



PANNON EGYETEM
Mérnöki Kar



Vegyésmérnöki és Anyagtudományok Doktori Iskola

Nagyhatékonyságú eljárás földgázok kén-hidrogén tartalmának csökkentésére

DOKTORI (PH.D.) ÉRTEKEZÉS

DOI:10.18136/PE.2017.660

Készítette: **Molnár Éva**
Okleveles vegyésmérnök

Témavezetők: **Rippelné Dr. Pethő Dóra**
Adjunktus
Dr. Horváth Géza
Egyetemi docens

Pannon Egyetem

Vegyipari Műveleti Intézeti Tanszék

2017

Nagyhatékonyságú eljárás földgázok kénhidrogén tartalmának csökkentésére

Írta:

Molnár Éva

Készült a Pannon Egyetem Vegyészmérnöki és Anyagtudományok
Doktori Iskolájának keretében

Témavezetők: Rippelné Dr. Pethő Dóra, Dr. Horváth Géza

Elfogadásra javaslom (igen / nem)

.....

(aláírás)

Elfogadásra javaslom (igen / nem)

.....

(aláírás)

A jelölt a doktori szigorlaton%-ot ért el,

Az értekezést bírálóként elfogadásra javaslom:

Bíráló neve: igen /nem

.....

(aláírás)

Bíráló neve: igen /nem

.....

(aláírás)

A jelölt az értekezés nyilvános vitáján%-ot ért el.

Veszprém, 2017.....

.....

a Bíráló Bizottság elnöke

A doktori (PhD) oklevél minősítése.....

.....

Az EDHT elnöke

Kivonat

A szerző a dolgozatban egy új megoldást mutat be földgázáramok kén-hidrogén tartalmának szelektív és hatékony kezelésére. A technológia kidolgozásához azt a jelenséget vette alapul, hogy alkáli lúgokban a szén-dioxid és a kén-hidrogén között kompetitív kemisorpció játszódik le, mely folyamatban a kontaktidő csökkentése a kén-hidrogén megkötődésének kedvez. Azért hogy hatékonyan működő rendszert hozzon létre a fázisérintkeztetés intenzifikálását is megoldotta. Ezt egy speciális jet reaktor alkalmazásával érte el, melynek reakciótere a szabad turbulens sugár kialakulásának megfelelő geometriájú volt.

A szerző a dolgozatban megállapította, hogy az általa használt berendezés alkalmas szelektív kén-hidrogén abszorpció megvalósítására. Meghatározta az optimális működési tartományt a következő paraméterek vizsgálati eredményei alapján: gáz-térfogatáram, abszorbens-térfogatáram, abszorbens-koncentráció, gázösszetétel, fúvókaátmérő, nyomás és abszorbens alapanyag. A szerző a megfelelő hatások elérése mellett a lúgfelhasználás és a felületképződés vizsgálatára külön hangsúlyt fektetett. Kísérleteket több elemből álló, sorba kapcsolt jet reaktor segítségével is végzett. Munkája matematikai modell létrehozására, és a méretnövelés problémájának megoldására is kiterjedt.

Abstract

In her dissertation the author presents a novel, selective and efficient method for removal of hydrogen sulphide from natural gas. The base of technology is competitive chemisorptions of hydrogen sulphide and carbon dioxide in alkali solution. Reduction of contact time favours absorption of hydrogen sulphide in this process. Intensification of phase-contact was necessary by using a special jet reactor in order to achieve a high efficiency system. Geometry of the reactor space corresponded to formation of free turbulent jet.

In her dissertation the author concluded that the applied special jet reactor is appropriate for selective removal of hydrogen sulphide. She determined the optimal operating range based on results of examinations of gas and liquid volume flow, concentration of absorbent, composition of gas, diameter of nozzle, pressure and material of absorbent. The author focused not only on efficient operation but also on investigation of chemical-usage and surface-formation. Experiments were conducted by using series connected jet reactors as well. She calculated a mathematical model and presented a suggestion to solve the problem of sizing as well.

Auszug

Die Autorin der Arbeit präsentiert eine neue Lösung für die selektive und effiziente Behandlung des Hydrogensulfidinhalt der Erdgasströme. Sie nahm das Phänomen zum Ausarbeiten der Technik als Grundlage, dass zwischen Hydrogensulfid und Kohlendioxyd in alkalischen Laugen kompetitive Kemisorption erfolgt, und wenn man in diesem Prozess die Kontaktzeit reduziert, ist es für die Adsorption des Hydrogensulfidsvorteilhaft. Um ein wirksam funktionierendes System zu erzeugen, löste sie auch die effiziente Kontiguität der Phasen. Sie verwendete dazu einen speziellen Jet-Reaktor, dessen Reaktionsraum eine identische Geometrie mit der Herausbildung eines freien turbulenten Strahls hatte.

Die Autorin stellte in der Arbeit fest, dass das Gerät, das sie benutzte, ist für die Absorption des selektiven Hydrogensulfid geeignet. Sie definierte den optimalen Funktionalbereich aufgrund der Verifizierung der Ergebnisse der folgenden Parameter: Gas-Volumenstrom, Absorbent-Volumenstrom, Absorbent-Konzentration, Gas-Zusammensetzung, Durchmesser der Luftdüse, Druck und Absorbent-Grundmaterial. Die Autorin betonte neben dem Erreichen des entsprechenden Wirkungsgrades die Prüfung der Benutzung der Laugen und der Oberflächenbildung. Sie experimentierte auch mit Hilfe von reihengeschalteten Jet-Reaktor, der bestand aus mehr Elementen. Ihre Arbeit erweitert auch auf die Bildung mathematischen Musters und auf die Lösung des Problems der Massenerhöhung.

Tartalom

Jelölések jegyzéke.....	I
Rövidítések jegyzéke	VII
Ábrák jegyzéke	VIII
Táblázatok jegyzéke.....	XIII
Bevezetés	1
1. Irodalmi összefoglaló	3
1.1 A földgázok definíciója, csoportosítása és összetétele	3
1.2 A fölgáz képződés és tározódás folyamata	5
1.3 Földgázok felhasználása.....	6
1.4 Földgázok kezelése	7
1.5 Földgázok kén-hidrogén tartalmának kezelési módszerei.....	11
1.5.1 Abszorpció	11
1.5.1.1 Kemisorpció	11
1.5.1.2 Fizikai abszorpció	14
1.5.1.3 Hibrid oldószeres abszorpció.....	15
1.5.2 Adsorpció	15
1.5.3 Scavengerek	16
1.5.4 Membránszeparáció	16
1.5.5 Biológiai konverzióval kombinált alkáli abszorpció.....	16
1.5.6 Közvetlen kénné konvertálás	17
1.6 Savanyú gázok szelektív kén-hidrogénmentesítése alkáli lúgos abszorpcióval	17
1.7 Porlasztás	26
1.7.1 Porlasztás hatékonysága.....	27
1.7.2 Gázfázisba vezetett folyadéksugár bomlása.....	27
1.7.3 Pneumatikus porlasztás	29

1.8	Intenzív fázisérítkeztes megvalósítása jet reaktorban.....	31
1.9	Gáz-folyadék anyagátadás.....	33
1.9.1	Kétfilm-elmélet fizikai abszorpciónál.....	37
1.9.2	Kétfilm-elmélet egy gyors kémiai reakcióval kíserve	39
1.9.2.1	Kétfilm-elmélet egy gyors irreverzibilis pszeudo-elsőrendű reakcióval	39
1.9.2.2	Kétfilm-elmélet egy gyors irreverzibilis másodrendű reakcióval.....	41
1.9.3	Kétfilm-elmélet kettő reakcióval kíserve	43
1.10	Kísérlettervezés és matematikai modell készítése	46
1.10.1	Box-Behnken terv (Box-Behnken Design = BBD).....	47
1.10.2	A válaszfelület matematikai leírása	47
2.	Célkitűzések, felhasznált anyagok, eszközök és módszerek	49
2.1	Félfolyamatos töltetes abszorber.....	49
2.2	Laboratóriumi jet reaktor	50
2.3	Laboratóriumi jet reaktorok sorba kapcsolása	54
2.4	Gáz előkészítés	55
2.5	Abszorbens előkészítés	56
2.6	Gázanalítika	56
2.7	Az eredmények kiértékelése során használt alapvető képletek és fogalmak	57
3.	Eredmények	59
3.1	Kísérleti eredmények félfolyamatos töltetes abszorberben	59
3.2	Kísérleti eredmények jet reaktor alkalmazása esetén.....	60
3.2.1	Az abszorbens térfogatáramának hatása a hatékonyságra és a lúgfajlagosra	61
3.2.2	Különböző koncentrációjú abszorbensek hatása a hatékonyságra és a lúgfajlagosra.....	63

3.2.3	A gáz térfogatáram hatásának vizsgálata a hatékonyságra és a lúgfajlagosra.....	66
3.2.4	A gázösszetétel (H ₂ S/CO ₂) hatásának vizsgálata a hatékonyságra és a lúgfajlagosra.....	70
3.2.5	A fúvókaátmérő hatásának vizsgálata a hatásfokra és a lúgfajlagosra	73
3.2.6	A nyomás hatásának vizsgálata a hatásfokra és a lúgfajlagosra	75
3.2.7	Az abszorbens anyagának hatása a hatásfokra és a lúgfajlagosra.....	79
3.3	A porlasztás minőségét befolyásoló tényezők hatásának vizsgálata	80
3.3.1	Az abszorbens-térfogatáram, -koncentráció és a porlasztási minőség összefüggése.....	82
3.3.2	A gáz-térfogatáram és a porlasztási minőség összefüggése.....	89
3.3.3	A gázösszetétel (H ₂ S/CO ₂) hatásának vizsgálata a porlasztás minőségére...	93
3.3.4	A fúvókaátmérő hatásának vizsgálata a porlasztás minőségére.....	99
3.3.5	A nyomás és a porlasztási minőség összefüggése.....	102
3.4	A komponens-áramsűrűség meghatározása és értékének vizsgálata	103
3.4.1	A komponens-áramsűrűség változása különböző lúgkoncentrációk esetében	104
3.4.2	A komponens-áramsűrűség változása a gáz-térfogatáram változtatásával	105
3.4.3	A komponens-áramsűrűség változása a kezelendő gáz összetételének (H ₂ S/CO ₂ arányának) változásával.....	106
3.5	Matematikai modell készítése kísérlettervezési módszer alapján.....	107
3.6	Kísérleti eredmények jet reaktorok sorba kapcsolása esetén	111
3.7	Fúvóka méretnövelési problémájának megoldása	113
4.	Összefoglalás.....	119
	Tézisek.....	122
	Thesis.....	125
	Publikációs jegyzék	128

Irodalomjegyzék.....	132
Köszönetnyilvánítás	141
Melléletek.....	142
1. számú Melléklet	142
2. számú Melléklet	143
3. számú Melléklet	145

Jelölések jegyzéke

A	az áramlásra merőleges felület [m^2]
A_0	a porlasztandó folyadékmennyiség gömb alakjához tartozó felület [m^2]
$A_{\text{áramlási}}$	áramlási keresztmetszet [m^2]
$A_{\text{eredeti összes/s}}$	az időegység alatt felvett felület a porlasztás előtt [m^2]
$A_{\text{fúvóka}}$	a fúvóka azon keresztmetszete, melyen a gáz kilép [m^2]
$A_{\text{gáz cső}}$	az üzemi gázcső keresztmetszete [m^2]
$A_{\text{körgyűrű}}$	a gáz kilépéséhez szükséges körgyűrű alakú felület nagysága [m^2]
$A_{\text{kúp alapköre}}$	egy fúvóka által lefedett terület a méretnöveléskor [m^2]
$A_{\text{összes lefedett}}$	az összes fúvóka által lefedett terület a méretnöveléskor [m^2]
A_p	a porlasztás során képződő felület [m^2]
$A_{\text{szüks}}$	a porlasztáshoz szükséges keresztmetszet [m^2]
$\bar{A}_{\text{Sauter csepp}}$	Sauter-féle átlagos csepp felülete [m^2]
$\dot{A}_{\text{új összes}}$	az időegység alatt történő felületképződés a porlasztása során [$m^2 \cdot s^{-1}$]
c_A^*	az oldott gáz koncentrációja a határfelületen, mely egyensúlyban van a gáz határfelületi nyomásával [$\text{mol} \cdot m^{-3}$]
c_{Bb}	B reaktáns koncentrációja a folyadékfázis belsejében [$\text{mol} \cdot m^{-3}$]
c_{CO_2}	gázkeverék szén-dioxid tartalma [V/V%]
c_{CO_2}	a szén-dioxid koncentrációja [$\text{g} \cdot \text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}$]
c_{CO_2i}	a szén-dioxid koncentrációja a gáz-folyadék határfelületen [$\text{g} \cdot \text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}$]
$c_{CO_3^{2-}}$	a karbonát-ion koncentrációja [$\text{g} \cdot \text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}$]
$c_{CO_3^{2-}0}$	a karbonát-ion koncentrációja a folyadék főtömegében [$\text{g} \cdot \text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}$]
c_{H_2S}	gázkeverék kén-hidrogén tartalma [ppmv]
c_{H_2S}	a kén-hidrogén koncentrációja [$\text{g} \cdot \text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}$]
c_{H_2Si}	a kén-hidrogén koncentrációja a gáz-folyadék határfelületen [$\text{g} \cdot \text{mol} \cdot \text{cm}^{-3}$]
$c_{H_2S_{be}}$	belépő kén-hidrogén tartalom [ppmv]

$c_{H_2S_{ki}}$	kilépő kén-hidrogén tartalom [ppmv]
$c_{HCO_3^-}$	a hidrogén-karbonát-ion koncentrációja [g·mol·cm ⁻³]
$c_{HCO_3^-i}$	a hidrogén-karbonát-ion koncentrációja a gáz-folyadék határfelületen [g·mol·cm ⁻³]
c_{HS^-}	a hidrogén-szulfid-ion koncentrációja [g·mol·cm ⁻³]
c_{HS^-i}	hidrogén-szulfid-ion koncentrációja a gáz-folyadék határfelületen [g·mol·cm ⁻³]
c_{iI}	„i” komponens koncentrációja a fázishatáron [kmol·m ⁻³ vagy mol·dm ⁻³]
$c_{i\infty}$	„i” komponens koncentrációja a fázis belsejében [kmol·m ⁻³ vagy mol·dm ⁻³]
$\bar{c}_{i\infty}$	„i” komponens átlagkoncentrációja a fázisban [kmol·m ⁻³ vagy mol·dm ⁻³]
$c_{i \min}$	„i” komponens minimális koncentrációja a fázisban [mol·dm ⁻³]
c_{NaOH}	nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja [m/m%]
c_{KOH}	kálium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja [m/m%]
c_{OH^-}	a hidroxid-ion koncentrációja [g·mol·cm ⁻³]
c_{OH^-0}	a hidroxid-ion koncentrációja a folyadék főtömegében [g·mol·cm ⁻³]
d	hengeres cső átmérője [m]
dc_i	koncentráció gradiens [kmol·m ⁻³]
d_e	egyenérték átmérő [m]
$d_{folyadék}=d_f$	a folyadék-bevezető cső átmérője a méretnöveléskor [m]
$d_{kapilláris}$	a lúg betáplálására szolgáló kapilláris átmérője [m]
dn_i	a diffúzióval átvitt komponensek mennyisége [kmol]
dt	eltelt idő [s]
dz és Z	távolság a fázishatár felületétől [m]
D_0	a porlasztandó folyadékmennyiség gömb alakjához tartozó átmérő [m]
D_A	A komponens diffúziós együtthatója [m ² ·s ⁻¹]
D_B	B komponens diffúziós együtthatója [m ² ·s ⁻¹]
$D_{CO_3^{2-}}$	a karbonát-ion effektív diffúziós együtthatója [cm ² ·s ⁻¹]

$D_{CO_3^{2-}II}$	a karbonát-ion effektív diffúziós együtthatója az elsődleges és másodlagos reakciósík között [$cm^2 \cdot s^{-1}$]
$D_{CO_3^{2-}III}$	a karbonát-ion effektív diffúziós együtthatója a másodlagos
D_{CO_2}	a szén-dioxid effektív diffúziós együtthatója [$cm^2 \cdot s^{-1}$] reakciósíkot követő folyadék részben [$cm^2 \cdot s^{-1}$]
D_f	folyadékcső átmérője [m vagy mm]
D_g	gázcső átmérője [m vagy mm]
$D_{gáz cső}$	az üzemi gázcső átmérője [m^2]
$D_{gáz új}$	az üzem körülményekhez tervezett fúvókák átmérője a gázáramhoz [m^2]
D_{H_2S}	a kén-hidrogén effektív diffúziós együtthatója [$cm^2 \cdot s^{-1}$]
$D_{HCO_3^-}$	a hidrogén-karbonát-ion effektív diffúziós együtthatója [$cm^2 \cdot s^{-1}$]
D_{HS^-}	a hidrogén-szulfid-ion effektív diffúziós együtthatója [$cm^2 \cdot s^{-1}$]
D_i	diffúziós együttható [$m^2 \cdot s^{-1}$]
$D_{i\ eff}$	effektív diffúziós együttható [$m^2 \cdot s^{-1}$]
D_{OH^-}	a hidroxid-ion effektív diffúziós együtthatója [$cm^2 \cdot s^{-1}$]
D_p	a porlasztás során keletkezett cseppek átmérője [m]
D_t	turbulens diffúziós együttható [$m^2 \cdot s^{-1}$]
$\bar{D}_{Sauter\ csepp}$	átlagos Sauter-féle (térfogat-felületi) cseppátmérő [μm vagy m]
E	pneumatikus porlasztás esetén az izoterm expanzió energiája [kp·m]
E	az abszorpció sebességére vonatkozó gyorsítási tényező [-]
E_i	a pillanatszerű irreverzibilis reakció növekedési tényezője [-]
$h_{kapilláris\ szakasz/s}$	a folyadékfázis által 1 s alatt felvett hosszérték a kapillárisban [m]
Ha	Hatta-szám [-]
j_A	„A” abszorbeálni kívánt komponens áramsűrűsége fizikai abszorpciónál [$kmol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ vagy $mol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$]
$(j_A)_R$	„A” abszorbeálni kívánt komponens áramsűrűsége egyidejű fizikai és kémiai abszorpciónál [$kmol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ vagy $mol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$]
j_i	„i” komponens áramsűrűsége [$kmol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$]
j_i^t	„i” komponens áramsűrűsége turbulens áramlás esetén [$kmol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$]

\dot{j}_S	az adott körülményektől függő komponens-áramsűrűség a Sauter-cseppátmérő alapján számolva [$\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$]
k_1	reakciósebességi együttható [$1\cdot\text{s}^{-1}$]
k_2	reakciósebességi együttható [$\text{m}^3\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$]
K_a	disszociációs egyensúlyi állandó [-]
$K_{nedvesített}$	nedvesített kerület [m]
M	arányszám a porlasztáshoz felhasznált gáz aránya a porlasztott folyadék tömegéhez képest [-]
n_0	a porlasztás során keletkezett cseppek darabszáma [darab]
\dot{n}_A	„A” abszorbeálni kívánt komponens árama [$\text{kmol}\cdot\text{s}^{-1}$ vagy $\text{kmol}\cdot\text{h}^{-1}$]
$\dot{n}_{\text{H}_2\text{S}}$	a betáplált gáz kén-hidrogéntartalmának komponensárama [$\text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}\cdot\text{h}^{-1}$ vagy $\text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}\cdot\text{s}^{-1}$]
\dot{n}_i	a diffúzióval átvitt komponensek árama [$\text{kmol}\cdot\text{s}^{-1}$ vagy $\text{kmol}\cdot\text{h}^{-1}$]
\dot{n}_{OH^-}	a bevezetett lúg anyagárama [$\text{mol}_{\text{OH}^-}\cdot\text{h}^{-1}$]
$n_{porlasztó}$	a szükséges porlasztósorszám [darab]
$\dot{n}_{\text{Sauter csepp}}$	az 1 s alatt képződő Sauter-féle átlagos méretű cseppek darabszáma [$\text{darab}\cdot\text{s}^{-1}$]
p	nyomás [bar]
p_1	kezdeti nyomás [$\text{kp}\cdot\text{cm}^{-2}$ vagy bar]
p_2	végnyomás [$\text{kp}\cdot\text{cm}^{-2}$ vagy bar]
pK_a	savkitevő [-]
Q_f	folyadék-térfogatáram [$\text{cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$]
Q_g	gáz-térfogatáram [$\text{cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$]
R	egyetemes gázállandó [$\text{kp}\cdot\text{m}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$]
R^2	determinációs együttható [-]
Re	Reynolds-szám [-]
t	az eltelt idő [s]
$t_{gáz kontakt}$	a kontaktidő [s]
T	hőmérséklet [K vagy °C]
v	az áramlás sebessége [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
$v_{gáz lin}$	a gázáram lineáris sebessége [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
$v_{gáz lin min}$	a gázáram minimálisan szükséges lineáris sebessége [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]

v_{rel}	relatív sebességkülönbség a gáz és a folyadékfázis között [$\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$]
V_0 :	a porlasztandó folyadékmennyiség gömb alakjához tartozó térfogat [m^3]
$\dot{V}_{abszorbens}$	abszorbens-térfogatáram [$\text{cm}^3\cdot\text{min}^{-1}$ vagy $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$]
$\dot{V}_{gáz}$	a gáz térfogatárama [$\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}$, $\text{m}^3\cdot\text{h}^{-1}$ vagy $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$]
$\dot{V}_{gáz csőben}$	a gáz térfogatárama az üzemi gázcsőben [$\text{m}^3\cdot\text{h}^{-1}$]
$V_{reaktortér}$	a reaktortest térfogata [m^3 vagy cm^3]
$\bar{V}_{Sauter csepp}$	az átlagos csepp-térfogat a Sauter csepp-átmérő alapján [m^3]
x_1, x_2, \dots, x_N	tervezési változók [-]
X_1	nátrium-hidroxid koncentráció a modellalkotás során [$\text{m}/\text{m}\%$]
X_2	abszorbens-térfogatáram a modellalkotás során [$\text{cm}^3\cdot\text{min}^{-1}$]
X_3	kontaktidő a modellalkotás során [s]
X_4	kén-hidrogén tartalom a modellalkotás során [ppmv]
X_5	szén-dioxid tartalom a modellalkotás során [V/V%]
x	a gáz-folyadék határfelülettől való távolság [cm]
x_1	az elsődleges reakciósík távolsága a gáz-folyadék határfelülettől [cm]
x_2	a másodlagos reakciósík távolsága a gáz-folyadék határfelülettől [cm]
x_{AI}	„A” komponens móltörtje a fázishatáson folyadék oldalról [-]
x_{AL}	„A” komponens folyadékfázisbeli móltörtje [-]
y	célfüggvény [-]
y_{AG}	„A” komponens gázfázisbeli móltörtje [-]
y_{AI}	„A” komponens móltörtje a fázishatáson gáz oldalról [-]
β_0	konstans a modellalkotás során [-]
$\beta_1 \dots \beta_N$	szorzótényezők a modellalkotás során [-]
β_i	i-edik változó szorzótényezője a modellalkotás során [-]
β_i	„i” komponens átadási tényezője [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
β_{ii}	i-edik változó négyzeténélk szorzótényezője a modellalkotás során [-]
β_{ij}	i-edik és j-edik változó szorzatának szorzótényezője a modellalkotás során [-]
β_G	gázoldali komponensátadási tényező [$\text{kmol}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$]

β_L	folyadékoldali komponensátadási tényező [$\text{kmol}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$]
δ_R	a reakció-határréteg vastagsága [m]
δ_L	a diffúziós határréteg vastagsága [m]
η	a közeg dinamikai viszkozitása [poise vagy $\text{Pa}\cdot\text{s}$]
η_f	a folyadékfázis dinamikai viszkozitása [poise]
ν	kinematikai viszkozitás [$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$]
ν_A	A komponens sztöchiometriai együtthatója [-]
ν_B	B komponens sztöchiometriai együtthatója [-]
π	3,14
ρ	a közeg sűrűsége [$\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ vagy $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]
ρ_f	a folyadékfázis sűrűsége [$\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$]
σ_f	a folyadékfázis felületi feszültsége [$\text{dyne}\cdot\text{cm}^{-1}$]

Rövidítések jegyzéke

ppmv:	milliomod térfogatrés (parts per million by volume)
ppmw:	milliomod tömegrés (parts per million by weight)
LPG:	autógáz (Liquefied Petroleum Gas)
LNG:	cseppfolyós földgáz (Liquefied Natural Gas)
NGLs:	földgáz kondenzátumok (Natural Gas Liquids)
PSA:	nyomásváltásos adszorpció (Pressure Swing Adsorption)
DMPEG:	polietilén-glikol-dimetil-éter
MEA:	monoetanol-amin
DEA:	dietanol-amin
MDEA:	metil-dietanol-amin
TEA:	trietanol-amin
DIPA:	diizopropanol-amin
DGA:	diglikol-amin
HPC:	forró kálium-karbonát (Hot Potassium Carbonate)
NMP:	N-metil-2-pirrolidon
DIPA:	di-izopropanol-amin
BBD:	Box-Behnken terv (Box-Behnken Design)
ANOVA:	variáncaanalízis (Analysis of Variance)

Ábrák jegyzéke

1. ábra: Földgázok csoportosítása
2. ábra: Magyarország kőolaj- és földgáz-kitermeléssel foglalkozó helyei
3. ábra: A földgáz és kőolaj képződésének folyamata
4. ábra: Globális energia- és földgázfelhasználás 2005 és 2015 között
5. ábra: A földgázfelhasználás megoszlása ágazatonként
6. ábra: A kén-hidrogén és a szén-dioxid megjelenési formái a pH függvényében
7. ábra: Dow-eljárás
8. ábra: K.T. Hsieh és R. C. Aiken porlasztó tornya
9. ábra: V. Srinivasan és R.C. Aiken kísérleti berendezése
10. ábra: Különböző kutatói munkák hatékonyságának összehasonlítása Vasilis Bontozoglou és Anastasios J. Karabelas munkája alapján
11. ábra: Vágó Árpád és munkatársai által tervezett speciális jet reaktor
12. ábra: Folyadékcsugár bomlása
13. ábra: A belső és külső keverésű pneumatikus folyadékporlasztó sematikus ábrája
14. ábra: Egy folyadékcsapp bomlási folyamata, amelyet nagy sebességű légáram hirtelen ütése idézett elő
15. ábra: Szabad turbulens sugár áramlása
16. ábra: A szabad turbulens sugár tartományai
17. ábra: Gáz-folyadék toronyszerű ellenáramú érintkeztető berendezések
18. ábra: Gáz-folyadék nem toronyszerű egyenáramú érintkeztető berendezések
19. ábra: Turbulens anyagátadás esetén a koncentráció lefutása
20. ábra: „A” komponens koncentrációprofilja anyagátbocsátásnál
21. ábra: Koncentráció-hajtóerők alakulása az anyagátbocsátásnál
22. ábra: Gyors pszeudo-elsőrendű reakcióval kísért abszorpció koncentrációprofilja a kétfilm-elmélet szerint
23. ábra: Gyors másodrendű reakcióval kísért abszorpció koncentrációprofilja a kétfilm-elmélet szerint
24. ábra: Pillanatszerű másodrendű reakcióval kísért abszorpció koncentrációprofilja a kétfilm-elmélet szerint
25. ábra: Szén-dioxid és kén-hidrogén szimultán abszorpciójának koncentráció profilja a nátrium-hidroxid oldat fázisában

26. ábra: Az elvégzendő mérési pontok szemléltetése 3 szint és 3 tervezési változó esetében BBD módszerrel
27. ábra: Félfolyamatos töltetes abszorber kapcsolási rajza
28. ábra: Félfolyamatos töltetes abszorber méretei
29. ábra: Speciális kialakítású laboratóriumi jet reaktor kapcsolási rajza
30. ábra: Speciális kialakítású laboratóriumi jet reaktor fényképe
31. ábra: Scavanger H2S 2.0 szoftver felülete
32. ábra: Gas Vision 5.8.4. program felülete
33. ábra: Porlasztófej keresztmetszeti ábrája
34. ábra: Jet reaktortest
35. ábra: Sorba kapcsolt három-elemű jet reaktor kapcsolási rajza
36. ábra: Sorba kapcsolt három-elemű jet reaktor fényképe
37. ábra: DrägerX-am 7000
38. ábra: Az abszorberből kilépő gáz összetételének változása az idő függvényében $0,37 \text{ dm}^3 \text{ 1m/m\%-os}$ nátrium-hidroxid abszorbens és $150 \text{ dm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gázáram esetében két különböző gázösszetételre
39. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka és lúgfajlagosa az abszorbens térfogatáramának függvényében
40. ábra: A kén-hidrogén és szén-dioxid abszorpció hatásfoka é az abszorbens térfogatáramának függvényében
41. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az abszorbens térfogatáramának függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetén
42. ábra: A lúgfajlagos változása az abszorbens-térfogatáram illetve lúgkoncentráció függvényében
43. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetén
44. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az abszorbens térfogatáramának függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
45. ábra: A lúgfajlagos változása az abszorbens-térfogatáram függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetére
46. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az alkalmazott lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
47. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az alkalmazott lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében

48. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az abszorbens-térfogatáram és a gázösszetétel függvényében
49. ábra: A kén-hidrogén abszorpció lúgfajlagosa az abszorbens-térfogatáram és a gázösszetétel függvényében
50. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az alkalmazott lúgfajlagos függvényében különböző összetételű gázkeverékekre
51. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka a felhasznált gázkeverékek H_2S/CO_2 arányának függvényében, állandó lúgfajlagos mellett
52. ábra: A hatásfok változása az abszorbens-térfogatáram függvényében két különböző méretű fúvókára
53. ábra: A hatásfok változása a lúgfajlagos függvényében két különböző méretű fúvókára
54. ábra: A nyomás hatásfokra gyakorolt hatásának szemléltetése az abszorbens-térfogatáram függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében
55. ábra: A nyomásfüggés hatásfok eredményei a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében
56. ábra: A nyomás hatásfokra gyakorolt hatásának szemléltetése az abszorbens-térfogatáram függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
57. ábra: A nyomás kontaktidőre gyakorolt hatásának ábrázolása 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
58. ábra: A gázédesítés hatásfokának változása különböző anyagi minőségű abszorbensek esetén
59. ábra: A hatásfok változása a lúgfajlagos függvényében különböző anyagi minőségű abszorbensek esetén
60. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása az abszorbens térfogatáramának függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében
61. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében
62. ábra: A csepp- és felületképződés vizsgálata a gáz/folyadék tömegarány függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében
63. ábra: A felületképződés és a hatásfok alakulásának vizsgálata a lúgfajlagos függvényében 3 lúgkoncentráció esetében

64. ábra: A felületképződés és a hatásfok alakulásának vizsgálata a gáz/folyadék tömegarány függvényében 3 lúgkoncentráció esetében
65. ábra: A gáz/folyadék tömegarány és a lúgfajlagos változásának összefüggése 3 lúgkoncentráció esetében
66. ábra: A képződő felület nagyságának alakulása energetikai szempontból 3 különböző lúgkoncentráció esetében
67. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása az abszorbens térfogatáramának függvényében 4 különböző gáz-térfogatáramra
68. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáramra
69. ábra: A csepp- és felületképződés vizsgálata a gáz/folyadék tömegarány függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
70. ábra: A hatásfok és a felületképződés vizsgálata a lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
71. ábra: A hatásfok és a felületképződés vizsgálata a gáz/folyadék tömegarány függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
72. ábra: A felületképződés vizsgálata a szabadentalpia-változás/gáz kinetikus energia arány függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
73. ábra: A gáz/folyadék tömegarány változásának vizsgálata a H_2S/CO_2 arány változásának függvényében 3 különböző abszorbens-térfogatáram esetében
74. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása az abszorbens térfogatáramának függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében
75. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében
76. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása a gáz/folyadék tömegarány függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében
77. ábra: A hatásfok és a képződött felület nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében
78. ábra: A képződő felület nagyságának vizsgálata a szabadentalpia-változás/gáz kinetikus energia arány függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében

79. ábra: A csepp- és felületképződés nagyságának változása az abszorbens-térfogatáram függvényében két különböző fúvókára
80. ábra: A csepp- és felületképződés nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében két különböző fúvókára
81. ábra: A hatásfok és felületképződés nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében két különböző fúvóka esetére
82. ábra: A csepp- és felületképződés nagyságának változása az abszorbens-térfogatáram függvényében 3 különböző nyomás esetére
83. ábra: A csepp- és felületképződés nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 3 különböző nyomás esetére
84. ábra: A hatásfok és felületképződés nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 3 különböző nyomás esetére
85. ábra: A komponens-áramsűrűség változása a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében
86. ábra: A komponens-áramsűrűség változásának vizsgálata a lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében
87. ábra: A komponens-áramsűrűség változása a lúgfajlagos függvényében különböző összetételű (H_2S/CO_2) gázkeverékek esetében
88. ábra: M_1 - M_5 modellegyenletek illeszkedése a mért adatsorokhoz
89. ábra: M_6 modellegyenlet illeszkedése a mért adatsorokhoz
90. ábra: A hatásfok változása egyes gáz- és abszorbens-térfogatáramok esetében háromelemű kaszkádban
91. ábra: A lúgfajlagos változása egyes gáz- és abszorbens-térfogatáramok esetében háromelemű kaszkádban
92. ábra: A belépő gáz H_2S/CO_2 arányának változása háromelemű kaszkád esetében

Táblázatok jegyzéke

1. táblázat: Száraz és nedves földgázok átlagos összetétele
2. táblázat: A kén-hidrogén és a szén-dioxid disszociációs egyensúlyi állandói 25°C-on
3. táblázat: Kísérleti körülmények a teljes mérési tartománya
4. táblázat: Kísérleti körülmények az abszorbens-térfogatáram hatásának bemutatásakor
5. táblázat: Kísérleti körülmények az abszorbens-koncentráció hatásának bemutatásakor
6. táblázat: Kísérleti körülmények a gáz-térfogatáram hatásának bemutatásakor
7. táblázat: A gázösszetétel hatásának vizsgálatához felhasznált gázkeverékek ismertetése
8. táblázat: Kísérleti körülmények a gázösszetétel hatásának bemutatásakor
9. táblázat: Kísérleti körülmények a fúvókaátmérő hatásának bemutatásakor
10. táblázat: A nyomásfüggés vizsgálati intervalluma
11. táblázat: Különböző anyagi minőségű abszorbensek összehasonlító vizsgálatának mérési paraméterei
12. táblázat: A különböző összetételű gázok moláris tömege
13. táblázat: Az elvégzendő mérési pontok BBD alapján
14. táblázat: M_1 - M_5 modellekhez tartozó koefficiensek
15. M_6 modell érvényességi tartománya
16. táblázat: Kaszkád kísérletek mérési tartománya
17. táblázat: A Re-szám meghatározása a méretnövelés során

Bevezetés

Az elmúlt évtizedek során a Föld lakosságának energiaigénye jelentősen megnövekedett, melyet részben földgáz felhasználásával tudunk fedezni. A földgázok a földkéregből származó gyúlékony szén-hidrogén alapú gázelegyek, melyek gyakran tartalmaznak kén-hidrogént is kísérőkomponensként. A kén-tartalom kezelése szükséges a gáz szállítása és felhasználása előtt. A kén-hidrogén az emberi szervezetre mérgező hatású gáz, mely víz jelenlétében korrozív közeget képez, ezáltal a szállítóvezetékek és berendezések gyors elhasználódását idézi elő. Égés során kén-dioxid képződik belőle, ami egy hasonlóképp veszélyes és nemkívánatos vegyület, szintén korrozív, az egészségre ártalmas és a környezetet savas esők előidézése révén is károsító gáz. Azaz a kén-hidrogén kezelése egészségügyi, gazdasági, környezetvédelmi és biztonságtechnikai szempontból egyaránt szükséges.

Gázáramok kén-hidrogén tartalmának kezelésére számos megoldás született. Ezek között fellelhetünk fizikai és kémiai megkötés esetében ab- és adszorpciós műveleteket, membrán szeparációs és biotechnológiai eljárásokat. Azonban a meglévő technológiák között egyre nehezebb olyat találni, mely megfelel a folyton szigorodó környezetvédelmi előírásoknak, kivitelezése gazdaságos és alkalmazása során nem képződnek veszélyes melléktermékek.

A kémiai eljárások esetében a szén-dioxid jelenléte is problémát okoz a hatékonyság és a vegyszerfelhasználás szempontjából. Jó lehetőségnek látszik a szén-dioxid és a kén-hidrogén kompetitív kemisorpciójára alapozott technológia, mellyel az optimális körülmények biztosítása mellett szelektív és hatékony kén-hidrogénmentesítés érhető el. A szelektív kén-hidrogén eltávolítás a felesleges vegyszerfelhasználás csökkentése révén a gazdaságos működéssel áll összefüggésben. A kén-hidrogén és a szén-dioxid reakciósebessége alkáli lúgos oldatban nagyságrendekkel eltér egymástól. Ennek köszönhetően a tartózkodási idő helyes megválasztásával a rendszer szelektivitása optimálható. Mivel a kén-hidrogén a gyorsabb reakcióra képes molekula és ezt kívánjuk szelektíven eltávolítani a gázáramból, ezért a tartózkodási idő minimalizálása kulcsfontosságú (<1 s). Annak érdekében, hogy emellett a tisztítási hatások is megfelelő legyen, az intenzív érintkeztetés is megoldásra vár.

A szükséges feltételek biztosítása hagyományos töltetes abszorberek használatával nem lehetséges, ezért az előkísérletek elvégzését követően egy speciális kialakítású jet reaktort alkalmaztam a vizsgálatokhoz. A rendszerben az intenzív gáz-folyadék

kontaktust és a tartózkodási idő minimalizálását az tette lehetővé, hogy a gáz árama porlasztja be az abszorbens áramát a szabad turbulens sugár kialakulásának megfelelő geometriájú reakciótérbe, amit egy cseppfogó követ a gyors fázis-szeperáció végrehajtásának érdekében.

Jelen dolgozatban bemutatásra kerül az abszorbens térfogatáramának, koncentrációjának és anyagának; a gáz térfogatáramának és összetételének, a nyomásnak, valamint a fúvókaátmérőnek a hatása. Disszertációm további részeiben a porlasztás minőségének és a rendszer működésének összefüggéseire is kitérek. Munkám során matematikai modellt is készítettem.

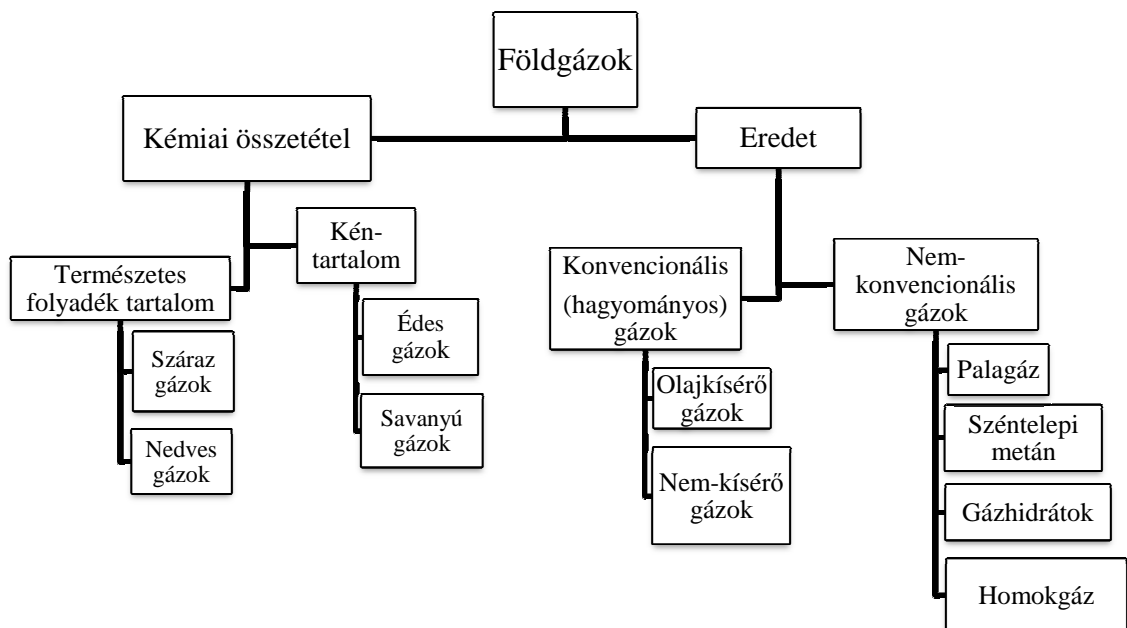
A dolgozat célja a kén-hidrogén és a szén-dioxid alkáli lúgokban lezajló kompetitív kemisorpciójára alapozott eljárás tökéletesítése, gazdaságosabbá és hatékonyabbá tétele.

1. Irodalmi összefoglaló

1.1 A földgázok definíciója, csoportosítása és összetétele

Földgázoknak definíció szerint azokat a földkéregből származó könnyű szénhidrogéneket nevezzük, melyek atmoszférikus nyomáson és hőmérsékleten is gáz halmazállapotúak [1].

A földgázok eredetük szerint két csoportba oszthatóak (1. ábra). Vannak konvencionális (hagyományos) gázok, melyek mély földalatti gáztározókból kerülnek a földfelszínre és gyakran kőolajat tartalmaznak, és léteznek nem-konvencionális gázok, mint például a palagáz, a széntelepi metán gáz, a gázhidrátok vagy a homokgáz. A konvencionális gázokon belül megkülönböztethetünk kísérő- és nem-kísérő gázokat. A kísérő gázok jellemzően nedvesség-tartalommal rendelkező gázok, melyek kőolaj lelőhelyeknél fordulnak elő. Metántartalmuk alacsonyabb, mint a nem-kísérő gázok esetében, azonban kitermelésük során olyan egyéb értékes melléktermékekhez is juthatunk, mint például cseppfolyós földgáz vagy benzin. A kísérő gázok lelőhelyüktől függően többféle formában is előfordulhatnak, elhelyezkedhetnek a kőolajréteg és a záró kőzetréteg között úgynevezett gáz-sapkát alkotva, vagy magában az olajban oldott állapotú gázként. A nem-kísérő gázok általában száraz gázok. Metántartalmuk kifejezetten magas, nyers kőolajat és folyékony szénhidrogéneket nem tartalmaznak [2-7].



1. ábra: Földgázok csoportosítása [2]

Ha kémiai összetétel szerint soroljuk osztályokba a földgázokat, kétféle szempont szerint is csoportosíthatunk.

Attól függően, hogy a szén-hidrogének milyen halmazállapotban és milyen arányban vannak jelen a gázban megkülönböztethetünk száraz és nedves gázokat. A száraz gázok, mint már említettem jellemzően nem, vagy csak nagyon csekély mennyiségben tartalmaznak folyékony összetevőket, elsősorban metánból állnak. A nedves gázok ezzel szemben tartalmazhatnak nagyobb szénatom-számú szénhidrogéneket, mint például etánt, propánt és butánt, sőt cseppfolyós vagy kondenzáltatható szénhidrogént (C_{2+} tartalmuk 10V/V%-nál magasabb) is [2-5]. A nedves illetve száraz földgázokra az 1. táblázatban olvasható a jellemző átlagos összetétel. Azt azonban meg kell jegyezni, hogy a konkrét összetétel lelőhelytől függően mindig változik. A táblázatban leírtak csak a komponensek egymáshoz viszonyított arányáról ad információt számunkra [8].

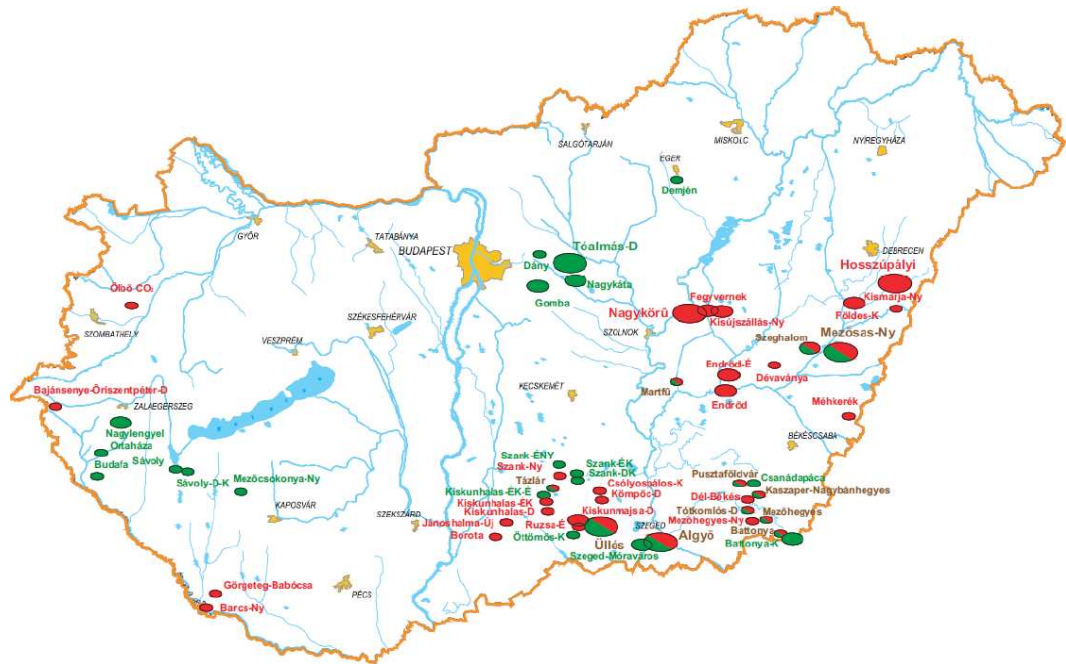
1. táblázat: Száraz és nedves földgázok átlagos összetétele [2-3]

Komponensek	Összetétel (V/V%)	
	Nedves gáz	Száraz gáz
Metán	84,60	96,00
Etán	6,40	2,00
Propán	5,30	0,60
Izobután	1,20	0,18
N-bután	1,40	0,12
Izopentán	0,40	0,14
N-pentán	0,20	0,06
Hexánok	0,40	0,10
Heptánok	0,10	0,80
Szén-dioxid	≤ 5,00	-
Hélium	≤ 0,50	-
Kén-hidrogén	≤ 5,00	-
Nitrogén	≤ 10,00	-
Argon	≤ 0,05	-
Radon, kripton, xenon, egyebek	Nyomokban	-

A kén-tartalom szempontjából édes és savanyú gázokra oszthatjuk a földgázokat. A savanyú gázok kén-hidrogént, merkaptánokat, szulfidokat, diszulfidokat és szén-diszulfidot is tartalmazhatnak, míg az édes gázok kevéssé egyáltalán nem vagy csak nagyon csekély mennyiségben tartalmaznak [3-6; 9]. Ha a kén-hidrogén tartalom a

gázban meghaladja az $5,7 \text{ mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ értéket – ami 4 ppmv-nek (parts per million by volume) felel meg – akkor savanyú gázzal van szó [10].

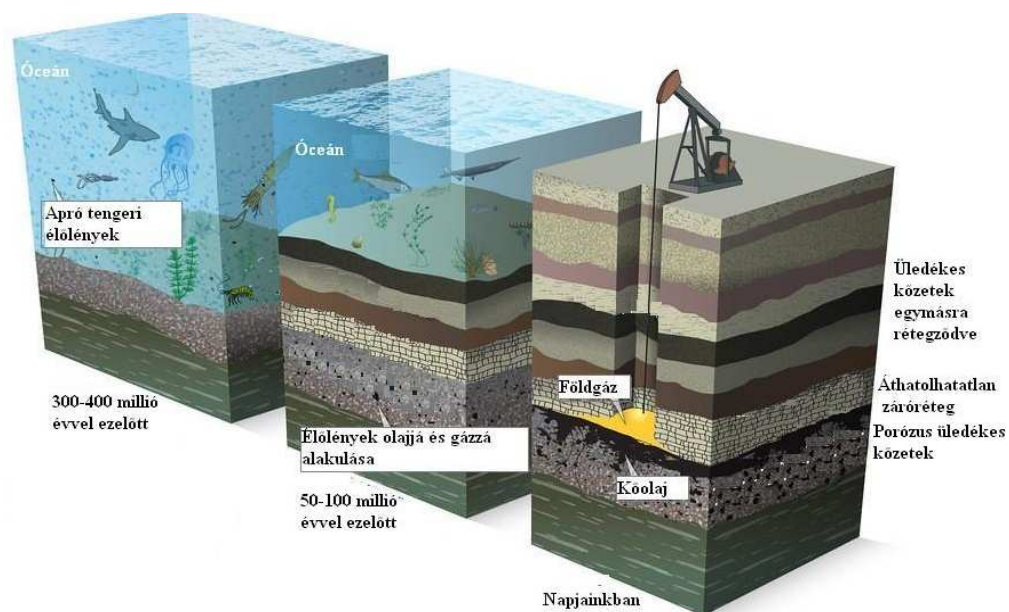
Magyarországon a nyers, kezeletlen földgáz kén-hidrogén tartalma jellemzően 50 és 3000 ppmv között alakul [11]. Hazánk legjelentősebb szénhidrogén lelőhelyei a 2. ábrán láthatóak [12].



2. ábra: Magyarország kőolaj- és földgáz-kitermeléssel foglalkozó helyei (zöld-kőolaj, piros-földgáz) [12]

1.2 A fölgáz képződés és tározódás folyamata

A földgázok a természetes eredetű gáz halmazállapotú szénhidrogének közé tartoznak. (Ide soroljuk még a biológiai fermentáció következtében képződő biogázokat és a vulkanikus tevékenység során keletkező metán tartalmú gázokat is.) Képződésük úgynevezett termogenikus módon zajlik [13-14]. Az elhalt szerves élőlények maradványai leülepednek, anaerob környezetben lebomlanak, egyre nagyobb mélységekbe süllyednek, majd az évmilliók során a nyomás és hőmérséklet viszonyoknak megfelelően kőszéné, földgázzá és/vagy kőolajjává alakulnak át [2-3]. A képződés és tározódás folyamatát a 3. ábra szemlélteti.

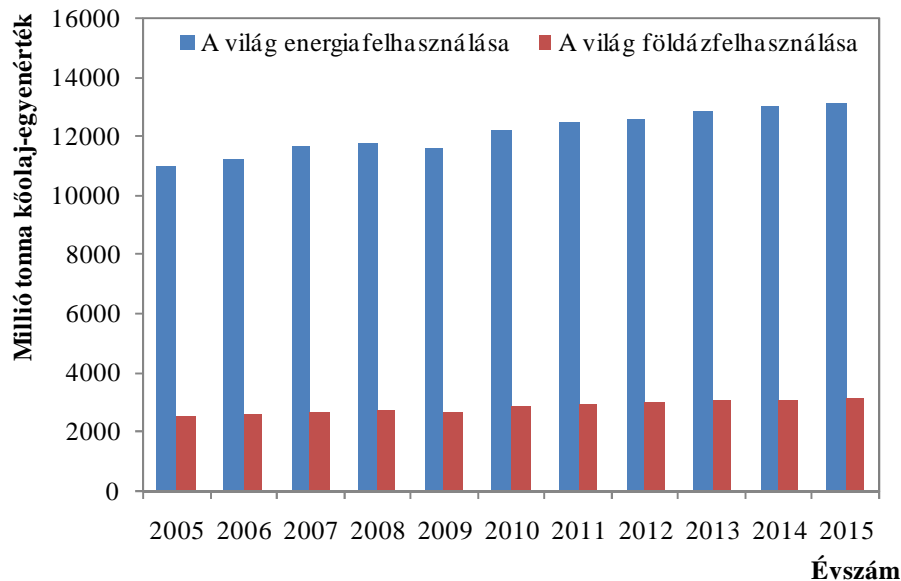


3. ábra: A földgáz és kőolaj képződésének folyamata [15-16]

A természetes módon kialakult gáztározó területeket jellemzően, nagy átteresztőképességgel rendelkező porózus kőzetek alkotják (például homokkő), és áthatalmatlan rétegek övezik. A gáz a földfelszín alól folyamatosan felfelé vándorol az egyes kőzetrétegek repedésein keresztül, míg el nem ér egy olyan tározót, ahonnan már nem képes tovább haladni [3; 17]. A földgáz pedig ezekből a tározókból termelhető ki.

