\max} = v \rho = 7.5 \times 1.18 = 8.85 \text{ Kg/m}^2 \text{ sec.}$$

$$D_o = 0.032 \text{ m.}$$

$$\mu_f_{100^\circ} = 21.8 \cdot 10^{-6} \text{ Kg/m}^2 \text{ sec.} \quad (\text{Driebergen blz.112}).$$

$$R_e = \frac{0.032 \cdot 8.85}{21.8} \cdot 10^6 = \underline{13.000}$$

$$\log R_e = 4.114$$

$$0.6 \log 13000 = 2.4684 = \log 294.$$

$$(R_e)^{0.6} = 294.$$

$$\frac{h_o D_o}{k} = 0.33 (0.74)^{1/3} 294 = 88.0$$

$$k_{100^\circ} = 0.0310 \text{ J/m.sec.}^\circ\text{C} \quad (\text{Driebergen blz.120}).$$

$$h_o = 88.0 \times \frac{k}{D_o} = 88.0 \frac{0.0310}{0.032} = \underline{85 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.}}$$

Vanwege de aanwezigheid van baffles moet deze h vermenigvuldigd worden met 0.6 volgens Mc.Adams p.230.

$$\text{Dus: } h_o = 0.6 \times 85 = 51 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.} = \underline{9.0 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^\circ\text{F}}$$

Wij vonden dus voor: $\underline{h_i} = \underline{84.2}$ (Mc.Adams) en $\underline{80}$ (Clarke)
 $\text{J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.} = \underline{82 \pm 2}$

en: $\underline{h_u} = \underline{51}$ (Mc.Adams) in $\text{J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.}$

Berekening overall coefficient:

$$\frac{1}{U} = \frac{1}{h_i} + \frac{1}{h_o} = \frac{1}{82} + \frac{1}{51} = \frac{133}{82 \cdot 51} \quad U = 31 \text{ J/m}^2 \text{ }^\circ\text{C sec.} =$$

$$\underline{5.5 \text{ B.T.U./sq.ft.hr.}^\circ\text{F.}}$$

Dat wij de weerstand van de metalen wand van de buizen mogen verwaarlozen volgt uit: Perry p.873 geeft voor pijpen zoals de gebruikte $\frac{5}{4} \frac{1}{1}$ " van staal een $\sqrt{} = 0.133 \text{ inch} = 3.1 \text{ mm.} = \underline{3.1 \cdot 10^{-3} \text{ m.}}$

λ is voor staal $45 \text{ J/m sec.}^\circ\text{C}$ (Driebergen blz.114).

$$\text{Dus } \frac{\lambda}{\delta} = \frac{4.5}{3.1} \times 10^3 = \pm 15000 \text{ J/m}^2 \text{ sec.}^\circ\text{C.}$$

Dus weerstand verwaarloosbaar.

Oppervlak warmte-uitwisselaar:

$$Q = 312 \cdot 10^3 \text{ J/sec.}$$

$$\Delta T = 212^\circ \text{ C.}$$

$$F = \frac{3.12 \cdot 10^3}{212 \times 31} = \underline{47.5 \text{ m}^2}$$

$$U = 31 \text{ J/m}^2 \text{ } ^\circ\text{C sec.}$$

$$\left. \begin{array}{l} \text{Omtrek buitenkant pijp} = \pi \cdot 0.0318 \\ \text{omtrek binnenkant pijp} = \pi \cdot 0.0254 \end{array} \right\} \text{ gemiddeld } \pi \times 0.0286 = \underline{0.090 \text{ m}}$$

$$\text{Totale pijplengte dus } \frac{47.5}{0.090} = \underline{528 \text{ m.}}$$

$$\text{Aantal pijpen 175 dus lengte 1 pijp: } \frac{528}{175} = \underline{3.0 \text{ m.}}$$

De warmte-uitwisselaar zal dus de volgende afmetingen hebben:

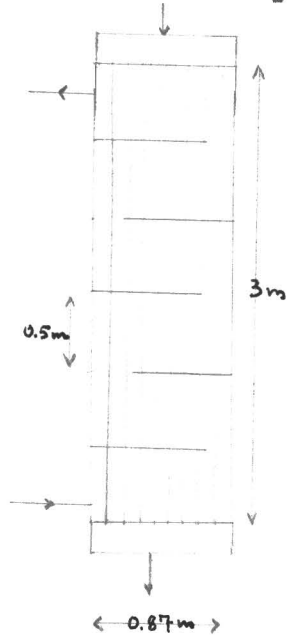
$$D_{\text{shell}} = 0.87 \text{ m.}$$

$$\text{aantal baffles} = 5$$

$$\text{lengte pijpen} = 3 \text{ m.}$$

$$\text{afstand baffles} = 0.50 \text{ m.}$$

$$\text{aantal pijpen: } 175$$



Nu moeten wij nog nagaan of het drukverval in deze uitwisselaar een toelaatbare waarde heeft.

De grafiek in Perry p.805 geeft voor:

$$t = 300^\circ \text{ C}$$

$$M = 30$$

$$D_i = 1''$$

$$\text{weight flow: } \frac{1.87 \text{ Kg/sec}}{175} =$$

$$0.0107 \text{ Kg/sec.} = \frac{0.0107 \times 3600}{0.454} =$$

$$85 \text{ lbs/hr}$$

bij 1 atm. gasdruk een drukverval van $0.5'' \frac{\text{water}}{\text{ft.pijp}}$

Dus $1.2 \times \Delta p = 0.5'' \frac{\text{water}}{\text{ft.pijp}}$.

$$\text{Dus } \Delta p = \frac{0.5}{1.2} \times 10 = 4'' \text{ water voor 10 feet pijp (= 3 m.)}$$

Het drukverval over de pijpen is dus slechts 10 cm. H₂O.

Buiten de buizen is de filmcoëfficiënt lager dus zal de weerstand ook lager zijn.

3 d.

Literatuurlijst:

- 1.) C.I.O.S. XXVIII - 29 Item N^o 22
- 2.) F.I.A.T. 649
- 3.) B.I.O.S. Final 875
- 4.) B.I.O.S. Final 15797.
- 5.) B.I.O.S. Final 935
- 6.) B.I.O.S. Final 666
- 7.) J.A.Lee Chem.& Met.Eng. July 1945 blz 100-101
- 8.) U.S.patent 2.373.008 3 April 1945
- 9.) Brit.patent 583.032 Dec.5 1946
- 10.) U.S.patent 2.453.740 Nov. 16 1948
- 11.) J.R.Callaham Chem.& Met.Eng. Aug. 1946 blz.116-119

Voor de berekening aan de warmte-uitwisselaar werden de volgende boeken gebruikt:

- 12.) H.J.Stoever Applied Heat Transmission (1941)
- 13.) Clarke Manual for Process engineering
- 14.) Der Chemie Ingenieur Band I; Erster Teil (Leipzig 1933)
- 15.) Ir.U.Driebergen Technische Tabellen in praktische eenheden.
- 16.) Prof.Dr.W.J.D.van Dijk Tabellen van herleidingsfactoren enz.
- 17.) Perry Chemical Engineer Handbook
- 18.) Mc.Adams Heat Transmission (1942)

en verder als algemene literatuur:

- 19.) R.Shreve Chemical Process Industries en
- 20.) Groggins Unit Process in Organic Synthesis.
- 21) *Ronnors* *Ind. Eng. Chem.* 32, 1298/1440/
- 22) *J. M. Weiss* *Chem. Eng. News*, 27, 1772/1949/