1.3 Földgázok felhasználása

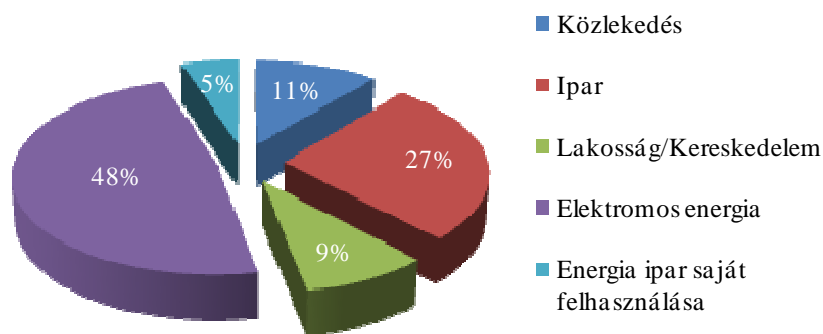
Földünk lakosságának energiaszükséglete az elmúlt évek során fokozatosan növekedett. Ezt az igényt részben földgázok égetésével tudjuk fedezni. A földgáz az egyik legfontosabb fosszilis energiaforrásunk. A 4. ábra az elmúlt 10 év energia- és földgáz-fogyasztását szemlélteti kőolaj-egyenértékben kifejezve.



4. ábra: Globális energia- és földgázfelhasználás 2005 és 2015 között [18]

Ha csak a 2015-ös évet nézzük, akkor a világ összesen 3458,6 milliárd Nm³ (15°C-on és 1013 mbar nyomáson) földgázt használt fel. Ebből 8,9 milliárd Nm³-t tett ki hazánk földgázfogyasztása. Világviszonylatban az összes energiafogyasztás 23,85%-át, Magyarországot tekintve pedig 37,21%-át fedezték fölgáz forrásainkból [18].

A földgáz iránti igény globális szinten az egyes ágazatok között az 5. ábrán látható arányok szerint oszlott meg [19].



5. ábra: A földgázfelhasználás megoszlása ágazatonként [2; 19]

1.4 Földgázok kezelése

Az energetikai célra termelt gázáramok összetétele meghatározza az adott gáz minőségét, fajlagos égéshőjét, egyes komponensei mérgezőek és korrozívak, míg más alkotóelemeiből pedig majd a felhasználás során keletkeznek környezetre káros vegyületek. Vannak olyan összetevői is, melyek szeparálva értékesíthetőek. A nyers földgázt tehát szállítás és felhasználás előtt mindenképp kezelni kell. A tisztítás egészségügyi, környezetvédelmi, biztonságtechnikai, technológiai és gazdasági

szempontból egyaránt szükséges [2; 20-27]. A gáztisztítás elsődleges műveleteit 5 csoportba lehet sorolni:

- Folyadékban való abszorpció
- Szilárd felületen történő adszorpció
- Permeáció membránon keresztül
- Kémiai konverzió egy másik vegyületté
- Kondenzáció [28]

Ezen műveletek alkalmazásával a következő alkotóelemek szeparációja valósul meg a földgáztisztítás során:

- Folyékony szénhidrogének

Nyers földgázból kiindulva a folyékony szénhidrogének elvételével számos értékes termék állítható elő, ezek közé tartozik az LPG (Liquefied Petroleum Gas), amit autógázként is ismerhetünk, az LNG (Liquefied Natural Gas), azaz a cseppfolyós földgáz, vagy akár a benzin is. Ezeket összefoglaló néven földgáz folyadékoknak vagy kondenzátumoknak (NGLs=Natural Gas Liquids) is szokás nevezni. A földgáz folyadékok szeparációja a nyers gáztól történhet hűtéssel, olajos abszorpcióval, adszorpcióval aktív szén, illetve szilikagél tölteten vagy membrán eljárások alkalmazásával [2-3; 5-6].

- Víz

A földgázok víztelenítése több szempontból is fontos. A víztartalom miatt csökken a gáz fűtőértéke, a csővezetékben lekondenzált víz lassítja az áramlást, továbbá ha szén-dioxid és kén-hidrogén is jelen van a gázáramban, korrozív közeg képződik, ami a szállító csővezeték korai elöregedéséért felelős [2; 29-30]. A víztartalom elvétele legegyszerűbben hűtéssel, kondenzáltatással valósítható meg. Azonban léteznek olyan esetek is, hogy a vízgőz tartalom eltávolításához bonyolultabb víztelenítő eljárások alkalmazása szükséges. A víz szeparálható például szerves folyadékokban (dietilén- vagy trietilén-glikolban) vagy vizes sóoldatokban (lítium-klorid) történő abszorpcióval, megköthető szilárd adszorbenseken (szilikagél, molekulaszita, aktivált alumínium-oxid), illetve eltávolítható membránok alkalmazásával is [2; 31-35].

- Higany

A higany jelenléte még nyomokban sem kívánatos a földgáz feldolgozása során. Számos rendszerhibáért, például az alumínium hőcserélők korróziójáért és a

katalizátorok károsításáért is felelős. Az emberi egészségre, és a környezetre egyaránt veszélyes [36-37]. Eltávolítása regeneratív és nem-regeneratív módszerekkel is megvalósítható [6; 30]. A regeneratív módszer során ezüsttartalmú molekulaszita alkalmazásával amalgám képződik [38-39]. A nem regeneratív módszer esetében pedig jellemzően stabil higany-szulfid vegyületeket képződnek impregnált adszorbensek felületén [2; 38; 40-42].

- Nitrogén

A nitrogén-tartalom csökkenti a gáz fűtőértéket. Eltávolítása megoldható membránszeparációval, kriogén desztillációval vagy adszorpciós megoldással (PSA=Pressure Swing Adsorption) [2; 43-46].

- Hélium

A hélium értékes melléktermék a földgáz feldolgozás során, ha nagy mennyiségben kinyerhető a gázáramból [2; 6]. Szeparálásához jellemzően kriogén, PSA és membrán-technológiai megoldások kombinációját alkalmazzák [28].

- Oxigén

Ha kis koncentrációban van jelen oxigén a gázban, akkor eltávolításához nem-regeneratív scavengereket alkalmazhatunk, azonban ha nagy mennyiségben van jelen a rendszerben, katalitikus reakcióval vizet állítanak elő belőle, amit a továbbiakban szintén szeparálni kell [2; 6].

- Arzén-vegyületek

Az esetlegesen előforduló arzén-vegyületek eltávolítása szintén elhanyagolhatatlan lépés a földgáztisztítási eljárás folyamán. Káros hatással van a környezetre, az emberi egészségre és a katalizátor tölteteket (palládium, platina) sem kíméli. Az arzén-vegyületek eltávolítása nem-regeneratív adszorpciós műveletekkel valósítható meg [2; 47-50].

- Radioaktív anyagok

A gáz tartalmazhat úgynevezett természetben előforduló radioaktív anyagokat is. A radon-tartalom például szűrők használatával jól szeparálható [2; 51].

- Savas gázkomponensek

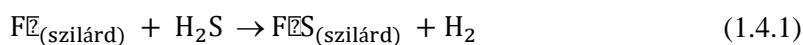
A savas gázok kifejezés a kén-hidrogént és szén-dioxidot tartalmazó gázkeverékeket takarja, melyek víz jelenlétében korrodáló hatású gyenge savakat hoznak létre. Leginkább ab- és adszorpciós megoldások terjedtek el a földgáziparban a kén-

hidrogén és a szén-dioxid megkötésére [2; 9; 31]. A savas gázok kezelését más néven gázédesítési eljárásoknak is nevezik [52].

- Kén-hidrogén és egyéb kén-vegyületek

A kén-hidrogén erősen toxikus gáz. Jelenlétét jellemző záptojás szagának köszönhetően már akár néhány tized ppbv (parts per billion by volume) koncentrációban is képesek vagyunk felismerni [21; 26]. Koncentrációjától és a kitettség idejétől függően fejfájást, émelygést, szorongást, tüdőödémát, idegrendszeri problémákat, szívritmuszavart és halált is okozhat [53].

A kén-hidrogén miatt bekövetkező vaskorrózió az 1.4.1 reakció egyenlettel írható le, melyből látható, hogy vas-szulfid keletkezik a folyamat során [54].



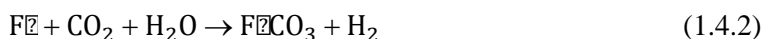
A kén-hidrogén azonban nemcsak toxikussága és korrozív jellege miatt okoz problémákat a gáziparban. A földgáz felhasználás során a kén-vegyületek az oxidáció következtében kén-dioxiddá alakulnak át, ami egy hasonlóképp veszélyes és nem kívánatos vegyület számunkra [11; 55].

Jelenleg Magyarországon az MSZ 1648:2000 számú nemzeti szabvány határozza meg a földgázhálózati betáplálás minőségi követelményeit. A tervezetek szerint a közel jövőben bevezetésre fog kerülni az Egységes Európai Gázszabvány (CEN/TC234). A kéntartalom tekintetében a hazai előírás $100 \text{ mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ (71,4 ppmv) összes illó kéntartalom- és $20 \text{ mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ (14,3 ppmv) kén-hidrogén-tartalom mennyiséget maximalizál, ezzel szemben az új szabvány csupán $20 \text{ mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ (14,3 ppmv) összes illó kéntartalmat irányoz elő. A kénhidrogén (H_2S) és karbonil-szulfid (COS) tartalmat összevonva kezeli, ezek együttesen nem haladhatják meg az $5 \text{ mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ (3,6 ppmv) koncentrációt. A merkaptánok esetében maximum $6 \text{ mg}\cdot\text{Nm}^{-3}$ -es (4,3 ppmv) szint engedhető meg a gázösszetételben [56]. Ez alapján is érthető, hogy a gázáramok kén-hidrogénmentesítése napjaink egy igen jelentős, sürgető feladata.

(A kén-hidrogénmentesítés lehetséges technológiai megoldásairól az 1.5 fejezetben részletesen foglalkozom.)

- Szén-dioxid

A szén-dioxid tartalom következtében lejátszódó vaskorrózió az 1.4.2 reakció egyenlet szerint zajlik [57].



Ha elsősorban a szén-dioxidtartalom csökkentése a cél, akkor a következő megoldások jöhetnek szóba: kemisorpció amin, karbonát vagy nátrium-hidroxid alapú abszorbensekkel; folyadék fázisú fizikai megkötés Selexol eljárás (polietilén-glikol-dimetil-éter (DMPEG) abszorbensben), Rectisol eljárás (-40 °C-ra hűtött metanolban) vagy ionos folyadékok alkalmazásával; adszorpció aktív szén, zeolit, szilikát, fém-oxid vagy karbonát tölteteken; illetve membrán szeparáció [2].

1.5 Földgázok kén-hidrogén tartalmának kezelési módszerei

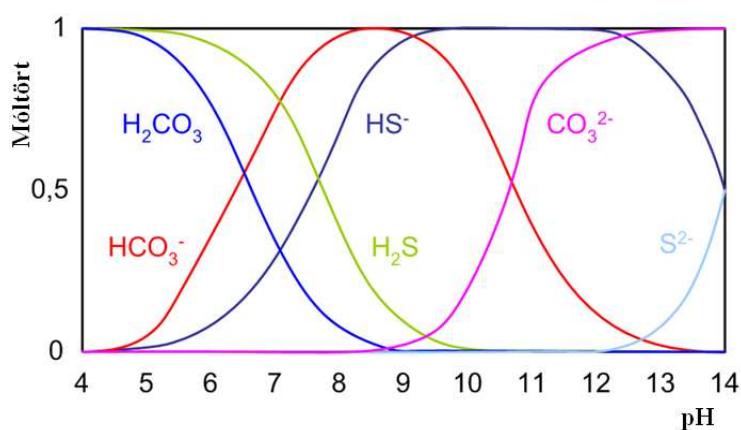
Napjainkig számos kén-hidrogénmentesítő megoldás született. A legtöbb kidolgozott eljárás azonban nem képes a kén-hidrogén tartalmat szelektíven csökkenteni, általában a szén-dioxidtartalommal együtt történik az elválasztás. A megfelelő módszer kiválasztásához figyelembe kell venni a tisztítandó gáz térfogatáramát, annak összetételét és, azt hogy mi az elérni kívánt cél [2; 28; 58]. Savas gázok kezelésére a továbbiakban olvasható módszerek alkalmazhatóak.

1.5.1 Abszorpció

Az abszorpció fizikai oldódás, és/vagy kémiai reakció lejátszódása révén valósulhat meg. Ha fizikai beoldódás történik, akkor a nyomás és hőmérséklet viszonyok hatása jelentős.

1.5.1.1 *Kemisorpció*

Kemisorpció esetén a nemkívánatos komponensek megkötése kémiai reakciók útján történik. Vizes közegben a kén-hidrogén és a szén-dioxid is kétértékű gyenge savként viselkedik, ennek köszönhetően a környezeti pH értékétől függően különböző formákban lehetnek jelen az adott fázisban (6. ábra).



6. ábra: A kén-hidrogén és a szén-dioxid megjelenési formái a pH függvényében [25; 59]

Az abszorpciós eljárásoknál tehát kiemelkedően fontos, hogy a megfelelő kémhatású közegben dolgozzunk, mert a pH-érték jelentősen befolyásolja az abszorpció hatékonyságát [28].

Kemiszorpciós folyamathoz számos abszorbens alkalmazható:

▪ Alkanol-aminos oldatok

Földgázáramok savas komponenseinek eltávolítására elterjedten alkalmaznak alkanol-aminos oldatokat. Az alkanol-aminok hidroxil-csoportot és aminocsoportot is tartalmaznak. A hidroxil-csoport csökkenti a gőznyomást és növeli az oldhatóságot, míg az amino-csoport a megfelelően magas pH-t biztosítja az abszorpcióhoz. A leggyakrabban alkalmazott alkanol-aminok között szerepel például a monoetanol-amin (MEA), a dietanol-amin (DEA), a metil-dietanol-amin (MDEA), a trietanol-amin (TEA), a diizopropanol-amin (DIPA) és a diglikol-amin (DGA). Ha a gázmosást vizes primer aminos abszorbenssel végezzük, akkor a reakciók az 1.5.1.1.1-1.5.1.1.5 egyenletek szerint zajlanak.

1. Víz ionizáció



2. Oldott kén-hidrogén ionizáció



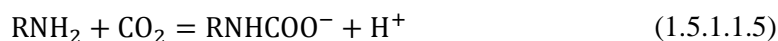
3. Oldott szén-dioxid hidrolízise és ionizációja



4. Alkanol-amin protonálódása



5. Karbamát kialakulása



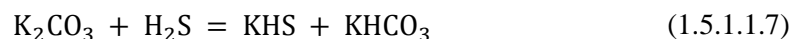
Ha szelektív kén-hidrogénmentesítés a cél, akkor sztérikusan gátolt aminok (DIPA, MDEA) alkalmazása ajánlott, ugyanis ezek gátolják a stabil karbamát képződést, így csökkentik a szén-dioxid megkötődésének a sebességét, ami a kén-hidrogén abszorpciónak kedvez [2; 22; 28; 60]. Kifejezetten szelektív kén-hidrogénmentesítésre kidolgozott, sztérikusan gátolt aminokat felhasználó megoldásként említhető például az Exxon által szabadalmaztatott Flexorb SE nevű eljárás [52; 61].

Az aminos abszorpciós eljárások alkalmazása azonban számos komoly hátránnyal jár. Az aminos abszorbensek regenerálásához jellemzően nagy hőenergiaigény társul. Sok esetben korrózió-gátló anyagok adagolására is szükség

van, mivel egyes aminos oldatok önmagukban is korrozívak, ugyanakkor a folyamat közben is képződhetnek veszélyes és korrozív melléktermékek. Habképződés is előfordulhat a kondenzált szénhidrogének, a korrózió-gátló adalékok szuszpendált szilárd részecskéinek, és az amin degradáció termékeinek köszönhetően [2; 28; 52].

▪ Kálium-karbonát oldat

Enyhén lúgos kálium-karbonát oldattal a savas gázkomponensek szintje csökkenthető a gázáramban [2; 5; 31]. Az eljárást - melyet más néven HPC (Hot Potassium Carbonate) folyamatnak is neveznek - eredetileg szén-dioxid eltávolítására fejlesztették ki, de kén-hidrogén is megköthető vele. A folyamat úgynevezett „forrópontja” a 110°C-ot is eléri, innen ered elnevezéséből a „hot” jelző. Az abszorpció során a következő reverzibilis reakciók mennek végbe (1.5.1.1.6 és 1.5.1.1.7 egyenlet).



Az alaposabb és gyorsabb gáztisztítás elérésének érdekében általában nem csak tiszta kálium-karbonát oldatokat alkalmaznak, hanem kis mennyiségben amin alapú aktivátorokat (DEA) is adagolnak a rendszerhez, ezáltal elősegítve a szén-dioxid gyors átalakulását karbamát-ionná. Ezt nevezzük Benfield eljárásnak. Ez a módszer szelektív kén-hidrogénmentesítés megvalósítására nem alkalmas. A kálium-biszulfid (KHS) regenerálása nehézkesen kivitelezhető. További hátrányként mondható el, hogy a kálium-karbonát oldat igen korrozív, ami a berendezések gyakori meghibásodását idézi elő [28; 30; 52; 62].

▪ Alkáli lúgos oldat

Alkáli-hidroxid oldatok alkalmazásával a földgáz szén-dioxid, kén-hidrogén, szén-diszulfid és merkaptán tartalma is abszorbeálható, azonban szelektív kén-hidrogén szeparáció is elérhető általa. A Dow Chemical Company kifejlesztett egy eljárást, mely nátrium-hidroxidos vizes oldatokat használ abszorbensként. A művelet alapja, hogy a kontaktidő csökkentése révén a szén-dioxid abszorpciója háttérbe szorítható a kén-hidrogén megkötődéshez képest [2; 28]. (A kén-hidrogénmentesítő eljárásokról az 1.6. fejezetben még részletesen lesz szó.)

1.5.1.2 Fizikai abszorpció

A savas gázok kémia abszorpciója során keletkezett oldószer regenerálása sokszor tetemesebb összeg, mint maga a tisztítási folyamat, egyes esetekben pedig a veszélyes melléktermékek képződése is elkerülhetetlen. A fejlesztések emiatt azon nem reaktív, szerves oldószerek felé fordultak, melyek fizikailag oldják a savas gázokat, és regenerálásuk egyszerű nyomáscsökkentéssel megvalósítható. A jó fizikai abszorbens jellemzői közé tartozik, hogy olcsó, nem korrozív, jó oldhatósági tulajdonságokkal rendelkezik, gőznyomása környezeti hőmérsékleten alacsony, és hogy a szelektív tisztítás is megoldható alkalmazásával. A fizikai abszorpcióra alapuló eljárások közé a következők tartoznak:

- Rectisol[®]

A Lurgi Oel Gas Chemie GmbH és a Linde AG által fejlesztett módszer, ahol metanol az alkalmazott oldószer.

- Selexsol[®]

Az oldószer DMPEG. Az eljárást az Allied Chemical Corporation fejlesztette.

- Purisol[®]

Ezt a megoldási módszert a Lurgi Oel Gas Chemie fejlesztette és szabadalmaztatta. Az abszorbens ebben az esetben N-metil-2-pirrolidon (NMP), ami viszonylag nagy szelektivitást mutat kén-hidrogénre nézve.

- Fluor Solvent[®]

Propilén-karbonát felhasználásával történik a gáztisztítás, szabadalmaztatása Fluor Dániel és a Fluor Corporation nevéhez fűződik. Magas szén-dioxid koncentrációk esetében szokták alkalmazni [2; 28; 63-64].

- Gázmosás vízben

Vízben történő fizikai abszorpcióval a kén-hidrogén és a szén-dioxid egyaránt megköthető, azonban magas nyomás (10-30 bar) és rendkívül nagy vízigény társul a hatékony működéshez. A földgáziparban a vizes gázmosás technológiája nem sorolható az elterjedt és jól bevált eljárások közé [28; 65].

A fizikai abszorbensek közül nagyon kevés alkalmas szelektív kén-hidrogénmentesítés kivitelezésére. Ha mindenképp fizikai abszorbenssel akarjuk megvalósítani a gáztisztítást, akkor a Selexol (DMPEG) vagy a Purisol (NMP) elnevezésű eljárások közül célszerű választanunk.

A fizikai abszorbensek legnagyobb hátránya, hogy nagyon érzékenyek a kezelendő gáz nyomására és az abban jelen lévő savas gázok parciális nyomására [2; 28; 63-64].

1.5.1.3 Hibrid oldószeres adszorpció

Egyes fizikai és kémiai oldószerek keverékével is kén-hidrogén megkötésére hatékony adszorbenseket kapunk. A Sulfinol elnevezésű eljárás ennek kitűnő példája.

▪ Sulfinol®

A Sulfinol összetételét tekintve szulfolán fizikai oldószerből, vízből, és diizopropanol-amin (DIPA) vagy metil-dietanol-amin (MDEA) kémiai oldószerekből áll. Az eljárás által a kén-hidrogénnel kívül szén-dioxid, széndiszulfid, merkaptánok, karbonil-szulfid és polyszulfidok is egyaránt megköthetők a földgázból. Az eljárás a Shell Global Solutions névéhez kötődik [2; 28; 63].

1.5.2 Adszorpció

Az adszorpció a gáztisztítás egyik legelterjedtebb művelete. Számos szorbens alkalmazható kén-hidrogén, szén-dioxid és egyéb szennyező kén-vegyületek megkötésére, így például aktív szén, zeolit, szilícium, alumínium, cink- és réz-oxidok [2; 31; 66].

A kén-hidrogén fémionok felé mutatott affinitása miatt gyakran alkalmaznak inert, szilárd hordozó felületére (alumínium, zeolit, aktív szén, agyag, szilícium-oxid) impregnált fém kationokat (vas, réz, cink, kobalt, magnézium, mangán). A hordozó anyaggal szemben támasztott követelmények között szerepel az inertség, a nagy fajlagos felület, a nagy pórusméret és a jó mechanikai ellenálló képesség. Meg kell jegyezni azonban, hogy az impregnált tölteteken történő adszorpció nem tartozik a regeneratív módszerek közé. Ha regenerálható adszorbenssel kívánunk dolgozni, akkor a fizikai megkötődés elvén működő töltetek közül kell választanunk. Azonban ez utóbbi adszorbensek is csak korlátozott ciklusszámig alkalmazhatóak, mivel az adszorbensek porozitása és szerkezete a használat során megváltozik [2; 67].

A telítődött szorbens regenerálására általában hőmérsékletemelést vagy nyomáscsökkentést alkalmaznak. Széles körben ismert eljárás a nyomásváltoztatásos adszorpció (PSA). A PSA kétlépcsős művelet. Az első lépésben nagy nyomáson végzik az adszorpciót, majd nyomáscsökkentéssel deszorbeáltatnak. A PSA nagy előnye, hogy nincs szükség hő befektetésére a regeneráláshoz [66].

Az adszorpciók eljárások egyik legnagyobb problémáját a már nem regenerálható, elhasználódott töltetek elhelyezése okozza [24].

1.5.3 Scavengerek

Scavengerekkel a kén-vegyületek közül nemcsak kén-hidrogént, de merkaptánokat is képesek vagyunk szeparálni. Az eljárás alapja, hogy a scavenger és az eltávolítandó molekula – jelen esetben a kén-hidrogén – között egy irreverzibilis, teljes kémiai reakció játszódik le. A legtöbb kén-hidrogén scavenger felszíni megkötődés vagy ionos csapadékképzés által képes a gáztisztításra. A scavenger és a gáz áramát folyamatos érintkeztetésbe kell tartani egymással a művelet alatt, hogy a szükséges reakciók lejátszódjanak. A turbulens áram ideális a részecskék folyamatos, véletlenszerű ütközésének fenntartásához. A hatékony gáztisztítás megvalósításához a scavengereknek megfelelő nyomás, hőmérséklet és pH-érték biztosítása szükséges.

A kén-hidrogén scavengeres eljárások a földgáz kis mennyiségű kénvegyületeinek eltávolítására szolgálnak. Gáz áramok kén-hidrogénmentesítésére a leggyakrabban vas-oxid, cink-oxid és cink-karbonát alapú úgynevezett „iszapokat” alkalmaznak. [2; 28; 68]. A különböző scavengerek összetétele azonban igen változatos, tartalmazhatnak például aminokat, triazinokat, és aldehideket is [68-69]. A kereskedelmi forgalomban kapható kén-hidrogén scavengerek gyártói között szerepel többek között a GE Water and Process Technologies [70], a Nalco Champion [71], és a Weatherford [72] is.

1.5.4 Membránszeparáció

Földgázáramok szeparációs műveleteinél a membránok használata a szén-dioxid eltávolítására korlátozódik, kén-hidrogén eltávolítására sajnos nem bizonyultak hatékonyak. A membránok fő hátrányai esetünkben, hogy mechanikailag nem elég ellenállóak, mivel a magas nyomás és/vagy hőmérséklet viszonyok következtében a tisztítási folyamat közben képlékennyé válnak, éppen ezért a tisztítandó gázáram előkezelése szükséges. A membrán rendszerek alkalmazhatóságának nagy előnye lenne, hogy kis helyigénnyel, alacsony karbantartási- és energiaigénnyel rendelkeznek [2; 30].

1.5.5 Biológiai konverzióval kombinált alkáli abszorpció

Létezik egy Shell-Paques/THIOPAQ nevű szabadalmaztatott eljárás, mely részben mikroorganizmusok használatával oldja meg a kén-hidrogén kezelés problémáját. Ez lényegében egy kétlépcsős kombinált technológiai megoldás. Első lépésben enyhe lúgos alkáli oldatban abszorpció zajlik, majd ezt követően a természetben előforduló mikroorganizmusok segítségével a megkötött szulfidok elemi kénné oxidálódnak [2; 73].

Hatékony és gazdaságos tisztán biotechnológiai megoldást földgázáramok kezelésére jelenleg nem ismerünk, azonban biogázok – mint szintén savanyú gázok – kén-hidrogénmentesítésére ez egy intenzíven kutatott terület napjainkban. A biológiai eljárások alkalmazhatóságának fő problémája a mikroorganizmusok környezeti hatásokra való érzékenységéből fakad [74].

1.5.6 Közvetlen kéné konvertálás

A folyamat során lényegében a kén-hidrogén kémiai reakciója zajlik oxigénnel, illetve kén-dioxiddal, amiből elemi kén képződik. A reakció lejátszódásához speciális katalizátor és oldószer szükséges. Az e célra kidolgozott eljárások között említendő például a Claus, a Stretford és a LOCAT elnevezésű folyamat. Ezek jellemzően nem önálló gáztisztítási megoldásként használatosak, a regeneratív abszorbensekben (aminok és fizikai abszorbensek) megkötött kén-hidrogén tartalom átalakítására szolgálnak [28; 63].

A felsoroltak közül a gáziparban a Claus-féle eljárás a legelterjedtebben alkalmazott kéné konvertálási módszer, a technológiában titánium-, illetve alumínium-dioxid alapú katalizátorokat alkalmaznak [28].

Az elemi kéné konvertálás hátránya, hogy a folyamat költséges és időigényes, továbbá a képződött kén elhelyezéséről is gondoskodni kell [75].

Összességében az mondható el, hogy ha szelektív kén-hidrogénmentesítés megvalósítása a cél szén-dioxidot is tartalmazó földgázáramok esetében, akkor a sztérikusan gátolt aminos és az alkáli lúgos abszorpciós eljárások közül választhatunk. Meg kell jegyezni, hogy egyik esetben sem tökéletes a rendszer szelektivitása, kis mennyiségű szén-dioxid megkötődéssel mindkét abszorbens esetében számolni kell [28; 52].

Az aminos abszorpciós eljárások már ismertett hátrányai miatt az alkáli lúgos eljárás tökéletesítését és gazdaságosabbá tételét tűztem ki célul magam elé.

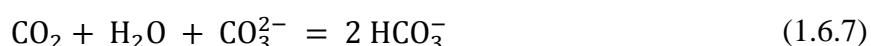
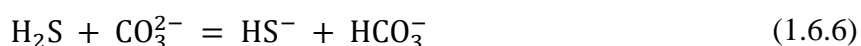
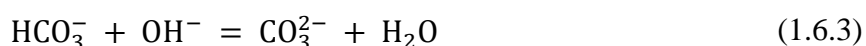
1.6 Savanyú gázok szelektív kén-hidrogénmentesítése alkáli lúgos abszorpcióval

Mint azt az 1.4.1. fejezetben már említettem alkáli-hidroxid lúgoldatokban szén-dioxid, kén-hidrogén, szén-diszulfid és merkaptán egyaránt megköthető [2]. Ha az egyes komponensek reakciósebességét és fizikai-kémiai tulajdonságait is figyelembe vesszük, akkor kiderül, hogy a megfelelő körülmények biztosításával szelektív kén-

hidrogénmentesítésre is lehetőséget ad ez a módszer. Ha szelektív kén-hidrogén eltávolítás a cél alkáli lúgos oldatok használatával szén-dioxidot is tartalmazó gázáramok esetében, akkor alkáli lúgos kompetitív kemiszorpcióra alapozott eljárásokról beszélhetünk [25; 28; 59; 76-78]. Mivel kutatói munkám lényegében ennek a szén-dioxid és kén-hidrogén között lezajló kompetitív kemiszorpció folyamatnak a tanulmányozására irányult, ezért ebben a fejezetben kifejezetten csak ezzel a témakörrel foglalkozom.

Megjegyzem, a szelektivitás a gazdaságos működés és a felesleges vegyszerfelhasználás elkerülése miatt fontos. A savanyú gázáramok szén-dioxid tartalmát nem minden esetben szükséges kezelni, de ha mégis igény van rá, akkor alkalmazhatunk egyéb kifizetődőbb vagy egyszerűbben kivitelezhető kiegészítő megoldásokat is [78-80].

Az abszorpció folyamat során a kén-hidrogén és a szén-dioxid először fizikailag megkötődik a gáz-folyadék határfelületen, majd a gázkomponensek kémiai is reakcióba lépnek az adott alkáli-hidroxid – jellemzően nátrium-hidroxid – oldattal. Az abszorpció során a következő reakciókat kell figyelembe venni (1.6.1-1.6.8 egyenlet):



Az abszorpció folyamat reakciói jelentősen függenek az oldat pH értékétől és ennek köszönhetően nagyban befolyásolják az abszorbens hasznosulását. Ha a pH érték 13 feletti, akkor 1.6.1, 1.6.2 és 1.6.3 egyenletek szerinti reakciók dominálnak. Ha a pH-t 12-re csökkentjük, akkor 1.6.6 és 1.6.7 reakciók kerülnek inkább előtérbe. Számunkra az 1.6.1 és 1.6.6 reakciók a legkedvezőbbek, mert ilyenkor hasznosul maximálisan az abszorbens, és a kén-hidrogén megkötődés szelektivitása is javul. Az 1.6.2 és 1.6.7 reakciók esetünkben elkerülendők, ugyanis az alkáli-hidroxid oldat a szén-dioxid megkötésére fordítódik. Az 1.6.4 és 1.6.5 reakciók a hidrogén-ion transzportját, a 1.6.8

számú reakció pedig a hidrogén-szulfid szulfiddá alakulását szemlélteti számunkra [28; 77; 81-82].

Ha figyelembe vesszük az 1.5.1.1. fejezet 6. ábráját - melyen a kén-hidrogén és a szén-dioxid megjelenési formái láthatók a pH függvényében -, illetve a fentebb leírtakat, akkor azt mondhatjuk, hogy 10-es pH érték alatt nem várhatunk nagy hatékonyságot a rendszertől, 12-es pH érték felett viszont jelentős vegyszerigény növekedésre kell számítani, ugyanis a betáplált lúg nagy része a szén-dioxid megkötésére fordítódik [25; 28]. Azaz a feladat hatékony és gazdaságos megoldásához célszerű 10-12 pH tartományba tartozó kémhatású oldatokat alkalmazni.

Az esetünkben kitüntetett helyzetben lévő reakciók sebességi állandói a következőképpen alakulnak. Ha 20 °C-on végtelen híg oldatot vizsgálunk, akkor az 1.6.1 és 1.6.6 reakciók sebességére jellemző reakciósebességi állandó $10^{10} \text{ l}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$, míg a 1.6.2 és 1.6.7 reakciók esetében ugyanez az érték $5,9\cdot 10^3 \text{ l}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$ -nak adódik. Tehát látható, hogy, a nátrium-hidroxid reakciója a kén-hidrogénnel nagyságrendekkel gyorsabban zajlik le, mint a szén-dioxid esetében. A folyamat e jellemző tulajdonságát tudjuk kihasználni a szelektív kén-hidrogén megkötés megvalósításához, ugyanis, ha a gáz és az alkáli-hidroxid oldat érintkeztetési idejét csökkentjük, a kén-hidrogén abszorpciónak kedvezünk a szén-dioxid megkötődés háttérbe szorítása mellett [77; 83-84].

Ha a folyamatot az egyensúlyi adatok szempontjából is megvizsgáljuk, szintén előtérbe kerül a kontaktidő kulcsszerepe.

2. táblázat: A kén-hidrogén és a szén-dioxid disszociációs egyensúlyi állandói 25°C-on [85]

Savforma	Bázisforma	Disszociációs egyensúlyi állandó (K_a)	Savkitevő (pK_a)
H ₂ S	HS ⁻	$9,33\cdot 10^{-8}$	7,03
HS ⁻	S ²⁻	$3,98\cdot 10^{-14}$	13,4
H ₂ CO ₃	HCO ₃ ⁻	$4,37\cdot 10^{-7}$	6,36
HCO ₃ ⁻	CO ₃ ²⁻	$4,68\cdot 10^{-11}$	10,33

A 2. táblázat disszociációs állandói alapján látható, hogy a szén-dioxid erősebb sav, mint a kén-hidrogén, azaz ha a tartózkodási időt nem minimalizáljuk, akkor a nátrium-hidroxid a szén-dioxiddal fog elreagálni és nem pedig a kén-hidrogénnel [28]. (Ezt a hatást elő-kísérleteim eredményei bizonyítják, mely az 3.1 fejezetben megtekinthető.)

Ha további különbségeket keresünk a két versengő vegyület között, akkor megfigyelhetjük, hogy az oldhatósági tulajdonságaik is jelentősen eltérnek egymástól. 1 atm nyomáson és 25 °C hőmérsékleten tiszta vízben a kén-hidrogén ($10,30 \cdot 10^{-5} \text{ mol} \cdot \text{cm}^{-3}$) körülbelül 3-szor olyan jól oldódik, mint a szén-dioxid ($3,39 \cdot 10^{-5} \text{ mol} \cdot \text{cm}^{-3}$) [78; 76]. Ha nátrium-hidroxid oldatban vizsgáljuk az szén-dioxid és a kén-hidrogén oldhatóságát, az mondható el, hogy az abszorbens koncentrációjának növelésével és a hőmérséklet emelésével csökken az oldhatóság [87]. A szén-dioxid reaktivitása azonban növekszik a hőmérséklettel, tehát a légfogyasztás is magasabb lesz [25]. Itt megjegyzendő az is, hogy a kén-hidrogén és a nátrium-hidroxid között lejárló reakció erősen exoterm (1.5.1 reakció – $14 \text{ kcal} \cdot \text{gmol}^{-1} = 58,6 \text{ kJ} \cdot \text{gmol}^{-1}$), tehát ezért is érdemes alacsonyabb hőmérsékleten (szobahőmérsékleten) végezni a műveletet. Magas kén-hidrogén koncentrációjú gázok esetén hűtésre is szükség lehet [59; 80]. Ha a hőmérséklet 20 °C alá csökken, miközben egy koncentrált lúgoldattal magas pH értéken dolgozunk, a sókristályok kiválása problémát okozhat [59]. A képződött vegyületek közül a nátrium-karbonát oldhatósága a legkisebb, ezért akár dugulást is előidézhethet a rendszerben [28].

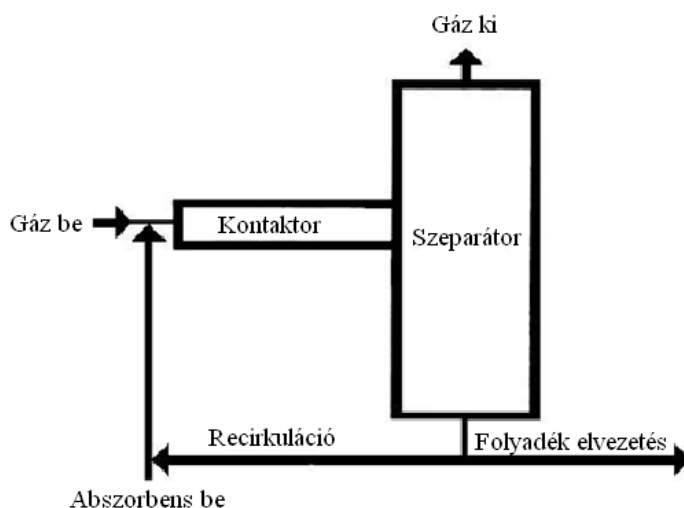
Ha a két gázkomponens diffuzivitását is összehasonlítjuk, akkor ebben az esetben nagy különbséget nem találunk, a kén-hidrogén diffuzivitása alig haladja meg a szén-dioxidét (1 atm nyomáson és 25 °C hőmérsékleten szén-dioxid esetében $1,97 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, míg a kén-hidrogénre nézve $2,12 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ -nak adódik ez az érték) [78; 86].

Az alkáli lúgos abszorpció előnyei közé tartozik, hogy szelektív kén-hidrogénmentesítés és általános savas/savanyú gázkezelés egyaránt megvalósítható általa. A folyamat nem igényel termikus energia befektetést. Az optimális körülmények biztosítása révén szelektív kén-hidrogénmentesítés esetén nem csak hatékony, de gazdaságos is. A művelet során nem keletkeznek olyan veszélyes melléktermékek, mint az alkanol-aminos abszorpció esetében. A technológia jól illeszkedik biogázok, földgázok, olajkísérő gázok feldolgozási technológiáihoz is [11; 23; 25-26].

A technológia legnagyobb hátránya, hogy az elhasznált abszorbens - mely veszélytelen, stabil karbonát, hidrogén-karbonát, szulfid és hidrogén-szulfid sókat tartalmaz - nem regenerálható. Azonban, mint azt már említettem mikroorganizmusok alkalmazásával az alkáli lúgos oldatok szulfid tartalma elemi kénné konvertálható [73]. További lehetséges kezelési módszerként említhető az egyszerű semlegesítés

[23; 27; 80; 88-89], a képződött oldat bizonyos minőségi vizsgálatokat követően a cellulóz- és papíriparban akár fel is használható [23].

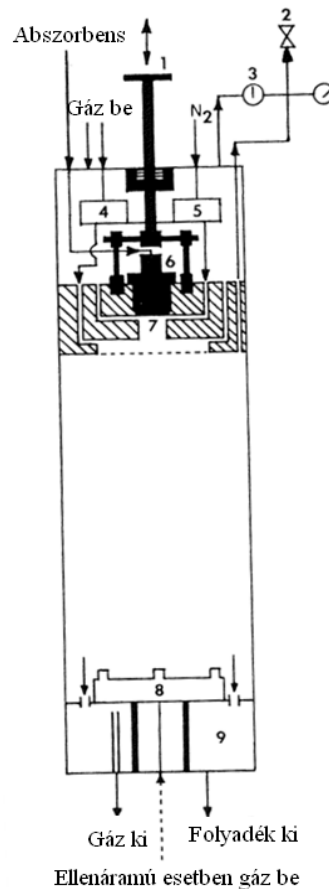
Az alkáli lúgos kompetitív kemiszorpcióra alapozott szelektív kén-hidrogénmentesítés technológiájával *R. W. Hohfield* foglalkozott először. Ő dolgozta ki 1979-ben a *Dow eljárást* (7. ábra). A művelet során a gáz és folyadék fázisok kontaktideje csupán 0,01-0,03 s. A berendezésben a tisztítandó gáz és a nátrium-hidroxid oldat egy statikus keverővel ellátott kontaktorban érintkezik egymással, melyet közvetlenül egy szeparátor követ. Lényegében így valósul meg a szelektív kén-hidrogénmentesítéshez szükséges tartózkodási idő minimalizálása, és a megfelelő hatásfok eléréshez elengedhetetlen fázis-érintkeztetés tökéletesítése. Hohfield említett arról is, hogy statikus keverő helyett Venturi-mosó vagy porlasztótorony is alkalmazható a technológiához. Hohfield számos eredménnyel büszkélkedhet, hogy ezek közül csak egyet említsek: 3,5V/V% szén-dioxidot és 925 ppmv kén-hidrogént tartalmazó gázkeveréket 1m/m%-os nátrium-hidroxid oldattal 90%-os hatékonysággal kén-hidrogénmentesített e módszerrel. Az elhasznált abszorbens oldat vizsgálataik tapasztalatai szerint elsősorban nátrium-hidrogénszulfidot tartalmazott, mely ajánlása szerint még felhasználható oxigén scavangerként víztávolítására, elhelyezhető mély szennyvíztározó kutakban, vagy oxidációs eljárással stabilabb kén-vegyületekké is alakítható [28].



7. ábra: Dow-eljárás [28]

Hohfield munkája sokakat megihletett. Számos tudós foglalkozott az alkáli lúgos kompetitív kemiszorpcióra alapozott szelektív kén-hidrogénmentesítés tökéletesítésével, alkalmazhatóságának feltérképezésével, hatékonyabbá és gazdaságosabbá tételével.

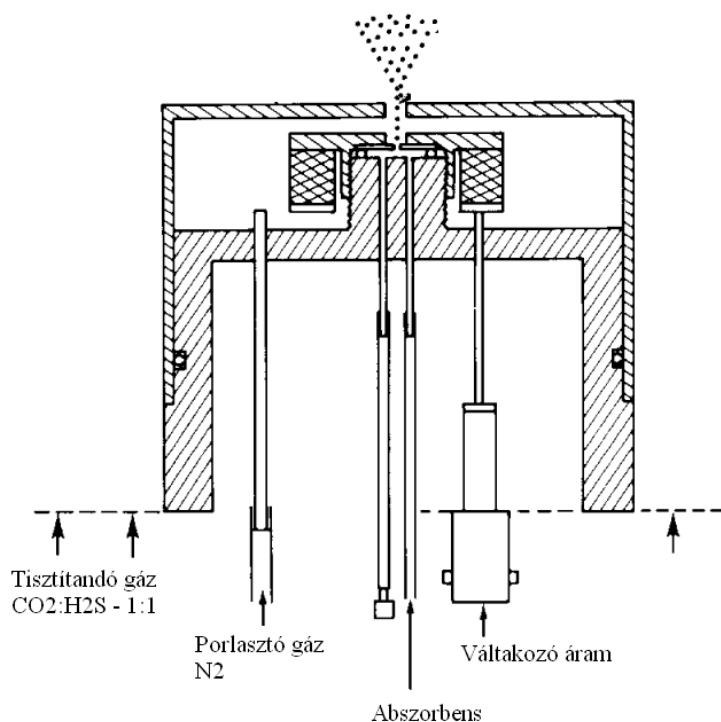
K. T. Hsieh és R. C. Aiken 1984-ben már a művelet porlasztásos kialakításán munkálkodott. Megállapították, hogy a rövid tartózkodási idő és az abszorbens finom cseppekre ($<100\mu\text{m}$) bontása kedvez a szelektív kén-hidrogén megkötődésnek. Az optimális reagens koncentrációt és betáplálást kutatva, azonban azt tapasztalták, hogy ez a savanyú gáz szén-dioxid és kén-hidrogén tartalmának relatív értékének függvénye. Hsieh és Aiken munkája azt is magába foglalta, hogy megállapítsák, az anyagtranszport gáz-oldali ellenállása a kén-hidrogén esetében nagyobb, míg a folyadék-oldal a szén-dioxidnak áll ellen jobban. Az általuk kialakított pneumatikus porlasztásos megoldással viszont a gáz-oldali ellenállás szinte megsemmisült, a folyadék oldalon a diffúzió gátoltsága pedig megnövekedett, ezáltal nőtt a rendszer szelektivitása. Kutatásuk arra is kiterjedt, hogy egy úgynevezett „védő-gáz” (shield gas) hatását is megvizsgálják. A védő gáz (nitrogén) azt a célt szolgálta, hogy a tisztítandó gáz a fúvókát elhagyva az első pillanatban még ne találkozzon a nagy turbulenciájú folyadékkal, hanem csak mikor már a cseppek ténylegesen kialakultak. Ez a vizsgálat szintén pozitív eredményt hozott a szelektivitás tekintetében. Az általuk használt készülék a 8. ábrán látható [77].



8. ábra: K.T. Hsieh és R. C. Aiken porlasztó tornya [77]

(1-mozgatható rúd; 2-nyomás szelep; 3-differenciálmánométer; 4-savanyú gáz elosztó egyenáramú működésnél, 5-védő-gáz elosztó; 6-fúvóka; 7-permet; 8-savanyú gáz elosztó ellenáramú működés esetén; 9-szepearátor)

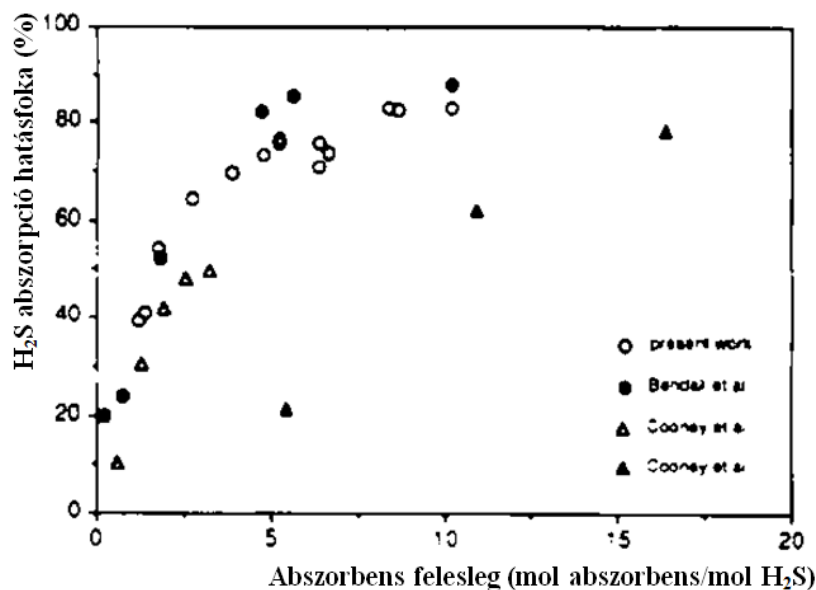
1988-ban V. Srinivasan és R. C. Aiken szintén a témával kapcsolatban kutatott. K. T. Hsieh és R. C. Aiken 1984-es eredményeihez hasonlóan ők is lejegyezték, hogy a védő gáz alkalmazása javítja a szelektivitás mértékét. Azt is megfigyelték, hogy a tényleges abszorpció mértéke csökken, ha a nagy turbulenciájú, intenzív keveredési zónát – ahol a cseppképződés tényleges lezajlik - kizárják az anyagátadás rendszeréből. Megállapították, hogy a gázoldal ellenállása csökken a beporlasztott folyadék cseppméretének csökkenésével. Kísérleteikhez a 9. ábrán látható berendezéssel dolgoztak [78].



9. ábra: V. Srinivasan és R. C. Aiken kísérleti berendezése (TSI 3450 rezgő nyílású aeroszol generátor) [78]

Vasilis Bontozoglou és Anastasios J. Karabelas a módszer alkalmazhatóságát geotermikus gőz kezelésére vizsgálta (1993). Kontaktorként egy rövid (10 cm) kis belsőátmérőjű (0,34 cm) csőreaktort alkalmaztak, melyben 10^{-3} s nagyságrendű kontaktidővel tudtak dolgozni. A készülékben a gáz és folyadék fázis egyenáramban érintkezett egymással. A felhasznált gázkeverékek 1m/m% szén-dioxidot és 500; 900; 2200 ppmw (parts per million by weight) kén-hidrogént tartalmaztak. Többek között a nátrium-hidroxid koncentráció hatását tanulmányozták (0,05; 0,5 és $1,5 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$). A lúgkoncentráció vizsgálata során azt tapasztalták, hogy $1-3 \text{ mol}_{\text{NaOH}} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ lúgfelesleg tartományban a hatásfok emelkedése lineáris és közel azonos a különböző koncentrációkra nézve. $3-6 \text{ mol}_{\text{NaOH}} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ intervallumban a hígabb abszorbensek hoztak jobb eredményeket. $6 \text{ mol}_{\text{NaOH}} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ érték felett pedig aszimptotikus görbéket

tapasztaltak. A legjobb eredményük 85% hatékonyság volt, $6 \text{ mol}_{\text{NaOH}} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ esetében 900 ppmw kén-hidrogén tartalomra $0,05 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$ koncentrációjú lúggoldattal. Eredményeiket más kutatók tapasztalataival is összevetették. Legalább olyan jó eredményeket értek el, mint *E. Bendall és munkatársai* 1983-ban nátrium-karbonát/-bikarbonát pufferoldat egyenáramú beporlasztásával (85-90% hatásfok $10 \text{ mol}_{\text{bázis}} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ esetén, ha a kezelendő gáz 7V/V% szén-dioxidot, 4-100 ppmv kén-hidrogént tartalmaz, a nyomás pedig 79,6 bar) (10. ábra) [27].

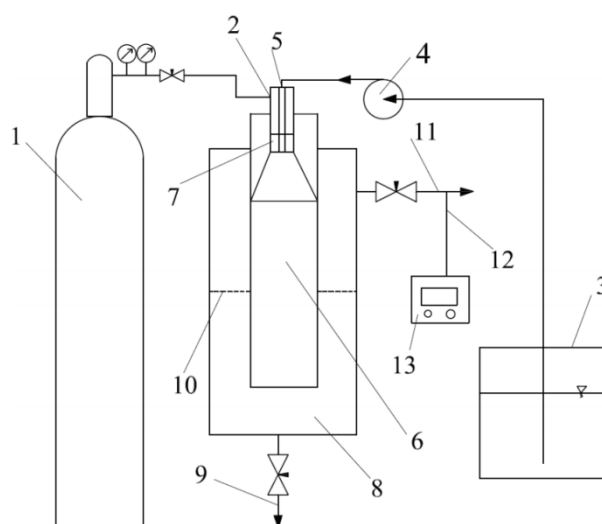


10. ábra: Különböző kutatói munkák hatékonyságának összehasonlítása Vasilis Bontozoglou és Anastasios J. Karabelas munkája alapján (● Na₂CO₃; △ NH₄OH; ▲ NaOH) [27]

Mivel geotermikus gőz tisztításának alkalmazhatóságát vizsgálták, ezért a hőmérséklet hatását sem hagyhatták figyelmen kívül, erre numerikus számításokat alkalmaztak. A kalkulációjuk eredménye szerint, 100 °C hőmérsékleten az abszorpció szelektivitása jelentősen leromlik [27].

A Pannon Egyetem Vegyipari Műveleti Intézeti Tanszék és a MOL Nyrt. munkatársai 2011-ben speciális kialakítású jet reaktort terveztek földgázok alkáli lúgos szelektív kén-hidrogénmentesítésének megoldására, illetve az e célra eddig használatos technológiák kiváltására. Kísérleti berendezésükben (11. ábra) a gáz és folyadék fázis érintkezési idejét minden esetben 1 s alatt biztosították. A vizsgálatokhoz 10V/V% szén-dioxid és 20-100 ppmv kén-hidrogén tartalmú gázkeverékeket használtak fel. Tanulmányuk alapján elmondható, hogy a vizsgált gázkoncentráció tartományban a kén-hidrogén szint ingadozásának nincs jelentős befolyása a tisztítási hatásfokra. Ezen észrevétel gyakorlati szempontból nagyon jelentős, ugyanis a földgáz kinyerése során az gázösszetétel jellemzően ingadozik. Vizsgálataik bebizonyították, hogy a lúg adagolás

sebességének növelése csak egy bizonyos szintig van pozitív hatással az eltávolítás hatékonyságára, utána jelentősen csökkenti azt. A lúg koncentrációjának emelésével minimális hatékonyságbeli növekedést tapasztaltak. Méréseik során összességében biztató eredményeket kaptak. A tervezett rendszerről bebizonyosodott, hogy stabil, biztonságos és hatékony (70-80% hatásfok) működésre képes [11].



11. ábra: Vágó Árpád és munkatárai által tervezett speciális jet reaktor (1-gázkeverék; 2-gáz bevezetés; 3-abszorbens tartály; 4-vegyszer adagoló szivattyú; 5-lúg bevezetés; 6-reakciótér; 7-fúvóka; 8-szeparációtér; 9-használt lúg kivezetés; 10-cseppfogó; 11-gázkilépés; 12-gázmintavétel; 13-gázanalizátor) [11]

Lionel Dubois és Diane Thomas 2010-ben biogázok szelektív kén-hidrogénmentesítésével foglalkozott. MEA (15 és 30m/m%) , TEA (30m/m%), MEA+TEA (10m/m%+30m/m%), nátrium-hidroxid ($0,2 \text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$), illetve hidrogén-peroxiddal ($0-0,2 \text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$) kiegészített nátrium-hidroxid ($0,2-1 \text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$) vizes oldatok szelektivitásának összehasonlító vizsgálatát végezték el $20 \text{ }^\circ\text{C}$ hőmérsékleten és atmoszférikus nyomáson. Kísérleteikhez egy úgynevezett csököteges kontaktort alkalmaztak, melyben a gáz és a folyadék fázis ellenáramban érintkezett egymással. A mérésekhez felhasznált gázok kén-hidrogén/szén-dioxid aránya $5\cdot 10^{-4}-1,5\cdot 10^{-2} \text{ mol}_{\text{H}_2\text{S}}\cdot\text{mol}_{\text{CO}_2}^{-1}$ tartományban változott. Az alkalmazott pH értékek 9,5; 11,5; 13 voltak. Tapasztalataik szerint alkáli lúgos abszorbensekkel jobb szelektivitás érhető el, mint alkanol-aminos vizes oldatokkal. Az általuk ajánlott abszorbens nátrium-hidroxidot és hidrogén-peroxidot is tartalmazó 9,5-ös pH értékű oldat, mely kémhatása kénsav hozzáadásával szabályozott [20].

J. Krischan és munkatársai (2012) biogáz szelektív kén-hidrogénmentesítését kívánták megvalósítani oxidatív gázmosás módszerével. Kísérleteiket laboratóriumi és üzemi körülmények között egyaránt elvégezték. A gáztisztításhoz felhasznált vizes

oldatok nátrium-hidroxid mellett hidrogén-peroxidot is tartalmaztak. Ennek köszönhetően a kén-hidrogén irreverzibilis oxidáció révén stabil elemi kén, szulfát és tioszulfát vegyületekké alakult és így került a folyadék fázisba. A folyamat során szulfit is jelen volt a rendszerben, de csak, mint instabil köztesvegyület. A kémhatást 6,1 és 8,2 pH érték között szabályozták, de már a laboratóriumi körülmények között kiderült, hogy minimum 7,7-es pH-értéket biztosítani kell a hatékony működéshez. Az üzemi kísérleti berendezés töltetes oszlopának aktív magassága 3 m, átmérője 0,71 m, a benne lévő töltet fajlagos felülete pedig $300 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$ volt. A művelet megközelítőleg 10^5 Pa nyomáson és $25\text{-}40 \text{ }^\circ\text{C}$ között zajlott. A betáplált gáz térfogatárama $180 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, a folyadéké $7,9 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ volt. A biogáz – egyéb összetevői mellett – $30\text{-}50\text{V/V}\%$ szén-dioxidot és maximálisan 3000 ppmv kén-hidrogént tartalmazott. A gázösszetétel – a biogáz technológiára jellemző módon – ingadozott a több hónapos kísérleti folyamat alatt. A kén-hidrogénmentesítés határfoka elérte a 97% -os átlagértéket. Mindeközben a szén-dioxid abszorpció mértéke alacsony szinten maradt. A tisztításhoz átlagosan $6 \text{ mol}_{\text{NaOH}} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ nátrium-hidroxidot és $4,8 \text{ mol}_{\text{H}_2\text{O}_2} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ hidrogén-peroxidot használtak fel. Az elreagált oldatot pedig – mivel veszélyes komponenseket nem tartalmazott – a biogáz reaktorba vezették és fermentálták [74].

Ersin Üresin és munkatársai 2015-ben szintén a lúgos gázmosás témakörével foglalkoztak. Méréseikhez kén-hidrogén (250; 500; 750; 1000 ppmv) + nitrogén, illetve kén-hidrogén + nitrogén + szén-dioxid (25V/V%) + metán (25V/V%) gázkeverékeket is felhasználtak. Kísérleti berendezésként töltetes abszorbent és statikus keverővel ellátott kontaktort is alkalmaztak. Az abszorber oszlopot egyen- és ellenáramban egyaránt letesztelték. Az ellenáramú működéskor határozottan jobb kén-hidrogén abszorpciót tapasztaltak, mint egyenáram esetén, azonban a statikus keverő még az ellenáramú abszorbernél is hatékonyabbnak bizonyult. A tartózkodási idő hatását is megvizsgálták 2-4 s intervallumban. Tapasztalataik szerint 3 s kontaktidő állt legközelebb az optimumhoz. A gázösszetétel hatásának vizsgálatok pedig várható módon azt tapasztalták, hogy ha szén-dioxid is jelen van a rendszerben, akkor jelentős határfok csökkenésre, illetve lúg-túlfogyásra kell számítani. Méréseikhez abszorbensként minden esetben 11 pH értékű nátrium-hidroxid oldatokat használtak fel [23].

1.7 Porlasztás

A porlasztás műveletét elterjedten alkalmazzák az iparban gázáramok abszorpció tisztításának kivitelezéséhez [90]. Hatékony gáz-folyadék érintkeztetés valósítható meg,

ennek köszönhetően használata bizonyos folyamatoknál kifejezetten előnyös nem csak a termelékenység, hanem a gazdasági okok miatt [85; 91].

1.7.1 Porlasztás hatékonysága

A porlasztási folyamat lényegében mesterséges permetképzésnek fogható fel. Hatékonysága a felület növekedésének számításával közelíthető a következő módon. Tekintsünk egy adott folyadék tömeget, mely egy porlasztón halad át egyenletesen. Legyen D_p a porlasztás során keletkezett cseppekhez tartozó átmérő, D_0 pedig a porlasztandó folyadékmennyiség gömb alakjához tartozó átmérő. Ekkor a folyadék A_0 felülete az 1.7.1 képlettel számítható:

$$A_0 = \pi * D_0^2 \quad (1.7.1)$$

A folyadékhoz tartozó V_0 térfogat pedig 1.7.2 egyenlet alapján:

$$V_0 = \frac{1}{6} * \pi * D_0^3 \quad (1.7.2)$$

Ha ezt a folyadékmennyiséget elporlasztjuk, akkor n_0 db csepp keletkezik (1.7.3 egyenlet):

$$n_0 = \frac{D_0^3}{D_p^3} \quad (1.7.3)$$

A porlasztás következtében létrejövő felületváltozás pedig kifejezhető az 1.7.4 és 1.7.5 egyenletekkel a következőképpen:

$$A_p - A_0 = \pi * D_0^3 * \left(\frac{1}{D_p} - \frac{1}{D_0} \right) \quad (1.7.4)$$

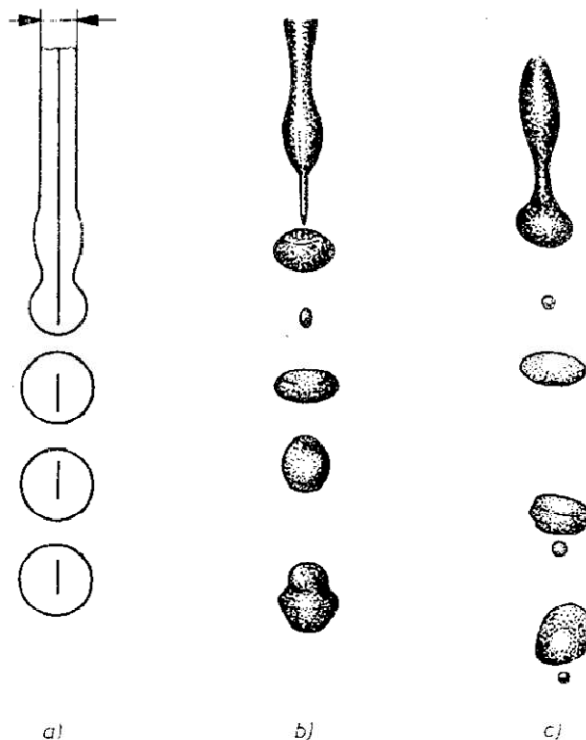
azaz

$$\frac{A_p}{A_0} = \frac{D_0}{D_p} \quad (1.7.5)$$

Tehát a képződő felület és a létrejövő cseppek átmérője között fordított arányosság áll fenn. Minél nagyobb a porlasztott csepp átmérője, annál kisebb a létrejött felület [92].

1.7.2 Gázfázisba vezetett folyadéksugár bomlása

A gázfázisba vezetett folyadéksugár ideális esetben egyforma átmérőjű cseppekre bomlik mellékcseppek keletkezése nélkül, azonban a valóságban ez nem így történik, mint azt a 12. ábra is mutatja.



12. ábra: Folyadéksugár bomlása
(a-ideális eset, b és c-valóságos vízsugárbomlás nagysebességű filmfelvétel alapján) [92]

A folyadék sugár bomlására minden olyan tényező hatással van, mely befolyásolja a folyadék felületének egyenlőtlenségét, így például a sűrűség, a felületi feszültség és a viszkozitás.

A sugárbomlással kapcsolatban eddig a következő fontosabb tapasztalatok születtek:

- Ha a folyadék sugár minden része örvénylik, akkor a sugár bomlása bármilyen egyéb külső hatás nélkül is bekövetkezik. Ennek oka, hogy a folyadékreszecskek mozgásának van sugár irányú komponense is. A sugárbomlás feltétele, hogy a részecskéket összetartó felületi feszültségnél nagyobb erőhatás érje a folyadéksugarat. (Állandó nyomáson és hőmérsékleten a felületi feszültség egyenlő az egységnyi új felület létrehozásával járó szabadentalpia-változással [93].)
- Ha az örvénylő folyadék réteget egy nem örvénylő veszi körül, akkor a porlasztót elhagyva a sugár szétbomlik, amennyiben az örvénylő rész előbb ér a porlasztó végére.
- Örvénymentes áramlás során a bomláshoz szükséges valamilyen külső zavarás is, amely elősegíti a bomlást.
- A gázfázis súrlódása minden esetben elősegíti a bomlást.

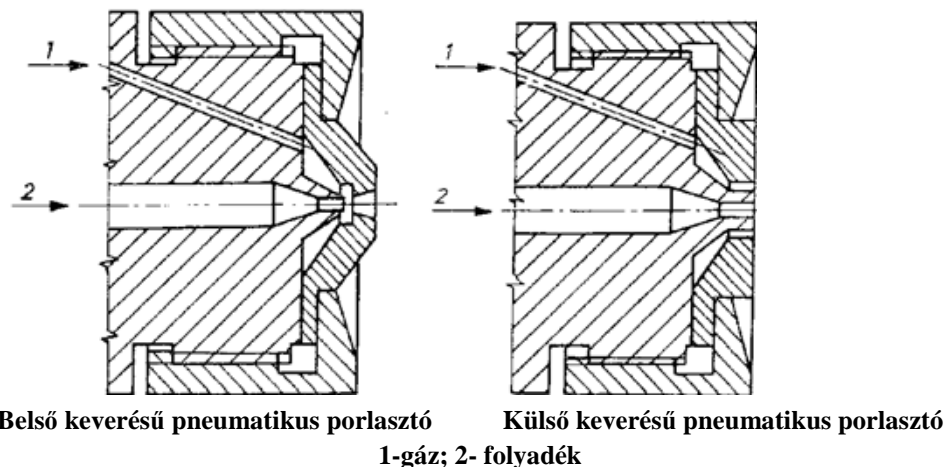
- A sugárbomlás távolsága egyenletesen növekszik a folyadék viszkozitásának emelkedésével.
- Ha a folyadék sebességét megnöveljük, a sugárbomlás távolsága csökkenni fog [92].

1.7.3 Pneumatikus porlasztás

Napjainkig számos porlasztó típust dolgoztak már ki mesterséges permetképzés megvalósítására, ezek között említhetünk folyadéknyomásos, mechanikus, ultrahangos, elektrosztatikus, elektromágneses valamint pneumatikus porlasztókat is. (Esetünkben csak a pneumatikus porlasztók játszanak szerepet.)

Pneumatikus porlasztás során a folyadéksugarat a gáz (vagy gőz) árama bontja cseppekre. A pneumatikus porlasztók alkalmazása számos előnnyel jár: a folyadék és a gázáram sebessége külön-külön is szabályozható; finom porlasztás megvalósítására is lehetőséget adnak; nagy viszkozitású folyadékok és sűrű szuszpenziók is porlaszthatóak ezzel a típussal. A pneumatikus porlasztók azonban nagy energiaigénnyel rendelkeznek, a gázáram csak akkor bontja fel a folyadéksugarat, ha a két közeg találkozási pontjánál a gáz sebessége jóval meghaladja a folyadék sebességét.

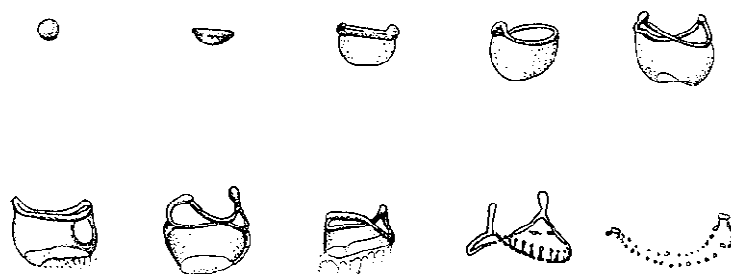
A pneumatikus folyadékporlasztókon belül belső és külső keverésű porlasztókat különböztethetünk meg a kétféle áram keveredése szerint, ezek sematikus képe a 13. ábrán tekinthetőek meg [92].



13. ábra: A belső és külső keverésű pneumatikus folyadékporlasztó sematikus ábrája [92]

Ha a folyadékáramot a gázáram közepébe vezetjük, akkor belső keverésű porlasztóról van szó. Azonban, ha a folyadék- és a gázáram csak a porlasztóból való kilépés pillanatában találkozik egymással, akkor külső keverésű porlasztóról beszélhetünk.

A pneumatikus porlasztás mechanizmusáról megállapították, hogy két részfolyamatra osztható. Első lépésben a gázfázis súrlódásának következtében a folyadéksugárból szalagok és filmek képződnek, melyek a második lépcsőben cseppekre bomlanak (14. ábra) [92].



14. ábra: Egy folyadékcsepp bomlási folyamata, amelyet nagy sebességű légáram hirtelen ütése idézett elő [93]

A pneumatikus porlasztás során előállított cseppek közepes átmérőjének meghatározásával számos kutató foglalkozott már. Megállapították, hogy a közepes cseppméret függ a folyadék és a gáz sebességétől, a porlasztási teljesítménytől, a gázszükséglettől, a folyadéknyílás átmérőjétől, illetve a folyadék fizikai jellemzőitől [92].

Nukiyama és Tanasawa alkohol és glicerín elegyek pneumatikus porlasztását tanulmányozták. A különböző viszkozitású, felületi feszültségű, valamint relatív gázsebesség értékű oldatok beporlasztásakor tapasztalt eredmények alapján az átlagos cseppméretet az alábbi 1.7.3.1 összefüggés alapján határozták meg:

$$\bar{d} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{6 \dot{V}_l}{\rho} \right)^{1/3} \left(\frac{\rho_g}{\rho} \right)^{1/3} \left(\frac{v_g}{v_l} \right)^{1/3} \left(\frac{\sigma}{\rho v_g^2} \right)^{1/3} \quad (1.7.3.1)$$

ahol

az úgynevezett átlagos Sauter-féle (térfogat-felületi) átmérője [μm],

relatív sebességkülönbség gáz és folyadékfázis között [$\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$],

a folyadék felületi feszültsége [$\text{dyne}\cdot\text{cm}^{-1}$],

a folyadék sűrűsége [$\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$],

a folyadék viszkozitása [poise],

folyadék térfogatárama [$\text{cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$],

gáz térfogatárama [$\text{cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$] [98].

Az egyenlet a gáz hangsebességéig alkalmazható, ahol a folyadék fizikai jellemzői a következő tartományba esnek: $0,7 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3} < \rho < 1,2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$; $19 \text{ dyne}\cdot\text{cm}^{-1} < \sigma < 73 \text{ dyne}\cdot\text{cm}^{-1}$; $0,003 \text{ poise} < \eta < 0,500 \text{ poise}$ [93].

Ez az összefüggés alkalmazható pneumatikus porlasztók és Venturi gázmosók esetére is [94].

A porlasztás energiaigényére visszatérve, pneumatikus porlasztók esetében komprimált gázt használunk a folyadéksugár felbontására. A komprimálás pedig nagy energiaigénnyel jár. Mindemellett a porlasztandó folyadék áramoltatásához szivattyúk működtetése szükséges. A nagynyomású gáz energiája a porlasztás során a következőképpen oszlik meg a rendszerben:

- új felület képzéséhez szükséges energia, mely a felületi feszültség és a keletkezett új felület szorzata által meghatározható,
- a folyadék a cseppekre bomlás előtt felgyorsul, azaz kinetikus energia átadás is történik,
- a gáz továbbhaladásához is szükség van kinetikus energiára,
- tehetetlenségi veszteségekkel is számolni kell [85].

Pneumatikus porlasztás esetében az izoterm expanzióban felszabaduló energiát (E [kp·m]) sem szabad figyelmen kívül hagyni, mely az 1.7.3.2 összefüggéssel adható meg:

$$E = M \cdot R \cdot T \cdot \ln \frac{p_1}{p_2} \quad (1.7.3.2)$$

ahol

M arányszám a porlasztáshoz felhasznált gáz aránya a porlasztott folyadék tömegéhez képest [-],

R az egyetemes gázállandó [kp·m·kg⁻¹ K⁻¹],

T a gáz abszolút hőmérséklete [K],

p_1 gáz kezdeti nyomása [kp·cm⁻²],

p_2 a gáz végnyomása [kp·cm⁻²] [92].

1.8 Intenzív fázisérintkeztetés megvalósítása jet reaktorban

Az áramlás jellegét tekintve alapvetően két típust különböztethetünk meg. Lamináris áramlás esetén az áramvonalak rendezetten, párhuzamosan ugyanazon irányba haladnak. Turbulens áramlásnál azonban az áramvonalak rendezetlenek, az áramlási képet keresztirányú áramvonalak és örvényáramok egyaránt jellemzik [95]. A turbulens áramlást más néven gomolygó áramlásnak is nevezik, sebessége az idő függvényében – nagyságát és irányát tekintve is – minden pontban egy helyi középérték körül szabálytalanul változik. A turbulens áramlás tehát kvázi stacionárius áramlás, ahol a

helyi sebesség a helyi középérték és a sebességingadozások összegeként áll elő [96]. Az áramlás jellegéről a dimenziómentes Reynolds-szám kiszámításával informálódhatunk, melyet az áramlás jellemző sebességéből, az áramlásra jellemző geometriai méretéből, illetve a közeg sűrűségéből és viszkozitásából képzünk.

$$Re = \frac{vd\rho}{\eta} = \frac{vd}{\nu} \quad (1.8.1)$$

ahol

Re a Reynolds-szám [-],

v az áramlás sebessége [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$],

d hengeres csőnél az átmérő [m],

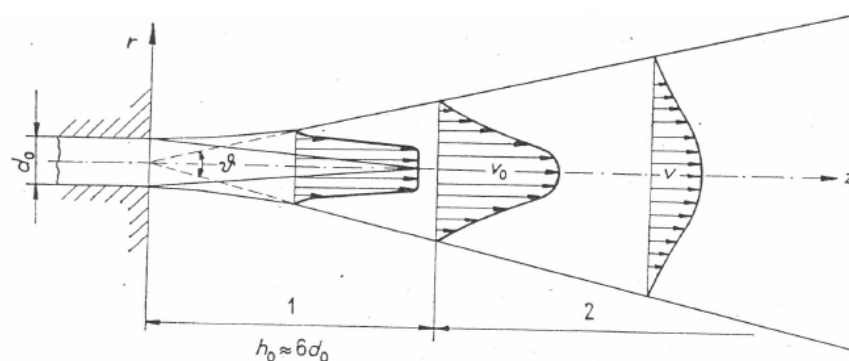
ρ a közeg sűrűsége [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$],

η a dinamikai viszkozitás [$\text{Pa}\cdot\text{s}$],

ν a kinematikai viszkozitás [$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$].

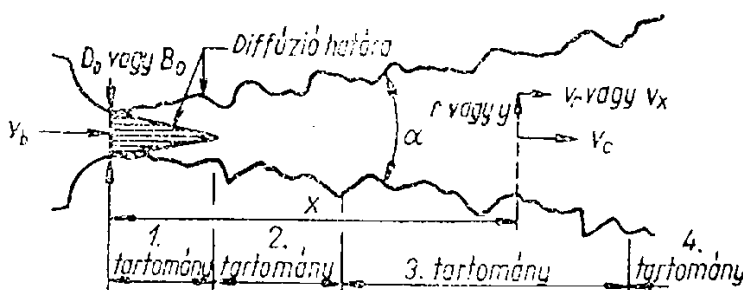
Az irodalmi adatok alapján, ha egy sima falú csőben a Re -szám kisebb, mint 2320, akkor az áramlás lamináris; ha 2320 és 3000 közötti, akkor lamináris-turbulens átmeneti; 3000 fölött azonban egyértelműen turbulens [95].

Két fázis keveredésének intenzitása nagyban függ az áramlási tulajdonságoktól. Fluid közeget szűk nyíláson keresztül - elegendően nagy sebességgel - áramoltatva sugarak létrejöttét tapasztaljuk. A sugarakat egyes esetekben viszonylag nagyméretű térben képezzük ki, ekkor szabad sugarakról beszélünk [97]. Szabad sugarak fél-szöge jellemzően 7 és 20° közötti érték [98]. A szabad sugaraknak speciális áramlási képük van, amit kúposan szűkülő mag és a sugár szintén kúpos szétterülése jellemez. Szűk terekben a sugarak turbulenciát keltenek, ezáltal a sugár és a környezet anyaga gyorsan összekeveredik egymással. A vegyiparban gyakori a konfúzor-diffúzor alkalmazása, ezekben az áramlás a zárt térben kialakuló sugár jellegzetes esete. A 15. ábrán szabad sugár áramlási képét látjuk. A belső kúpban az adott fluid fázis azonos sebességgel áramlik, míg a külső kúpban a sebesség a belső súrlódás hatására nulláig csökken. A belső kúp bizonyos adott távolság után elenyészik, utána a sebességtér attól függ, hogy lamináris vagy turbulens áramlású sugárról van-e szó. A lamináris sugár keskeny és hosszú, mivel sugárirányban az impulzus kiáramlása lassabban megy végbe; a turbulens sugár rövidebb és szélesebb, mert a nagyobb transzport-együttható miatt az impulzus kiáramlása gyorsabban megtörténik [97].



15. ábra: Szabad turbulens sugár áramlása
 (d_0 : kiáramlás kezdeti átmérője, θ a sugárkúp központi szöge, v_0 : tengely menti sebesség, v : helyi sebesség a tengelytől számított r távolságban, h_0 : kezdeti szakasz hossza) [97]

A szabad turbulens sugár áramlási tere 4 szakaszra osztható fel, ebből az 1. és a 2. szakasz a 15. ábrán is megfigyelhető, részleteiben a 16. ábra mutatja.



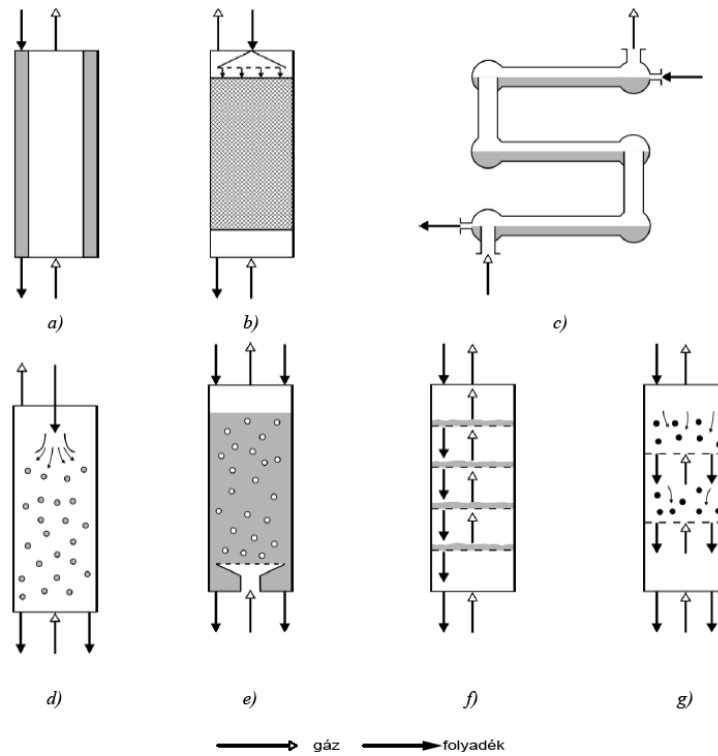
16. ábra: A szabad turbulens sugár tartományai
 (D_0 : torokátmérő, v_b : belépési sebesség, x : távolság, α : sugárszög, v_r, v_x : r rádiushoz tartozó longitudinális sebesség, v_c : sebesség a sugár középvonalában) [85]

Az 1. zóna az áramlás kialakulásának tartománya, mely hossza megegyezik a kiáramlás kezdeti átmérőjének 5-6-szorosával. A 2. szakasz az átmeneti tartomány, mely terjedelme a torokátmérő 8-szorosának felel meg. A 3. rész a kialakult áramlás zónája, ez a sugár fő tartománya, mely 100 torokátmérővel egyezik meg. A 4. szakaszban az áramlás középvonali sebessége jelentősen csökken, megközelíti a nyugalmi állapotot [85].

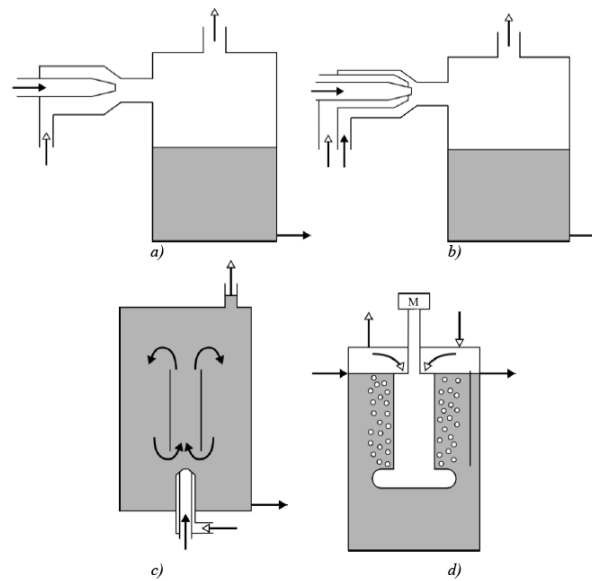
A jet reaktor tervezése és alkalmazása szempontjából az 1. és a 2. tartomány lényeges számunkra, mivel az 1. szakaszban történik a folyadékáram cseppekre bontása a gázáram által, a 2. zónában pedig az intenzív fázisérintkeztetés a nagy turbulenciának köszönhetően [99].

1.9 Gáz-folyadék anyagátadás

Abszorpciós műveletek során szelektív komponens átvitelt hajtunk végre gáz fázisból folyadék fázisba. A művelethez elengedhetetlen a két fázis érintkeztetése, ehhez a leggyakrabban használt berendezések a 17. és 18. ábrán tekinthetők meg.



17. ábra: Gáz-folyadék toronyszerű ellenáramú érintkeztető berendezések (a-üres csőoszlop (folyadékfilmes); b-töltött oszlop; c-felületi abszorber; d- permetező oszlop; e-buborékoltató oszlop; f-túlfolyó nélküli tányéros oszlop; g- túlfolyó nélküli tányéros oszlop, a tányérok között szabadon mozgó golyókkal) [100-101]



18. ábra: Gáz-folyadék nem toronyszerű egyenáramú érintkeztető berendezések (a-Venturi-mosó; b-sugárfúvókás abszorber; c-vezetősöves sugárfúvókás abszorber; d-gázbuborékos keverős abszorber) [101]

Az abszorpciónak – megkötődési mechanizmusa szerint - alapvetően két típusa különíthető el. Fizikai abszorpcióról, akkor beszélünk, ha az elnyeletés során kémiai reakciók nem mennek végbe a rendszerben, a megkötődés oldódás révén valósul meg.

Kémiai abszorpció vagy más néven kemiszorpció esetében azonban kémiai folyamatok is nagy szerepet játszanak a megkötésben. A kemiszorpció a következőképpen zajlik:

1. A gázfázis belsejéből az adott komponens a gáz-folyadék fázishatár felületére diffundál.
2. Megtörténik a gázfázisbeli komponens oldódása a Henry-törvénynek megfelelően, miszerint egy gáz oldhatósága egy folyadékban adott hőmérsékleten egyenesen arányos a gáznak a folyadék feletti parciális nyomásával.
3. Az oldott komponens az abszorbens oldat fő tömegébe diffundál.
4. Az oldat belsejében lejátszódik a kémiai reakció.
5. A keletkezett reakciótermékek a koncentráció gradiensnek megfelelően diffundálnak [100].

Áramló rendszereknél az áramlás képeinek megfelelően kétféle mechanizmust definiálhatunk az anyagátadásra: vezetési mechanizmust (molekuláris diffúziót), a lamináris határregegen át merőlegesen a konvektív áramlásra, illetve turbulens diffúziót (konvektív anyagátadás), mely nagysága nem csak a fázist alkotó komponensek fizikai tulajdonságaitól, hanem jelentős mértékben a hidrodinamikai körülményektől is függ.

A komponensdiffúzió Fick I. törvénye alapján az 1.8.1 egyenlettel a következőképpen írható fel:

$$j_i = \frac{dn_i}{A dt} = -D_i \frac{dc_i}{dz} \quad (1.9.1)$$

ahol

j_i az i komponensre vonatkozó áramsűrűség [$\text{kmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$],

D_i a diffúziós együttható [$\text{m}^2 \cdot \text{s}$],

z a távolság [m],

n_i a diffúzióval átvitt komponensek mennyisége [kmol],

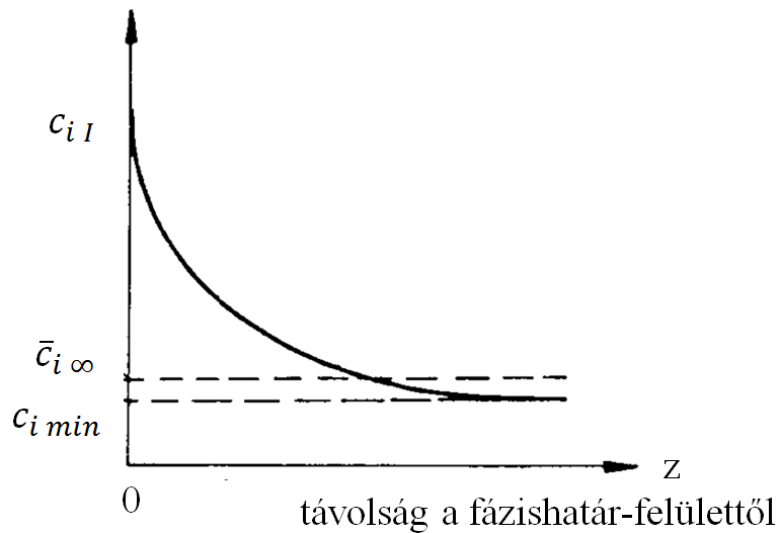
A az áramlásra merőleges felület [m^2],

dc_i a koncentráció gradiens [$\text{kmol} \cdot \text{m}^{-3}$],

t az idő [s].

Tehát a törvény lényegében azt mondja ki, hogy egy adott irányba diffúzióval átvitt komponensek mennyisége arányos az áramlásra merőleges felület nagyságával és a koncentráció gradienssel. Az egyenletben a negatív előjel arra utal, hogy az adott „ i ” komponens áramlása a koncentráció csökkenés irányába történik [100].

A lamináris határrétegen keresztül történő diffúzió a legtöbb esetben lassú folyamat, ezért egyes esetekben szükség van a fluidumok áramlási sebességének megnövelésére, hogy turbulens anyagátadás alakuljon ki. A turbulens anyagátadásnál a fázisok közti határrétegben az áramlás lamináris, ezt követi egy átmeneti zóna, majd pedig a turbulens áramlási réteg. A határrétegben az anyagtranszport molekuláris vezetéssel történik. Az átmeneti zónában turbulens és molekuláris diffúzió tényezője összemérhető nagyságú. A turbulens áramlású rétegben pedig a molekuláris transzport hatása elhanyagolható. A turbulens anyagátadás jellemző koncentráció lefutását a 19. ábrán láthatjuk [100].



19. ábra: Turbulens anyagátadás esetén a koncentráció lefutása [100]

A fázishatáron a koncentráció c_{iI} . A fázishatártól távolodva koncentráció hirtelen csökken, majd fokozatos kiegyenlítődik. Az átlagkoncentráció ($\bar{c}_{i\infty}$) értéke pedig alig haladja meg a koncentráció minimális értékét ($c_{i min}$). (Az átlagkoncentráció jellemzően megegyezik a főtömegbeli koncentrációval ($\bar{c}_{i\infty} = c_{i\infty}$)). A turbulens anyagátadás leírását a mérnöki gyakorlat az 1.9.2 egyenlet szerint oldotta meg:

$$j_i^t = \frac{\dot{n}_i}{A} = -(D_i + D_t) \frac{dc_i}{dz} \quad (1.9.2)$$

ahol

D_t a turbulens diffúziós együttható [$m^2 \cdot s^{-1}$].

Ha D_t átlagos értékével számolunk és az összefüggést integráljuk a fázishatár és az oldat főtömege közötti távolságra, akkor az 1.9.3 egyenlethez jutunk:

$$j_i^t = \frac{\dot{n}_i}{A} = \frac{D_i + D_t}{Z} (c_{iI} - c_{i\infty}) = \frac{D_{ieff}}{Z} (c_{iI} - \bar{c}_{i\infty}) = \beta_i (c_{iI} - \bar{c}_{i\infty}) \quad (1.9.3)$$

ahol

Z a távolság [m],

β_i a komponensátadási tényező [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$],

D_{ieff} effektív diffúziós együttható [$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$].

A komponensátadási tényezőről (β_i) meg kell jegyezni, hogy meghatározása rendkívül problémás feladat, ugyanis:

1. A fázishatár tényleges felületét általában nem ismerjük.
2. Az effektív diffúziós együttható komponens- és áramlásfüggő.
3. A film vastagsága általában nehezen mérhető
4. A fázishatáron kialakuló felületi koncentráció pedig nem is mérhető [100].

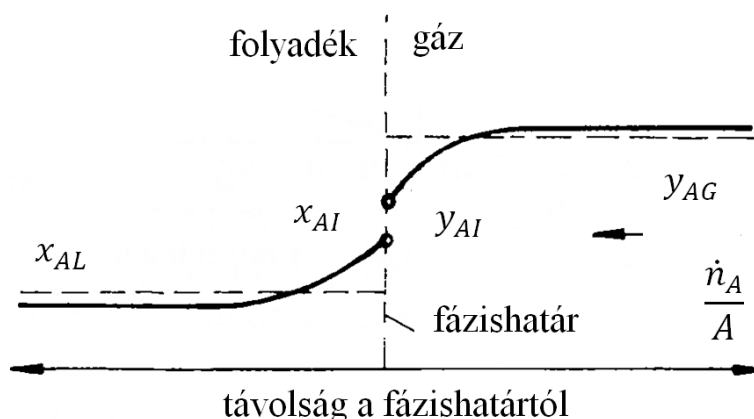
1.9.1 Kétfilm-elmélet fizikai abszorpciónál

A komponensátadás legegyszerűbben a filmelmélet alapján határozható meg [100].

Az elmélet a következő feltételezéseket tartalmazza:

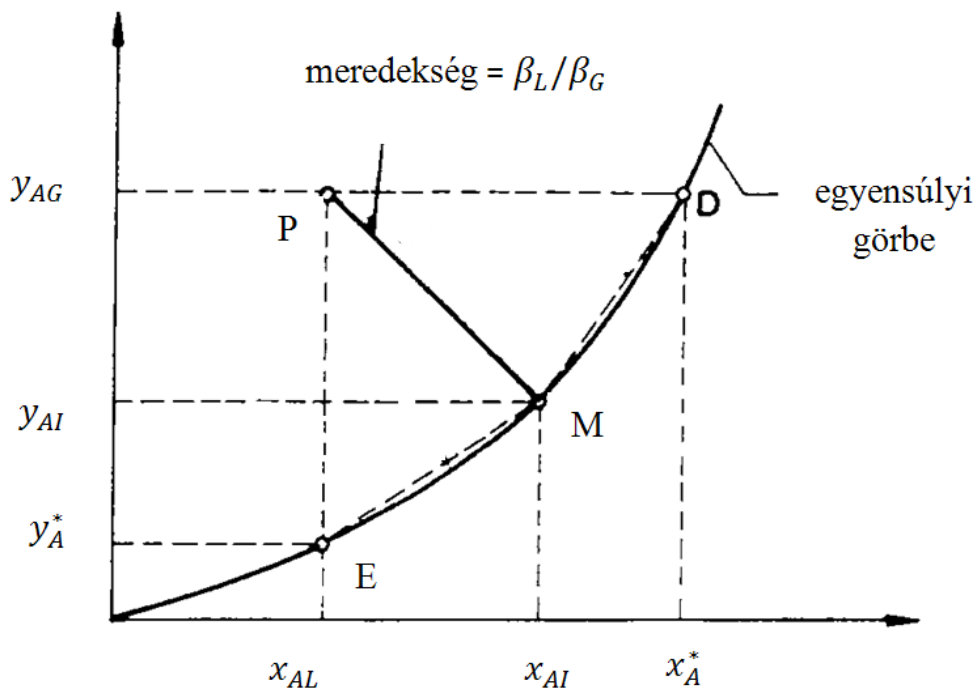
1. A két fázis határán mindkét oldalon kialakul egy-egy vékony filmréteg, ahol a komponensátadás mindig diffúzióval zajlik és a határrétegek áramlása minden esetben lamináris, még akkor is, ha az adott fázis belsejében az áramlás turbulens.
2. A filmben nincs anyag-felhalmozódás, ami az egyik oldalon belép a filmbe, az az ellenkező oldalon, a másik fázis felé távozik. A komponensátadás stacionárius.
3. A fázis belsejében a koncentráció állandó
4. Az érintkezési felület mentén a folyadék- és a gázfázis egymással egyensúlyban van.
5. A Henry törvény érvényes.
6. Kémiai reakció nem játszódik le [102].

Tekintsük 20. ábrát, ahol „A” abszorbeálni kívánt komponens a gázfázis (G) fő tömegéből a folyadékfázisba (L) tart. Hogy az abszorpció ténylegesen megtörténjen, „A” komponensnek át kell lépnie a fázishatáron, majd folytatnia útját a folyadék fázis belsejébe. A 20. ábra a fázishatár környezetében fellépő koncentráció gradienst móltörttekkel szemlélteti [100].



20. ábra: „A” komponens koncentrációprofilja anyagátbocsátásnál (y_{AG} : a gáz főtömegbeli koncentrációja; x_{AL} : folyadék főtömegbeli koncentrációja; y_{AI} és x_{AI} egyensúlyi koncentrációk a fázishatáron) [100]

Ha a gáz és folyadék fázis összetartozó koncentrációit ábrázoljuk, akkor a 21. ábrához jutunk, ahol P pont a főtömegbeli koncentrációkat, M pont pedig a gáz-folyadék fázishatáron lévő koncentrációkat reprezentálja [100].



21. ábra: Koncentráció-hajtóerők alakulása az anyagátbocsátásnál (y_{AG} : a gáz főtömegbeli koncentrációja; x_{AL} : folyadék főtömegbeli koncentrációja; y_{AI} és x_{AI} egyensúlyi koncentrációk a fázishatáron) [100]

A filmelmélet alapján „A” komponens átadási áramsűrűsége az 1.9.4 egyenlettel definiálható:

$$j_A = \frac{\dot{n}_A}{A} = \beta_G(y_{AG} - y_{AI}) = \beta_L(x_{AI} - x_{AL}) \quad (1.9.4)$$

ahol

β_G és β_L a komponensátadási tényezők [$\text{kmol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$] [100].

1.9.2 Kétfilm-elmélet egy gyors kémiai reakcióval kísérve

Az egyszerűség kedvéért feltételezzük, hogy az anyagátadás sík határfelületen keresztül történik, illetve hogy a folyadékfázisban az abszorbeált „A” gáz a folyadékban lévő „B” komponenssel reagál. Alapvetően kétféle eset fordulhat elő.

1. A „B” komponens a teljes folyadékfázisban nagy feleslegben van jelen, ezért koncentrációja mindenütt állandónak tekinthető, így csak az „A” komponens koncentrációjával kell számolni. Ez a pszeudo-elsőrendű reakciókra vonatkozó eset (1.9.2.1-1.9.2.3 reakcióegyenletek).



2. A „B” komponens feleslege nem jelentős, vagy a reakció gyorsabb, mint a diffúzió sebessége, ezáltal a „B” komponens koncentrációja a határrétegben kisebb lesz, mint a folyadékfázis belsejében. Ez a másodrendű reakciókra igaz eset (1.9.2.4 reakcióegyenlet).



A kémiai reakció hatását az abszorpció sebességére először *Hatta* japán kutató vizsgálta *1928-ban*. Ő volt, aki bevezette az úgynevezett *Hatta-számot*, mely segítségével egy a határrétegben a kémiai reakció maximális sebességének és a diffúzió maximális sebességének arányára jellemző érték definiálható [101].

1.9.2.1 Kétfilm-elmélet egy gyors irreverzibilis pszeudo-elsőrendű reakcióval

A *Hatta-szám* irreverzibilis pszeudo-elsőrendű reakció lejátszódása esetén az 1.9.2.1.1 számú egyenlet segítségével adható meg.

$$Ha = \delta_L \sqrt{\frac{k_1}{D_A}} = \sqrt{\frac{D_A k_1}{\beta_L^2}} \quad (1.9.2.1.1)$$

ahol

Ha a *Hatta-szám* [-],

k_1 az elsőrendű reakció reakciósebességi együtthatója [s^{-1}],

D_A az „A” komponensre vonatkozó diffúziós állandó [$m^2 \cdot s^{-1}$],

δ_L a diffúziós határréteg vastagsága [m],

β_L az átadási tényező [$m \cdot s^{-1}$].

Amennyiben megfelelően gyors kémiai reakcióról van szó, az abszorbeált gáz diffúziós útja lerövidül, a határrétegben nagyobb lesz a koncentráció-gradiens, ennek köszönhetően pedig az abszorpció sebessége is növekedni fog a fizikai abszorpcióhoz képest. Ennek kifejezésére szolgál a gyorsítási tényező (Enhancement factor), mely az 1.9.1.1.2 számú egyenlet szerint definiált.

$$E = \frac{(j)_R}{j_A} \quad (1.9.2.1.2)$$

ahol

E a növekedési tényező [-],

j_A a komponens-áramsűrűség fizikai abszorpció esetén [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$],

$(j_A)_R$ a komponens-áramsűrűség, kémiai reakcióval is kísért abszorpció esetén [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$].

Az abszorpció sebességére jellemző komponens-áramsűrűség pedig egy gyors pszeudo-elsőrendű kémiai reakció mellett az 1.9.2.1.3 egyenlet szerint írható fel.

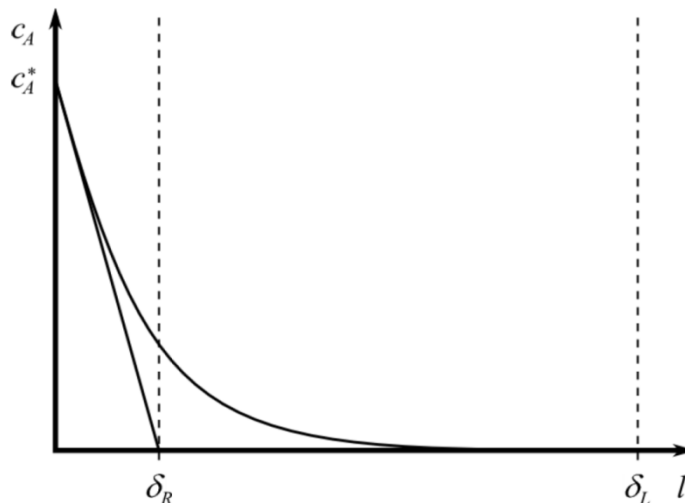
$$(j_A)_R = \beta_L c_A^* Ha = c_A^* \sqrt{k_1 D_A} \quad (1.9.2.1.3)$$

ahol

c_A^* az oldott gáz koncentrációja a határfelületen [$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$], amely egyensúlyban van a gáz határfelületi nyomásával.

Az 1.9.2.1.2 és 1.9.2.1.3 egyenletekből látható, hogy az abszorpció sebességét nem az anyagátadási tényező, hanem a kémiai reakció sebesség fogja meghatározni, illetve hogy a növekedési faktor is a reakciósebességgel fog együtt növekedni.

A gyors pszeudo-elsőrendű reakcióval kísért abszorpcióval kapcsolatban továbbá megállapították, hogy ha a kémiai reakció a diffúzió sebességéhez viszonyítva gyors, akkor az abszorbeált „A” gázfázisbeli komponens teljes mennyisége már a δ_L vastagságú határrétegben átalakul, koncentrációja már a filmen belül nullára csökken. Ennek köszönhetően a reakció-határréteg vastagsága kisebb lesz, mint a diffúziós határrétegé (22. ábra) [101].



22. ábra: Gyors pseudo-elsőrendű reakcióval kísért abszorpció koncentrácioprofilja a kétfilm-elmélet szerint [101]

1.9.2.2 Kétfilm-elmélet egy gyors irreverzibilis másodrendű reakcióval

Irreverzibilis másodrendű reakció esetén a Hatta-szám az 1.9.2.2.1 egyenlet szerint módosul.

$$Ha = \delta_L \sqrt{\frac{k_2 c_{Bb}}{D_A}} = \sqrt{\frac{D_A k_2 c_{Bb}}{\beta_L^2}} \quad (1.9.2.2.1)$$

ahol

k_2 a másodrendű reakció reakciósebességi-állandója [$\text{m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$],

c_{Bb} a „B” reaktáns koncentrációja a folyadékfázis belsejében [$\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$].

Ha a kémiai reakció gyorsabb, mint a diffúzió, akkor a reakció kizárólag a filmben fog lejátszódni. A kémiai reakció sebessége a diffúzióhoz viszonyítva olyan nagy lehet, hogy a „B” komponens nem jut el a fázishatár-felületéig, azaz a reakciózóna a film belsejében, a határfelülettől elszakadva jelenik meg. Ezt mutatja a 23. ábra. A leírt határesethez tartozó feltétel 1.9.2.2.2 számú egyenlet szerint definiált.

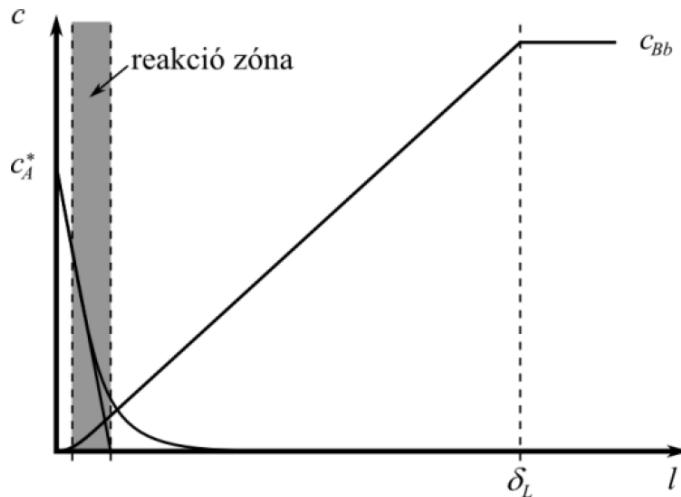
$$Ha \approx 5 \frac{\nu_A D_B c_{Bb}}{\nu_B D_A c_A^*} \quad (1.9.2.2.2)$$

ahol

D_B a „B” komponens diffúziós állandója [$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$],

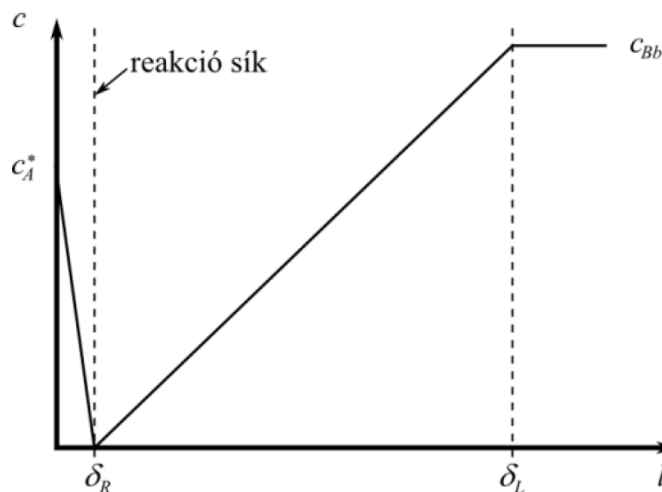
ν_A az „A” komponens sztöchiometriai együtthatója [-],

ν_B a „B” komponens sztöchiometriai együtthatója [-].



23. ábra: Gyors másodrendű reakcióval kísért abszorpció koncentrácioprofilja a kétfilm-elmélet szerint [101]

Szélsőséges esetben a kémiai reakció sebessége annyira nagy is lehet, hogy a reakciózóna helyett csupán reakciósíkról beszélhetünk (24. ábra).



24. ábra: Pillanatszerű másodrendű reakcióval kísért abszorpció koncentrácioprofilja a kétfilm-elmélet szerint [101]

Pillanatszerű másodrendű reakció esetén a fázishatár gáz oldala felől diffundáló „A” molekulák a reakciósíkban találkoznak a folyadékfázis belsejéből érkező „B” molekulákkal, és találkozásuk pillanatában azonnal elreagálnak. A másodrendű kémiai reakció 1.9.2.2.3 egyenlet érvényessége esetén nevezhető pillanatszerű reakciónak.

$$Ha > 10 \frac{v_A D_B c_{Bb}}{v_B D_A c_A^*} \quad (1.9.2.2.3)$$

Ekkor az abszorpció sebessége az 1.9.2.2.4 egyenlet szerint írható fel.

$$(j_A)_R = \frac{D_A}{\delta_R} c_A^* = \frac{D_A}{\delta_L} c_A^* \left(1 + \frac{v_A D_B c_{Bb}}{v_B D_A c_A^*} \right) = E_i \beta_L c_A^* \quad (1.9.2.2.4)$$

ahol

δ_R a reakciósík távolsága a határfelületről,

E_i pedig a pillanatszerű irreverzibilis reakció növekedési tényezője (1.9.2.2.5 egyenlet).

$$E_i = 1 + \frac{v_A D_B c_{Bb}}{v_B D_A c_A^*} \quad (1.9.2.2.5)$$

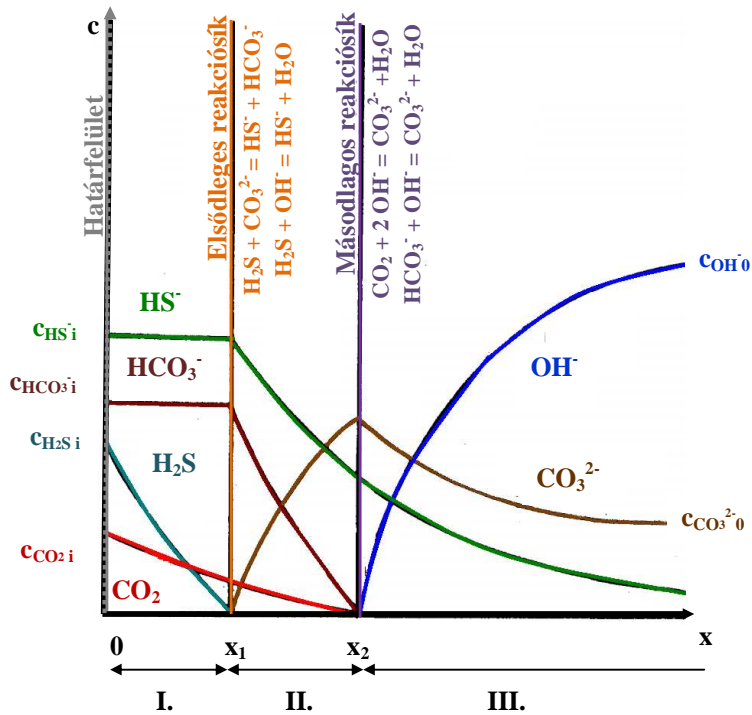
[101]

1.9.3 Kétfilm-elmélet kettő reakcióval kísérvé

Kakusaburo és munkatársai 1972-ben a kén-hidrogén és a szén-dioxid nátrium-hidroxid oldatban lezajló szimultán abszorpciójával foglalkoztak. Méréseiket nedvesített falu oszlopban (azaz filmréteges abszorberben) végezték el, eredményeiket az anyagátadás szempontjából vizsgálták. A kísérleteket 1 bar nyomáson és 25 °C hőmérsékleten hajtották végre. A vizsgálatokhoz felhasznált gázkeverék kén-hidrogén és szén-dioxid koncentrációjának aránya 1,14 volt, az abszorbens szempontjából pedig 0,1-1,0 g·l⁻¹ (0,01-0,1m/m%) koncentrációjú nátrium-hidroxid oldatokat alkalmaztak. A berendezésben 0,176 s kontaktidő és 33,2 cm² folyadék felület állt a gáz rendelkezésére a beoldódáshoz. Eredményeik szerint a kén-hidrogén abszorpciója szelektív módon valósult meg a vizsgálat folyamán. Mérési eredményeik megfeleltek a penetrációs – vagy más néven behatolási – elmélet alapján várt eredményekkel [103].

A penetrációs elmélet szerint a turbulens áramlású főtömegeből fluidumelemek válnak le, melyek a határzónán keresztül a fázishatárig áramolnak, ahol meghatározott ideig tartózkodnak, majd visszakerülnek a főtömegbe. A fluidumok érintkezési felülete folyamatosan megújul. A komponensátadás a fázishatáron lévő fluidumelemek között zajlik, mindaddig, amíg a fázishatáron tartózkodnak [101].

Kakusaburo és munkatársai megoldása szerint a folyadékfázis két reakciósík által három régióra különíthető el. A határreteget követően az elsődleges reakciósík a kén-hidrogén, a másodlagos pedig a szén-dioxid reakciójához tartozik. A szimultán abszorpcióhoz tartozó koncentráció profil a 25. ábrán látható [103].



25. ábra: Szén-dioxid és kén-hidrogén szimultán abszorpciójának koncentráció profilja a nátrium-hidroxid oldat fázisában [103]

Ha a jelenlévő komponensek között nincs elektromosan töltött molekula, illetve a gáz fázis ellenállása elhanyagolható nagyságú, akkor az alkalmazott modell alapján az egyes dx vastagságú folyadékrétegekben a komponensmérlegeket a 1.9.1.1-1.9.1.6 egyenletek szerint írhatjuk fel.

$$\frac{\partial c_{CO_2}}{\partial t} = D_{CO_2} \frac{\partial^2 c_{CO_2}}{\partial x^2} \quad (1.9.1.1)$$

$$\frac{\partial c_{H_2S}}{\partial t} = D_{H_2S} \frac{\partial^2 c_{H_2S}}{\partial x^2} \quad (1.9.1.2)$$

$$\frac{\partial c_{OH^-}}{\partial t} = D_{OH^-} \frac{\partial^2 c_{OH^-}}{\partial x^2} \quad (1.9.1.3)$$

$$\frac{\partial c_{CO_3^{2-}}}{\partial t} = D_{CO_3^{2-}} \frac{\partial^2 c_{CO_3^{2-}}}{\partial x^2} \quad (1.9.1.4)$$

$$\frac{\partial c_{HCO_3^-}}{\partial t} = D_{HCO_3^-} \frac{\partial^2 c_{HCO_3^-}}{\partial x^2} \quad (1.9.1.5)$$

$$\frac{\partial c_{HS^-}}{\partial t} = D_{HS^-} \frac{\partial^2 c_{HS^-}}{\partial x^2} \quad (1.9.1.6)$$

Az 1.9.1.1-1.9.1.6 egyenletekhez tartozó peremfeltételek pedig 1.9.1.7-1.9.1.12 egyenletek szerint definiáltak.

$$x > 0, \quad t = 0; \quad c_{CO_2} = c_{H_2S} = c_{HCO_3^-} = c_{HS^-} = 0, \quad c_{CO_3^{2-}} = c_{CO_3^{2-}{}_0}, \quad (1.9.1.7)$$

$$c_{OH^-} = c_{OH^-}_0$$

$$x = 0, \quad t > 0; \quad c_{CO_2} = c_{CO_2}{}_i, \quad (1.9.1.8)$$

$$c_{H_2S} = c_{H_2S}{}_i, \quad c_{HCO_3^-} = c_{HCO_3^-}{}_i, \quad c_{HS^-} = c_{HS^-}{}_i$$

$$x = x_1, \quad t > 0; \quad c_{H_2S} = c_{CO_3^{2-}} = 0 \quad (1.9.1.9)$$

$$-D_{H_2S} \frac{\partial c_{H_2S}}{\partial x} = D_{CO_3^{2-}{}_{II}} \left(\frac{\partial c_{CO_3^{2-}}}{\partial x} \right)_{II} = -D_{HCO_3^-} \frac{\partial c_{HCO_3^-}}{\partial x} = -D_{HS^-} \frac{\partial c_{HS^-}}{\partial x} \quad (1.9.1.10)$$

$$x = x_2, \quad t > 0; \quad c_{CO_2} = c_{OH^-} = c_{HCO_3^-} = 0 \quad (1.9.1.11)$$

$$D_{OH^-} \frac{\partial c_{OH^-}}{\partial x} = -2D_{CO_2} \frac{\partial c_{CO_2}}{\partial x} - D_{HCO_3^-} \frac{\partial c_{HCO_3^-}}{\partial x} \quad (1.9.1.12)$$

$$D_{CO_3^{2-}{}_{II}} \left(\frac{\partial c_{CO_3^{2-}}}{\partial x} \right)_{II} - D_{CO_3^{2-}{}_{III}} \left(\frac{\partial c_{CO_3^{2-}}}{\partial x} \right)_{III} \quad (1.9.1.13)$$

$$= -D_{HCO_3^-} \frac{\partial c_{HCO_3^-}}{\partial x} - D_{CO_2} \frac{\partial c_{CO_2}}{\partial x}$$

$$x = \infty, \quad t > 0; \quad c_{CO_2} = c_{H_2S} = c_{HCO_3^-} = c_{HS^-} = 0, \quad c_{CO_3^{2-}} = c_{CO_3^{2-}{}_0}, \quad (1.9.1.14)$$

$$c_{OH^-} = c_{OH^-}_0$$

ahol

t az időt [s],

x a határfelülettől való távolságot [cm],

c_{CO_2} , c_{H_2S} , c_{OH^-} , $c_{CO_3^{2-}}$, $c_{HCO_3^-}$, c_{HS^-} az alsóindexben szereplő komponens koncentrációját [g·mol·cm⁻³],

D_{CO_2} , D_{H_2S} , D_{OH^-} , $D_{CO_3^{2-}}$, $D_{HCO_3^-}$, D_{HS^-} az alsóindexben szereplő komponens diffúziós állandóját jelöli [cm²·s⁻¹].

Az i alsóindexszel ellátott tagok a gáz-folyadék határfelületére,

a 0 alsóindexszel ellátott tagok a folyadék főtömegére,

a II. alsóindexszel ellátott tagok az elsődleges és a másodlagos reakciósík közötti folyadékrészre,

a III. alsóindexszel ellátott tagok pedig a másodlagos reakciósíkot követő folyadékrész értékeire vonatkoznak, ahogy az a 25. ábráról értelemszerűen következik [103].

1.10 Kísérlettervezés és matematikai modell készítése

Az egyes technológiai eljárások esetében kiemelkedően fontos az optimális, illetve költséghatékony működés megvalósítása. Az optimális körülmények megtalálása, azonban általában kísérlettervezési program és matematikai modell megalkotása nélkül igen nehézkes és költséges, avagy szinte lehetetlen feladat.

A kísérlettervezés a statisztikatudomány azon ága, mely feladata annak meghatározása, hogy optimálisan mennyi és milyen kísérletet kell lefolytatni ahhoz, hogy az adott tervezési változók hatásáról és a célfüggvényről, ill. az optimálási feltételekről a legtöbb információt szerezhessük. Esetünkben ez azt jelenti, hány számítást, illetve mérést kell elvégezni és a tervezési változók mely értékei mellett ahhoz, hogy a meghatározott célfüggvény és optimálási feltételek alakulásához a legjobban közelítő válaszfelületet megalkothassuk, és az így alkotott matematikai modellen elvégezzük az optimumkeresést. A kísérlettervezés során célszerű minél több kísérlet elvégzésére vállalkozni, hogy az adott jelenség természetét igazán megismerhessük. Nem feltétlenül a legtöbb mérési ponttal végzett egyetlen kísérlet a legjobb mód a probléma feltárására. Ha mindig az előzőből tanulva és ennek a tapasztalatnak alapján alkotjuk meg a következő kísérletet, ez jóval hatékonyabb eljárást eredményez [104].

A kísérlettervezés végrehajtásához *Ronald A. Fisher* munkája alapján a következő lépések elvégzésére van szükség:

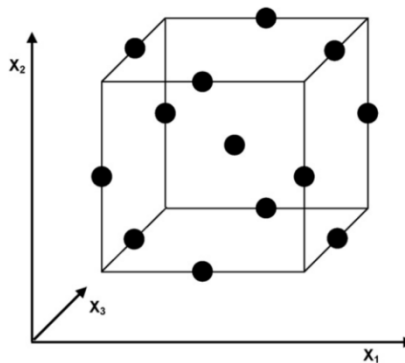
1. probléma megfogalmazása és típusának megállapítása;
2. tervezési változók kijelölése, a köztük levő kapcsolatok feltérképezése, értelmezési tartományuk meghatározása;
3. függő változók (azaz a célfüggvények és az optimálási feltételek) kijelölése;
4. független változók szintjeinek megválasztása (egy 3-szintű vizsgálat például, azt jelenti, hogy egy-egy független változó 3 különböző értékénél veszünk fel mérési pontokat);
5. kezdeti érték meghatározása: a kiválasztott pont legyen a várható optimum közelében, és ne essen az értelmezési tartomány határára;
6. szintek nagyságának meghatározása az alapszintre szimmetrikusan történjen;
7. dimenziómentesítés;
8. kombinációk megállapítása és tervezési mátrix felállítása;
9. kísérletek elvégzése;

10. matematikai modell (azaz válaszfelület) felállítása;
11. modell helyességének ellenőrzése (mennyire illeszkedik a tényleges adatokhoz);
12. együttthatók szignifikanciájának ellenőrzése (tényleg szükség van-e minden tagra);
13. együttthatók visszadimenzionálása;
14. az elkészült modell értelmezése [104-105]

A minimálisan szükséges mérési pontok számát az határozza meg, milyen pontosan szeretnénk közelíteni a helyettesítő függvényt, és mennyi interakciót kell figyelembe venni. Ha a válaszfüggvény viselkedését lineárisan közelítjük, akkor kétszintű kísérlet végrehajtása is elegendő. Másodfokú viselkedés esetén azonban háromszintű kísérletre van szükség, míg köbös viselkedés esetén négy szintű kísérlet szükséges [104].

1.10.1 Box-Behnken terv (Box-Behnken Design = BBD)

A BBD a hagyományos statisztikai kritériumokon alapuló kísérlettervezési módszerek közé tartozik, mely másodrendű matematikai modell létrehozásához jól alkalmazható. A BBD alapja, hogy minden független változónak három egyenletes távolságban levő szintje van, és a független változók száma is minimum 3 (26. ábra). A BBD alkalmazásával kapott eredményekből a továbbiakban a válaszfelület modellezése is könnyen megvalósítható [104].



26. ábra: Az elvégzendő mérési pontok szemléltetése 3 szint és 3 tervezési változó esetében BBD módszerrel [106]

1.10.2 A válaszfelület matematikai leírása

A módszer lényege, hogy egy sor pontra optimálisan igyekszünk illeszteni egy közelítő válaszfelületet. Ha tervezési tér lineáris, akkor 1.10.2.1 egyenlet, ha pedig másodrendű polinom, akkor 1.10.2.2 egyenlet adja a megfelelően közelítő választ,

$$y = \beta_0 + \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \dots + \beta_N x_N \quad (1.10.2.1)$$

$$y = \beta_0 + \sum_{i=1}^k \beta_i x_i + \sum_{i=1}^k \beta_{ii} x_i^2 + \sum_{i=1}^k \sum_{j=1(i \neq j)}^k \beta_{ij} x_i x_j \quad (1.10.2.2)$$

ahol

y a célfüggvényt,

x_1, x_2, \dots, x_N a tervezési változókat,

β_0 egy konstans értéket,

$\beta_1 \dots \beta_N$ pedig szorzótényezőköt jelöli [104].

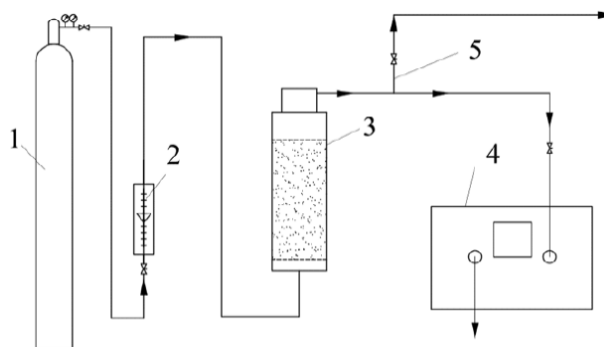
2. Célküzések, felhasznált anyagok, eszközök és módszerek

Kísérleti munkám során a kén-hidrogén és a szén-dioxid alkáli lúgokban lezajló kompetitív kemisorpcióját tanulmányoztam. Célom a szelektív, hatékony és gazdaságos kén-hidrogén abszorpció megvalósítása volt szén-dioxidot is tartalmazó földgázáramok esetében.

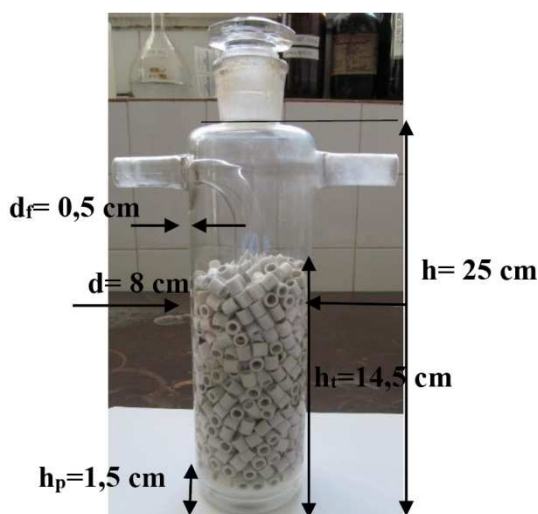
Mint azt az irodalmi részben már bemutattam a szelektív, hatékony és gazdaságos kén-hidrogén megkötés kivitelezéséhez a tartózkodási idő minimalizálása (<1 s) és a fázisok érintkeztetésének tökéletesítése elengedhetetlen fontosságú. A hagyományos abszorberek alkalmatlanok a feladat megoldására – ahogy azt félfolyamatos töltetes abszorberrel végzett elő-kísérleti eredményeim is mutatni fogják (3.1 fejezet) – ezért kísérleteimet egy speciális kialakítású jet reaktor segítségével végeztem el. Méréseimhez szén-dioxidot, kén-hidrogént és nitrogént tartalmazó modell gázkeverékeket használtam fel. A jet reaktorban az alábbi paraméterek hatását vizsgáltam a gáztisztítás (szelektív kén-hidrogénmentesítés) hatásfokára: abszorbens térfogatárama; abszorbens koncentrációja; abszorbens alapanyaga (kálium- és nátrium-hidroxid); gáz térfogatárama; gáz összetétele; gáz nyomása és fúvóka átmérője. A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka azonban számos további tényezőtől is függ, ezért a rendszer összefüggéseinek megismerése és az optimális működési tartomány feltérképezése is a feladatom volt.

2.1 Félfolyamatos töltetes abszorber

Első kísérleteimet egy félfolyamatos töltetes abszorber segítségével végeztem el, mely sematikus kapcsolási rajza a 27. ábrán, méretei a 28. ábrán látható. A berendezés a gázáram szempontjából folyamatos, a folyadék betáplálás oldaláról tekintve pedig szakaszos működésű volt. Az abszorberben a gázáram egyenletes eloszlását a reaktor alsó részén elhelyezett perforált üveg fritt biztosította. Az érintkezési felületek növelésének céljából töltetként 0,8 cm átmérőjű Raschig gyűrűt alkalmaztam. Az összes hasznos fajlagos felület így $5003 \text{ cm}^2 \cdot \text{cm}^{-3}$ -nek adódott.



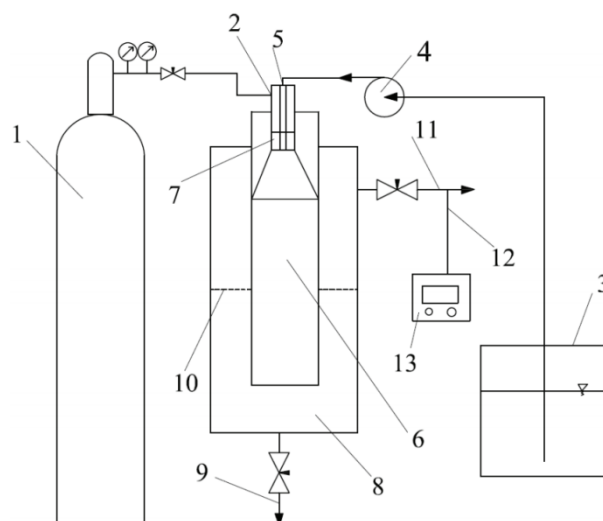
27. ábra: Félfolyamatos töltetes abszorber kapcsolási rajza
(1 – reduktorral felszerelt gázpalack; 2 - rotaméter; 3 – üveg frittel ellátott töltetes abszorber; 4 - DrägerX-am 7000 gázanalizátor; 5 - T elosztó)



28. ábra: Félfolyamatos töltetes abszorber méretei

2.2 Laboratóriumi jet reaktor

A félfolyamatos töltött abszorberrel végzett mérések követően kísérleti munkámat egy laboratóriumi méretű, speciális konstrukciójú jet reaktor alkalmazásával folytattam. A berendezés fejlesztésében a Miskolci Egyetem Alkalmazott Földtudományi Kutatóintézet, Műszerfejlesztési és Informatikai Osztálya és a Pannon Egyetem Vegyészmérnöki és Folyamatmérnöki Intézet, Vegyipari Műveleti Intézeti Tanszéke egyaránt részt vett. A kutatási projektet a MOL Nyrt. támogatta. Ennek okán laboratóriumi méréseimhez használt berendezés kapcsolási rajza – ahogy az a 29. ábrán is látszik – megegyezik Vágó Árpád és munkatársai által tervezett konstrukcióval (11. ábra). A berendezés – mely fényképen, a 30. ábrán is megtekinthető – részletes működési leírása a következőkben olvasható.



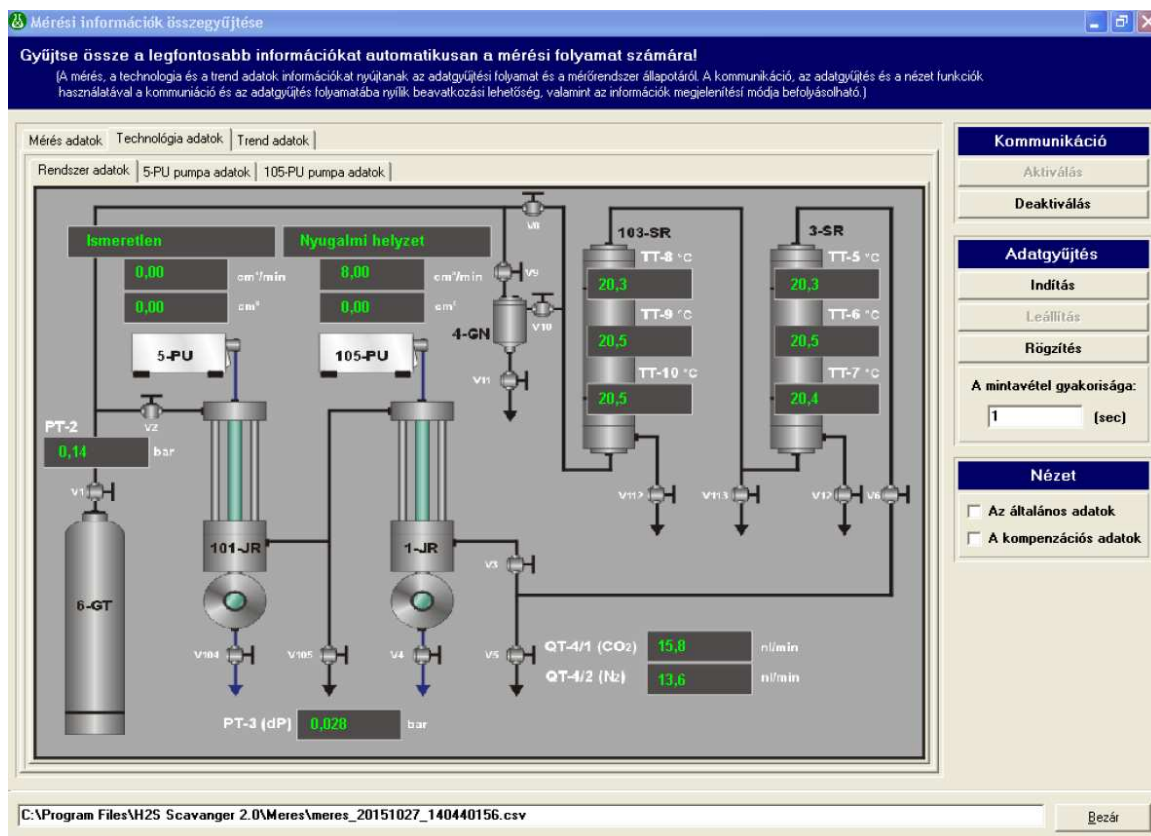
29. ábra: Speciális kialakítású laboratóriumi jet reaktor kapcsolási rajza (1-reduktorral ellátott gázipalack; 2-gáz bevezetés; 3-abszorbens tartály; 4-vegyszer adagoló szivattyú; 5-lég bevezetés; 6-reakciótér; 7-fúvóka; 8-szeparációtér; 9-használt lóg kivezetés; 10-cseppfogó; 11-gázkilépés; 12-gázmintavétel; 13-gázanalizátor) [11]



30. ábra: Speciális kialakítású laboratóriumi jet reaktor fényképe

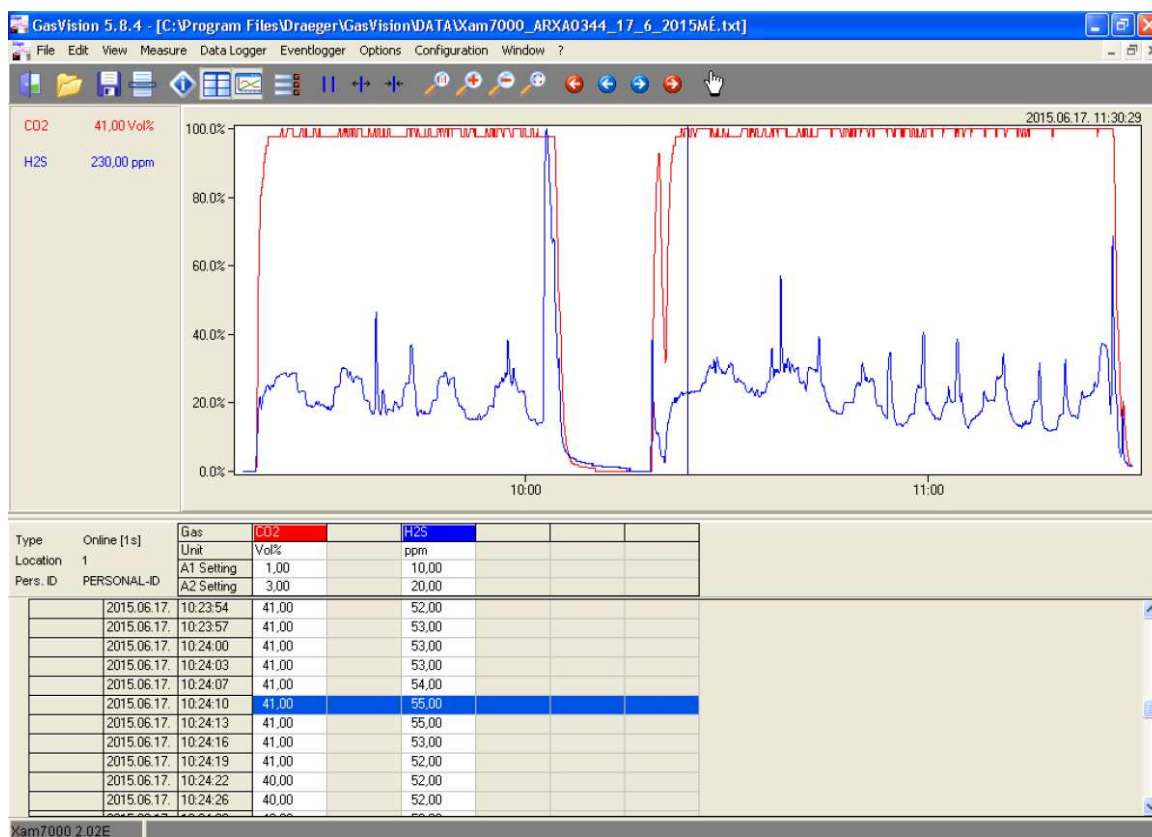
A művelet során az adott gázkeverék a palackból (1) a fúvókán (7) keresztül a reakciótérbe (6) lép, miközben beporlasztja a folyadéktartályból (3) érkező lógoldatot. A belépő gáz nyomása és térfogatárama a berendezésen mechanikusan túszelepek segítségével szabályozható. A folyamatos lógbetáplálást az adagolószivattyú (4) biztosítja, amely $0,01-10 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ folyadékáram szállítására képes. A lóg betáplálás nagysága a számítógépen lévő Scavenger H₂S 2.0 szoftver segítségével, valamint a szivattyú kezelőfelületén is változtatható. A reaktor kilépő oldalán egy cseppfogóval ellátott látóüveges szeperator cella (8) található, melyből mechanikus úton lehetőség van a felgyült szennylóg leengedésére (9). A kilépő gáz expanziós szelepen keresztül hagyja el a berendezést. A készülék 50 bar üzemi nyomás, $5000 \text{ Ndm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-

térfogatáram és maximum 5 bar nyomásesés tartományában üzemeltethető. A kilépő gáz csővezetéken keresztül az elszívó fülkébe áramlik, ahol Y-osztó alkalmazásával kettéválik, egy része lefűtésre, másik része pedig analizálásra kerül. A kilépő gáz kénhidrogén és szén-dioxid tartalmát DrägerX-am 7000 analizátor segítségével mértem (13). A lefűtatott gázt biztonsági okokból hidrogén-peroxidot és nátrium-hidroxidot tartalmazó elnyelő oldatba vezettem az elszívó fülkén belül. Az aktuális mérési körülményeket a már említett Scavanger H2S 2.0 szoftver segítségével tudtam nyomon követni (31. ábra). A szoftver felületéről az aktuális nyomás, nyomásesés, gáz-térfogatáram és a folyadékbetáplálás is leolvasható. A berendezés kialakítása lehetővé teszi a kaskád elrendezésben való vizsgálatokat, valamint az adszorpciós méréseket is. Az általam használt berendezést az 1-JR reaktor és 105-PU pompa jelöli.



31. ábra: Scavanger H2S 2.0 szoftver felülete

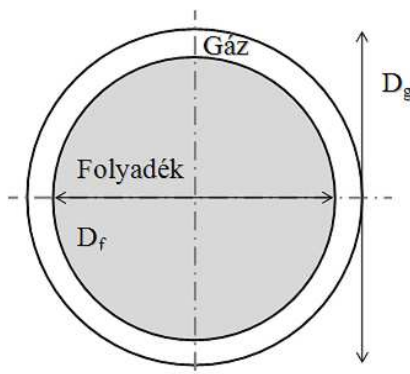
A DrägerX-am 7000 gázanalizátor (32. ábra) eredményeit USB összeköttetés révén, számítógépen is nyomon tudtam követni a Gas Vision 5.8.4. programnak köszönhetően.



32. ábra: Gas Vision 5.8.4. program felülete

A technológia két legfontosabb eleme a külső keverésű pneumatikus porlasztófej, illetve a turbulens szabad sugár kialakulásának megfelelő kúpos kialakítású reakciótér.

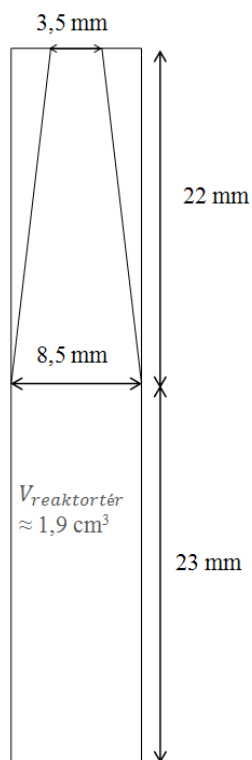
A laboratóriumi mérések folyamán az 1,7 és 1,8 mm átmérőjű fúvókák összehasonlítását is elvégeztem. A fúvókaátmérő lényegében a gázcső átmérőjét (D_g) adja meg, ebben egy 1,6 mm (D_f) átmérőjű kapilláris található, amelyben a folyadékfázis áramlik, tehát a gáz körgyűrű formában lép ki a porlasztóból és kerül a reakciótérbe (33. ábra).



33. ábra: Porlasztófej keresztmetszeti ábrája

A kísérleti munkámhoz használt reaktortest a 34. ábrán látható. Ez egy műanyag betétcső, mely két részből – egy csonka kúpból és egy hengerből – tevődik össze. (A

kúpos rész eredeti kúpszöge 10° volt.) A műanyag betétcsövet a mérések alatt egy 1 cm falvastagságú polikarbonát csőben helyeztem el biztonságtechnikai okokból.



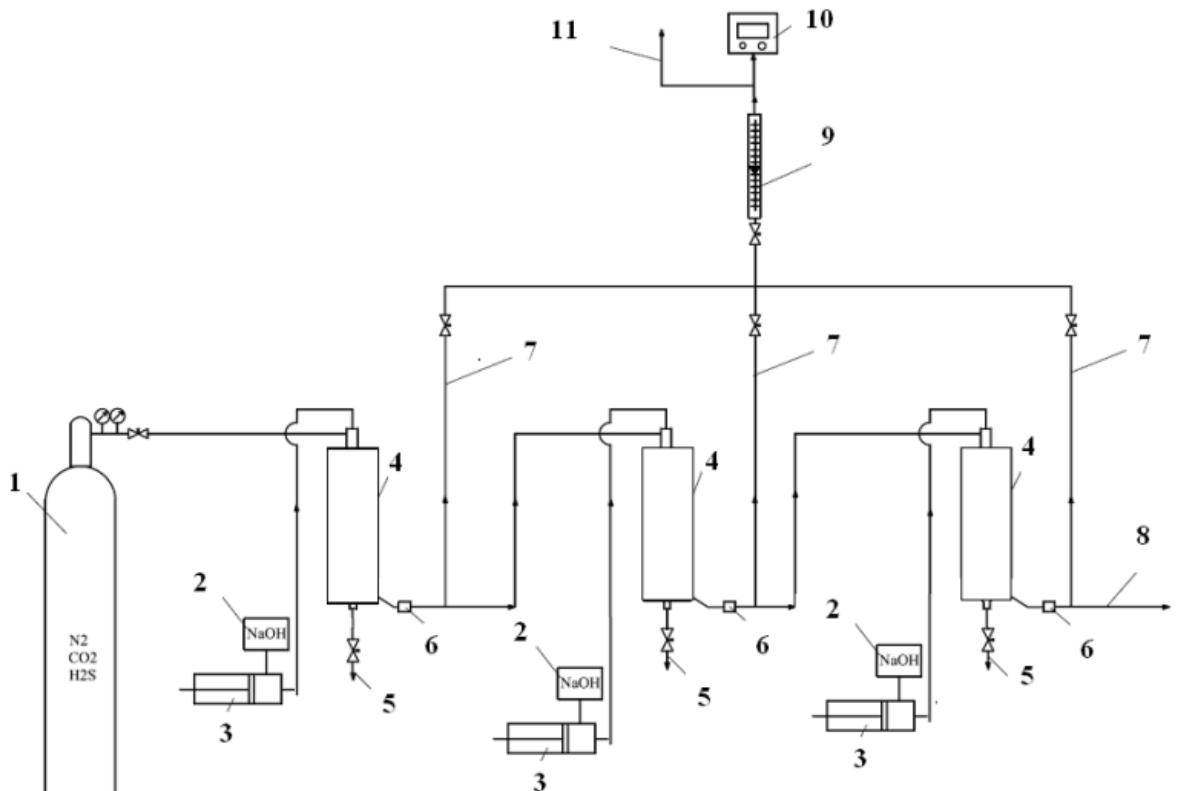
34. ábra: Jet reaktortest

Az újonnan kialakított speciális jet reaktor számos előnnyel rendelkezik a félfolyamatos töltetes abszorberhez képest, mivel:

- folyamatos működés is megvalósítható általa,
- a fázisérintkeztetés javul a porlasztási technika bevezetésének köszönhetően,
- a kontaktidő 1 s alatt biztosítható,
- valamint a vizsgált gáz nyomása és térfogatárama függetlenül változtatható a folyadék betáplálás sebességétől.

2.3 Laboratóriumi jet reaktorok sorba kapcsolása

Munkám során jet reaktorok három-elemű sorba kapcsolt konstrukciójával is végeztem kísérleteket, ennek egyszerűsített kapcsolási rajza és fényképe a 35. és a 36. ábrán látható. A sorba kapcsolt elemek mindegyike megegyezett a 2.2 fejezetben ismertetett berendezéssel.



35. ábra: Sorba kapcsolt három-elemű jet reaktor kapcsolási rajza
 (1-gázkeverék; 2-lúgtartály; 3-dugattyús szivattyú; 4-reaktortest; 5-szennylúg; 6-szűrő; 7-gázmintavevő ágak; 8-tisztított gáz; 9-rotaméter; 10-gázelemző; 11-gázlefúvatás)



36. ábra: Sorba kapcsolt három-elemű jet reaktor fényképe

2.4 Gáz előkészítés

Kísérleti munkám során szén-dioxidból, kén-hidrogénből és nitrogénből álló modell gázkeverékekkel dolgoztam. A gázpalackok töltése a Vegyipari Műveleti Intézeti Tanszéken történt a tanszékhez tartozó palacktöltő állomáson. A gázkeverékek elkészítéséhez, palackba fejtéséhez saválló szerelvényekből készített keverő telepet használtunk. A pontos kén-hidrogén tartalom beméréshez előzőleg tiszta kén-hidrogénből és 4.5 (azaz minimum 99,995V/V%-os) nitrogénből készítettünk egy

10000 ppmv kén-hidrogén tartalmú törzskeveréket. A továbbiakban élelmiszerminőségű szén-dioxidot, 4.5 nitrogén gázt és az említett törzskeveréket használtuk fel a modell gázkeverékek elkészítéséhez. A gázkeverékek pontos összetételét minden mérés előtt a DrägerX-am 7000 készülékkel ellenőriztem. A tervezett gázösszetétel elfogadható pontosságát $\pm 5\%$ -ban határoztam meg.

2.5 Abszorbens előkészítés

A laboratóriumi méréseim során többféle koncentrációjú nátrium-hidroxid, illetve kálium-hidroxid abszorbenssel is dolgoztam. Minden esetben AnalR NORMAPUR szilárd szemcsés termékeiből készítettem az oldatokat. Az elkészült abszorbens-oldatok koncentrációját minden esetben sav-bázis titrálással fenolftalein indikátor mellett ellenőriztem.

2.6 Gázanalítika

A vizsgált gázáramok kén-hidrogén és szén-dioxid tartalmát DrägerX-am7000 elnevezésű gáz-analizátor (37. ábra) segítségével határoztam meg. A laboratóriumi kísérletek során két készüléket is alkalmaztam az adott gázösszetételnek megfelelően. Az egyik mérési tartománya 0-100 ppmv, a másiké 0-1000 ppmv kén-hidrogén volt.

A DrägerX-am7000 gázanalizátorok elektrokémiai diffúziós szenzorok segítségével képesek a kén-hidrogén tartalom detektálására. A 0-100 ppmv kén-hidrogén koncentráció mérésére alkalmas szenzor (DrägerSensor®H2S HC – 68 10 435) hibatartománya a mindenkori mérés kevesebb, mint $\pm 3\%$ vagy kevesebb, mint $\pm 0,5$ ppmv. A 0-1000 ppmv kén-hidrogén tartalom mérésére alkalmas szenzor (DrägerSensor®H2S HC – 68 09 710) hibatartománya a mindenkori mérés kevesebb, mint $\pm 3\%$ vagy kevesebb, mint ± 4 ppmv.

Mindkét készülék DrägerSensor®Smart IR CO2HC –68 10 599 infravörös szenzort is tartalmazott a szén-dioxid koncentráció meghatározásához. A készülékek méréstartománya szén-dioxidra nézve 0-100V/V% és hibatartományuk kevesebb, mint $\pm 3\%$ [107].



37. ábra: DrägerX-am 7000 [107]

2.7 Az eredmények kiértékelése során használt alapvető képletek és fogalmak

Az eredmények rész ismertetése előtt mindenképp szükség van bizonyos fogalmak definiálására.

A lúgfajlagos a folyamat egyik legfontosabb változója, amely lényegében a bevezetett lúg, és a kén-hidrogén komponensáramának aránya (2.7.1 egyenlet).

$$\text{Lúgfajlagos} = \frac{\dot{n}_{OH^-}}{\dot{n}_{H_2S}} \quad (2.7.1)$$

ahol

\dot{n}_{OH^-} a bevezetett lúg anyagmennyiségének árama [$\text{mol}_{OH^-} \cdot \text{h}^{-1}$],

\dot{n}_{H_2S} pedig a betáplált gáz kén-hidrogéntartalmának anyagmennyiségének áramára vonatkozik [$\text{mol}_{H_2S} \cdot \text{h}^{-1}$].

A lúgfajlagos mértékegysége 2.7.1 egyenlet alapján $\text{mol}_{OH^-} \cdot \text{mol}_{H_2S}^{-1}$. Azon esetekben, amikor kizárólag nátrium-hidroxid abszorbenst használtam a kísérletek elvégzéséhez, a mértékegységét $\text{mol}_{NaOH} \cdot \text{mol}_{H_2S}^{-1}$ -el jelöltem.

A vizsgált rendszer szempontjából a hatásfok is egy fontos mutatószám, ami a 2.7.2 egyenlet alapján számolható.

$$\text{Hatásfok} = \frac{(c_{H_2S_{be}} - c_{H_2S_{ki}})}{c_{H_2S_{be}}} \cdot 100 \quad (2.7.2)$$

ahol

$c_{H_2S_{be}}$ a belépő kén-hidrogén tartalom [ppmv],

$c_{H_2S_{ki}}$ a kilépő kén-hidrogén tartalom [ppmv],

a hatásfok értékét pedig %-ban kifejezve kapjuk meg.

Megjegyzem, hogy az alkáli lúgos kompetitív kemisorpció kulcsparaméterei közé tartozik a gáz-folyadék érintkeztetési idő – vagy más néven kontaktidő – is. Kontaktidő alatt azt az időtartamot értem, melyet a gáz a reaktortérben eltölt. A kontaktidő 2.7.3 egyenlet szerint definiálható.

$$t_{gáz\ kontakt} = \frac{V_{reaktortér}}{\dot{V}_{gáz}} \quad (2.7.3)$$

ahol

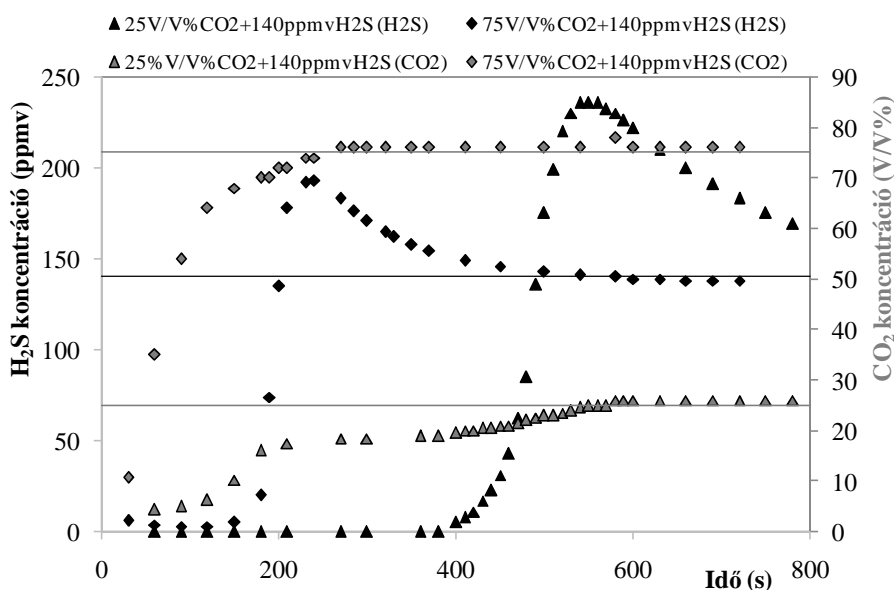
$V_{reaktortér}$ az adott reaktortesthez tartozó térfogat [m^3],

$\dot{V}_{gáz}$ a gáz térfogatárama [$m^3 \cdot s^{-1}$] [25; 27].

3. Eredmények

3.1 Előkísérleti eredmények félfolyamatos töltetes abszorberben

A 38. ábrán a félfolyamatos töltetes abszorberrel végzett mérés eredménye látható két különböző gázkeverék esetére. Abszorbensként $0,37 \text{ dm}^3$ térfogatú $1\text{m/m}\%$ koncentrációjú nátrium-hidroxid oldatot alkalmaztam mindkét mérésnél. A bevezetett gáz térfogatárama $150 \text{ dm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ volt (1 bar; szobahőmérséklet). A mérés során az abszorberből kilépő gáz kén-hidrogén és szén-dioxid koncentrációját követtem nyomon az idő függvényében.



38. ábra: Az abszorberből kilépő gáz összetételének változása az idő függvényében $0,37 \text{ dm}^3$ $1\text{m/m}\%$ -os nátrium-hidroxid abszorbens és $150 \text{ dm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gázáram esetében két különböző gázösszetételre

Ha megfigyeljük a 38. ábrát, láthatjuk, hogy eleinte a kén-hidrogén tartalom 100%-a elnyelődött a folyadék fázisban. Ezt követően a kilépési kén-hidrogén szint az oldat telítődésének következtében hirtelen emelkedésnek indult, elérte a belépési koncentrációt, sőt túl is szárnyalta azt, majd végezetül pedig visszacsökkent az eredeti belépési értékre. A kén-hidrogén tartalom visszacsökkenésével egyidejűleg a szén-dioxid koncentráció is elérte a belépési koncentrációjának megfelelő állandó szintet. A két különböző gázösszetételhez tartozó eredmények alapján megállapítható, hogy a gázkeverék szén-dioxid tartalmának növelése az abszorbens telítődési idejének csökkenéséhez vezet. A tapasztalt „lelökődési” effektus pedig azzal magyarázható, hogy a szén-dioxid képes leszorítani a már megkötődött kén-hidrogént az abszorbensből. Ehhez esetünkben az oldatban kialakult pH viszonyok (folyamatosan csökkenő pH) és a

túl hosszú (másodperces nagyságrendű) tartózkodási idő egyaránt hozzájárult. Az effektus mindenképp elkerülendő.

3.2 Kísérleti eredmények jet reaktor alkalmazása esetén

Kísérleti munkám kezdetén a Pannon Egyetem, Vegyipari Műveleti Intézeti Tanszékén elsődlegesen 30 bar nyomáson végeztem kísérleteimet, ugyanis ipari körülmények között is – a gázzállítás gazdasági tényezői miatt – jellemzően magas nyomású, komprimált gázáramokat alkalmaznak. A mérések végrehajtásához a 29. és a 30. ábrán látható jet reaktort alkalmaztam, mely speciális kialakítású – a turbulens szabad sugár kialakulásának kedvező – reaktortérrel rendelkező (34. ábra). A vizsgálatok során a következő paraméterek hatékonyára gyakorolt hatását vizsgáltam meg: abszorbens- és gáz-térfogatáram, lúgkoncentráció, gázösszetétel, nyomás, fúvókaátmérő, és abszorbens alapanyag. A vizsgálatnak alávetett teljes tartomány részletei a 3. táblázatban olvashatók.

3. táblázat: Kísérleti körülmények a teljes mérési tartomány

Tényezők	Minimum	Maximum	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid						
abszorbens-oldat koncentrációja	0,5	2,5	-	-	m/m%	c_{NaOH}
Kálium-hidroxid						
abszorbens-oldat koncentrációja	-	-	0,7			c_{KOH}
Abszorbens-térfogatáram	1	10	2	6	$\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{abszorbens}}$
Gázkeverék kénhidrogén tartalma	70	585	84		ppmv	$c_{\text{H}_2\text{S}}$
Gázkeverék széndioxid tartalma	0	80	41		V/V%	c_{CO_2}
Gáz-térfogatáram	0,7	3,2	1,0	2,4	$\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{gáz}}$
Kontaktidő	0,01	0,29	0,01	0,21	s	$t_{\text{gáz kontakt}}$
Nyomás	5	30	5		bar	p
Hőmérséklet		szobahőmérséklet (~20)			°C	T
Fúvókaátmérő	1,7	1,8	1,8		mm	D_g

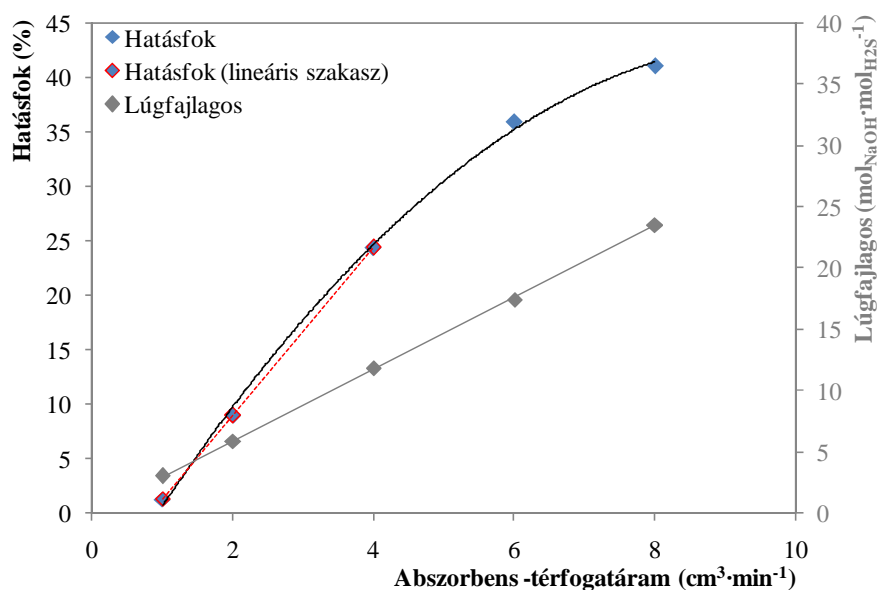
3.2.1 Az abszorbens térfogatáramának hatása a hatékonyságra és a lúgfajlagosra

Az abszorbens térfogatáramának hatását a 4. táblázatban ismertetett körülmények biztosításakor eredményül kapott esetre mutatom be.

4. táblázat: Kísérleti körülmények az abszorbens-térfogatáram hatásának bemutatásakor

Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja	1,5		m/m%	c_{NaOH}
Abszorbens-térfogatáram	1	8	$\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{abszorbens}}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma	78		ppmv	$c_{\text{H}_2\text{S}}$
Gázkeverék szén-dioxid tartalma	58		V/V%	c_{CO_2}
Gáz-térfogatáram	2,4		$\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{gáz}}$
Kontaktidő	0,08		s	$t_{\text{gáz kontakt}}$
Nyomás	30		bar	p
Hőmérséklet	szobahőmérséklet (~20)		°C	T
Fúvókaátmérő	1,8		mm	D_g

Ebben az esetben egy viszonylag magas szén-dioxid tartalommal rendelkező gázkeverék mérési eredményeit láthatjuk, a vizsgált gáz-térfogatáram tartomány közbenső értékénél a legtöményebb lúgoldattal, ahol a görbe lefutása jól szemlélteti a rendszer működését (39. ábra).

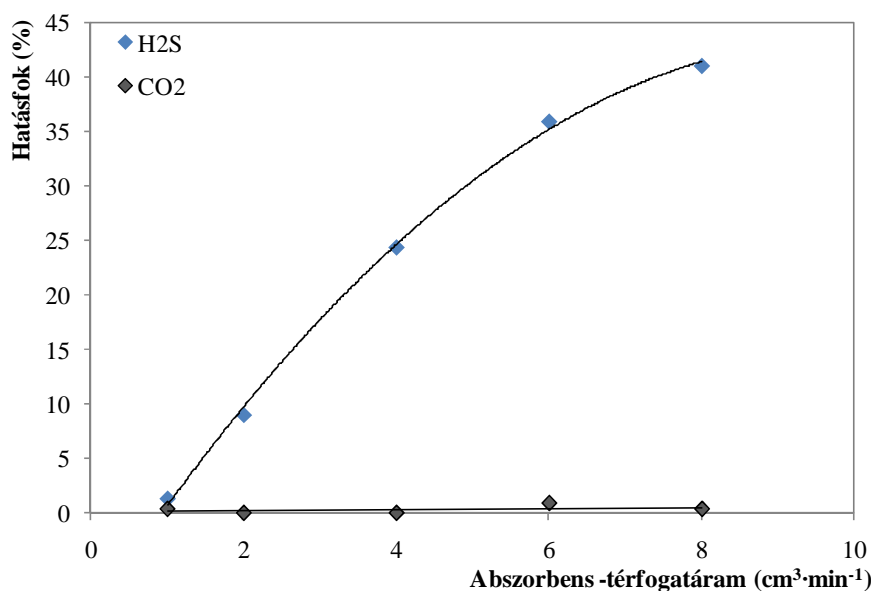


39. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka és lúgfajlagosa az abszorbens térfogatáramának függvényében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; $2,4 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; $1,5 \text{ m/m\%}$ nátrium-hidroxid oldat)

A 39. ábra alapján megállapítható, hogy az abszorbens térfogatáramának emelésével a kén-hidrogén eltávolítás hatásfoka eleinte lineárisan növekszik, de összességében a kapott függvény egy maximális érték felé tart, telítési görbe alakját veszi fel a mért tartományban. Ennek oka, hogy az abszorbens-térfogatáram, illetve a lúgfajlagos emelésével a hatásfok csak limitáltan fokozható a porlasztási minőség – átadási felületképződés nagyságának – változásában keresendő. (Ennek vizsgálatával a dolgozat további részeiben még részletesen foglalkozom.)

A 39. ábrán a másodlagos y tengelyen az is megfigyelhető, hogy az abszorbens áramának emelésével a lúgfajlagos értéke lineárisan növekszik. Ez azért fontos, mert a rendszer hatásfokát a továbbiakban a lúgfajlagos függvényében is vizsgálni fogom, ugyanis a hatásfok maximalizálása mellett a gazdaságos működés megvalósítása egyaránt elérni kívánt céljaim közt szerepelt.

Megjegyzem a szén-dioxid be- és kilépő koncentrációjának különbsége az összes vizsgált gázédesítési művelet alatt mindvégig 1V/V% alatt maradt, ami a gázanalizátor mérési hibatarományán belül eső érték. Ez azt jelenti, hogy a szén-dioxid abszorpció az általam használt készülék alkalmazásával jelentősen visszaszorítható, és a kén-hidrogén tartalom szelektív módon eltávolítható a gázáram fő tömegétől. Ezt bizonyítja a 40. ábra is, melyen a kén-hidrogén és a szén-dioxid abszorpció hatásfoka egyaránt látható.



40. ábra: A kén-hidrogén és szén-dioxid abszorpció hatásfoka é az abszorbens térfogatáramának függvényében
(78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,4 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 40. ábra jól szemlélteti, hogy – annak ellenére, hogy a szén-dioxid jelentősen (nagyságrendbeli különbségekkel) nagyobb mennyiségben van jelen a gázáramban – a szén-dioxid abszorpció hatásfoka elhanyagolható a kén-hidrogén abszorpcióhoz képest.

Ez alapján az is kijelenthető, hogy az általam használt készülék alkalmas a tervezett cél megvalósítására, azaz szén-dioxidot is tartalmazó gázáramok kén-hidrogén tartalmának szelektív eltávolítására.

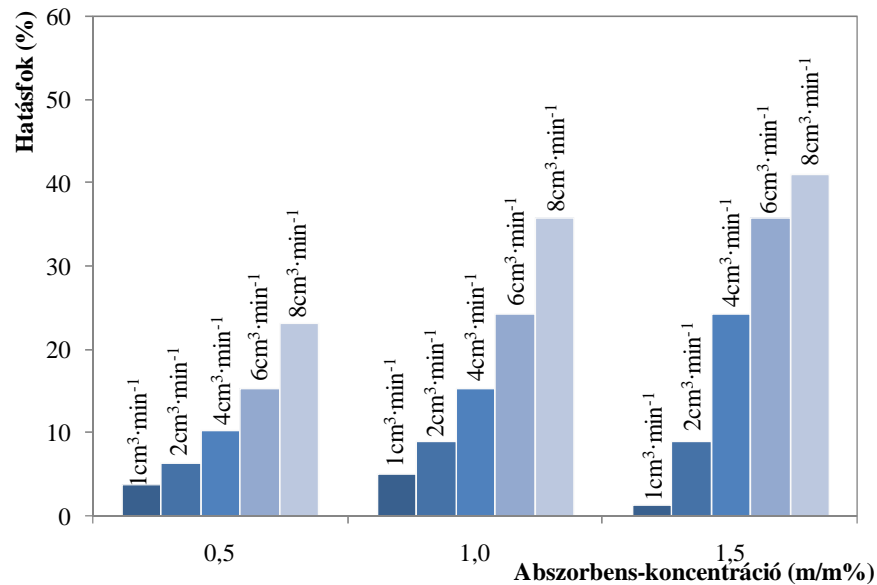
3.2.2 Különböző koncentrációjú abszorbensek hatása a hatékonyságra és a lúgfajlagosra

A nátrium-hidroxid abszorbens oldat koncentrációjának hatását az 5. táblázatban megadott körülmények esetére mutatom be.

5. táblázat: Kísérleti körülmények az abszorbens-koncentráció hatásának bemutatásakor

Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja	0,5	1,5	m/m%	c_{NaOH}
Abszorbens-térfogatáram	1	8	$\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{abszorbens}}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma	78		ppmv	$c_{\text{H}_2\text{S}}$
Gázkeverék szén-dioxid tartalma	58		V/V%	c_{CO_2}
Gáz-térfogatáram	2,4		$\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{gáz}}$
Kontaktidő	0,08		s	$t_{\text{gáz kontakt}}$
Nyomás	30		bar	p
Hőmérséklet	szobahőmérséklet (~20)		°C	T
Fúvókaátmérő	1,8		mm	D_g

A vizsgált tartomány lényegében megegyezik a 3.2.1 fejezetben vizsgált intervallummal a lúgkoncentráció paramétertartományának kiterjesztésével. Az eredmények a 41-43. ábrán láthatóak.



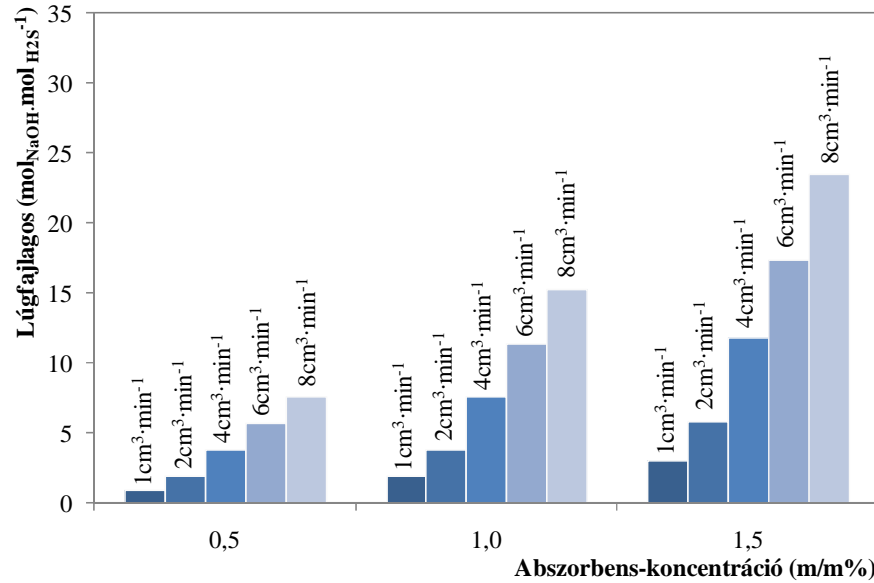
41. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az abszorbens térfogatáramának függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetén (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,4 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

A 41. ábra alapján az mondható, hogy a hatásfok a lúgkoncentráció emelésével fokozható. Ez az eredmény értelemszerűen azzal magyarázható, hogy adott lúg-térfogatáram, de magasabb abszorbens-koncentráció esetén időegység alatt több nátrium-hidroxid molekula van jelen a rendszerben.

Ha anyag- és költség-hatékony módon akarunk eljárni, akkor a lúgfajlagos függvényében is érdemes megvizsgálni a kapott eredményeket (43. ábra).

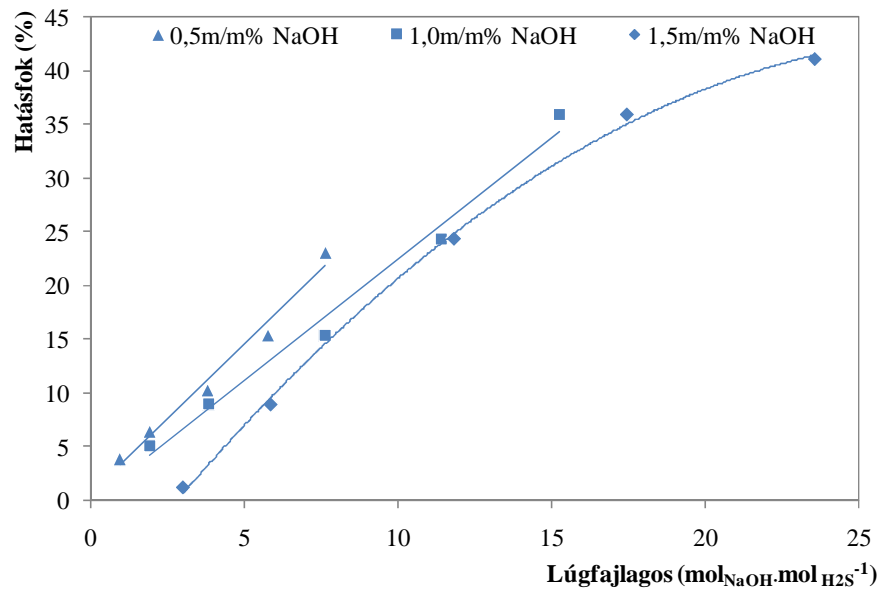
Megjegyzem, hogy ipari szempontból a hatékony (legalább 50%-os) kén-hidrogén abszorpció 10 mol_{NaOH}·mol_{H₂S}⁻¹ lúgfajlagos alatt mondható gazdaságos megoldásnak.

A lúgfajlagos függvényében ábrázolt hatásfok eredmények bemutatása előtt azonban az abszorbens-térfogatáram és a lúgkoncentráció változtatás lúgfajlagosra gyakorolt hatását ismertetem (42. ábra).



42. ábra: A lúgfajlagos változása az abszorbens-térfogatáram illetve lúgkoncentráció függvényében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,4 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

A 42. ábra alapján látható, hogy a lúgfajlagos adott gázkeverék, nyomás és gázáram mellett az abszorbens-koncentráció és -térfogatáram függvénye.



43. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetén (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,4 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

A 43. ábrán látható, hogy ha olyan lúgfajlagos értéket választunk, mely mindhárom lúgkoncentrációval biztosítható volt, akkor ugyanazon lúgfajlagos biztosítása mellett a kisebb koncentráció okozta a jobb hatékonyságot.

E tapasztalat magyarázata több oldalról is megközelíthető.

Ismert tény, hogy az abszorbens oldat pH értéke befolyásolja a lúghasznosítás mértékét. 10-es pH érték körül jobb vegyszerhasznosulás érhető el, mint például 13-as kémhatású lúgoldatoknál. A lúgkoncentráció csökkenésével pedig a pH is csökken.

Továbbá a porlasztás minősége, azaz a képződött cseppek átmérője és átadási felület nagysága függ a beporlasztott oldat fizikai jellemzőitől is (sűrűség, viszkozitás, felületi feszültség).

3.2.3 A gáz térfogatáram hatásának vizsgálata a hatékonyságra és a lúgfajlagosra

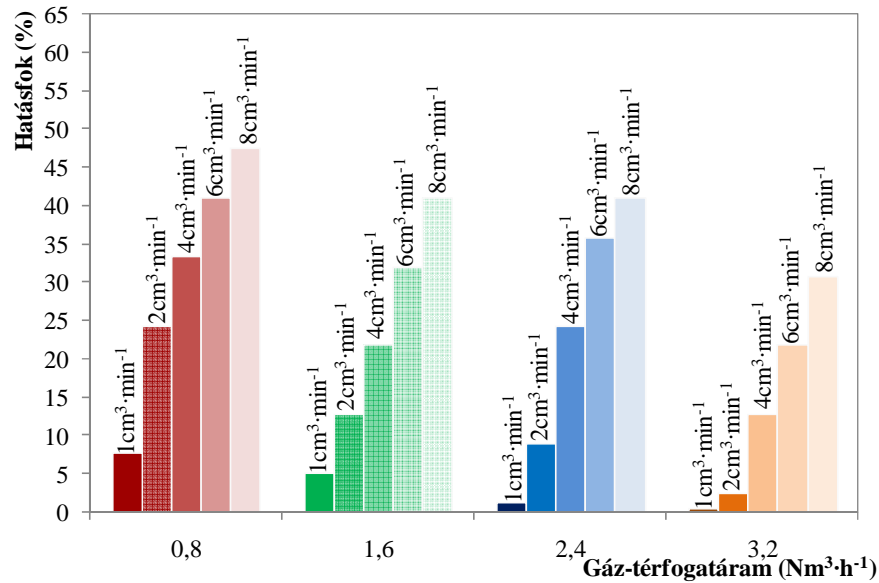
A gáz térfogatáramának és a vele arányosan változó kontaktidőnek hatását a 6. táblázatban megadott paramétertartomány esetére ismertetem.

6. táblázat: Kísérleti körülmények a gáz-térfogatáram hatásának bemutatásakor

Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja		1,5	m/m%	c_{NaOH}
Abszorbens-térfogatáram	1	8	$\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{abszorbens}}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma		78	ppmv	$c_{\text{H}_2\text{S}}$
Gázkeverék szén-dioxid tartalma		58	V/V%	c_{CO_2}
Gáz-térfogatáram	0,8	3,2	$\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{gáz}}$
Kontaktidő	0,06	0,24	s	$t_{\text{gáz kontakt}}$
Nyomás		30	bar	p
Hőmérséklet	szobahőmérséklet (~20)		°C	T
Fúvókaátmérő		1,8	mm	D_g

A bemutatáshoz választásom a vizsgált lúgoldatok közül azért esett az 1,5m/m%-os abszorbens oldatra, mert ebben az esetben sikerült elérnem a legnagyobb hatásfokot.

A gáz-térfogatáram hatásfokra és lúgfajlagosra gyakorolt hatása a 44-47. ábrákon figyelhető meg.

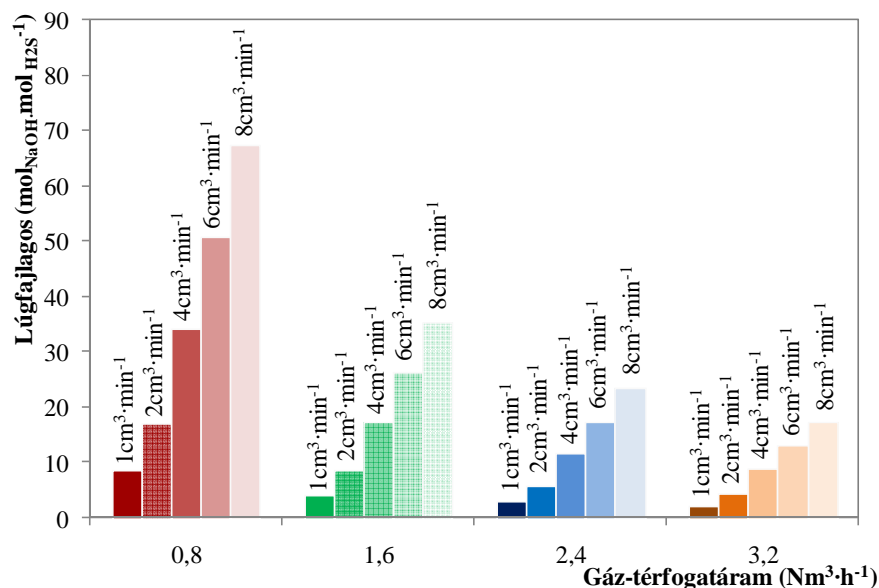


44. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az abszorbens térfogatáramának függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 44. ábráról leolvasható, hogy adott abszorbens-térfogatáram mellett a legkisebb (0,8 Nm³·h⁻¹) gáz-térfogatáram esetében volt leghatékonyabb a gázédesítés, azonban ha a 45. és 46. ábrát is figyelembe vesszük, akkor kiderül, hogy ez csupán a magas lúgfajlagosnak volt köszönhető.

Ha a 4 vagy 6 cm³·min⁻¹ folyadék-betápláláshoz tartozó eredményeket megnézzük, akkor a 44. ábráról azt is észrevehetjük, hogy a gáz-térfogatáram emelésének hatására nem egyértelműen, folyamatosan csökkenő vagy növekvő irányba változik a hatásfok, ez a tapasztalat azzal magyarázható, hogy a gáz-térfogatáram lúgfajlagosra és tartózkodási időre is hatással van. Adott körülmények között a gáz-térfogatáram emelése a lúgfajlagos csökkenéséhez vezet (45. ábra), ami a hatásfokot is csökkenti. Azonban a gáz-térfogatáram növelésével a tartózkodási idő csökken, ami pedig az előzetes szakirodalmi tapasztalatok szerint a kén-hidrogén szelektív megkötődését segíti elő, azaz hatására javul a hatékonyság.

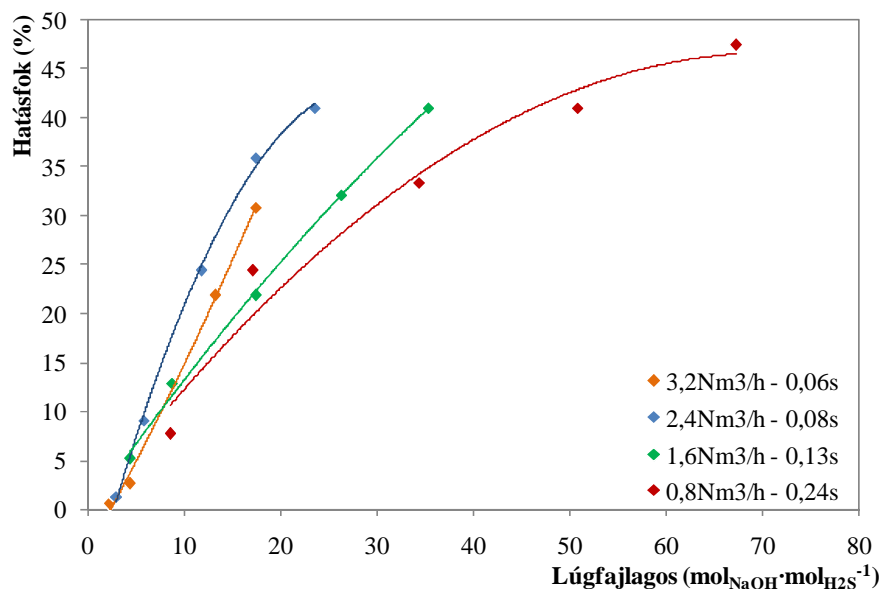
A tisztán látás érdekében a 46. ábra a lúgfajlagos függvényében mutatja be a gáz-térfogatáramának hatásfokra gyakorolt hatását.



45. ábra: A lúgfajlagos változása az abszorbens-térfogatáram függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetére (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 45. ábrán jól látható, hogy a gáz-térfogatáram növekedés állandó koncentrációjú és térfogatáramú lúgoldat bevezetése mellett a lúgfajlagos csökkenéséhez vezet.

Az eredményül kapott hatások adatokat a lúgfajlagos függvényében is megvizsgáltam és a 46. ábrán látható módon ábrázoltam.



46. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az alkalmazott lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

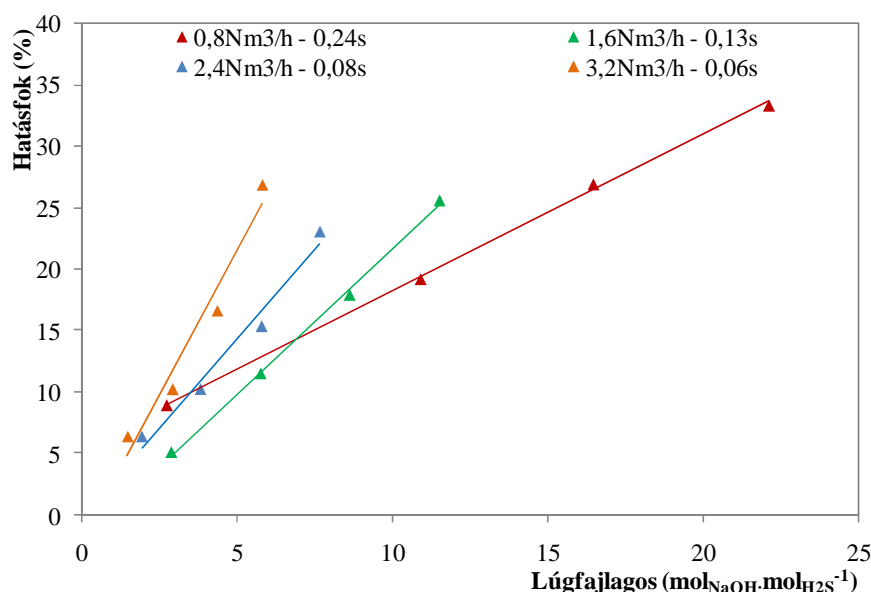
A 46. ábrán a lúgfajlagos függvényében láthatjuk a hatásfok eredményeket négy különböző gáz-térfogatáram, illetve érintkezési idő esetére. A várakozásoknak

megfelelően a kontaktidő csökkentése (0,24-0,08 s tartományban) szignifikáns javulást eredményezett a folyamat a hatékonyságában és a gazdaságosságában.

Ennek oka, hogy a kén-hidrogén nagyságrendekkel gyorsabb reakcióra képes a nátrium-hidroxiddal, mint a szén-dioxid, így a kontaktidő csökkenésével a kén-hidrogén abszorpciónak kedvezünk, azaz a szelektivitást növeljük. Az általam használt speciális konstrukciójú berendezés megtervezése is erre a kinetikai tényre épült.

Az is elmondható továbbá, hogy a gáz-térfogatáram a porlasztás szempontjából kiemelkedően fontos paraméter, ugyanis a cseppméret egyik befolyásoló tényezője a két fázis relatív sebességkülönbsége (esetünkben a folyadék lineáris sebessége elhanyagolható a gázéhoz képest), illetve a pneumatikus porlasztás esetében az izoterm expanzióban felszabaduló energia az alkalmazott gáz/folyadék tömegarány függvénye.

A 46. ábrát tekintve azonban még azt is meg kell említenem, hogy a vizsgálat során azt a tartományt is sikerült lemérnem, ahol a gáz-térfogatáram már túl nagy (3,2 Nm³·h⁻¹), azaz a tartózkodási idő már túl rövidnek bizonyult (0,06 s). A minimális szükséges tartózkodási idővel kapcsolatban azonban azt tapasztaltam, hogy az az abszorbens-koncentráció függvénye (47. ábra).



47. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az alkalmazott lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

Ha megnézzük a 47. ábrát, akkor láthatjuk, hogy a legkisebb koncentrációjú (0,5m/m%) lúgoldat esetében a kontaktidő 0,06 s-ra való csökkentésével a hatásfok még javuló tendenciát mutat a lúgfajlagos függvényében. Azaz a maximális hatékonyság elérésének érdekében a lúgkoncentrációt a tisztítandó gáz-térfogatáram nagyságához

kell igazítani, ugyanis az abszorbens-koncentráció növekedése a fázisérintkeztetési időszükséglet növekedését vonja maga után.

3.2.4 A gázösszetétel (H₂S/CO₂) hatásának vizsgálata a hatékonyságra és a lúgfajlagosra

A rendszer működése szempontjából az alkalmazott gázkeverék kén-hidrogén és szén-dioxid tartalma meghatározó fontosságú paraméter. A gázösszetétel hatását a 7. táblázatban felsorolt gázkeverékek mérési eredményei alapján mutatom be.

7. táblázat: A gázösszetétel hatásának vizsgálatához felhasznált gázkeverékek ismertetése

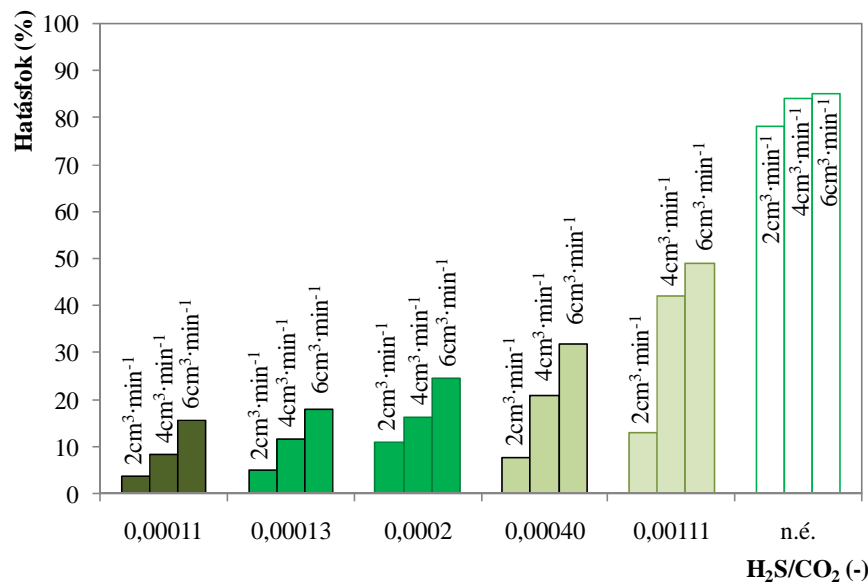
Kén-hidrogén (H ₂ S) [ppmv]	Kén-hidrogén (H ₂ S) [V/V%]	Szén-dioxid (CO ₂) [V/V%]	Nitrogén (N ₂) [V/V%]	H ₂ S/CO ₂ [-]
100	0,0100	0	99,9900	nincs értelme
100	0,0100	9	90,9900	0,00111
91	0,0091	23	76,9909	0,00040
74	0,0074	37	62,9926	0,00020
78	0,0078	58	41,9922	0,00013
83	0,0083	74	25,9917	0,00011

Az összehasonlító vizsgálatot a 8. táblázatban leírt körülményeknek megfelelően végeztem el.

8. táblázat: Kísérleti körülmények a gázösszetétel hatásának bemutatásakor

Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja		0,5	m/m%	c _{NaOH}
Abszorbens-térfogatáram	2	6	cm ³ ·min ⁻¹	$\dot{V}_{abszorbens}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma	74	100	ppmv	c _{H₂S}
Gázkeverék szén-dioxid tartalma	0	74	V/V%	c _{CO₂}
Gáz-térfogatáram		1,6	Nm ³ ·h ⁻¹	$\dot{V}_{gáz}$
Kontaktidő		0,13	s	t _{gáz kontakt}
Nyomás		30	bar	p
Hőmérséklet		szobahőmérséklet (~20)	°C	T
Fúvókaátmérő		1,8	mm	D _g

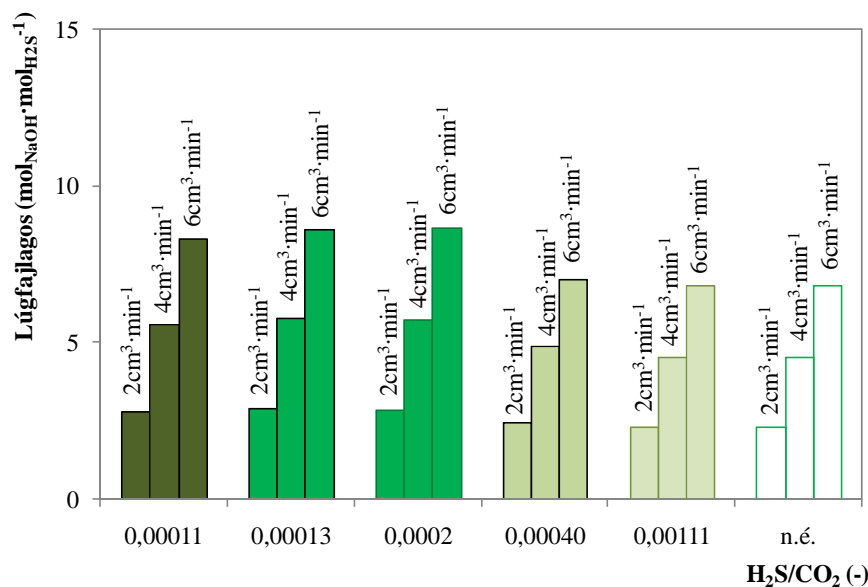
A reprezentálási tartományt ebben az esetben a lúgfajlagos maximum 10 mol_{NaOH}·mol_{H₂S}⁻¹ értékéhez igazítva választottam ki.



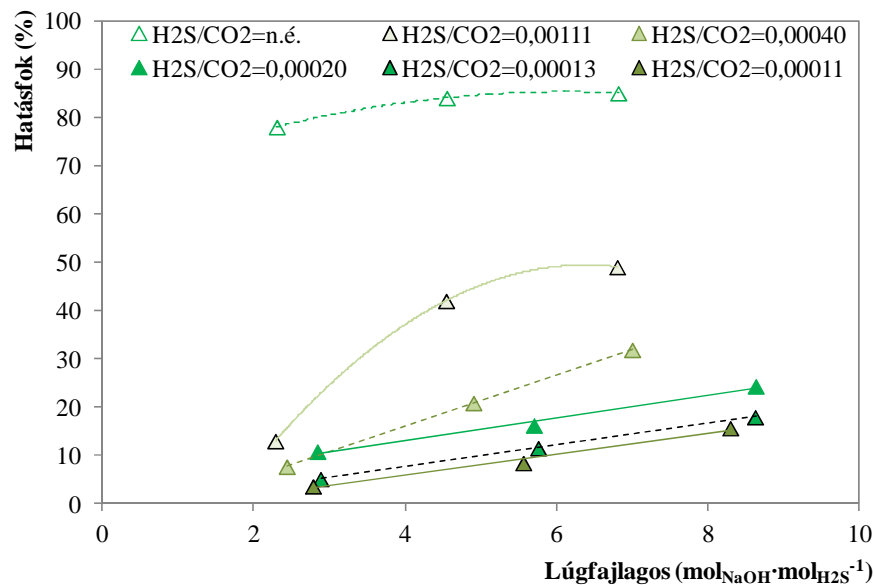
48. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az abszorbens-térfogatáram és a gázösszetétel függvényében (30 bar nyomás; 1,6 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 48. ábrán látható, hogy adott koncentrációjú és térfogatáramú abszorbens biztosítása esetén, a H₂S/CO₂ arány növekedése a hatásfok emelkedéséhez vezet.

A tapasztalt hatás azonban a lúgfajlagossal ebben az esetben nem függ össze, ugyanis közel azonos kén-hidrogén tartalmú gázkeverékekkel – és ebből következően közel azonos lúgfajlagos értékekkel – dolgoztam az egyes mérési pontokban (49. és 50. ábra).



49. ábra: A kén-hidrogén abszorpció lúgfajlagosa az abszorbens-térfogatáram és a gázösszetétel függvényében (30 bar nyomás; 1,6 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)



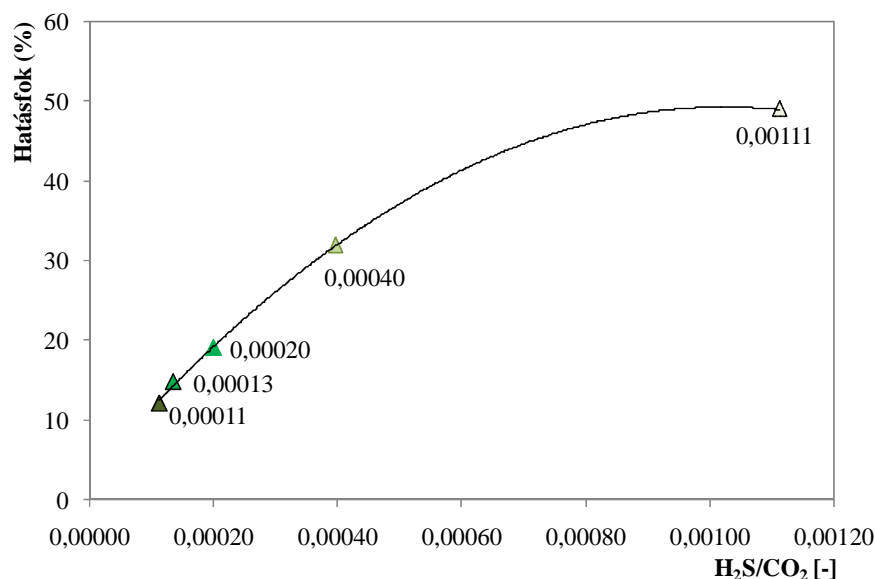
50. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka az alkalmazott lúgfajlagos függvényében különböző összetételű gázkeverékekre (30 bar nyomás; 1,6 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 48. és az 50. ábra alapján egyaránt megfigyelhető, hogy a gázkeverék H₂S/CO₂ térfogataránya jelentősen befolyásolja a kén-hidrogén eltávolítás hatásfokát. Állandó körülmények (nyomás, gáz-, lúg-térfogatáram, abszorbens-koncentráció) biztosítása mellett a H₂S/CO₂ arány emelkedésével az abszorbens-térfogatáram, illetve a lúgfajlagos függvényében is a rendszer hatásfokának javulását tapasztaltam.

A megfigyelt jelenség azzal magyarázható, hogy a két gázkomponens közötti kompetíció foka a kén-hidrogén oldaláról nézve csökken a H₂S/CO₂ arány emelkedésével, továbbá annak a valószínűsége növekszik, hogy kén-hidrogén molekula fog előbb a nátrium-hidroxid molekulával találkozni és reakcióba lépni, és nem pedig a szén-dioxid.

A 48. és az 50. ábrán az is észrevehető, hogy 0,0020 H₂S/CO₂ arány alatt jelentős kén-hidrogén abszorpció hatásfokbeli különbség nem tapasztalható, ami háttérben a korlátozott érintkezési idő, illetve a limitált számban jelen lévő nátrium-hidroxid molekula áll. Ez a megfigyelés szintén alátámasztja a feltételezést, mely szerint az általam használt berendezés alkalmas a szén-dioxidot is tartalmazó gázáramok kén-hidrogén tartalmának szelektív kezelésére.

A hatásfok eredmények adott (7 mol_{NaOH}·mol_{H₂S}⁻¹) lúgfeleslegre nézve a gázösszetétel (H₂S/CO₂) változásának függvényében az 51. ábrán látható módon alakultak.



51. ábra: A kén-hidrogén abszorpció hatásfoka a felhasznált gázkeverékek H₂S/CO₂ arányának függvényében állandó lúgfajlagos mellett (30 bar nyomás; 1,6 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat; 7 mol_{NaOH}·mol_{H₂S}⁻¹ lúgfajlagos)

Az 51. ábrán látható, hogy a vizsgált tartományban a hatásfokot befolyásoló, egymással kompetícióban álló gázkomponensek arányának változása másodfokú polinommal írható le.

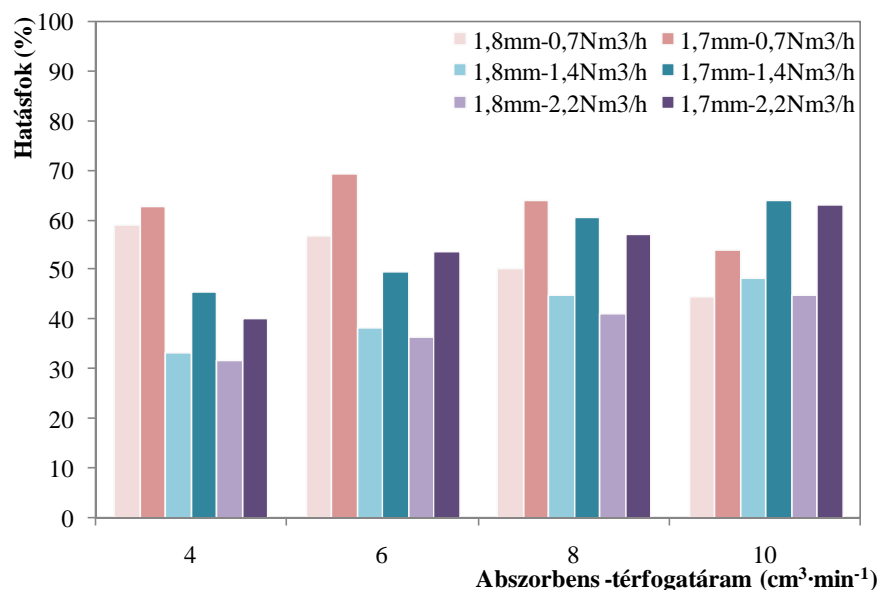
3.2.5 A fúvókaátmérő hatásának vizsgálata a hatásfokra és a lúgfajlagosra

Kísérleti munkám két különböző átmérőjű fúvóka hatásának a vizsgálatára is kiterjedt. A vizsgálathoz alkalmazott körülmények a 9. táblázatban olvashatóak.

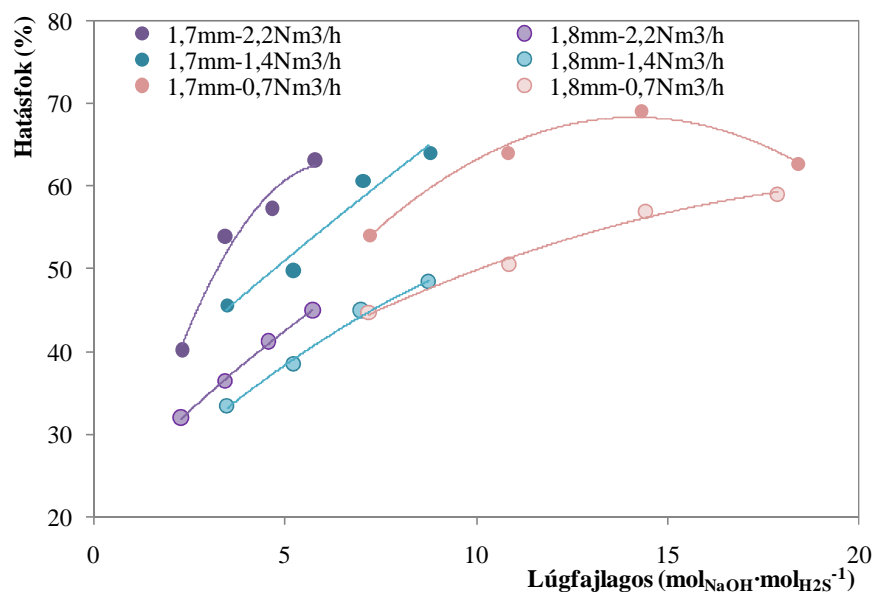
9. táblázat: Kísérleti körülmények a fúvókaátmérő hatásának bemutatásakor

Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja		2,0	m/m%	c _{NaOH}
Abszorbens-térfogatáram	4	10	cm ³ ·min ⁻¹	$\dot{V}_{abszorbens}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma		585	ppmv	c _{H₂S}
Gázkeverék szén-dioxid tartalma		35	V/V%	c _{CO₂}
Gáz-térfogatáram	0,7	2,2	Nm ³ ·h ⁻¹	$\dot{V}_{gáz}$
Kontaktidő	0,09	0,29	s	t _{gáz kontakt}
Nyomás		30	bar	p
Hőmérséklet	szobahőmérséklet (~20)		°C	T
Fúvókaátmérő	1,7	1,8	mm	D _g

A fúvókaátmérő változtatás (1,7 és 1,8 mm) hatékonyságra gyakorolt hatását 3 különböző gáz-térfogatáram (0,7; 1,4 és 2,2 Nm³·h⁻¹) és 4 különböző abszorbens-térfogatáram (4; 6; 8 és 10 cm³·min⁻¹) esetére az 52. és az 53. ábrán mutatom be.



52. ábra: A hatásfok változása az abszorbens-térfogatáram függvényében két különböző méretű fúvókára (585 ppmv kén-hidrogén; 35V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,0m/m% nátrium-hidroxid oldat)



53. ábra: A hatásfok változása a lúgfajlagos függvényében két különböző méretű fúvókára (585 ppmv kén-hidrogén; 35V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,0m/m% nátrium-hidroxid oldat)

Az 52. és az 53. ábrán egyaránt látható, hogy a fúvóka átmérőjének csökkentése szignifikáns javulást eredményezett a gázédesítés hatásfokában az abszorbens-térfogatáram, illetve a lúgfajlagos emelkedésének függvényében egyaránt, aminek háttérében a porlasztás minőségének javulása feltételezhető. (Ennek vizsgálatával a későbbiekben még foglalkozom.)

Az 53. ábrát megnézve az is kiderül – mint ahogy értelemszerűen is várnánk – a fúvókaátmérő nincs hatással a lúgfajlagosra, ugyanis a határfok eredmények adott körülmények mellett ugyanazon lúgfajlagos értékeknél olvashatóak le.

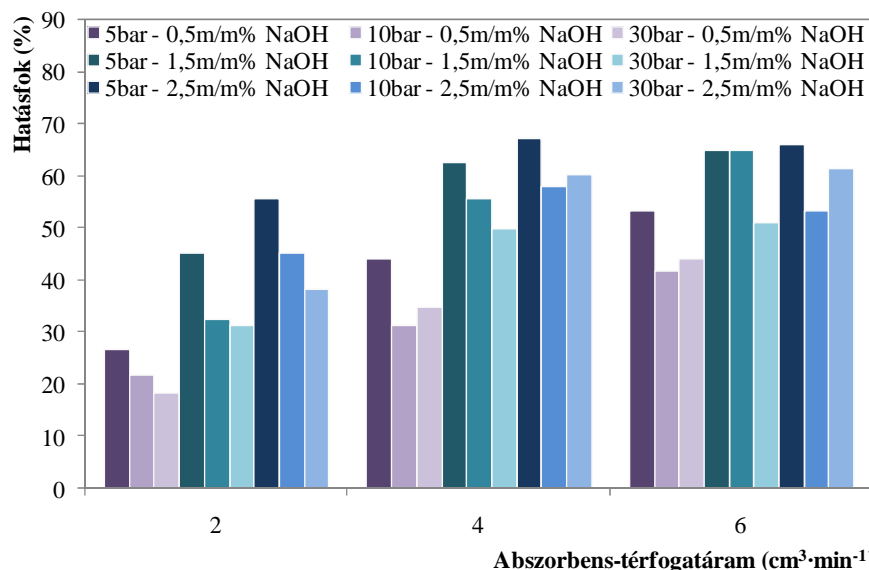
3.2.6 A nyomás hatásának vizsgálata a határfokra és a lúgfajlagosra

A rendszer határfoka – abszorpciós anyagátadásról, illetve porlasztásról lévén szó – nyomásfüggő. A nyomásfüggés vizsgálatát a 10. táblázatban olvasható paraméter tartományban végeztem el.

10. táblázat: A nyomásfüggés vizsgálati intervalluma

Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja	0,5	2,5	m/m%	c_{NaOH}
Abszorbens-térfogatáram	2	6	$\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{abszorbens}}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma	84		ppmv	$c_{\text{H}_2\text{S}}$
Gázkeverék szén-dioxid tartalma	41		V/V%	c_{CO_2}
Gáz-térfogatáram	1,0	2,4	$\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{gáz}}$
Kontaktidő	0,01	0,21	s	$t_{\text{gáz kontakt}}$
Nyomás	5	30	bar	p
Hőmérséklet	szobahőmérséklet (~20)		°C	T
Fúvókaátmérő	1,8		mm	D_g

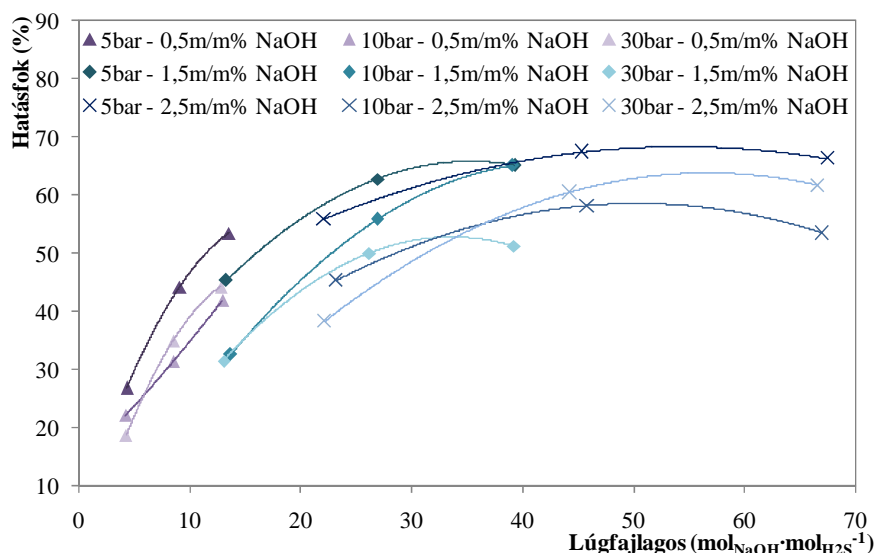
A nyomásfüggés vizsgálatának eredményeit adott gáz-térfogatáram ($1,0 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$) és 3 különböző oldat-koncentráció (0,5; 1,5; 2,5m/m% nátrium-hidroxid oldat) mellett az 54. és 56. ábrán mutatom be.



54. ábra: A nyomás hatásokra gyakorolt hatásának szemléltetése az abszorbens-térfogatáram függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid; 1,0 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

Az 54. ábrán jól látható, hogy 5-30 bar nyomás tartományban jelentős hatásfokbeli különbségeket egyik abszorbens-koncentráció esetében sem tapasztaltam. 25 bar nyomáscsökkenés esetén is maximum 15%-os hatásfokváltozás történt, ami arra enged következtetni, hogy a rendszer nyomásingadozások esetén is képes a stabil működésre.

Az 55. ábrán a lúgfajlagos függvényében is megtekinthetőek a hatásfok adatok.

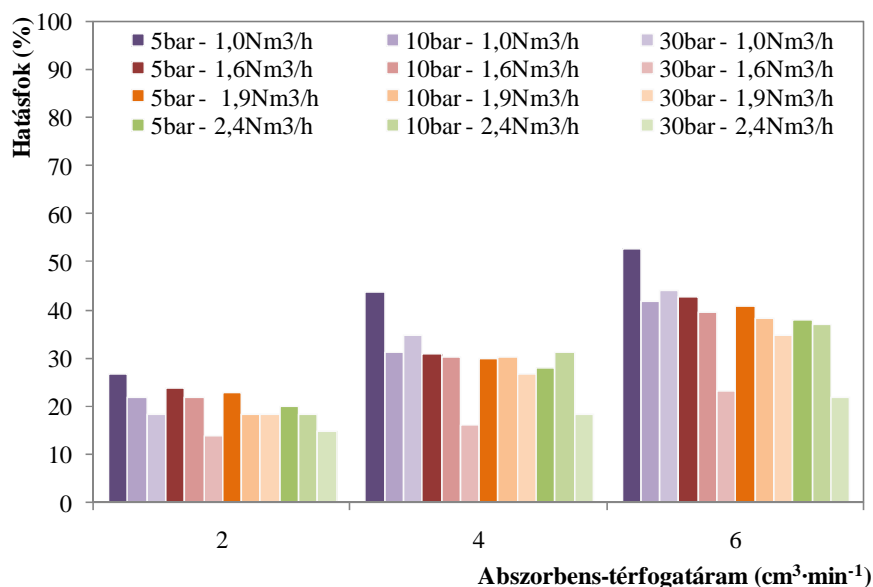


55. ábra: A nyomásfüggés hatásfok eredményei a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid; 1,0 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

Az 55. ábra egyértelműen igazolja, hogy a nyomás változtatása a lúgfajlagos nagyságának változásával nem járt, a vizsgálat alatt arra csak a lúgkoncentráció emelése hatott. (A hatásfok eredmények adott körülmények mellett ugyanazon lúgfajlagos

értékeknél olvashatóak le. Minimális eltérések azonban a mérés hibatartományának köszönhetően előfordulhatnak.)

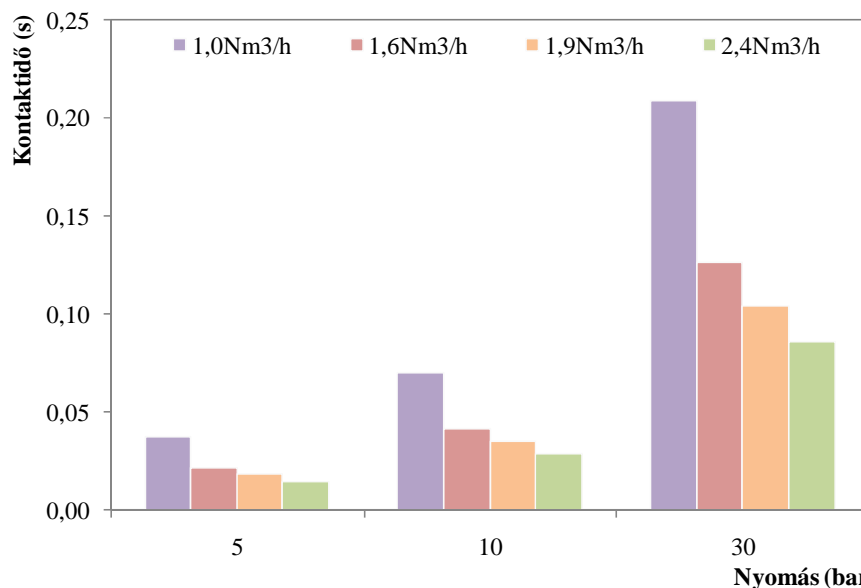
A nyomásfüggés vizsgálatának eredményét azonban nem csak egy adott gáz-térfogatáram esetére szeretném bemutatni, ezért a nyomás és a gáz-térfogatáram együttes hatását a hatékonyságra az 56. ábrán szemléltetem.



56. ábra: A nyomás hatásfokra gyakorolt hatásának szemléltetése az abszorbens-térfogatáram függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

Az 56. ábrán jól látható, hogy 1,0-2,4 Nm³·h⁻¹gáz-térfogatáram tartomány vizsgálatakor sem tapasztaltam jelentős (15-20% fölötti) hatásfokbeli különbségeket a nyomás 5-30 bar intervallumban történő változtatásakor.

Az 54-56. ábrákon azonban egyaránt szembe tűnő, hogy jellemzően az alacsonyabb (5 bar) nyomáson mért hatásfok eredmények bizonyultak jobbnak. (Ennek hátterében a nyomás tartózkodási időre gyakorolt hatása áll, mely megtekinthető az 57. ábrán.) Az iparban azonban, hogy a kitermelési volumennel lépést tudjunk tartani, egy magasabb (30 bar) nyomás értékhez tervezett berendezés alkalmazása a preferált. Az 5 bar nyomáshoz tartozó konstrukció kivitelezését illetően egy nagyobb méretű, drágább berendezésre lenne szükség.



57. ábra: A nyomás kontaktidőre gyakorolt hatásának ábrázolása 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid)

A 57. ábrán láthatjuk, hogy a nyomás csökkentése a tartózkodási idő csökkenéséhez vezetett. A tartózkodási idő csökkentése pedig – mint már többször szóba került – a szelektivitásnak, s így a kén-hidrogén abszorpció hatásfokának kedvez.

(Megjegyzem, elsöre meglepőnek tűnhet, hogy a nyomás csökkentésével értem el jobb hatásfok eredményeket, illetve alacsonyabb kontaktidő értékeket, azonban belegondolva a következőkbe, már elfogadható ez az eredmény. A mérés folyamán csak a nyomás értékét változtattam, minden más paraméter állandó maradt. A gáz-térfogatáram $\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ mértékegységben fixált. A kontaktidőt azonban a reaktor-térfogat és az aktuális körülményekre számított $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ mértékegységben kifejezett gáz-térfogatáram hányadosaként számoljuk. Például, ha $1,0 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram esetét vizsgáljuk, akkor $20 \text{ }^\circ\text{C}$ hőmérsékleten és 30 bar nyomáson $0,000009 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ -nek, míg 5 bar nyomáson és ugyanazon hőmérsékleten $0,000051 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ -nek fog adódni ez a gáz-térfogatáram érték.)

Itt azt is megemlítem, hogy a nyomásfüggés és a $\text{H}_2\text{S}/\text{CO}_2$ arány hatásának vizsgálati eredményeiből arra következtetek, hogy a technológiát biogázok édesítéséhez is érdemes lenne letesztelni. A biogáz technológia ugyanis jellemzően alacsony nyomáson ($\sim 4 \text{ bar}$) üzemel, és a biogázok az általam vizsgált $\text{H}_2\text{S}/\text{CO}_2$ tartománynál jellemzően magasabb értékűek.

3.2.7 Az abszorbens anyagának hatása a hatásfokra és a lúgfajlagosra

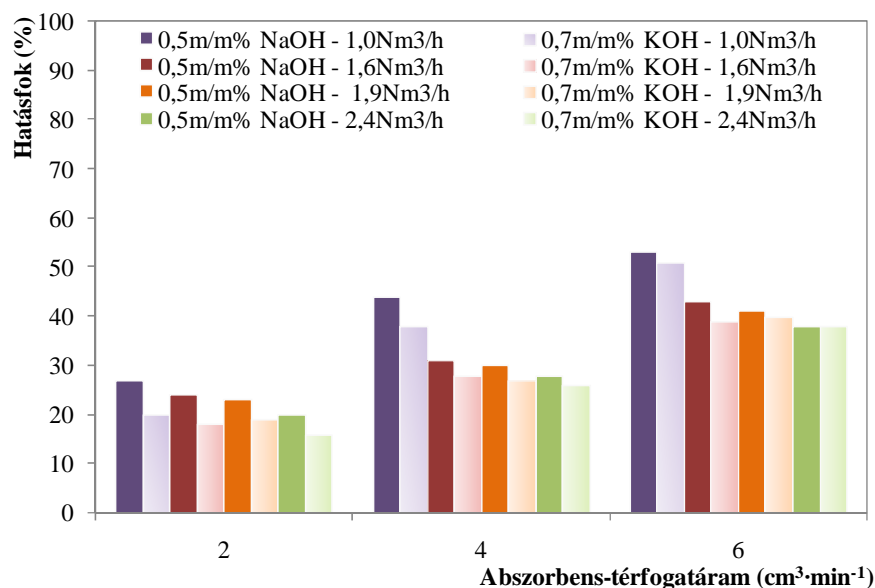
Munkám során nátrium-hidroxid mellett kálium-hidroxid abszorbens gázédesítési hatékonyságra gyakorolt hatását is megvizsgáltam. Az összehasonlításhoz felhasznált lúgoldatok azonos moláris koncentrációval ($0,12 \text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$), azonban – eltérő moláris tömegüknek köszönhetően – különböző tömegszázalékúak voltak.

A mérést a nyomásfüggés vizsgálatánál is felhasznált gázkeverékkel végeztem el 4 különböző gáz-térfogatáram esetére. A mérési intervallum a 11. táblázatban olvasható.

11. táblázat: Különböző anyagi minőségű abszorbensek összehasonlító vizsgálatának mérési paraméterei

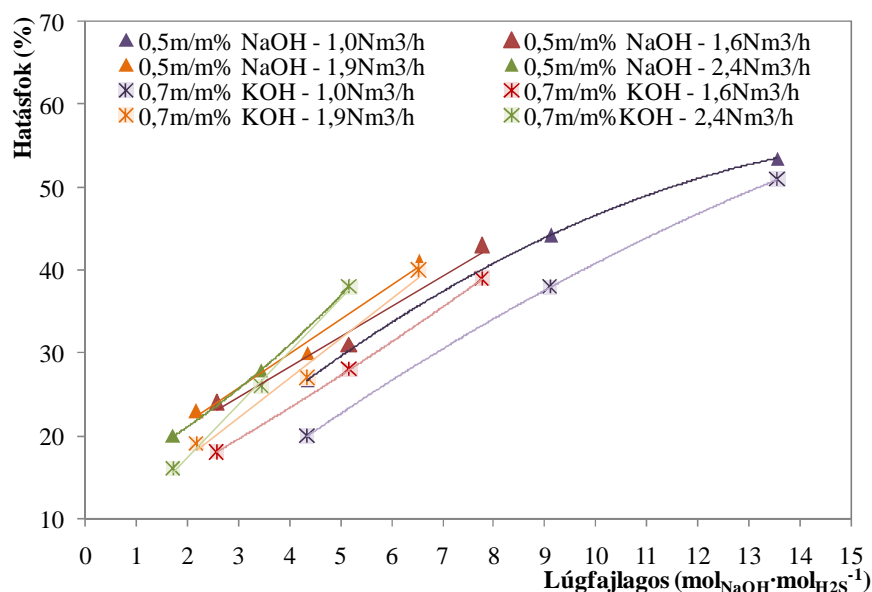
Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja	0,5		m/m%	c_{NaOH}
Kálium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja	0,7			c_{KOH}
Abszorbens-térfogatáram	2	6	$\text{cm}^3\cdot\text{min}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{abszorbens}}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma	84		ppmv	$c_{\text{H}_2\text{S}}$
Gázkeverék szén-dioxid tartalma	41		V/V%	c_{CO_2}
Gáz-térfogatáram	1,0	2,4	$\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{gáz}}$
Kontaktidő	0,01	0,21	s	$t_{\text{gáz kontakt}}$
Nyomás	5		bar	p
Hőmérséklet	szobahőmérséklet (~20)		°C	T
Fúvókaátmérő	1,8		mm	D_g

A vizsgálat eredménye az 58. ábrán látható.



58. ábra: A gázédesítés hatásfokának változása különböző anyagi minőségű abszorbensek esetén (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid; 5 bar nyomás)

Az 58. ábrán látható, hogy a vizsgált tartományban – ugyan minimális eltéréssel (< 10%) – egyértelműen a nátrium-hidroxid abszorbens hozta a jobb hatásfok eredményeket, annak ellenére, hogy az azonos moláris koncentráció, lúg- és gáz-térfogatáram biztosítása azonos lúgfajlagost szolgáltatott (59. ábra).



59. ábra: A hatásfok változása a lúgfajlagos függvényében különböző anyagi minőségű abszorbensek esetén (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid; 5 bar nyomás)

A tapasztalt különbség a két oldat fizikai tulajdonságainak eltéréseivel magyarázható. Az azonos moláris koncentrációjú, azonban eltérő alapanyagú oldatok ugyanis különböző sűrűségűek. A sűrűség, pedig a porlasztás egyik kiemelkedően fontos befolyásoló tényezője. A kisebb sűrűségű folyadékok értelemszerűen könnyebben, kisebb energia befektetéssel porlaszthatóak, és a vizsgált esetben – nagyobb moláris tömegének köszönhetően – a kálium-hidroxid oldat sűrűsége nagyobb. (A 0,7m/m%-os kálium-hidroxid oldat sűrűsége $1,0044\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$, míg a 0,5m/m%-os nátrium-hidroxid oldaté $1,0036\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ [85].)

3.3 A porlasztás minőségét befolyásoló tényezők hatásának vizsgálata

Mint tudjuk a komponensátadás az abszorpció során a komponensátadási felület nagyságának is függvénye. Esetünkben a felületképződés a porlasztást befolyásolni képes paraméterektől függ, ilyenek például az abszorbens (koncentrációfüggő) fizikai jellemzői, a gáz-térfogatáram, az abszorbens-térfogatáram, a nyomás, a gáz/folyadék tömegarány, a fúvóka átmérő, illetve maga a gázösszetétel is. (Kutatási tevékenységem a felsoroltak közül elsősorban a nátrium-hidroxid koncentráció, a gázösszetétel, az

abszorbens- és gáz-térfogatáram porlasztásra gyakorolt hatásának tanulmányozására irányult.)

Annak érdekében, hogy információt nyerjek az egyes körülmények között kialakuló porlasztási tulajdonságokról a Nukiyama-Tanasawa egyenletet (1.7.3.1 egyenlet) alkalmazva kiszámoltam az aktuálisan képződő cseppek Sauter-féle középátmérőjét ($\bar{D}_{Sauter\ csepp}$), aminek ismeretében már a felületképződés nagysága is meghatározható a következő módszerben leírtaknak megfelelően.

1. Az átlagos méretű – gömb alakúnak feltételezett – csepp felületének meghatározása 1.7.1 egyenlet alapján ($\bar{A}_{Sauter\ csepp} = A_0 [m^2]$, ha $D_0 = \bar{D}_{Sauter\ csepp} [m]$).
2. Az átlagos méretű csepphez tartozó térfogat meghatározása 1.7.2 egyenlet alapján ($\bar{V}_{Sauter\ csepp} = V_0 [m^3]$, ha $D_0 = \bar{D}_{Sauter\ csepp} [m]$).
3. Az időegység alatt képződő cseppek darabszámának meghatározása 3.3.1 egyenlettel.

$$\dot{n}_{Sauter\ csepp} = \frac{\dot{V}_{abszorbens}}{\bar{V}_{Sauter\ csepp}} \quad (3.3.1)$$

ahol

$\dot{n}_{Sauter\ csepp}$ a Sauter-féle átlagos méretű cseppek darabszáma 1s alatt,

$\dot{V}_{abszorbens}$ az abszorbens térfogatárama [$m^3 \cdot s^{-1}$],

$\bar{V}_{Sauter\ csepp}$ az átlagos méretű csepphez tartozó térfogat [m^3].

4. Az időegység (1 s) alatt történő felületképződés nagyságának ($\dot{A}_{új\ összes} [m^2 \cdot s^{-1}]$) meghatározása 3.3.2 egyenlet szerint.

$$\dot{A}_{új\ összes} = \dot{n}_{Sauter\ csepp} \cdot \bar{A}_{Sauter\ csepp} \quad (3.3.2)$$

5. Az eredeti és az újonnan képződött felület összehasonlításának vizsgálata.

Eredeti felületnek az abszorbens által időegység alatt felvett felületi értékét vettem a kapilláris geometriáját is figyelembe véve. Ehhez először 3.3.3 egyenletből kifejeztem a kapillárisban 1 s alatt felvett hosszértéket ($h_{kapilláris\ szakasz/s} [m]$), majd 3.3.4 egyenlet segítségével kiszámoltam az eredeti felületet.

$$\dot{V}_{abszorbens} = \frac{d_{kapilláris}^2 \cdot \pi}{4} \cdot h_{kapilláris\ szakasz/s} \quad (3.3.3)$$

$$A_{eredeti\ összes/s} = h_{kapillaris\ szakasz/s} \cdot d_{kapillaris} \cdot \pi + 2 \cdot \frac{d_{kapillaris}^2 \cdot \pi}{4} \quad (3.3.4)$$

ahol

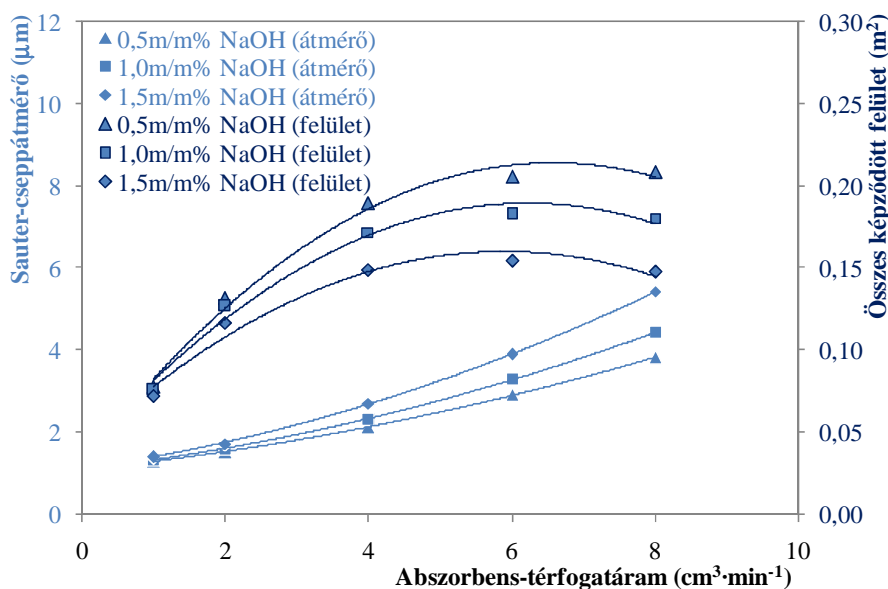
$d_{kapillaris}$ a folyadékot szállító kapillaris átmérőjét [m] jelöli.

Az eredeti felület nagysága minden esetben elhanyagolható volt a porlasztás során létrejött felülethez képest a minimum 4 nagyságrendbeli különbségnek köszönhetően.

(A Nukiyama-Tanasawa egyenlethez szükséges anyagi jellemzők értékeit dolgozatom 2. számú Melléklete tartalmazza [85; 108-109].)

3.3.1 Az abszorbens-térfogatáram, -koncentráció és a porlasztási minőség összefüggése

A lúg-térfogatáram és -koncentráció hatását a porlasztás minőségére az eddigieknek (3.2.2 fejezet) megfelelően a 78 ppmv kén-hidrogént és 58V/V% szén-dioxidot tartalmazó gázkeverék esetére mutatom be, miközben a nyomás 30 bar, a gáz-térfogatáram pedig $2,4 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ volt (60. és 61. ábra).



60. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása az abszorbens térfogatáramának függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; $2,4 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram)

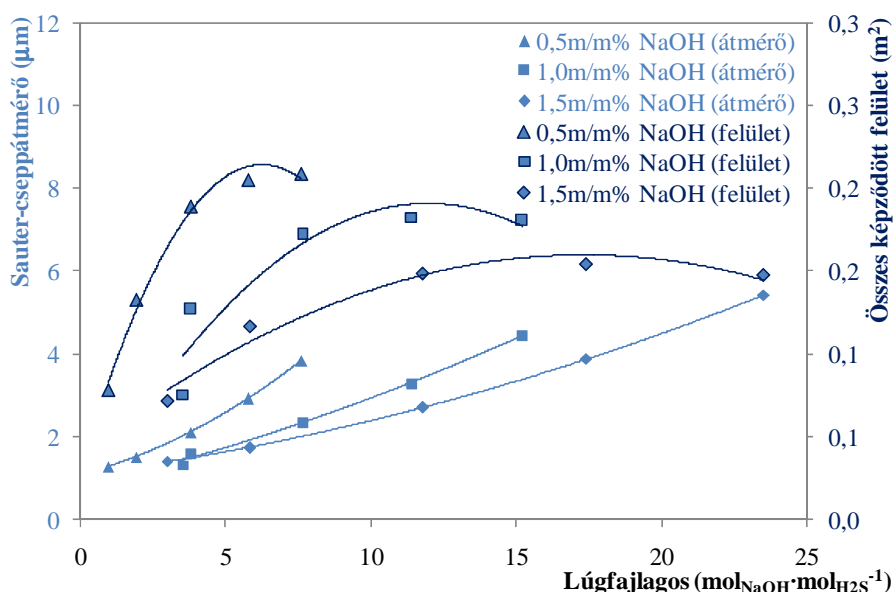
A 60. ábrán látható, hogy a vizsgált tartományban a folyadék-térfogatáram emelésének hatására a képződött cseppek Sauter-féle átmérője folyamatosan növekedett. A képződött felületek nagysága pedig csak egy maximális felületi érték

eléréséig emelkedett, amit csökkenés követett. A kapott cseppátmérő és felület eredményekre a lúgkoncentráció minden esetben hatással volt.

Adott abszorbens-térfogatáram esetében a képződött cseppek Sauter-féle átlagos mérete a lúgkoncentrációval együtt emelkedett, ami értelemszerűen a képződő felület nagyságát is befolyásolta. A lúgoldat koncentrációjának növelése a kialakuló átadási felület nagyságának csökkenéséhez vezetett. Ennek hátterében az áll, hogy a magasabb lúgkoncentráció nagyobb felületi feszültséggel – nagyobb összetartó erővel – jár. Ahhoz, hogy azonos méretű cseppeket hozzunk létre egy koncentráltabb abszorbens oldatból, nagyobb energiamennyiségre van szükségünk, melyet esetünkben a gáz áramának emelésével biztosíthatunk.

(Megjegyzem a 60. és az azt követő ábrákon az „Összes képződött felület” elnevezés az 1 s alatt bekövetkező felületképződés nagyságát takarja ($\dot{A}_{új\ összes}$)).

A 60. ábrához tartozó adatokra a lúgfajlagos függvényében is elvégeztem a csepp- és felületképződési vizsgálatot, az eredmények grafikus formában a 61. ábrán láthatóak.



61. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,4 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

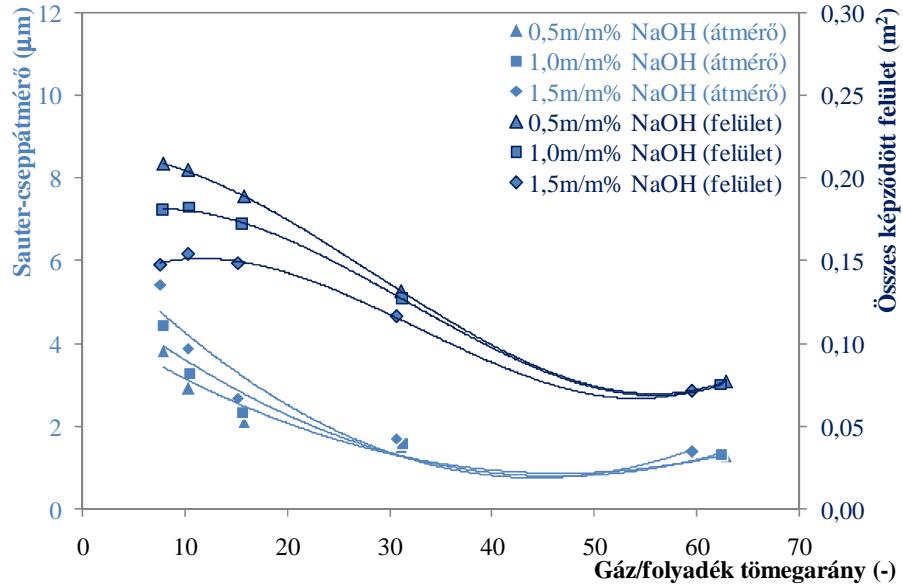
A 61. ábrán megfigyelhető, hogy a Sauter-féle átlagos cseppméret a lúgfajlagos emelkedésének függvényében is fokozatosan nő, és ez a cseppméret-növekedés szintén összefüggésben áll a lúgkoncentrációval. Állandó lúgfajlagosra nézve a lúgkoncentráció csökkenésével nő az átlagos cseppátmérő. E tapasztalat annak köszönhető, hogy ugyanazon lúgfajlagos biztosításához a különböző koncentrációjú abszorbensekből különböző térfogatáramokra van szükség. Például a 0,5m/m%-os nátrium-hidroxid

oldatból 3-szoros térfogatmennyiség szükséges ugyanazon lúgfajlagos biztosításához, mint 1,5m/m%-os esetében, és ezt az ugyanolyan energiamennyiséggel rendelkező – azaz azonos nyomású, térfogatáramú és összetételű – gáz nem képes azonos minőségben elporlasztani.

A 61. ábrán azonban nemcsak a cseppátmérő, hanem a porlasztás során képződő felület nagysága is megtekinthető. Láthatjuk, hogy a lúgfajlagos függvényében a legkisebb (0,5m/m%) lúgkoncentráció eredményezte a legnagyobb átadási felületet ($8 \text{ mol}_{\text{NaOH}} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ alatt). Ez az eredmény meglepő, ha figyelembe vesszük, hogy ebben az esetben tapasztaltuk a legnagyobb méretű cseppek képződését is. Ha belegondolunk, hogy a folyadék-térfogatáramunk többszöröse a koncentráltabb abszorbensek térfogatáramának, akkor belátható, hogy a kisebb lúgkoncentráció esetében viszonylag nagyobb méretű cseppek képződésekor is képesek lehetünk nagyobb felület létrehozására.

A fejezetben leírtak alapján kijelenthető hogy, az a tapasztalat, mely szerint a kisebb koncentrációjú lúgoldatok jobb lúghasznosítási tulajdonságúak, nemcsak a lejátszódó reakciók pH függésével magyarázható, hanem a porlaszthatósági tulajdonságaikkal is, ami a fizikai jellemzőikből – mint például a felületi feszültségükből, a viszkozitásukból és a sűrűségükből – fakad.

Az eddigiek során sokszor szóba került a gáz/folyadék tömegarány hatékonyságban és porlasztásban betöltött szerepe, ezen okból kifolyólag a gáz/folyadék tömegarány függvényében is megvizsgáltam az eddig bemutatott abszorbens-koncentrációval kapcsolatos eredményeket (62. ábra).



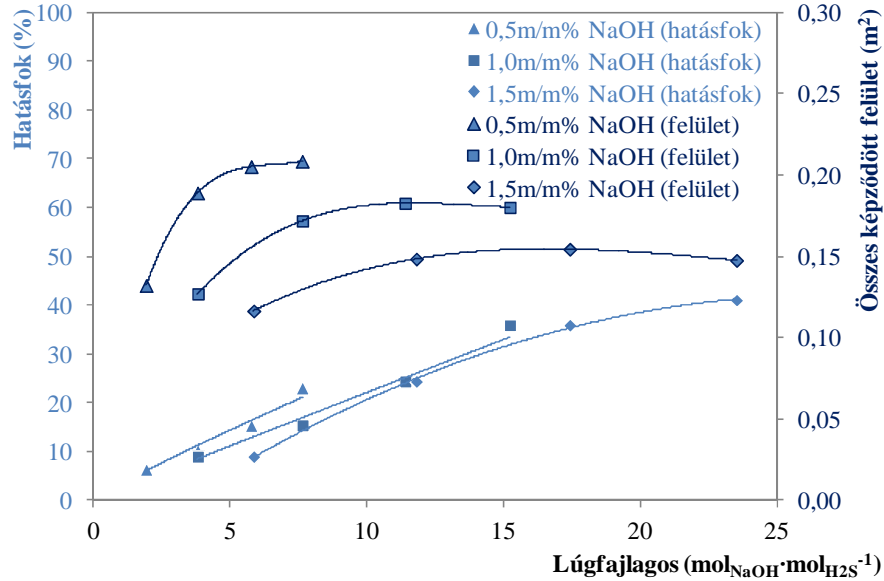
62. ábra: A csepp- és felületképződés vizsgálata a gáz/folyadék tömegarány függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,4 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

A 62. ábrát a lúgkoncentráció - gáz/folyadék tömegarány - felületképzés összefüggés szerint vizsgálva az látható, hogy adott gáz/folyadék tömegarány mellett az abszorpciós koncentráció csökkenése a felület növekedésének kedvez. Továbbá az is kijelenthető, hogy a lúgkoncentráció változtatása csak minimálisan befolyásolta a gáz/folyadék tömegarány nagyságát az egyes mérési pontokban.

Mindemellett a 62. ábrán azt is észrevehetjük, hogy az 1,5m/m%-os nátrium-hidroxid oldat esetében a vizsgált tartományban a gáz/folyadék tömegarány növekedésével a cseppátmérő folyamatosan csökkent, miközben a képződő felület nagysága elérte maximumát. Azaz a gáz/folyadék tömegarány változtatásával – ami ebben az esetben a folyadékterhelés változtatásával történt – a porlasztási minőség maximalizálható.

Az még kérdéses azonban, hogy a maximális határfok, vajon a maximális felület mellett tapasztalható, vagy a lúgfajlagos emelése a felületi maximumon túl is képes a hatékonyság növelésére. Éppen ezért ebben a fejezetben, a továbbiakban azzal a kérdéssel is foglalkozom, hogy az optimális lúgfajlagos, illetve az optimális gáz/folyadék tömegarány – ahol maximális hatékonyság érhető el – mennyire egyezik meg a maximális felülethez tartozó lúgfajlagossal, illetve gáz/folyadék tömegarányal.

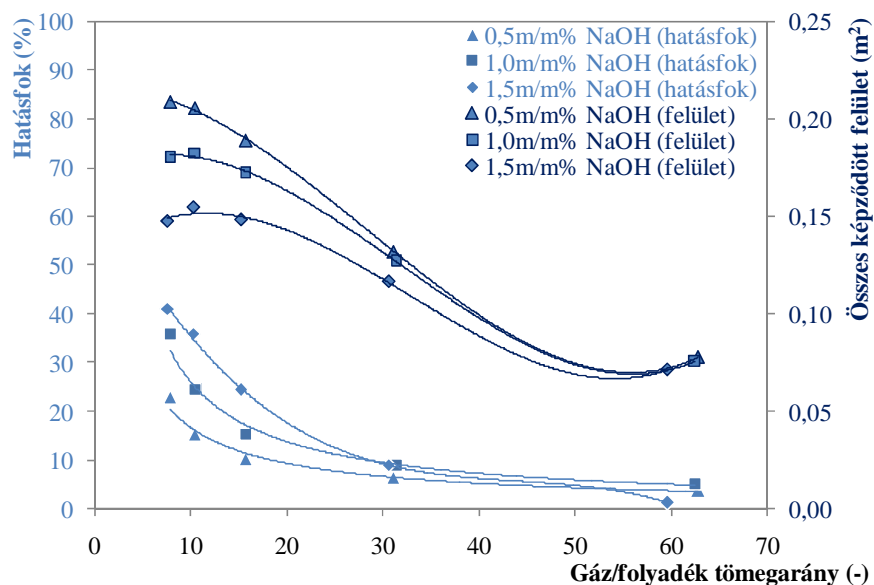
A 63. és a 64. ábra a határfok és a képződő felületek nagyságának alakulását mutatja be a lúgfajlagos, valamint a gáz/folyadék tömegarány változásának függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetére.



63. ábra: A felületképződés és a hatásfok alakulásának vizsgálata a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; $2,4 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram)

Ha a 63. ábrát megnézzük, akkor láthatjuk, hogy a lúgfajlagos emelésének függvényében a felületnövekedést reprezentáló görbék már elérték maximumokat, miközben a hatásfokváltozáshoz tartozó görbék még folyamatosan növekedtek. Azaz a lúgfajlagos emelése a maximális felületi ponton túl is pozitív hatással volt a hatékonyságra.

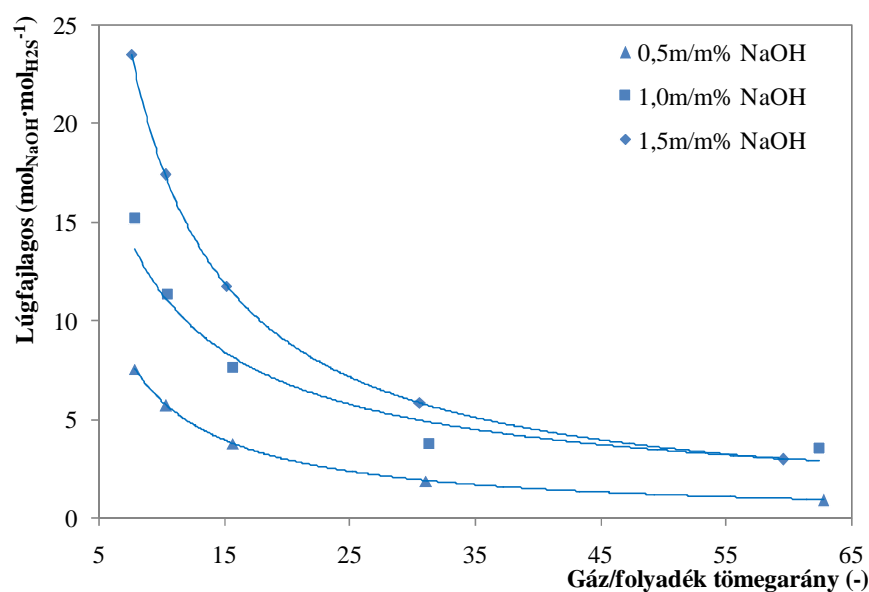
A 63. ábrán továbbá az is észre vehető, hogy adott lúgfajlagos biztosításakor a legkisebb koncentrációjú lúgoldattal értem el a legnagyobb felületképződést, és a legjobb hatásfok eredményeket is ($8 \text{ mol}_{\text{NaOH}} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ alatt).



64. ábra: A felületképződés és a hatásfok alakulásának vizsgálata a gáz/folyadék tömegarány függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; $2,4 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram)

A 64. ábra elemzése előtt megjegyzem, a gáz/folyadék tömegarány – 65. ábrán is látható módon – a lúgfajlagossal (negatív kitevőjű hatványfüggvénynek megfelelően) fordított arányosságot mutat.

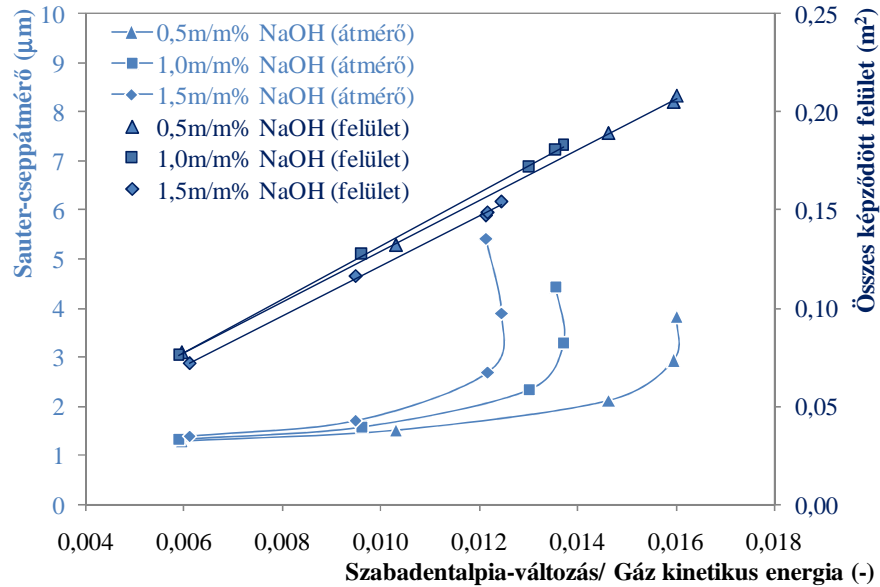
Ezért a 64. ábra alapján elmondható, hogy a gáz/folyadék tömegarány csökkentése a hatásfok javulásához és a felület növekedéséhez vezetett a vizsgált tartományban. A maximális hatásfokhoz tartozó gáz/folyadék tömegarány azonban nem egyezett meg a maximális hatásfokhoz tartozó optimális tömegarányal. Az optimális gáz/folyadék tömegarány kisebb a maximális felülethez tartozó tömegarálynál.



65. ábra: A gáz/folyadék tömegarány és a lúgfajlagos változásának összefüggése 3 lúgkoncentráció esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,4 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

A vizsgálati eredmények alapján tehát kijelenthető, hogy állandó gázáram biztosítása mellett a maximális felület eléréséig a hatékonyság az abszorbens-áram, illetve a lúgfajlagos emelésével fokozható, de a maximális hatásfok nem a maximális felülethez tartozó lúgfajlagosnál, illetve gáz/folyadék tömegarálynál tapasztalható.

A porlasztás során kialakuló felület nagyságát a továbbiakban energetikai szempontból is megvizsgáltam. A felületképződéshez szükséges energia – mint az irodalmi összefoglalóban is említettem – a szabadentalpia-változással megegyező mennyiség. A felületképződés energiáját pedig esetünkben a gáz mozgási energiája fedezi. A 66. ábra a felületképződés nagyságát szemlélteti a szabadentalpia-változás kinetikus energiához viszonyított arányának függvényében a 3 különböző lúgkoncentráció esetében.



66. ábra: A képződő felület nagyságának alakulása energetikai szempontból 3 különböző lúgkoncentráció esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,4 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram)

A 66. ábrán látható, hogy a felületképződés nagysága adott lúgkoncentrációra nézve lineáris függvény szerint növekszik a szabadentalpia-változás/gáz kinetikus energia hányadosával.

Ha adott nagyságú felület létrehozása a cél, akkor a lúgkoncentráció viszonylatában az mondható, hogy egyértelműen a legkoncentráltabb abszorbens-oldat (1,5m/m%) felületképzése járt a legnagyobb energiaigénnyel, a 0,5 és 1,0m/m%-os nátrium-hidroxid oldatok között azonban szignifikáns eltérést nem tapasztaltam. A tapasztalt hatás megegyezik a várt eredménnyel, ugyanis a koncentrációval a felületi feszültség is növekszik (2. számú Melléklet), a felületi feszültség pedig az 1 m² felület képzéséhez szükséges energiamennyiséget adja meg.

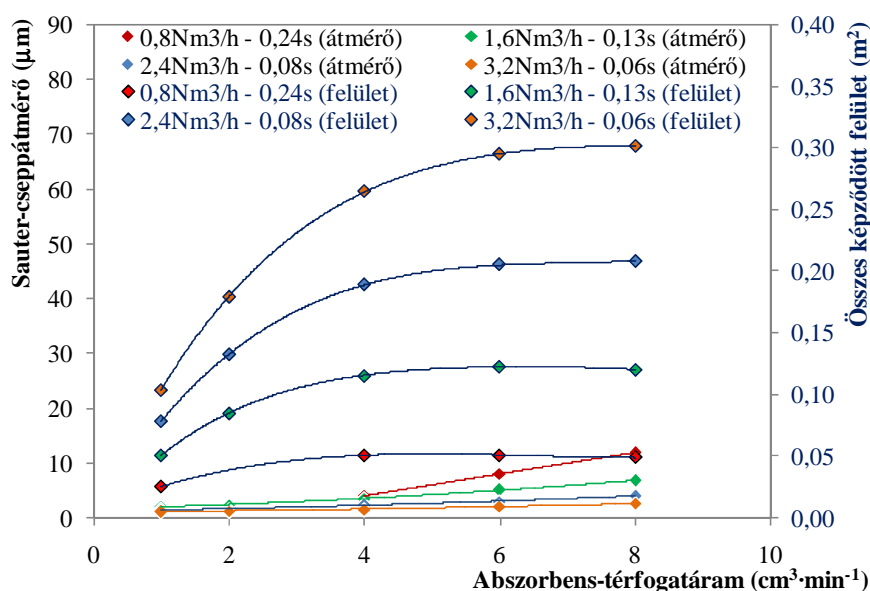
A 66. ábráról azonban nemcsak a felületképződés, hanem a képződő cseppek mérete is leolvasható. Láthatjuk, hogy az energetikai arányszámmal a cseppek mérete eleinte folyamatosan növekszik - miközben a folyadék-terhelést növeljük - azonban különböző lúgkoncentrációkra nézve különböző helyeken a szabadentalpia-változás/gáz kinetikus energia arány eléri maximumát. Ettől a maximum ponttól kezdve az abszorbens-térfogatáram emelés hatására a cseppek mérete ugrásszerűen növekszik, az energetikai arányszám pedig visszacsökken. Az azonos ütemű folyadékterhelés-emeléskor a maximális energetikai arányszám a lúgkoncentráció csökkentésével nő. Azaz a rendelkezésre álló kinetikus energia az alkalmazott abszorbens koncentrációjának csökkentésével nagyobb mértékben fordítható felületi energiává.

A 66. ábrán továbbá az is észrevehető, hogy a felületképzésre fordítódott energia a gáz kinetikus energiájának csupán elenyésző (ezred-század nagyságrendű) része.

3.3.2 A gáz-térfogatáram és a porlasztási minőség összefüggése

A gáz térfogatáramának hatását az áttekinthetőség kedvéért szintén a 78 ppmv kénhidrogént és 58V/V% szén-dioxidot tartalmazó gázkeverék esetére szemléltetem, ahol az alkalmazott nátrium-hidroxid abszorbens oldat koncentrációja 1,5m/m% volt (mint 3.2.3 fejezetnél).

A porlasztás során kialakuló Sauter-féle átlagos cseppátmérő és a képződő felület nagyságának változása az abszorbens-térfogatáram függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetére a 67. ábrán látható.

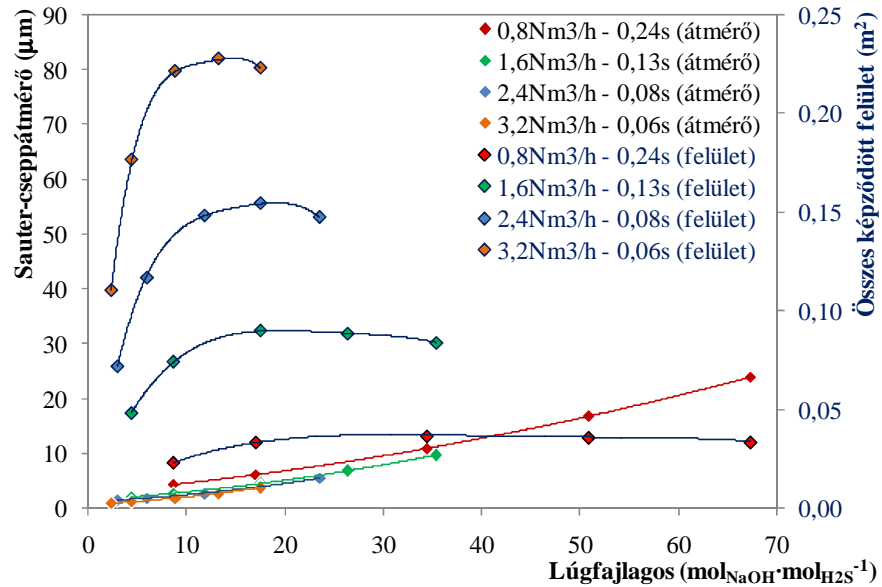


67. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása az abszorbens térfogatáramának függvényében 4 különböző gáz-térfogatáramra (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 67. ábra alapján elmondható, hogy az abszorbens-térfogatáram függvényében vizsgálódva, a gáz-térfogatáram emelésével a porlasztás során képződő cseppek átmérője csökkenthető, azaz a képződő átadási felület nagysága növelhető.

Megfigyelhető továbbá – a 3.3.1 fejezetben már említettekhez hasonlóan – ebben az esetben is, hogy a folyadék-térfogatáram emelésének függvényében a képződő felület eleinte növekszik, majd csökken, ami egy optimális gáz/folyadék arányhoz tartozó maximális felületi érték meglétére utal.

Ha a 67. ábránál kapott eredményeket a lúgfajlagos függvényében is megvizsgáljuk, akkor a 68. ábrához jutunk.

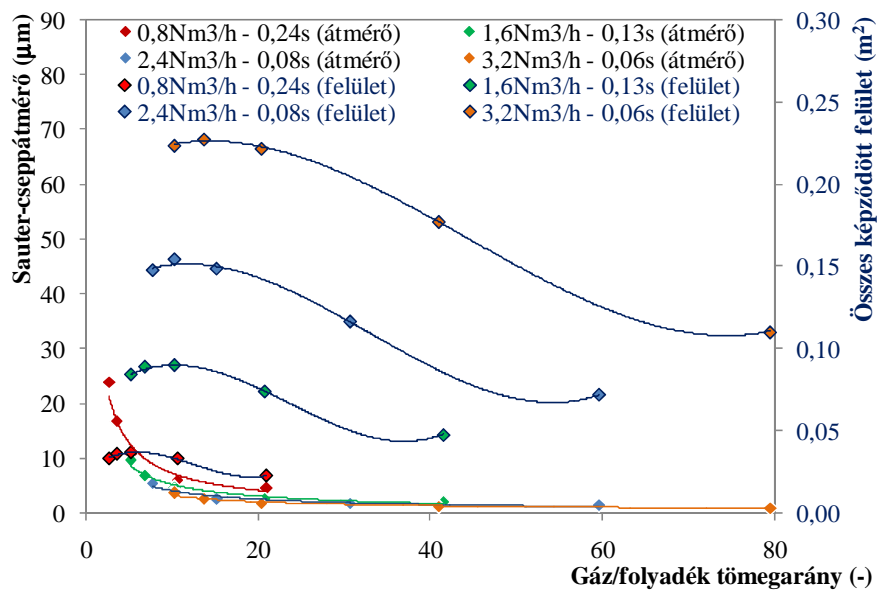


68. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáramra (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 68. ábra alapján elmondható, hogy a lúgfajlagos emelésének függvényében a Sauter-féle cseppátmérő folyamatosan növekszik, miközben a felületi görbék maximuma van.

Az is megállapítható, hogy állandó lúgfajlagos biztosítása mellett a gáz-térfogatáram emelésének hatására az átlagos Sauter-féle cseppátmérő csökken, a létrejövő felületek nagysága pedig nő.

A gáz-térfogatáram felületképzésben betöltött szerepét a gáz/folyadék tömegarány függvényében is megvizsgáltam, az eredményül kapott diagram a 69. ábrán tekinthető meg.

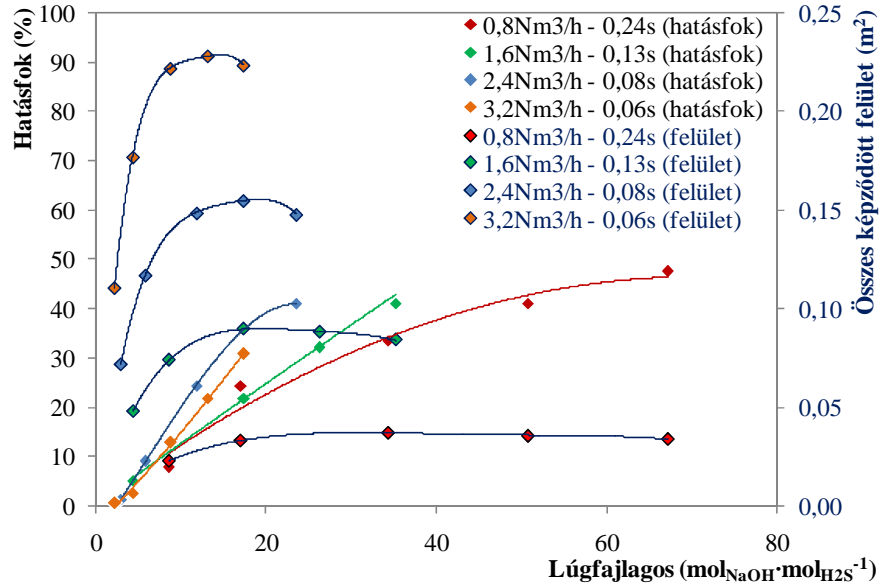


69. ábra: A csepp- és felületképződés vizsgálata a gáz/folyadék tömegarány függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 69. ábra alapján elmondható, hogy a gáz/folyadék tömegarány a gáz-térfogatáram emelésével értelemszerűen folyamatosan növekszik, ennek köszönhetően a görbék azonos folyadékbetáplálás mellett folyamatosan jobbra, a nagyobb gáz/folyadék tömegarányok felé tolódnak el.

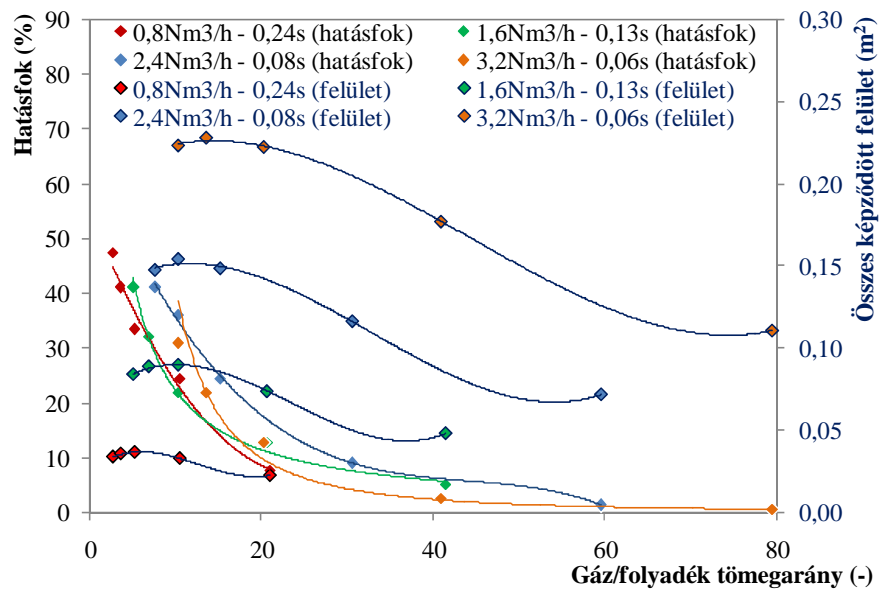
Megjegyzem a 69. ábra (a 66. ábrához hasonlóan) szintén jól szemlélteti számunkra, hogy a gáz/folyadék tömegarány függvényében a képződő felület nagysága egy ponton maximális felületi értéket vesz fel.

A maximális hatásfokhoz tartozó optimális gáz/folyadék tömegarány, illetve a vele összefüggésben álló optimális lúgfajlagos vizsgálatát a gáz-térfogatáram változtatásának szempontjából is elvégeztem, az eredmények a 70. és a 71. ábrán láthatóak.



70. ábra: A hatásfok és a felületképződés vizsgálata a lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 70. ábra alapján elmondható, hogy különböző gáz-térfogatáramok esetében is azt tapasztaltuk, hogy a lúgfajlagos emelése nemcsak a maximális felületi pont eléréséig hat pozitívan a hatékonyságra, hanem azt követően is.

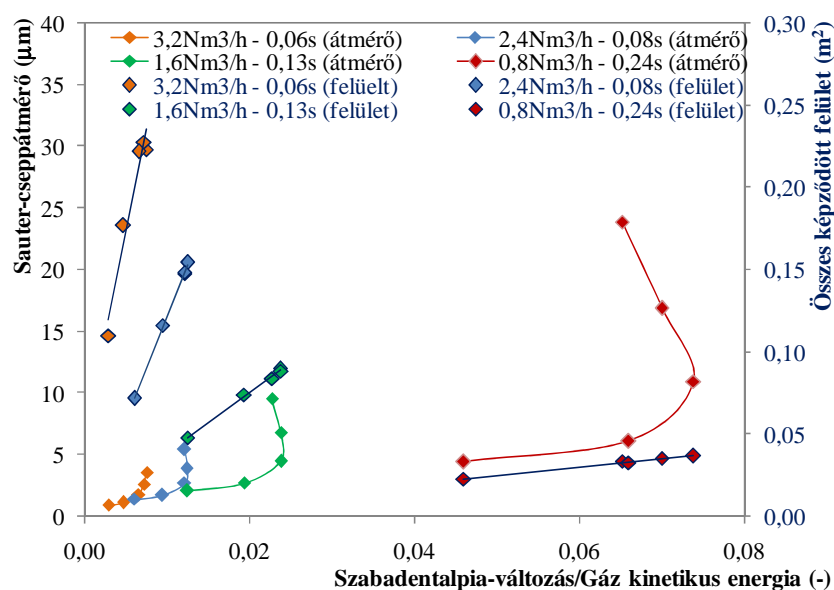


71. ábra: A hatásfok és a felületképződés vizsgálata a gáz/folyadék tömegarány függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

Az előzetes tapasztalatokkal összhangban a 71. ábra alapján is megfigyelhető, hogy a maximális felülethez tartozó gáz/folyadék tömegarány nagyobb, mint a maximális hatásfokhoz tartozó tömegarány.

A gáz-térfogatárammal kapcsolatos vizsgálati eredmények alapján is kijelenthető, hogy a maximális felület eléréséig a hatékonyság a lúgfajlagos emelésével – azaz a gáz/folyadék tömegarány csökkentésével – biztosan fokozható, azonban a maximális hatások nem a maximális felülethez tartozó lúgfajlagosnál, illetve gáz/folyadék tömegaránynál tapasztalható.

A porlasztás során kialakuló felület nagyságát a gáz-térfogatáram növekedésének szempontjából a továbbiakban energetikai szempontból is megvizsgáltam (72. ábra).



72. ábra: A felületképződés vizsgálata a szabadentalpia-változás/gáz kinetikus energia arány függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

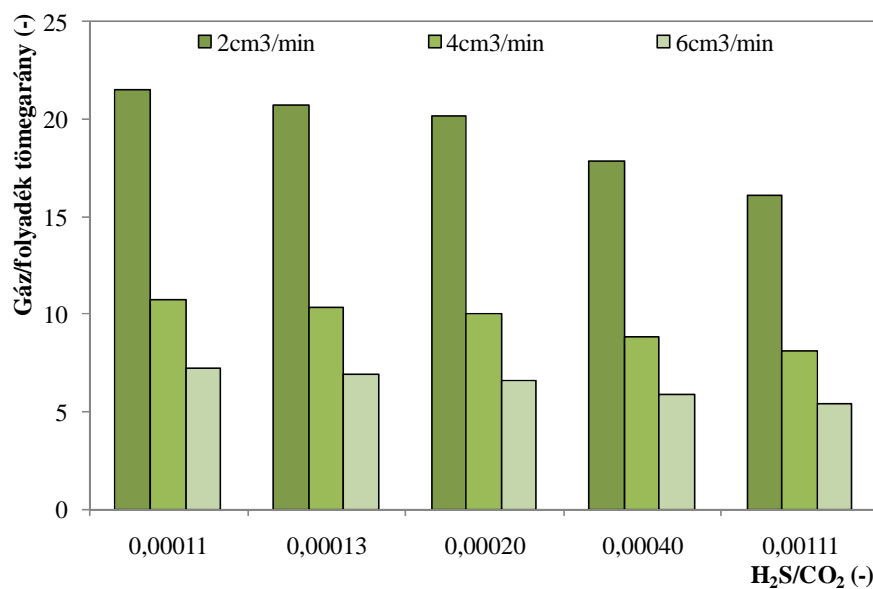
A 72. ábrán – a 66. ábrához hasonlóan – az látható, hogy a szabadentalpia-változás/gáz kinetikus energia arány emelkedésével a képződő felület nagysága lineárisan növekszik (miközben az abszorbens-térfogatáram is változik 1-8 cm³·min⁻¹ tartományban). Továbbá észrevehető, hogy a gáz-térfogatáram növekedése az energia hányados értéknek csökkenéséhez vezet, melynek oka, hogy a kinetikus energiafelesleg értéke megnövekszik a felületképződéshez szükséges energiához képest. Ebből fakadóan pedig adott felület képzéséhez a gáz-térfogatáram növekedésével egyre kisebb energiahányados igény tartozik.

3.3.3 A gázösszetétel (H₂S/CO₂) hatásának vizsgálata a porlasztás minőségére

A gáz tömegárama a gázkeverékben jelen lévő komponensek egymáshoz viszonyított arányával összefüggésben áll, tehát közvetett módon a porlasztás minőségére is hatással van a gáz/folyadék tömegarány befolyásolása révén (73. ábra). Ezen okból a

gázösszetétel szempontjából is szükségesnek láttam a porlasztási minőségre gyakorolt hatás vizsgálatát.

A 73. ábra a különböző H_2S/CO_2 aránnyal rendelkező gázkeverékek gáz/folyadék tömegarányának változását mutatja be $1,6 \text{ Nm}^3\text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram, $0,5\text{m/m}\%$ nátrium-hidroxid oldat és 3 eltérő abszorbens-térfogatáram esetében (3.2.4 fejezetnek megfelelően).



73. ábra: A gáz/folyadék tömegarány változásának vizsgálata a H_2S/CO_2 arány változásának függvényében 3 különböző abszorbens-térfogatáram esetében (30 bar nyomás; $1,6 \text{ Nm}^3\text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; $0,5\text{m/m}\%$ nátrium-hidroxid oldat)

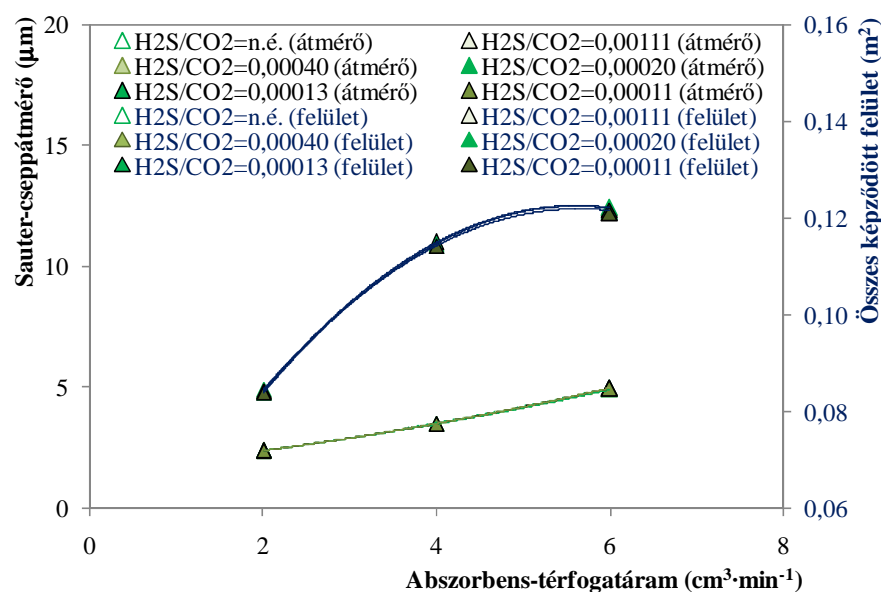
A 73. ábráról egyértelműen leolvasható, hogy a H_2S/CO_2 arány emelkedésével a gáz/folyadék tömegarány fokozatosan csökken. Ennek magyarázata az eltérő moláris tömegű komponensek különböző arányú részvételével magyarázható, aminek következtében az adott gázkeverékre vonatkozó átlagos moláris tömeg is megváltozik. Az egyes gázkeverékekhez tartozó átlagos moláris tömegek a 12. táblázatban olvashatóak.

12. táblázat: A különböző összetételű gázok moláris tömege

Vegyület neve				
Kén-hidrogén ($M_{H_2S}=34g\cdot mol^{-1}$)	Szén-dioxid ($M_{CO_2}=44g\cdot mol^{-1}$)	Nitrogén ($M_{N_2}=34g\cdot mol^{-1}$)	H ₂ S/CO ₂	$M_{gázkeverék}$
[ppmv]	[V/V%]	[V/V%]	[-]	[g·mol ⁻¹]
100	9	90,9900	0,00111	29,4
91	23	76,9909	0,00040	31,7
74	37	62,9926	0,00020	33,9
78	58	41,9922	0,00013	37,3
83	74	25,9917	0,00011	39,8

A 12. táblázat alapján látható, hogy az általam vizsgált esetben a gázkeverékek H₂S/CO₂ arányának növekedésével a gázkeverékek átlagos moláris tömege csökkent, és ennek köszönhetően adott folyadékterhelés mellett a gáz/folyadék tömegarány értéke is alacsonyabbá vált, mint a 73. ábrán is bemutattam.

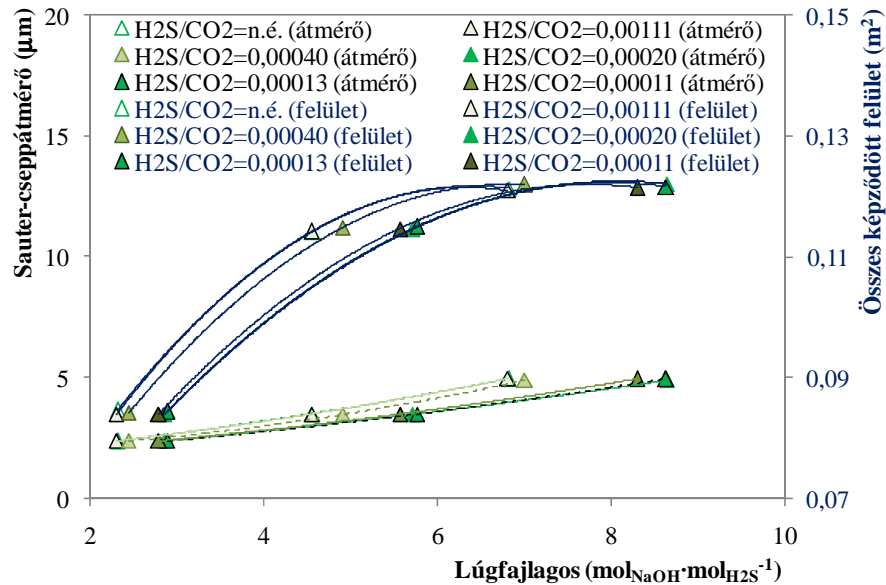
A fejezet további részében a gázösszetétel porlasztásra gyakorolt hatásának vizsgálati eredményét mutatom be, a lúgkoncentráció és a gáz-térfogatáram hatásának vizsgálatához hasonlóan (74-77. ábra).



74. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása az abszorbens térfogatáramának függvényében 6 különböző gázösszetétel (H₂S/CO₂) esetében (30 bar nyomás; 1,6 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 74. ábrán látható, hogy az eltérő összetételű gázkeverékek esetében az abszorbens-térfogatáram függvényében a csepp- és felületképződés vizsgálatokor nem kaptam szignifikáns különbségeket. Azaz elsősorban a folyadékterhelés és a gáz-térfogatáram

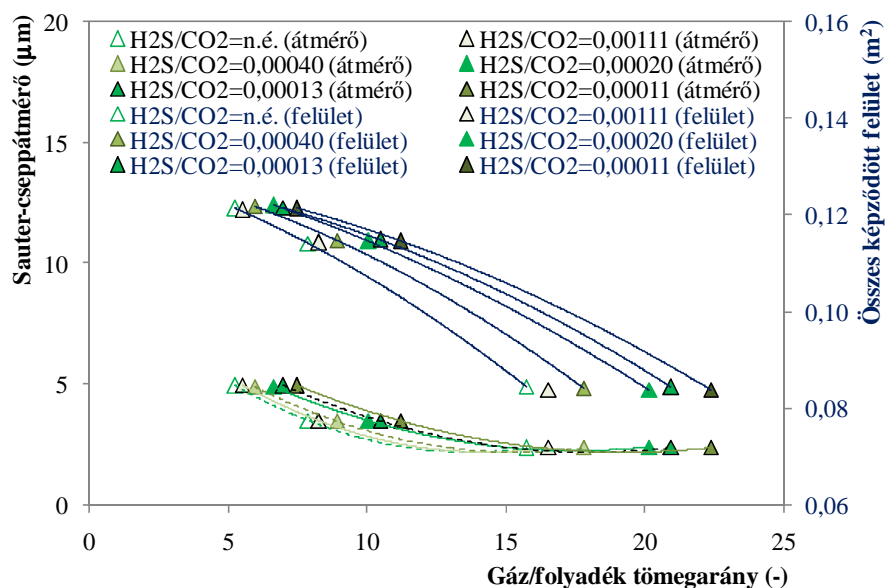
határozta meg a porlasztás minőségét, a gáz összetétel hatása e vizsgálati módban elhanyagolhatónak bizonyult.



75. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében (30 bar nyomás; $1,6 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 75. ábra azonban a lúgfajlagos függvényében vizsgált csepp- és felületképződési eredményeket mutatja, melyen már jelentős különbségek is felfedezhetőek. Adott lúgfajlagosra nézve a H_2S/CO_2 arány csökkenésével a cseppek mérete csökkent, a képződő felületek nagysága növekedett.

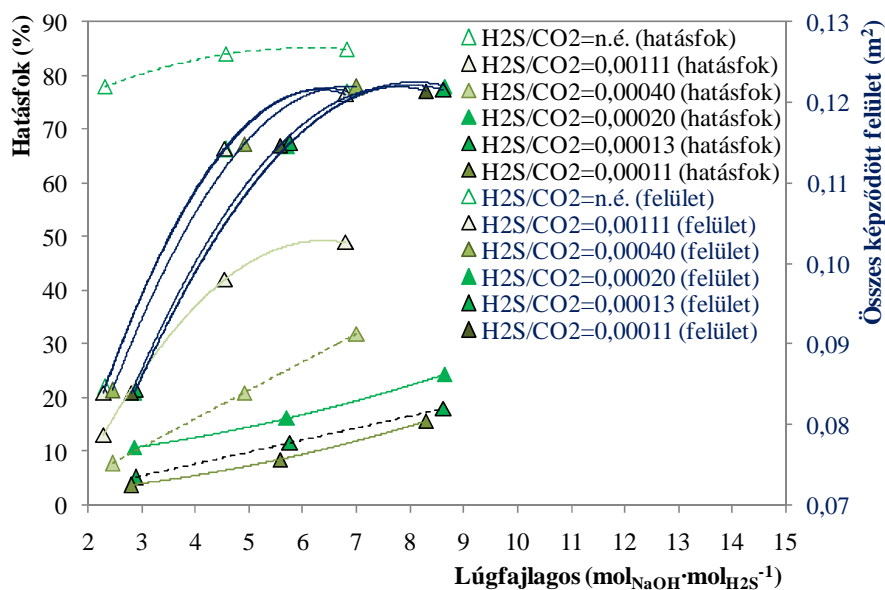
(A 75. ábrán $H_2S/CO_2=n.é.$ és $H_2S/CO_2=0,00111$ adatsor pontjai, illetve $H_2S/CO_2=0,00020$ és $H_2S/CO_2=0,00013$ adatsor pontjai fedik egymást.)



76. ábra: A Sauter-cseppátmérő és a képződött felület nagyságának változása a gáz/folyadék tömegarány függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében (30 bar nyomás; $1,6 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid)

A 76. ábra alapján jól látható, hogy adott gáz/folyadék tömegarány esetén a képezett felület nagysága a gázkeverék H_2S/CO_2 arányának csökkentésével is növelhető. Ennek oka esetünkben a fordítottan arányosan változó gázkeverékre jellemző moláris tömeg, azaz a H_2S/CO_2 arány csökkenésével növekvő gáz-tömegáram.

Mivel az eddigi vizsgálatok a lúgkoncentráció és a gáz-térfogatáram függvényében is azt eredményezték, hogy a lúgfajlagos emelésével a hatékonyság a maximális felület elérését követően is növelhető, és a gázösszetétel is befolyásolja a porlasztás minőségét, ezért az optimális lúgfajlagos meghatározására irányuló vizsgálatot a H_2S/CO_2 függvényében is szükségesnek tartottam (77. ábra).



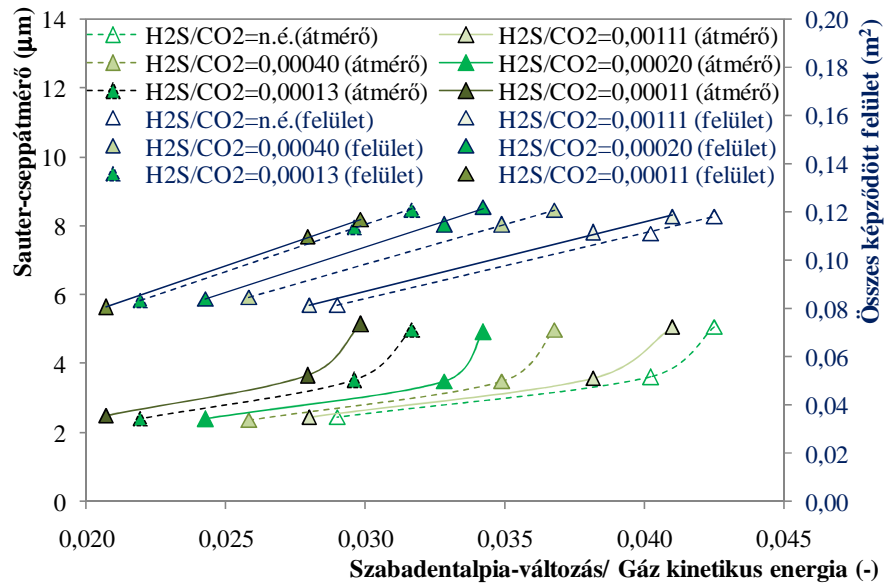
77. ábra: A hatásfok és a képződött felület nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében (30 bar nyomás; $1,6 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; $0,5 \text{ m/m}\%$ nátrium-hidroxid)

A 77. ábrán $0,00011$ - $0,00040$ H_2S/CO_2 tartományban látható, hogy miközben a hatásfok értékekhez tartozó görbék még meredeken emelkednek, addig a felületi görbék már maximális értékükhöz közel járnak. A $0 \text{ V/V}\%$ szén-dioxidot tartalmazó ($H_2S/CO_2 = \text{n.e.}$) és $0,011$ H_2S/CO_2 aránnyal jellemezhető gázkeverék esetében pedig az figyelhető meg, hogy a hatásfokváltozást reprezentáló görbék a felületi értékekhez tartozó görbékhez hasonló módon maximumokat közelítik.

Azaz gázösszetétel szempontjából elvégzett vizsgálat eredményeként is kijelenthető, hogy lúgfajlagos emelésével a hatásfok a maximális felületi érték eléréséig növelhető, azonban a maximális felülethez tartozó lúgfajlagos jellemzően nem egyezik meg a maximális hatásfokhoz tartozó lúgfajlagossal.

(A 77. ábrán – a 64. ábrához hasonlóan – $H_2S/CO_2 = \text{n.e.}$ és $H_2S/CO_2 = 0,00111$ adatsor pontjai, illetve $H_2S/CO_2 = 0,00020$ és $H_2S/CO_2 = 0,00013$ adatsor pontjai is fedik egymást.)

A porlasztás során kialakuló felület nagyságát a gázösszetétel (H_2S/CO_2) szempontjából a továbbiakban energetikai szempontból is megvizsgáltam. Az eredmények a 78. ábrán láthatóak.

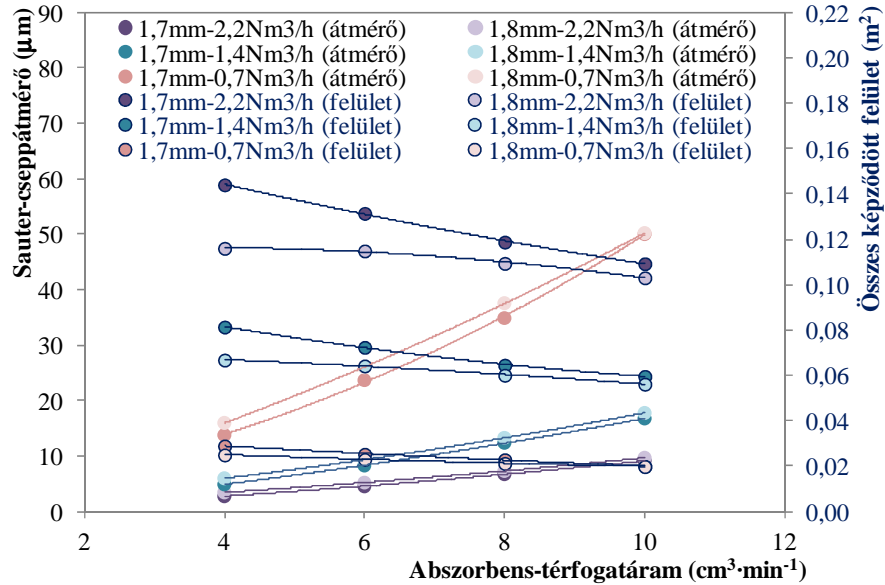


78. ábra: A képződő felület nagyságának vizsgálata a szabadentalpia-változás/gáz kinetikus energia arány függvényében 6 különböző gázösszetétel (H_2S/CO_2) esetében (30 bar nyomás; $1,6 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid)

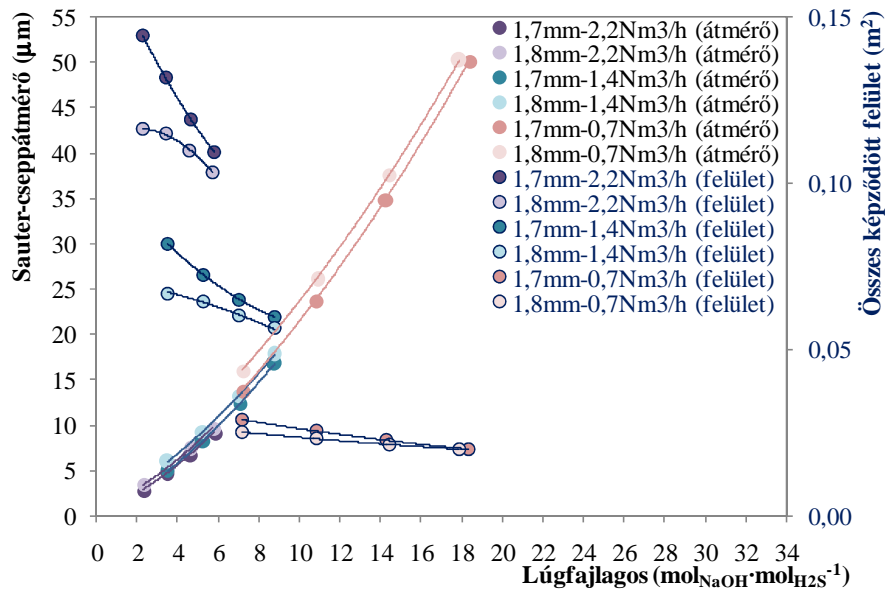
A 78. ábrán látható, hogy a H_2S/CO_2 arány növekedésével az adott felület eléréséhez szükséges felületi energia/gáz kinetikus energia arány értéke is növekedett. Ennek hátterében a gázösszetételtől függő gáz-tömegáram áll, ami befolyásolja a gáz kinetikus energiáját.

3.3.4 A fúvókaátmérő hatásának vizsgálata a porlasztás minőségére

Az 52. és 53. ábrákon (3.2.5 fejezet) láthattuk, hogy a fúvóka átmérőjének csökkentése szignifikáns javulást eredményezett a gázédesítés hatásfokában az abszorbens-térfogatáram, illetve a lúgfajlagos emelkedésének függvényében egyaránt, aminek hátterében a porlasztás minőségének javulását feltételeztem. Ennek bizonyítására a cseppátmérő és felületképződés nagyságának szempontjából is vizsgálatnak vettem alá a fúvókaátmérő változtatás során kapott eredményeket (79. és 80. ábra). Azonban, mivel a fúvókaátmérő megváltoztatása azonos körülmények biztosítása mellett nem jár a lúgfajlagos megváltozásával, az abszorbens-térfogatáram és a lúgfajlagos függvényében ábrázolt cseppméretet és felületi értéket reprezentáló diagramokról ugyanaz az eredmény olvasható le.



79. ábra: A csepp- és felületképződés nagyságának változása az abszorbens-térfogatáram függvényében két különböző fúvókára (585 ppm kén-hidrogén; 35V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,0m/m% nátrium-hidroxid oldat)

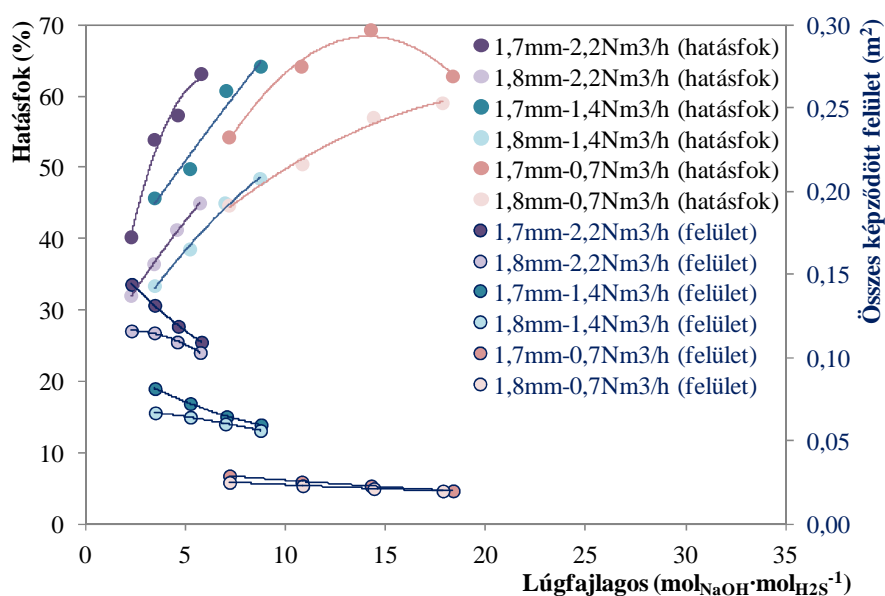


80. ábra: A csepp- és felületképződés nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében két különböző fúvókára (585 ppm kén-hidrogén; 35V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,0m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 79. és a 80. ábra alapján bebizonyosodott, hogy a vizsgált tartományban a kisebb (1,7 mm) átmérővel rendelkező fúvóka alkalmazása ugyanazon kísérleti paraméterek között kisebb cseppek, és ez által nagyobb átadási felület képződéséhez vezetett, azaz jobb minőségű porlasztást eredményezett. Ezek szerint a feltételezés – mely szerint a fúvóka méretének csökkentése a porlasztási minőség javítása által az abszorpciós hatékonyság növelésére képes – igaznak bizonyult.

A 79. és a 80. ábrán továbbá az is megfigyelhető, hogy a felületképzési különbségek a gázáram emelésével növekedtek a folyadékterhelés növeléssel megvalósított lúgfajlagos emeléssel azonban csökkentek a két különböző fúvóka esetében.

Mivel a 3.2.5 fejezetben már rávilágítottam, hogy ha csak a fúvókaátmérőt változtatjuk egy mérés során, akkor a lúgfajlagos értéke nem fog változni. Mivel ismerjük a lúgfajlagos és a gáz/folyadék tömegarány közti összefüggést, beláthatjuk, hogy ebben az esetben nincs különösebb jelentősége a porlasztást a gáz/folyadék tömegarány függvényében tovább vizsgálni. Azonban a maximális hatásfok és maximális felület összefüggés tanulmányozását a lúgfajlagos függvényében ebben az esetben is elvégeztem (81. ábra).



81. ábra: A hatásfok és felületképződés nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében két különböző fúvóka esetére (585 ppm kén-hidrogén; 35V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 2,0m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 81. ábrán láthatjuk, hogy az összes felületi görbe már csökkenő tendenciát mutat, miközben a hatásfokváltozást szemléltető görbék még jellemzően növekvő fázisukban vannak.

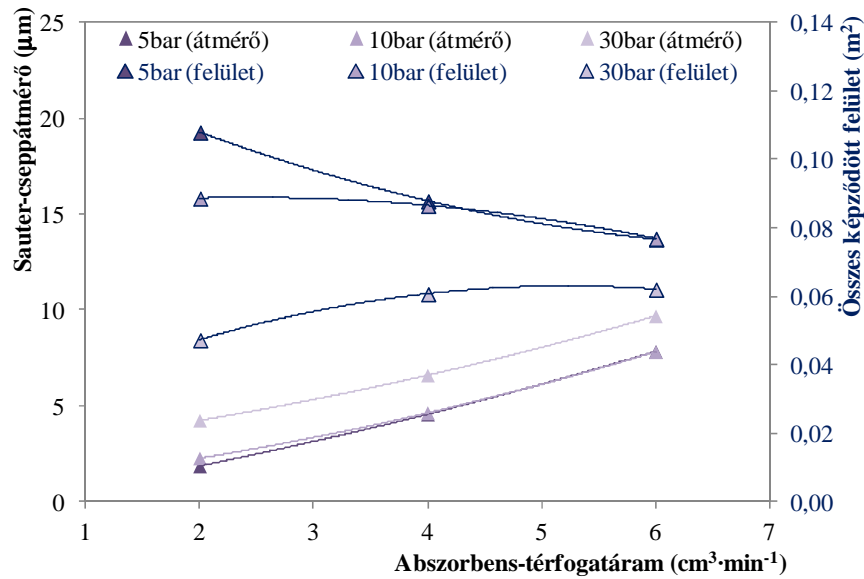
Azaz ismét megemlíthető, hogy az általam használt számítási módszer szerint a maximális felületi érték elérésén túl is növelhető a hatékonyság a lúgfajlagos emelésének segítségével.

(Itt meg szeretném jegyezni, hogy bár a kisebb (1,7 mm) átmérőjű fúvókával jelentősen jobb hatásfok eredményeket értem el, a további vizsgálatokat mégis a

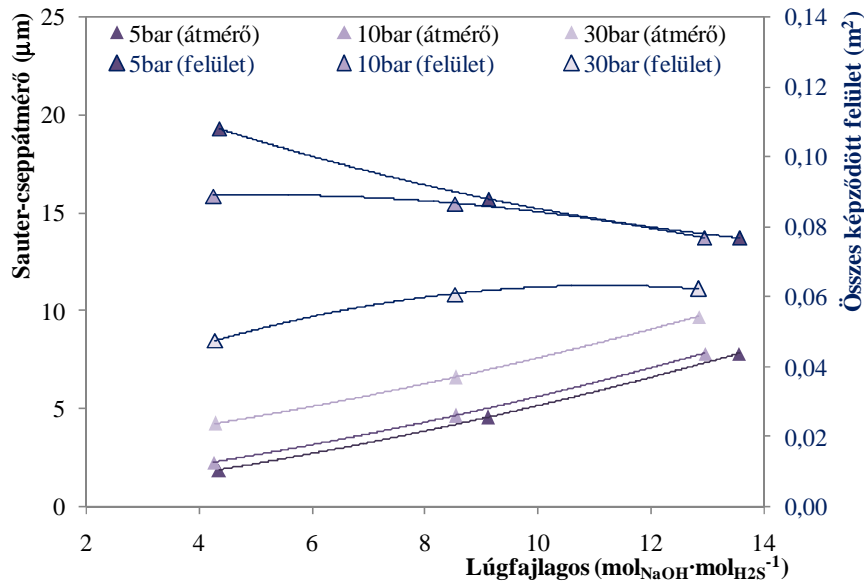
nagyobb méretű (1,8 mm) alkalmazásával folytattam, aminek biztonságtechnikai okai voltak. Az 1,7 mm fúvókaátmérő használata a nyomásesés növekedésével járt, ami veszélyesen megközelítette a berendezésben megengedhető nyomásváltozást.)

3.3.5 A nyomás és a porlasztási minőség összefüggése

A 82. és a 83. ábrán a nyomás porlasztásra gyakorolt hatását ábrázoltam egy konkrét gáz-térfogatáram ($1,0 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$), illetve lúgkoncentráció ($0,5 \text{ m/m}\%$) esetére, mikor a lúgbetáplálás 2; 4; és $6 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ volt (3.2.6 fejezetnek megfelelően).



82. ábra: A csepp- és felületképződés nagyságának változása az abszorbens-térfogatáram függvényében 3 különböző nyomás esetére (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid; $1,0 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

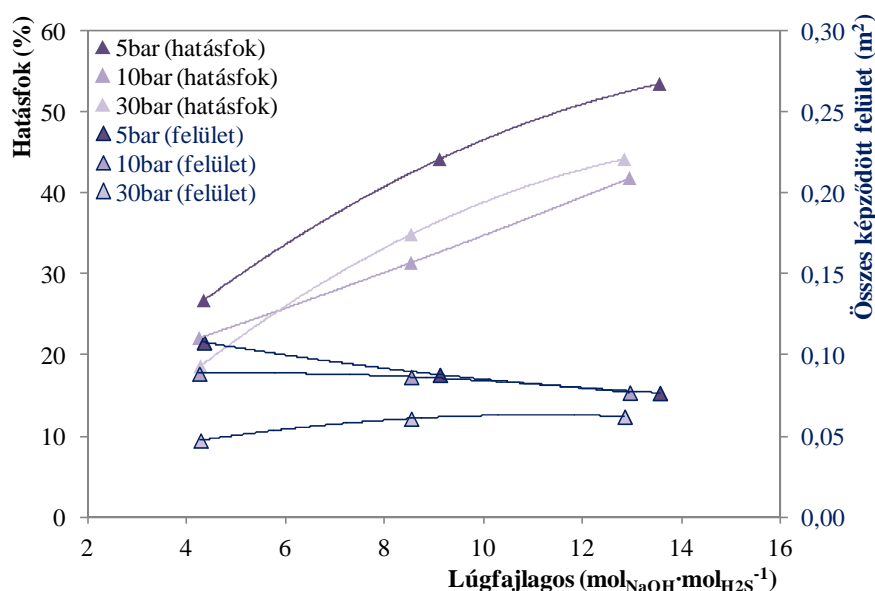


83. ábra: A csepp- és felületképződés nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 3 különböző nyomás esetére (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid; $1,0 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 82. ábrán az abszorbens-térfogatáram és a 83. ábrán a lúgfajlagos függvényében is jól látható, hogy a vizsgált tartományban a porlasztás minősége a nyomás csökkenésével javult.

Ismét megjegyzem ez meglepő tapasztalatnak tűnhet, de ha visszagondolunk a 3.2.6 fejezetben leírt magyarázathoz, akkor ez az eredmény elfogadható.

Mivel a nyomásfüggés vizsgálata (3.2.6 fejezet) esetén már bemutattam, hogy változtatása nem jár a lúgfajlagos értékének megváltozásával, illetve mivel ismerjük a lúgfajlagos és a gáz/folyadék tömegarány közti összefüggést, beláthatjuk, hogy ebben az esetben sincs számottevő jelentősége a porlasztást a gáz/folyadék tömegarány szempontjából tovább vizsgálni. A hatásfok és a felület változásának összefüggését azonban ebben az esetben is megvizsgáltam (84. ábra).



84. ábra: A hatásfok és felületképződés nagyságának változása a lúgfajlagos függvényében 3 különböző nyomás esetére (84 ppmv kén-hidrogén; 41V/V% szén-dioxid; 1,0 Nm³·h⁻¹ gáz-térfogatáram; 0,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 84. ábrán látható, hogy vizsgálati eredményeim szerint a nyomás változtatásakor is azt az eredményt kaptam, hogy a lúgfajlagos abszorbens-térfogatárammal történő változtatásakor a hatásfok nem csak a felületi maximumig növelhető.

3.4 A komponens-áramsűrűség meghatározása és értékének vizsgálata

A komponens-áramsűrűség meghatározását a rendelkezésemre álló adatokból a 3.4.1 egyenlet szerint valósítottam meg.

$$j_S = \frac{\dot{n}_{H_2S} \cdot \frac{\text{Hatásfok}}{100}}{\dot{A}_{\text{új összes}} \cdot t_{\text{gáz kontakt}}} \quad (3.4.1)$$

ahol

\dot{n}_{H_2S} a kén-hidrogén anyagárama [$\text{mol} \cdot \text{s}^{-1}$],

$\dot{A}_{\text{új összes}}$ a porlasztás során 1 s alatt képződött cseppek összes felülete (melyet a Sauter-féle közepes cseppátmérő alapján számoltam) [$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$],

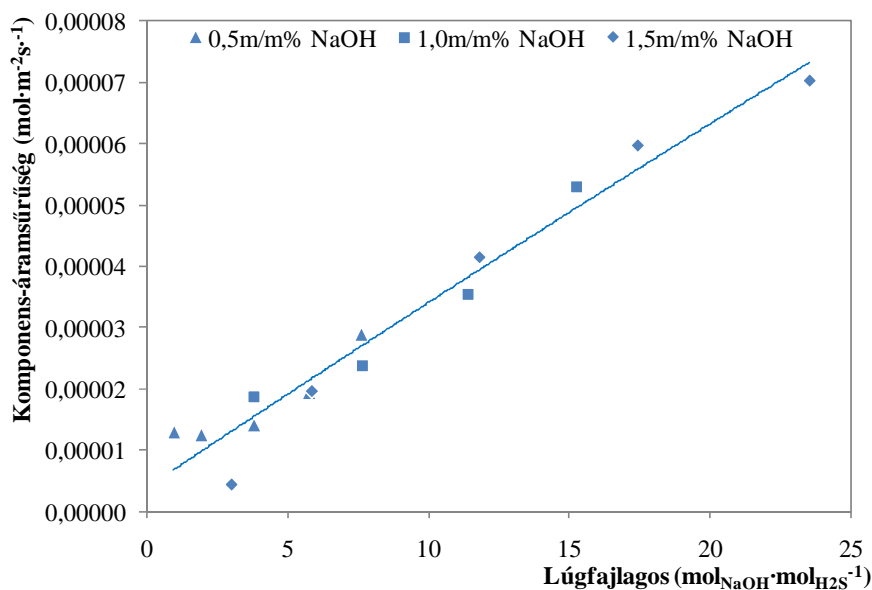
$t_{\text{gáz kontakt}}$ a kontaktidő [s],

j_S a komponens-áramsűrűség [$\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$] (Sauter közepes cseppátmérő alapján számolt, körülményektől függő érték).

A továbbiakban a lúgkoncentráció, az abszorbens-és gáz-térfogatáram, illetve a gázösszetétel komponens-áramsűrűsége gyakorolt hatását vizsgáltam a lúgfajlagos függvényében.

3.4.1 A komponens-áramsűrűség változása különböző lúgkoncentrációk esetében

A számolt komponens-áramsűrűség értékek a 78 ppmv kén-hidrogént és 58V/V% szén-dioxidot tartalmazó gázkeverék esetében a 85. ábrán látható módon alakultak, mikor a gáz térfogatárama $2,4 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ volt és 3 különböző koncentrációjú nátrium-hidroxid oldatra végeztem a vizsgálatot. (Az alkalmazott paramétertartomány részletei a 3.2.2 fejezetben megadott körülményekkel azonosak.)



85. ábra: A komponens-áramsűrűség változása a lúgfajlagos függvényében 3 különböző lúgkoncentráció esetében

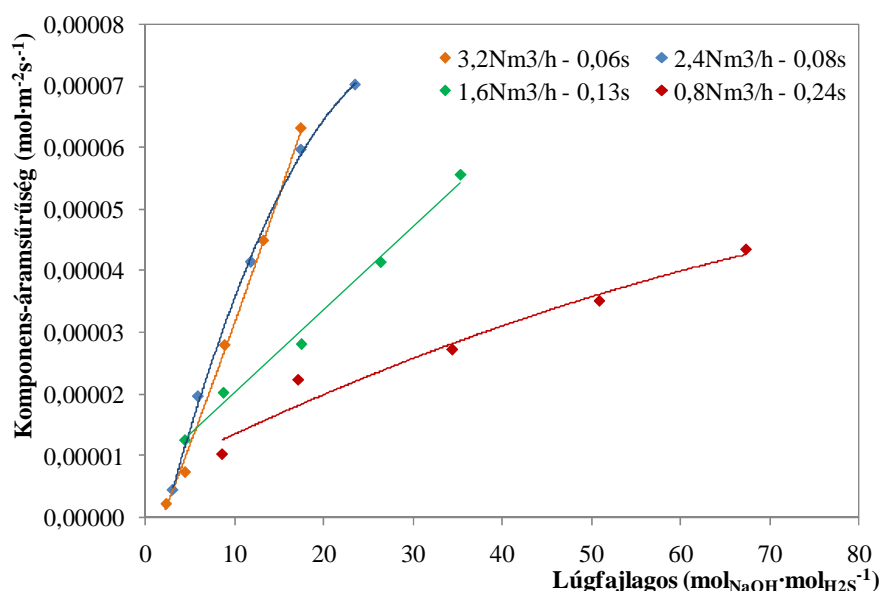
(78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; $2,4 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram)

A 85. ábrát tekintve úgy tűnhet, hogy az alkalmazott abszorbens-koncentrációtól független a komponens-áramsűrűség, mivel az eredményül kapott áramsűrűség értékek egy egyenes mentén helyezkednek el ($R^2=0,96$ pontossággal). Ebből azonban elsősorban csak az a következtetés vonható le, hogy a mért tartományban a folyamatot a kémiai megkötődés határozta meg.

Az eddig tapasztalataim – ha visszagondolunk 3.2.2 fejezetre – azt mutatták, hogy adott lúgfajlagos mellett a lúgkoncentráció csökkentésével javult a kén-hidrogén abszorpció hatásfoka, ami részben a jobb porlaszthatósági tulajdonságokkal volt magyarázható. A komponens-áramsűrűség értékek tehát a 3 különböző lúgkoncentráció esetében úgy eshetnek egybe, hogy az általam vizsgált tartományban a lúgkoncentráció csökkenésével arányosan nőtt a képződött felület nagysága az adott lúgfajlagos érték biztosításakor.

3.4.2 A komponens-áramsűrűség változása a gáz-térfogatáram változtatásával

A gáz-térfogatáram változtatásra meghatározott komponens-áramsűrűség értékek, a szintén 78 ppmv kén-hidrogént és 58V/V% szén-dioxidot tartalmazó gázkeverék esetében, illetve 1,5m/m% nátrium-hidroxid abszorbens-oldat alkalmazásakor, a 86. ábrán látható módon alakultak. (A kísérleti körülmények megegyeznek a 3.2.3 fejezetben megadott paraméterekkel.)



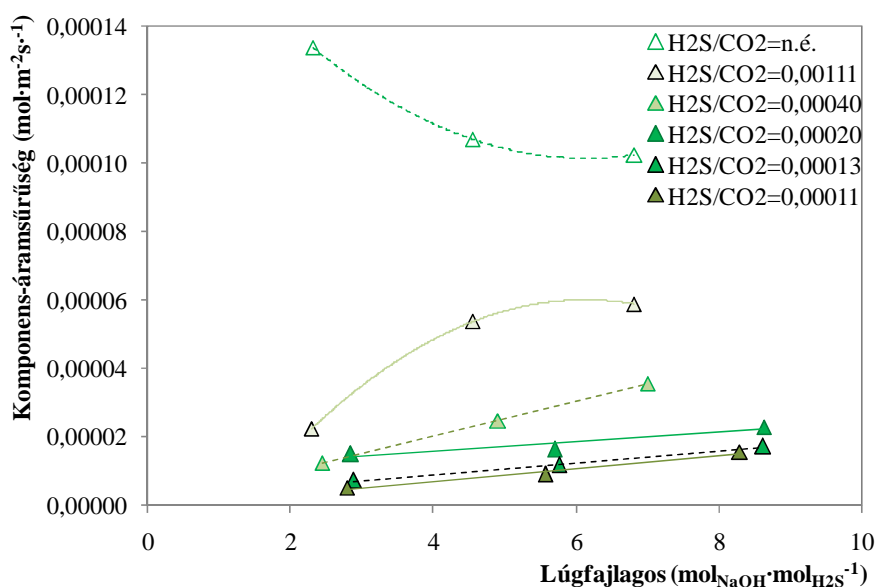
86. ábra: A komponens-áramsűrűség változásának vizsgálata a lúgfajlagos függvényében 4 különböző gáz-térfogatáram esetében (78 ppmv kén-hidrogén; 58V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,5m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 86. ábra alapján elmondható, hogy a vizsgált tartományban a gáz-térfogatáram növelése – azaz a kontaktidő csökkentése – a komponens-áramsűrűség növekedését

okozta. Ezzel kapcsolatban azonban az is megjegyzendő, hogy a gázáram növelés komponensátadásra gyakorolt pozitív hatásának is van egy felső határa. A 86. ábrán is látható, hogy a két legmagasabb gáz-térfogatáram ($2,4$ és $3,2 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$) alkalmazásakor a görbék szinte egybeesnek.

3.4.3 A komponens-áramsűrűség változása a kezelendő gáz összetételének ($\text{H}_2\text{S}/\text{CO}_2$ arányának) változásával

A komponens-áramsűrűség változását az adott gázkeverékek $\text{H}_2\text{S}/\text{CO}_2$ térfogatarány befolyásoló tényezőjének vonatkozásában a lúgfajlagos függvényében a 87. ábrán mutatom be. A kísérletek során $1,6 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáramot és $0,5 \text{ m/m}\%$ koncentrációjú abszorbens-oldatot alkalmaztam. (A vizsgálat körülményei a 3.2.4 fejezetben leírt körülményekkel azonosak.)



87. ábra: A komponens-áramsűrűség változása a lúgfajlagos függvényében különböző összetételű ($\text{H}_2\text{S}/\text{CO}_2$) gázkeverékek esetében (30 bar nyomás; $1,6 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; $0,5 \text{ m/m}\%$ nátrium-hidroxid)

A 87. ábra alapján látható, hogy a csak kén-hidrogént és nitrogént tartalmazó gázkeverék (n.é. jelű) esetében a komponens-áramsűrűség értéke többszöröse volt a szén-dioxidot is tartalmazó gázkeverékek esetéhez képest, illetve hogy a $\text{H}_2\text{S}/\text{CO}_2$ arány csökkenésével a komponens-áramsűrűség is folyamatosan csökkent. Ebből is látható, hogy a szén-dioxid tartalom milyen számottevően degradáló hatással van az alkáli lúgos abszorpció folyamatára.

A 3.4 fejezetet összefoglalva megállapítható, hogy a komponens-áramsűrűség adott geometriával rendelkező konstrukció (az általam használt jet reaktor $1,8 \text{ mm}$

átmérőjű fúvókával), nyomás (30 bar) és lúgfajlagos biztosítása mellett elsősorban a tisztítandó gázkeverék H_2S/CO_2 arányától és az alkalmazott gáz-térfogatáramtól (kontaktidőtől) függ, a lúgkoncentráció hatása viszont elhanyagolható mértékű volt a vizsgált tartományban.

3.5 Matematikai modell készítése kísérlettervezési módszer alapján

A rendszer működésének előzetes megfigyelése után az 1.10.1. fejezetben már ismertetett BBD kísérlettervezési módszer segítségével matematikai modellt hoztam létre az optimalizációs lehetőségek megteremtésére és az egyes változók összefüggéseinek leírására. A modellalkotáshoz Matlab R2015a szoftvert használtam, mely segítségével az egyes változók és modellek statisztikai elemzésére is sort kerítettem (F-próba, varianciaanalízis (ANOVA)). Először 0; 20; 40; 60 és 80V/V% szén-dioxid tartalmú gázkeverékekre hoztam létre külön-külön egy-egy modellt a következő paraméterek figyelembevételével:

- X_1 - nátrium-hidroxid koncentráció [m/m%]
- X_2 - abszorbens térfogatáram [$cm^3 \cdot min^{-1}$]
- X_3 - kontaktidő [s]
- X_4 - kén-hidrogén tartalom [ppmv]

A modell célfüggvénye a kén-hidrogén abszorpció hatásfoka [%] volt. A BBD kísérlettervezési módszer alapján X_1 - X_4 változókat 3 szinten vizsgáltam az 13. táblázatban olvasható mérési pontok kombinációjával. Így 25-25 mérési pont eredményét vettem figyelembe az egyes modellek létrehozásakor.

13. táblázat: Az elvégzendő mérési pontok BBD alapján

Szimbólum	Alsó szint	Középső szint	Felső szint
X_1 ($=c_{NaOH}$)	0,5	1,5	2,5
X_2 ($=\dot{V}_{abszorbens}$)	2	4	6
X_3 ($=t_{gáz\ kontakt}$)	0,05	0,13	0,2
X_4 ($=c_{H_2S}$)	80	90	100

(A vizsgált mérési pontokhoz tartozó konkrét hatásfok eredmények 1. számú Mellékletben olvashatóak.)

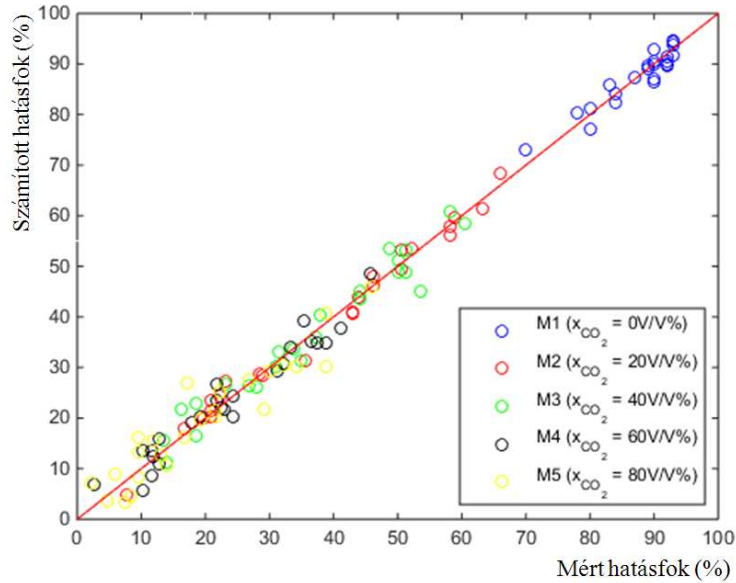
Az egyes gázkeverékekre kapott modellek a 14. táblázat alapján felírhatóak. A táblázatban értelemszerűen β_0 konstans, β_n az X_n változóhoz tartozó szorzó tényezőt jelöli, β_{nn+k} pedig $X_n \cdot X_k$ változók szorzatához tartozó koefficiens. A modell pedig az

egyres tagok összegeként áll elő. A táblázat alsó sorában a determinációs együtthatókat is feltüntettem, mely a kapott modellek (M₁-M₅) illeszkedési pontosságát mutatja számunkra.

14. táblázat: M₁-M₅ modellekhez tartozó koefficiensek

Koefficiens	M ₁	M ₂	M ₃	M ₄	M ₅
	(x ₅ =0% CO ₂)	(x ₅ =20% CO ₂)	(x ₅ =40% CO ₂)	(x ₅ =60% CO ₂)	(x ₅ =80% CO ₂)
β ₀	125,0000	0,7030	228,0000	-107,0000	3,5000
β ₁	11,5000	45,9000	26,5000	2,3900	-4,3200
β ₂	-8,8700	10,1000	-0,8560	-5,8700	27,4000
β ₃	253,0000	186,0000	338,0000	816,0000	167,0000
β ₄	-0,9080	-1,0900	-5,8000	1,4900	-1,3000
β ₁₂	-1,7500	2,0200	1,7400	2,0600	2,6300
β ₁₃	-13,3000	23,9000	0,0000	-16,0000	-8,7900
β ₁₄	0,1500	-0,1920	-0,2330	0,0060	0,1190
β ₂₃	0,0000	-4,9900	-7,5900	-4,2700	-14,3000
β ₂₄	0,1500	0,0275	0,0872	0,0956	-0,2690
β ₃₄	-3,3300	-2,0200	-3,9800	-7,1000	0,7170
β ₁₁	-3,8300	-7,9200	0,3440	0,5120	-2,0400
β ₂₂	-0,0208	-0,8810	-0,3800	-0,0830	0,0415
β ₃₃	252,0000	185,0000	601,0000	-214,0000	-560,0000
β ₄₄	0,0017	0,0077	0,0350	-0,0054	0,0110
R ²	89.53%	98.61%	95.31%	94.28%	88.46%

Az egyes gázkeverékekhez tartozó mért értékek illeszkedése a számoltakhoz képest grafikusán a 88. ábrán is megfigyelhető.



88. ábra: M₁-M₅ modellegyenletek illeszkedése a mért adatsorokhoz

A 88. ábrán látható, hogy az egyes modellek jól illeszkednek a mért hatásfok értékekhez.

A szén-dioxid tartalomtól függő modellszerkesztések után egy úgynevezett univerzális modellt is létrehoztam, mely a vizsgált gázkeverék szén-dioxid tartalmával is képes kalkulálni. Ezt a modellt M₆-tal jelöltem, és létrehozásához X₅ szén-dioxid tartalmat [V/V%] jelölő változót is bevezettem. M₆ modell megalkotásához a 1. számú Melléklet táblázatában látható összes – szám szerint 125 darab – mérési eredményt vettem figyelembe. Az M₆ modellegyenletre a 3.5.1 egyenlet szerinti összefüggést kaptam eredményül, mely R²=89,9%-os illeszkedést mutatott a mért eredményekre.

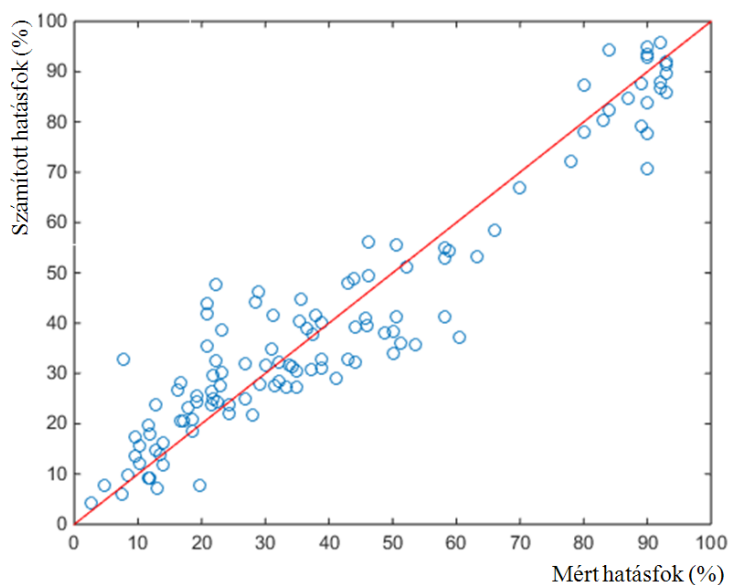
$$\hat{y} = 390 + 0,666 \frac{X_1}{X_3} - 25,3 \frac{V_{\text{reaktortér}}}{X_2 \cdot X_3} + 27X_3^2 - 7,68X_4 + 0,0467X_4^2 - 1,41X_5 + 0,0097X_5^2 \quad (3.5.1)$$

M₆ modellegyenlet pontossága az általam használt berendezés esetén a 15. táblázatban megadott körülmények biztosítása mellett érvényes.

15. táblázat: M_6 modell érvényességi tartománya

Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja	0,5	2,5	m/m%	c_{NaOH}
Abszorbens-térfogatáram	2	6	$\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{abszorbens}}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma	80	100	ppmv	$c_{\text{H}_2\text{S}}$
Gázkeverék szén-dioxid tartalma	0	80	V/V%	c_{CO_2}
Gáz-térfogatáram	1,0	4,0	$\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{gáz}}$
Kontaktidő	0,05	0,20	s	$t_{\text{gáz kontakt}}$
Nyomás		30	bar	p
Hőmérséklet		szobahőmérséklet (~20)	°C	T
Fúvókaátmérő		1,8	mm	D_g

Az illeszkedés grafikus ábrázolása a 89. ábrán tekinthető meg.



89. ábra: M_6 modellegyenlet illeszkedése a mért adatsorokhoz

A kapott eredmények alapján tehát bebizonyosodott, hogy az általam vizsgált rendszer matematikai módszer segítségével modellezhető, mely modell alkalmazásával a továbbiakban az optimalás is elvégezhető.

3.6 Kísérleti eredmények jet reaktorok sorba kapcsolása esetén

Amennyiben egy jet reaktorban nem érjük el a kívánt hatásfokot, az iparban számos területen alkalmazott sorba kapcsolt rendszer alkalmazása jut eszünkbe.

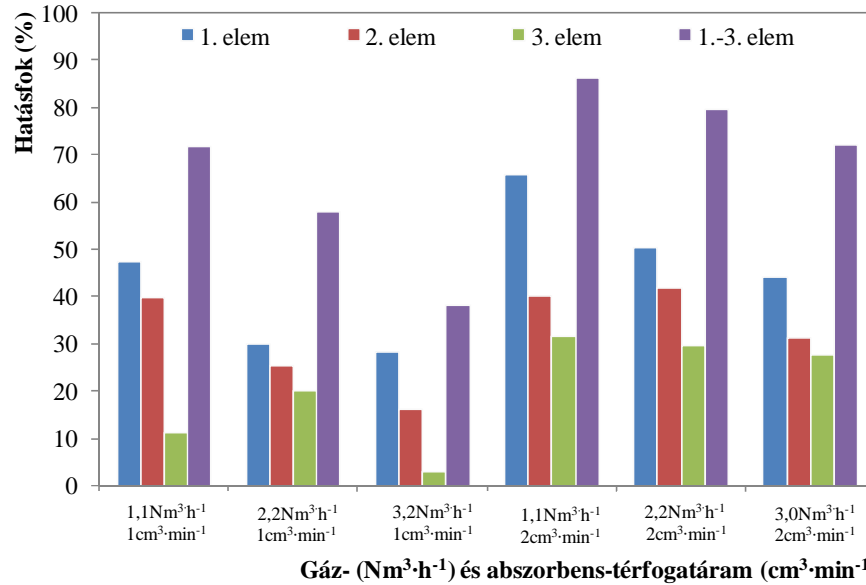
Kísérleti munkám háromelemű úgynevezett kaszkádsorral történő mérések elvégzésére is kiterjedt. A kísérleteket a rendelkezésemre álló 50 ppmv kén-hidrogént és 10V/V% szén-dioxidot tartalmazó gázkeveréssel végeztem el. A mérések kivitelezésénél az 1,8 mm átmérőjű fúvókát alkalmaztam a 16. táblázatban olvasható paramétertartományban.

16. táblázat: Kaszkád kísérletek mérési tartománya

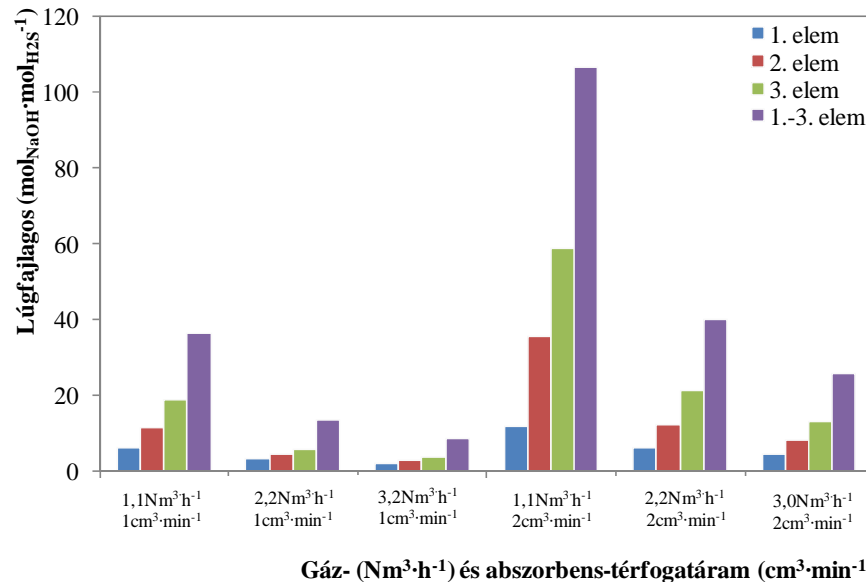
Tényezők	Minimum	Maximum	Mértékegység	Jelölés
Nátrium-hidroxid abszorbens-oldat koncentrációja	1,0		m/m%	c_{NaOH}
Abszorbens-térfogatáram	1	2	$\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{abszorbens}}$
Gázkeverék kén-hidrogén tartalma	50		ppmv	$c_{\text{H}_2\text{S}}$
Gázkeverék szén-dioxid tartalma	10		V/V%	c_{CO_2}
Gáz-térfogatáram	1,1	3,2	$\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	$\dot{V}_{\text{gáz}}$
Kontaktidő	0,06	0,18	s	$t_{\text{gáz kontakt}}$
Nyomás	30		bar	p
Hőmérséklet	szobahőmérséklet (~20)		°C	T
Fúvókaátmérő	1,8		mm	D_g

(Megjegyzem a 16. táblázatban olvasható gáz-térfogatáram, kontaktidő és nyomás adatok csak az 1. számú kaszkád elemekre érvényesek. A gáz térfogatárama és nyomása a folyamat során - az egyes elemekben bekövetkező abszorpciónak és expanzióknak köszönhetően - csökken.)

Az eredmények a 90-92. ábrán láthatóak.



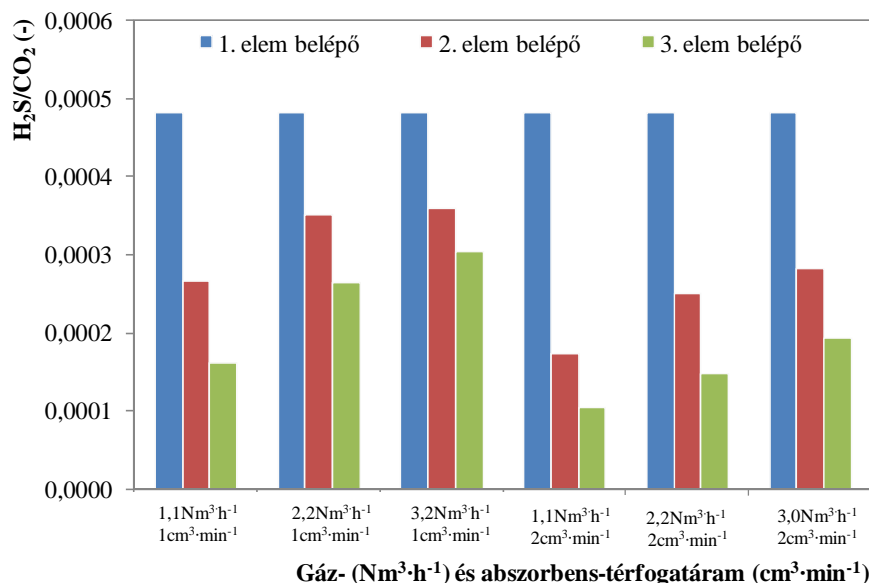
90. ábra: A hatásfok változása egyes gáz- és abszorbens-térfogatáramok esetében háromelemű kaszkádban (50 ppmv kén-hidrogén; 10V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,0m/m% nátrium-hidroxid oldat)



91. ábra: A lúgfajlagos változása egyes gáz- és abszorbens-térfogatáramok esetében háromelemű kaszkádban (50 ppmv kén-hidrogén; 10V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,0m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A háromelemű kaszkád vizsgálatokor bebizonyosodott, hogy a reaktorok sorba kapcsolásával az általam vizsgált tartományban nem kifizetődő dolgozni, ugyanis az egymás után következő elemekben – a lúgfajlagos emelésének ellenére – a hatásfok folyamatosan csökkent. Ez a tapasztalat az eddigi eredményekkel összhangban van, hiszen az előzőekben már megállapítottam, hogy a gáz összetételét tekintve a H₂S/CO₂ arány emelkedésével javul a hatásfok. Sorba kapcsolt reaktorok esetében azonban az elemek sorszámának növekedésével a H₂S/CO₂ arány a szelektív kén-hidrogénmentesítésnek köszönhetően csökken, ezért a hatékonyság is csökken. A

belépő gáz H_2S/CO_2 arányának változása az egyes elemek és körülmények esetében az 92. ábrán tekinthető meg.



92. ábra: A belépő gáz H_2S/CO_2 arányának változása háromelemű kaszkád esetében (50 ppmv kén-hidrogén; 10V/V% szén-dioxid; 30 bar nyomás; 1,0m/m% nátrium-hidroxid oldat)

A 92. ábrán egyértelműen az látható, hogy a kaszkád elemek sorszámának növekedésével a belépő gáz H_2S/CO_2 aránya fokozatosan csökkent.

Megjegyzem ez az eredmény is azt támasztja alá, hogy az általam használt berendezésben a kén-hidrogén abszorpció szelektív módon megy végbe.

A kaszkád kísérletek tapasztalataival kapcsolatban meg szeretném még említeni, hogy ha az iparban a rendelkezésre álló körülmények között kizárólag jet reaktorok sorba kapcsolása jöhet szóba az adott gázáram kén-hidrogén tartalmának megfelelő kezelésére, akkor a gazdaságosabb működés érdekében érdemes fontolóra venni az elemek sorszámának növekedésével a lúgkoncentráció csökkentését, illetve a gáz-térfogatáram növelésének lehetőségét.

3.7 Fúvóka méretnövelési problémájának megoldása

A 3.2.5 és 3.3.4 fejezetekben már bemutattam, hogy a fúvókaátmérő helyes megválasztása milyen jelentős hatással van a művelet hatékonyságára. Az optimális méretű fúvóka meghatározásához, azonban figyelembe kell venni a tisztítandó gáz volumetrikus tényezőit is. A porlasztó méretnövelésének megvalósítása elméleti alapon nem egyszerű feladat, reaktortechnikai szempontból maximálisan tízszeres léptéknövelés az ajánlott. Üzemi körülmények között például többfúvókás rendszer kialakításával is megoldható a méretnövelés problémája. A fúvókaméret

meghatározásához a tisztítandó gáz térfogati és lineáris áramlási sebességét, nyomását, hőmérsékletét, illetve az adott áramlási keresztmetszetet egyaránt nagyon fontos figyelembe venni, mindemellett természetesen a folyadék-betáplálásról sem szabad megfeledkezni. Megjegyzem a gáz lineáris sebessége a 3.7.1 képlet segítségével áll elő:

$$v_{gáz\ lin} = \frac{\dot{V}_{gáz}}{A_{fúvóka}} \quad (3.7.1)$$

ahol

$v_{gáz\ lin}$ a gázáram lineáris sebessége [$m \cdot s^{-1}$],

$\dot{V}_{gáz}$ a gáz térfogatárama [$m^3 \cdot s^{-1}$],

$A_{fúvóka}$ pedig a fúvóka azon keresztmetszete, melyen a gáz áramlik [m^2].

Az eddigi mérési eredmények alapján elmondható, hogy a viszonylag legjobb hatások eredményeket akkor kaptam, amikor a gáz minimum $50\ m \cdot s^{-1}$ lineáris sebességgel áramlott. Ez különböző nyomás és gáz-térfogatáram párok esetében is tapasztalható volt, példának okáért az 1,8 mm átmérőjű fúvóka esetén 30 bar nyomáson $3,2\ Nm^3 \cdot h^{-1}$ gáz-térfogatáram $56\ m \cdot s^{-1}$ lineáris sebesség alakult ki. A folyadék-térfogatárammal kapcsolatos megfigyelések szerint az abszorbens áramának csak korlátozott tartományban volt szignifikáns hatása a porlasztás minőségére és a hatékonyságra, ezért – illetve mert a gáz sebessége nagyságrendekkel nagyobb a folyadék sebességénél ($1-10\ cm^3 \cdot min^{-1}$ betáplálás esetén a lineáris sebesség csupán $0,008-0,083\ m \cdot s^{-1}$) – a folyadék betáplálás hatását a méretervezésnél elhanyagoltam.

Tegyük fel, hogy a következő üzemi körülményeknek kívánunk megfelelni egy tízszeres léptékű méretnövelés során:

- átlagos gáz-térfogatáram: $30000\ Nm^3 \cdot h^{-1}$
- folyadék-térfogatáram: $2\ m^3 \cdot h^{-1}$
- átlagos nyomás: 30 bar
- hőmérséklet: $15\ ^\circ C$
- a rendelkezésre álló üzemi gázcső belső átmérője, amelybe a porlasztót beépítjük: 300 mm
- a rendelkezésre álló gázcsőbe beépítendő porlasztócső belsőátmérője: 4 mm; külsőátmérője: 6 mm

A gázt a méretnövelési számítások során ideális gázként kezeltem, a tervezési feladatot a következőkben leírt metódus szerint oldottam meg.

1. lépés: Megvizsgáltam, hogy az üzemi gáz-térfogatáram teljes egészében felhasználható-e a porlasztásra, vagy részáram elvételére van szükség.

Ha $30000 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram 30 bar nyomáson $1000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ -nak felel meg, illetve a rendelkezésre álló üzemi gázcső keresztmetszete 3.5.2 egyenlet szerint adható meg,

$$A_{gáz\ cső} = \frac{D_{gáz\ cső}^2 \cdot \pi}{4} = \frac{(0,3 \text{ m})^2 \cdot 3,14}{4} = 0,07065 \text{ m}^2 \quad (3.7.2)$$

akkor a gáz lineáris sebessége 3.5.3 egyenlet szerint alakul.

$$v_{gáz\ lin} = \frac{\dot{V}_{gáz\ csőben}}{A_{gáz\ cső}} = \frac{1000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}}{0,07065 \text{ m}^2} = 14156 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1} = 3,93 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} \quad (3.7.3)$$

Az $50 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ gázsebesség eléréséhez szükséges keresztmetszet 3.5.4 egyenlet alapján számolható.

$$A_{szüks} = \frac{\dot{V}_{gáz\ csőben}}{v_{gáz\ lin\ min}} = \frac{1000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}}{50 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}} = \frac{0,2777 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}}{50 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}} = 0,005555 \text{ m}^2 \quad (3.7.4)$$

Mivel az $50 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ gázsebesség eléréséhez szükséges keresztmetszet egy nagyságrenddel kisebb, mint a rendelkezésre álló gázcső keresztmetszete, ezért kijelenthető, hogy a cső porlasztóval felszerelhető, és hogy a teljes gázáram a porlasztásban részt vehet.

2. lépés: Meghatároztam, hogy a méretnövelés és a porlasztófej beépítése után a gáz számára rendelkezésre álló keresztmetszet hogyan változik.

Ehhez figyelembe vettem, hogy a porlasztófejnek (33. ábra) körgyűrű keresztmetszetű kilépő nyílása van, hogy tízszeres méretnövelést kívánok végrehajtani, illetve hogy a (folyadék bevezetésre) porlasztóként alkalmazandó cső 6/4 mm külső/belső átmérőjű.

A laboratóriumi mérések során 1,8 mm átmérőjű fúvókát használtam, ezt a méretnövelési eljárás során 18 mm-re változtattam (a tízszeres szorzónak köszönhetően).

Így a keresztmetszet számítását 3.5.5 egyenlet szerint végeztem.

$$\begin{aligned} A_{körgyűrű} &= \frac{D_{gáz\ új}^2 \pi}{4} - \frac{d_{folyadék}^2 \pi}{4} \\ &= \frac{(0,018 \text{ m})^2 \cdot 3,14}{4} - \frac{(0,006 \text{ m})^2 \cdot 3,14}{4} \\ &= 0,000226 \text{ m}^2 \end{aligned} \quad (3.7.5)$$

3. lépés: Meghatároztam a szükséges porlasztószámot.

Látható, hogy körgyűrű keresztmetszete 3.5.5 egyenlet alapján kisebb, mint a szükséges 3.5.4 egyenlet szerint. Tehát többfűvókás rendszer kiépítésére van szükség ebben az esetben. A fűvókák számát 3.5.6 egyenlet alapján határoztam meg.

$$n_{porlasztó} = \frac{A_{szüks}}{A_{körgyűrű}} = \frac{0,005555 \text{ m}^2}{0,000226 \text{ m}^2} = 24,5 \text{ darab} \quad (3.7.6)$$

4. lépés: A porlasztó elrendezésének megtervezése.

Tehát, hogy az üzemben a gáz elérje az $50 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ lineáris sebességet 24 darab 18/6 mm nagyságú fűvókára van szükség. A fűvókák elrendezése megvalósítható például négyzetes vagy háromszög elosztásban. A kivitelezés során kifejezetten ügyelni kell arra, hogy minden egyes fűvóka azonos folyadék- és gázellátással rendelkezzen. Ennek érdekében, egy közös elosztófejből kiindulva azonos hosszúságú csőszakaszokat kell kialakítani. Az elosztófej azonban – lévén egy tömb – megzavarhatja a gáz áramlását, minek következtében az egyes fűvókákban eltérő porlasztás alakulhat ki. Ezért az abszorbens egyenletes elosztására – a folyadék kromatográfiában használatos folyadékelosztók mintájára [110] - egy új műszaki megoldást dolgoztam ki, mely a gáz útját tekintve teljes mértékben szimmetrikus ellenállást jelent. A porlasztófejek számát tekintve hármass elosztásban ($3^3=$) 27 fűvókás elrendezés kialakításra van lehetőség. (Az elképzelt elrendezési séma a 3. számú Mellékletben tekinthető meg.) 27 darab fűvóka több, mint az előre kiszámolt szükséges fűvókaszám, azonban esetleges gázáram ingadozások esetére – ami üzemi körülmények között nem ritka jelenség – a 3-mal több porlasztófej beépítése indokoltnak mondható. Ha az esetünkben adott üzemi körülményeket vesszük alapul, és a szükséges 24 helyett 27 fűvókát használunk, akkor az elvárt lineáris gázsebesség ($50 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) mindössze $4,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ -mal csökken, ami jelentős hatásfokcsökkenést nem okozhat. Ezzel az elrendezéssel részáramok kezelésére is kialakítható az üzemi berendezés; ha például a teljes gázáramnak csupán 3/27-ed részét kívánjuk kezelni, akkor a fűvókák számát 3-ra kell csökkenteni.

5. lépés: Az áramlási tulajdonságok ellenőrzésének elvégzése.

Mint azt az előző fejezetekben már említettem, a turbulens áramlásnak kiemelkedően fontos szerepe van az általam használt gázédesítési technológiában. Az egyes esetek áramlástanai tulajdonságairól a Reynolds-szám alapján informálódhatunk. A csőben áramló gáz Reynolds-számát 1.8.1 egyenlet

szerint már az előzőekben megadtam, de figyelembe kell venni, hogy esetünkben körgyűrűről van szó, azaz a 3.7.7 és 3.7.8 egyenletek szerint kell eljárnom.

$$Re = \frac{d_e \cdot v}{\nu} \quad (3.7.7)$$

ahol

d_e az egyenérték átmérőt (3.7.8 egyenlet),

v a sebességet

ν pedig a kinematikai viszkozitást jelöli.

$$d_e = 4 \cdot \frac{A_{\text{áramlási}}}{K_{\text{nedvesített}}} = 4 \left(\frac{D_g^2 \pi}{4} - \frac{d_f^2 \pi}{4} \right) = \frac{D_g^2 - d_f^2}{D_g + d_f} \quad (3.7.8)$$

Azaz az egyenérték átmérő az áramlási keresztmetszet és a nedvesített kerület hányadosának négyszeresével egyenlő, esetünkben kifejezhető csupán a gáz és folyadék bevezetésére szolgáló csövezetékek átmérőjének ismeretében is.

A Re-szám meghatározásához (17. táblázat) a gáz kinematikai viszkozitásának ismeretére is szükség van. Ha olajkísérő gázáramot feltételezünk, mely számottevő hányadában szén-dioxidból áll, akkor nem követünk el nagy hibát, ha a közelítő számításhoz a szén-dioxid kinematikus viszkozitásával számolunk, mely $1,5 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$.

17. táblázat: A Re-szám meghatározása a méretnövelés során

	D_g [m]	d_f [m]	d_e [m]	v [$m \cdot s^{-1}$]	Re-szám [-]
Laborkísérleti berendezés	0,0018	0,0016	0,0002	50	667
Üzemi gázcső	0,3000	-	-	3,93	78600
1 darab üzemi fúvóka	0,0180	0,0060	0,0120	50	40000

A fúvókák körgyűrű keresztmetszetében a kisebb átmérők miatt a Re-szám kisebbnek adódik, mint az üzemi gázcső esetében, azonban a gáz a fúvókát elhagyva szabad sugarat képez, amelyben a Re-szám megváltozik. A helyzetet tovább bonyolítja, hogy több fúvóka esetén – ha nem alkalmazunk minden egyes fúvókához külön-külön kúpos kialakítású megvezetést – a sugarak egymással érintkezve további turbulenciát okoznak, mely a Re-szám segítségével már nem követhető nyomon.

A 300 mm-es üzemi gázcső teljes keresztmetszete, mint azt a 3.7.2 egyenlet szerint már megállapítottam $0,07065 m^2$. Ennek turbulens sugárral való lefedése a feladat. A turbulens sugár hosszát az 1.8 fejezetben leírtaknak megfelelően a fúvókaátmérő hatszorosának véve, illetve 30° -os kúpszöget feltételezve az egy fúvóka által lefedett terület a 3.7.9 egyenlet szerint alakul.

$$A_{kúp\ alapköre} = \frac{(2 \cdot 6D_g (1\text{ üzemi fúvóka}) \cdot tg15^\circ)^2 \pi}{4} = 0,0026m^2 \quad (3.7.9)$$

A teljes felület pedig a fúvókák számával beszorozva 3.7.10 egyenletnek megfelelően kapjuk.

$$A_{összes\ lefedett} = 27 \cdot A_{kúp\ alapköre} = 27 \cdot 0,0026m^2 = 0,0702m^2 \quad (3.7.10)$$

Elmondható tehát, hogy az üzemi gázcső szinte teljes keresztmetszetében a tervezetteknek megfelelően lefedhető a turbulens sugárral.

(Megjegyzem, hogy a méretnöveléssel kapcsolatos számítási eredmények az általam vizsgált és bemutatott gázösszetétel és -térfogatáram tartomány mérési eredményei alapján születtek. A vizsgált tartományon kívül korrekció szükséges.)

Megemlíteném, hogy az általam kidolgozott megoldás is tovább fejleszthető, jó megoldásnak tűnik például, hogy minden egyes fúvókát saját kúpos kialakítású reaktortesttel lássunk el.

4. Összefoglalás

Kutatásom célja az alkáli lúgokban – a szén-dioxid és a kén-hidrogén között – lejátszódó kompetitív kemiszorpció tanulmányozása volt. Feladataim közt elsősorban a szelektív kén-hidrogén abszorpció hatásfokának növelése és a gazdaságosabb működés elősegítése szerepelt. (A mérések kivitelezéséhez minden esetben nitrogén, kén-hidrogén és szén-dioxid tartalmú modell gázkeverékeket használtam fel.)

Dolgozatom irodalmi részében összefoglaltam a földgáztisztítás szükséges lépéseit, a gázédesítési lehetséges módszereit. Külön hangsúlyt fektettem az alkáli lúgos abszorpcióval kapcsolatos eddigi tapasztalatok részletes bemutatására. Az irodalmi fejezetben továbbá a komponensátadás és a porlasztás (csepp- és felületképzés) alapjainak ismertetésére is kitértem.

Kutatói munkám kezdetén az alkáli lúgos kompetitív kemiszorpciót egy félfolyamatos töltetes abszorberben tanulmányoztam. Tapasztalataim alapján megállapítottam, hogy a berendezés a hosszú (másodperces nagyságrendű) tartózkodási idő, illetve a folyadék fázisban zajló reakciók és pH viszonyok alakulásának következtében alkalmatlan szelektív kén-hidrogén abszorpció megvalósításához.

További kísérleteimet ezért egy speciális – a szabad turbulens áramlás kialakulásának megfelelő – konstrukciójú jet reaktorban végeztem el. A jet reaktor alkalmazásakor lehetőségem nyílt a kontaktidőt 1 s alatti szintre csökkenteni, illetve a porlasztásos megoldásnak köszönhetően az átadási felületet jelentősen megnövelni. Az előzetes tapasztalatok szerint ugyanis a tartózkodási idő csökkentése a kén-hidrogén megkötődés szelektivitásának kedvez, azonban az abszorpció hatékonyságának növeléséhez a fázisérintkeztetés maximalizálása is elengedhetetlen feltétel.

A jet reaktor alkalmazásakor első tapasztalataim között szerepelt, hogy a készülékben a kén-hidrogén abszorpció szelektív módon zajlott le. Annak ellenére, hogy a kén-hidrogénhez képest a szén-dioxid nagyságrendekkel nagyobb mennyiségben volt jelen a tisztítandó gázkeverékben, a szén-dioxid abszorpció hatásfoka mégis elhanyagolható volt a kén-hidrogén eltávolításának hatásfoka mellett.

Kutatói munkám során a jet reaktor segítségével a következő paraméterek hatását tanulmányoztam a szelektív kén-hidrogén abszorpció hatásfokára, a lúghasznosítás mértékére illetve a porlasztás minőségére vonatkozóan: az abszorbens- és a gáz-térfogatáram, a lúgkoncentráció, a gázösszetétel, a nyomás, a fúvókaátmérő és az abszorbens-oldat alapanyaga.

Az abszorbens-térfogatárammal ($1-8 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$) kapcsolatban igazoltam, hogy növelésével a hatásfok telítési görbe szerint emelkedik, miközben a lúgfajlagos értéke lineárisan növekszik, a felület nagyságának pedig maximuma van.

A gáz-térfogatáram ($0,8-3,2 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$) emelésekor – azaz a kontaktidő csökkentésekor – azt tapasztaltam, hogy a gázédesítés hatásfoka és vegyszer-hasznosítása javuló tendenciát mutatott, azonban a megfelelő gáz-térfogatáram kiválasztása a folyadékfázis fizikai jellemzőinek függvénye. A porlasztás minőségét illetően a gáz-térfogatáram növelésével minden általam vizsgált esetben számottevő pozitív hatást figyeltem meg.

Az abszorbens-koncentráció hatását tanulmányozva arra a konklúzióra jutottam, hogy a vizsgált tartományban a kisebb koncentrációjú lúgoldatok jártak a jobb vegyszer-hasznosítási eredményekkel ($0,5-1,5 \text{ m/m}\%$). Az optimális abszorbens-koncentráció kiválasztásakor azonban mindenképp figyelemmel kell lenni két fontos tényezőre. Az egyik, hogy a lúgfajlagos nagyobb legyen, mint $1 \text{ mol}_{\text{OH}^-} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$. A másik pedig, hogy ennek a lúgfajlagosnak a biztosításához, ha adott lúgkoncentrációval dolgozunk, akkor az meg is határozza az abszorbens-térfogatáramát, amelyet a porlasztás során a gáz árama képes legyen elporlasztani.

A tisztítandó gáz összetételével kapcsolatban az megállapítás született, hogy a $\text{H}_2\text{S}/\text{CO}_2$ térfogatarány emelkedésével ($>0,00011 \text{ H}_2\text{S}/\text{CO}_2$) javult a hatékonyság és a vegyszerhasznosítás, azonban a csepp- és a felületképzés nagyságát az adott gázkeverék átlagos moláris tömege határozta meg. Az átlagos moláris tömeg növekedésével javult a porlasztás minősége.

A vizsgált tartományban a fúvókaátmérő csökkentése ($1,8 \text{ mm}$ -ről $1,7 \text{ mm}$ -re) is a hatásfok emelkedésének, a lúghasznosítás mértékének illetve a porlasztás minőségének kedvezett.

Tapasztalataim szerint a nyomás csökkentése ($5-30 \text{ bar}$) is a hatásfok és porlasztási minőség javulását eredményezte. (Megjegyzem ez a megállapítás abban az esetben igaz, ha a gáz-térfogatáram állandó.)

Laboratóriumi tevékenységem során azonos molaritású ($0,12 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$), azonban – eltérő anyagi minőségüknek köszönhetően – különböző tömeg%-os nátrium-hidroxid és kálium-hidroxid abszorbenssel is végeztem méréseket. Az eredmények egyértelműen kimutatták, hogy a vizsgált tartományban, illetve az alkalmazott technológiai megoldás esetében a nátrium-hidroxid volt a jobb hatásfokot adó abszorbens alapanyag.

A porlasztás során kialakuló cseppek átlagos Sauter-féle átmérőjének meghatározásához minden esetben Nukiyama-Tanasawa egyenletét használtam fel. Az

átlagos Sauter-féle cseppátmérő értékek ismeretében pedig a képződött felületek meghatározásához egyszerű matematikai (geometriai képletek) és logikai lépések segítségével jutottam el. A kiértékelés során eredményül kapott adatok alapján megállapítottam, hogy a gáz és a folyadék fázis egymáshoz viszonyított tömegaránya kiemelkedően fontos tényező. Adott körülmények között a folyadék arányának növelésével a felület egy ponton maximális értéket vesz fel. A felületképződési optimum és a hatásfok maximum összefüggésének vizsgálatakor továbbá azt is megfigyeltem, hogy a folyadékterhelés növelésének következtében történő lúgfajlagos emelésnek köszönhetően a rendszer hatásfoka a maximális felület eléréséig minden esetben javítható volt, azonban a maximális hatásfokhoz tartozó lúgfajlagos értékek jellemzően nem egyeznek meg, hanem nagyobbak a maximális felülethez tartozó arányszámnál.

A felület, a kontaktidő, és az abszorbeált kén-hidrogén anyagmennyiség ismeretében a különböző mérési pontokhoz tartozó komponens-áramsűrűségeket is meghatároztam. Ezzel összefüggésben megállapítottam, hogy az komponens-áramsűrűség nagysága a vizsgált intervallumokban elsősorban az abszorbens- és gáz-térfogatáram, illetve a gázösszetétel határozta meg. A lúgkoncentráció hatása a felsoroltak mellett elhanyagolható mértékű volt.

A mérések eredményei alapján Box-Behnken kísérlettervezési módszer alkalmazásával matematikai modellt hoztam létre az optimalás lehetőségének megteremtésére. A létrehozott modell segítségével a hatásfok az egyes változók ismeretében 89,9%-os pontossággal megbecsülhető. A modell az általam használt készülék esetében 80-100 ppmv kén-hidrogént és 0-80V/V% szén-dioxidot és nitrogént tartalmazó gázkeverékekre érvényes a következő mérési tartományon belül: 2-6 $\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ abszorbens-térfogatáram; 0,5-2,5m/m%_{NaOH} abszorbens-koncentráció; 0,05-0,20 s kontaktidő; 30 bar nyomás és szobahőmérséklet.

Kutatói munkám során a berendezés 3 elemű sorba kapcsolt kialakításával is végeztem méréseket. Az eredmények alátámasztották, hogy az ilyen fajta kialakítás esetében az elemek számának növekedésével – a szelektív kén-hidrogénmentesítésnek, illetve a H₂S/CO₂ arány fokozatos csökkenésének köszönhetően – a hatékonyság romlására kell számítani.

Tézisek

1. Mérési eredményeim alapján megállapítottam, hogy az általam használt speciális konstrukciójú jet reaktor alkalmas a szelektív kén-hidrogén abszorpció megvalósítására szén-dioxidot is tartalmazó gázáramok esetében. Annak ellenére, hogy a kén-hidrogénhez képest a szén-dioxid nagyságrendekkel nagyobb mennyiségben van jelen a tisztítandó gázkeverékben, a szén-dioxid abszorpció hatásfoka elhanyagolható a kén-hidrogén eltávolítás hatásfoka mellett.
2. Az általam vizsgált tartományban kutatási eredményeim alapján meghatároztam az egyes paraméterek hatásfokra és felületképződésre gyakorolt hatását. Tapasztalataimat a lúgfajlagos függvényében foglaltam össze, aminek köszönhetően a vegyszerhasznosulás mértéke is összehasonlíthatóvá vált az egyes mérési pontokban. Méréseimet minden esetben $> 1 \text{ mol}_{\text{OH}^-} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$ lúgfajlagos biztosítása mellett végeztem el.
 - 2.1 A folyadék-térfogatáramot ($1\text{-}8 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$) illetően megállapítottam, hogy emelésével telítési görbének megfelelően növekszik a gázédesítés hatásfoka, miközben a lúgfajlagos értéke lineárisan emelkedik. A felület mindeközben egy maximális érték eléréséig növekszik, majd csökkenésnek indul.
 - 2.2 A gáz-térfogatárammal kapcsolatban igazoltam, hogy emelésével ($0,8\text{-}3,2 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$) nő a hatékonyság, a lúghasznosítás, illetve a felületképződés nagysága egyaránt.
 - 2.3 A nátrium-hidroxid koncentrációjának vizsgálatakor bebizonyítottam, hogy csökkentése ($0,5\text{-}1,5 \text{ m/m}\%$) pozitív hatással van a gázédesítés hatásfokára, a vegyszerhasznosításra és a felületképzésre is.
 - 2.4 Mérési eredményeimmel alátámasztottam, hogy a kezelendő gáz kén-hidrogén/szén-dioxid térfogatarányának növekedése ($> 0,00011 \text{ H}_2\text{S}/\text{CO}_2$) jótékony hatással van a hatékonyságra és lúghasznosításra. A porlasztás minőségét azonban az adott tisztítandó gázkeverék összetételétől függő átlagos moláris tömege határozza meg. A gáz moláris tömegének növekedése állandó körülmények biztosítása mellett a porlasztás minőségének javulásához vezet.
 - 2.5 A fúvókaátmérő csökkentése ($1,8 \text{ mm}$ -ről $1,7 \text{ mm}$ -re) szignifikáns javulást eredményez a hatékonyságban, a vegyszerfelhasználásban, és a felületképzésben egyaránt, azonban alkalmazásakor a nyomásesés növekedésére kell számítani.

- 2.6 A nyomásváltoztatás hatásával kapcsolatban bebizonyítottam, hogy csökkentése (30 → 5 bar) pozitív hatással van a hatásfokra, a vegyszerhasznosításra és a porlasztás minőségére.
- 2.7 Azonos moláris koncentrációval ($0,12 \text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$) rendelkező nátrium- és kálium-hidroxid abszorbens-oldatok vizsgálatakor igazoltam, hogy az általam mért tartományban a két különböző abszorbens-oldat közül a nátrium-hidroxid alkalmazása eredményezett jobb hatásfokot.
3. Munkám során megállapítottam, hogy állandó nyomás, hőmérséklet, abszorbens-koncentráció, gáz-összetétel és térfogatáram esetén, ha a rendszerben a lúgfajlagost az abszorbens-térfogatáram emelésével növeljük, akkor a képződött felület nagysága a gáz/folyadék tömegarány függvényében egy maximális érték eléréséig növekszik, majd pedig csökken.
- Ezzel kapcsolatban bebizonyítottam, hogy a folyadékbetáplálás növelésének hatására a rendszer hatásfoka a Nukiyama-Tanasawa egyenlet alapján számolt maximális felület eléréséig javítható, azonban a maximális hatásfokhoz tartozó gáz/folyadék tömegarány, illetve lúgfajlagos jellemzően nem egyezik meg a maximális felülethez tartozó arányszámmal.
4. Munkám során megállapítottam, hogy jet reaktorok sorba kapcsolása esetén az elemek sorszámának növekedésével (amennyiben az elemek mindegyikében azonos abszorbens-koncentrációt és -térfogatáramot biztosítunk) – a szelektív kén-hidrogénmentesítésnek, illetve a folyamat következtében lezajló gáz-térfogatáram csökkenésnek köszönhetően – a hatékonyság romlására kell számítani.
- Az általam vizsgált tartományban (30 bar nyomás; szobahőmérséklet; $4\text{-}10 \text{ cm}^3\cdot\text{min}^{-1}$ folyadék betáplálás; 2,0 m/m% nátrium-hidroxid koncentráció; $0,7\text{-}2,2 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}$ gáz-térfogatáram; 585 ppmv kén-hidrogént és 35V/V% szén-dioxidot tartalmazó gázkeverék) eredményeim azt mutatták, hogy a fúvókaátmérő (1,8 mm-ről 1,7 mm-re való) csökkentése viszont a hatásfok szignifikáns javuláshoz vezet. Ezzel összefüggésben az iparban jellemző volumetrikus tényezőkre tekintettel egy többfúvókás rendszer kialakítását is megterveztem.

5. Mérési eredményeim alapján bebizonyítottam, hogy az általam vizsgált rendszer matematikailag modellezhető. Az alkalmazott speciális kialakítású jet reaktor esetében Box-Behnken kísérlettervezési módszer segítségével 3 szinten vizsgáltam a nátrium-hidroxid koncentráció (0,5; 1,5; 2,5m/m%_{NaOH}), az abszorbens-térfogatáram (2; 4; 6 cm³·min⁻¹), a kontaktidő (0,05; 0,13; 0,20 s) és a kén-hidrogén tartalom (80; 90; 100 ppmv) tényezők hatását a hatásfokra. Az említett 4 változó segítségével megalkottam egy-egy modellt (M₁-M₅) adott szén-dioxid tartalmú gázkeverékekre (0; 20; 40; 60; 80V/V%). Majd létrehoztam egy úgynevezett univerzális modellt (M₆), mely már a szén-dioxid tartalmat is képes kezelni. Az M₆ modellegenlet alapján a hatásfok a körülmények ismeretében 89,9%-os pontossággal meghatározható. Alkalmazásával az optimalásra is lehetőség nyílik. A modell pontossága a felhasznált berendezés vizsgálati körülményeire érvényes (30 bar nyomás és szobahőmérséklet).

Theses

1. Based on my experimental results, I have determined that the applied special jet reactor is adapted for selective hydrogen sulphide absorption even if gas mixture contains also carbon dioxide. Efficiency of absorption of carbon dioxide is negligible compared with efficiency of absorption of hydrogen sulphide in spite of that gas mixture contains significant more carbon dioxide than hydrogen sulphide.
2. Based on my research results I have determined the effect of several parameters on the efficiency of hydrogen sulphide absorption and surface formation.
I have summarized my experience as a function of mol ratio of sodium hydroxide and hydrogen sulphide in order that absorbent utilization will be comparable at each measurement point. (I have performed my experiments in case $> 1 \text{ mol}_{\text{OH}^-} \cdot \text{mol}_{\text{H}_2\text{S}}^{-1}$).
 - 2.1 I have demonstrated that the efficiency of hydrogen sulphide absorption improves with increase of volumetric flow rate of absorbent ($1-8 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$) according to saturation curve, while mol ratio of sodium hydroxide and hydrogen sulphide rises linearly. At the same time, the surface increases to a maximum point and then begins to decrease.
 - 2.2 I have proved that the efficiency of hydrogen sulphide absorption, utilization of absorbent and surface formation improve with increase of volumetric flow rate of gas ($0.8-3.2 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$).
 - 2.3 I have shown that decrease of sodium hydroxide concentration ($0.5-1.5 \text{ m/m}\%$) has a positive effect on the efficiency of hydrogen sulphide absorption, absorbent utilization and surface formation as well.
 - 2.4 My experimental results supported the assumption that efficiency of hydrogen sulphide absorption and absorbent utilization improve with increase of volumetric ratio of hydrogen sulphide and carbon dioxide ($>0.00011 \text{ H}_2\text{S}/\text{CO}_2$) in the gas mixture. However performance of atomization depends on composition and average molar mass of gas mixture. Quality of spraying improves with increase of average molar mass of gas mixture under constant conditions.
 - 2.5 I have determined that decrease of diameter of nozzle causes improvement in efficiency of hydrogen sulphide absorption, absorbent utilization and surface formation, however it causes increase of pressure drop.

- 2.6 I have demonstrated that decrease of pressure (30→5 bar) has good effect on efficiency of hydrogen sulphide absorption, chemical utilization and quality of surface formation.
- 2.7 I have shown that the using of sodium hydroxide solution causes the better efficiency between sodium and potassium hydroxide solutions with same concentration ($0.12 \text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$) in the experimental interval.
3. I have determined, if mol ratio of sodium hydroxide and hydrogen sulphide increases by elevation of volumetric flow rate of absorbent in case of constant pressure, temperature, absorbent concentration, gas composition and volumetric flow rate, then size of formed surface will increase as a function of mass ratio of gas and liquid phases, reaches a maximum point and finally decreases.
- In this regard, I have shown, that efficiency of absorption system is improvable by elevation of volumetric flow rate of absorbent until maximal value of surface (surface by calculating Nukiyama-Tanasawa equation), however maximum of efficiency as function of mass ratio of gas and liquid phases and of mol ratio of sodium hydroxide and hydrogen sulphide is not same with ratio in case of maximum of surface.
4. In my work I have determined that in case of cascading of jet reactors the efficiency of hydrogen sulphide absorption decreases with increase of sequential number of units in each units (if the concentration and volumetric flow rate of absorbent is same in the every units) because gas-sweetening is selective for hydrogen sulphide and volumetric flow rate of gas declines with progress of process.
- On the other hand in the tested interval (30 bar pressure; room temperature; $4\text{-}10 \text{ cm}^3\cdot\text{min}^{-1}$ volumetric flow rate of absorbent; 2.0m/m% sodium hydroxide concentration; $0.7\text{-}2.2 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}$ volumetric flow rate of gas; 585 ppmv hydrogen sulphide and 35V/V% carbon dioxide concentration of gas mixture) based on my experimental results I have shown that decrease of diameter of nozzle (from 1.8 mm to 1.7mm) causes improvement of efficiency of hydrogen sulphide absorption significantly. In this context I have designed a multi-nozzle system considering to typical volumetric characteristics in gas industry.

5. Based on my results, I have defined that the examined system can be modelled mathematically. By using Box-Behnken experiment design method I have studied 3 level of following parameters for efficiency: concentration of sodium hydroxide solution (0.5; 1.5; 2.5m/m%_{NaOH}), volumetric flow rate of absorbent (2; 4; 6 cm³·min⁻¹), contact time (0.05; 0.13; 0.20 s) and content of hydrogen sulphide in gas mixture (80; 90; 100 ppmv). By using these 4 variables I have created mathematically models (M₁-M₅) for gas mixtures with 5 different carbon dioxide contain (0; 20; 40; 60; 80V/V%). I have constituted also an extended model (M₆). M₆ model with 89.9% R² value has been developed based on all the measurement data. Based on the extended model the optimal operating conditions for a jet reactor can be determined. Accuracy of M₆ is valid for the test conditions (30 bar pressure and room temperature) in the used special jet absorber.

Publikációs jegyzék

Folyóiratban megjelent cikkek

1. Éva Molnár, Dóra Rippel-Pethő, Géza Horváth, Zoltán Hodai, Róbert Bocsi, Bobek Janka: Benefits of Jet Reactor Application in Alkaline Gas Purification, PERIODICA POLYTECHNICA-CHEMICAL ENGINEERING, 60:(2) pp. 74-77. (2016)
2. Janka Bobek, Dóra Rippel-Pethő, Éva Molnár, Róbert Bocsi: Selective Hydrogen Sulphide Removal from Acid Gas by Alkali Chemisorption in a Jet Reactor, HUNGARIAN JOURNAL OF INDUSTRY AND CHEMISTRY 44:(1) pp. 51-54. (2016)
3. Éva Molnár, Dóra Rippel-Pethő, Géza Horváth, Bobek Janka, Róbert Bocsi, Zoltán Hodai: Pilot Study for Selective Hydrogen Sulfide Removal by a Jet Reactor, DONNISH JOURNAL OF PURE AND APPLIED CHEMISTRY, 2:(1) pp. 1-4. (2016)
4. Éva Molnár, Tamás Varga, Dóra Rippel-Pethő, Róbert Bocsi, Janka Bobek, Géza Horváth: Optimization of the sodium hydroxide assisted hydrogen sulfide selective removal from natural gas, CHEMICAL ENGINEERING COMMUNICATIONS, (2017) (Elfogadva)
5. Éva Molnár, Dóra Rippel-Pethő, Géza Horváth, Janka Bobek, Róbert Bocsi, Zoltán Hodai: Removal of hydrogen sulphide content from biogas by atomizing of alkali solution, STUDIA UNIVERSITATIS BABES-BOLYAI CHEMIA (Elfogadva)
6. Éva Molnár, Dóra Rippel-Pethő, Géza Horváth, Janka Bobek, Róbert Bocsi, Zoltán Hodai: Study of selective hydrogen sulfide absorption by comparing two different alkali absorbents by using atomization method, STUDIA UNIVERSITATIS BABES-BOLYAI CHEMIA (Elfogadva)

Konferencia kiadványok

7. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza: Nagyhatékonyságú eljárás földgázok kénhidrogén tartalmának csökkentésére, XX. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Kolozsvár, Románia, 2014.11.06-2014.11.09., Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság (EMT), p. 36., ISSN 1843-6293
8. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert. A porlasztás nyújtotta lehetőségek alkáli lúgos földgáztisztításnál, A XX. Fiatal Műszaki Tudományos Ülészak Előadásai, (Műszaki Tudományos Közlemények; 3.), Kolozsvár, Románia, 2015.03.19-2015.03.20., Erdélyi Múzeum-Egyesület (EME), pp. 223-226., ISSN 2393-1280

9. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert: Benefits of jet reactor application in alkaline caustic gaspurificaton, Műszaki Kémiai Napok 2015, Veszprém, Magyarország, 2015.04.21-2015.04.23., pp. 48-53., ISBN 978-963-396-072-1
10. Éva Molnár, Dóra Rippel-Pethő, Géza Horváth, Róbert Bocsi: Efficient natural gas sweetening process by alkaline caustic chemisorption, 42nd International Conference of Slovak Society of Chemical Engineering, Tatranske Matliare, Szlovákia, 2015.05.25-2015.05.29. Slovak Society of Chemical Engineering (SSCHE), p. 147., ISBN 978-80-89475-14-8
11. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Takács Gyöngyi: Savanyú gázok kén-hidrogén tartalmának hatékony abszorbeálása különböző nátrium-hidroxid oldatokban, XXI. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Csíksomlyó, Románia, 2015.09.23-2015.09.27., Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság (EMT), p. 18., ISSN 1843-6293
12. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Bobek Janka: Nátrium-hidroxid abszorbenssel végzett kénhidrogén-mentesítés gazdaságosabbá tételének vizsgálata, A XXI. F fiatal Műszakiak Tudományos Ülésszaka előadásai, (Műszaki Tudományos Közlemények; 5.), Kolozsvár, Románia, 2016.03.17-2016.03.18., Erdélyi Múzeum-Egyesület (EME), pp. 285-288., ISSN 2393-1280
13. Bobek Janka, Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Bocsi Róbert: Savas karakterű gázok szelektív kén-hidrogénmentesítése, A XXI. F fiatal Műszakiak Tudományos Ülésszak Előadásai, Kolozsvár, Románia, 2016.03.17., Erdélyi Múzeum-Egyesület (EME), pp. 109-112., ISSN 2393-1280
14. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Bobek Janka: Alkáli lúgos kén-hidrogén abszorpció vizsgálata a gazdasági szempontok figyelembevételével, Műszaki Kémiai Napok 2016, Veszprém, Magyarország, 2016.04.26-2016.04.28., Pannon Egyetem, Műszaki Informatikai Kar, Műszaki Kémiai Kutató Intézet, p. 66., ISBN 978-963-396-087-5
15. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Bobek Janka: Biogáz kén-hidrogén tartalmának eltávolítása alkáli lúgos oldat beporlasztásával, XXII. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Temesvár, Románia, 2016.11.03-2016.11.06., Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság (EMT), p. 32., ISSN 1843-6293
16. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Bobek Janka: Selective removal of H₂S from sour gases by using alkali absorbent, Proceedings of the 44th International Conference of SSCHE, Demanovská Dolina, Szlovákia, 2017.05.22-2017.05.26., Slovak Society of Chemical Engineering (SSCHE), p. 126, ISBN 978-80-89597-58-1

Előadások

17. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza: Nagyhatékonyságú eljárás földgázok kénhidrogén tartalmának csökkentésére, XX. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Kolozsvár, Románia, 2014.11.06-2014.11.09.
18. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza: A kompetitív kemisorpció okozta nehézségek alkáli lúgos kénhidrogén-mentesítésnél, PhD hallgatók anyagtudományi napja XIV., Veszprém, Magyarország, 2014.11.24.
19. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert: A porlasztás nyújtotta lehetőségek alkáli lúgos földgáztisztításnál, XX. Fialat Műszakiak Tudományos Ülésszaka, Kolozsvár, Románia, 2015.03.19-2015.03.20.
20. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert: Benefits of jet reactor application in alkaline caustic gaspurificaton, Műszaki Kémiai Napok 2015, Veszprém, Magyarország, 2015.04.21-2015.04.23.
21. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Takács Gyöngyi: Savanyú gázok kén-hidrogén tartalmának hatékony abszorbeálása különböző nátrium-hidroxid oldatokban, XXI. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Csíksomlyó, Románia, 2015.09.23-2015.09.27.
22. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza: Különböző CO₂-tartalmú savanyú gázkeverékek kén-hidrogénmentesítésének tanulmányozása jet reaktorban, PhD hallgatók anyagtudományi napja XV., Veszprém, Magyarország, 2015. 11. 16.
23. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Bobek Janka: Nátrium-hidroxid abszorbenssel végzett kénhidrogén-mentesítés gazdaságosabbá tételének vizsgálata, XXI. Fialat Műszakiak Tudományos Ülésszaka, Kolozsvár, Románia, 2016.03.17-2016.03.18.
24. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Bobek Janka: Alkáli lúgos kén-hidrogén abszorpció vizsgálata a gazdasági szempontok figyelembevételével, Műszaki Kémiai Napok 2016, Veszprém, Magyarország, 2016.04.26-2016.04.28.
25. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza, Bocsi Róbert, Bobek Janka: Biogáz kén-hidrogén tartalmának eltávolítása alkáli lúgos oldat beporlasztásával, XXII. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Temesvár, Románia, 2016.11.03-2016.11.06.
26. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza: Biogáz kén-hidrogén tartalmának kezelése alkáli lúgos abszorbens beporlasztásával, PhD hallgatók anyagtudományi napja XVI., Veszprém, Magyarország, 2016.11.28.
27. Molnár Éva, Rippelné Pethő Dóra, Horváth Géza: Szelektív kén-hidrogén abszorpció vizsgálata nátrium-hidroxid oldatban Jet reaktor alkalmazása esetén, Műszaki Kémiai Napok 2017, Veszprém, Magyarország, 2017.04.25-2017.04.27.

Poszterek

28. Éva Molnár, Dóra Rippel-Pethő, Géza Horváth, Róbert Bocsi: Efficient natural gas sweetening process by alkaline caustic chemisorption, 42nd International Conference of Slovak Society of Chemical Engineering, Tatranske Matliare, Szlovákia, 2015.05.25-2015.05.29.
29. Éva Molnár, Dóra Rippel-Pethő, Géza Horváth, Róbert Bocsi, Janka Bobek: Selective removal of H₂S from sour gases by using alkali absorbent, 44th International Conference of Slovak Society of Chemical Engineering, Demanovská Dolina, Szlovákia, 2017.05.22-2017.05.26.

Irodalomjegyzék

1. **Balogh K.**, *Szedimentológia III*. 1992. ISBN 963-05-6100
2. **S. Faramawy, T.Zaki, és A.A.-E. Sakr**, *Natural gas origin, composition, and processing: A review*, Journal of Natural Gas Science and Engineering, 2016., 34, 34-54, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jngse.2016.06.030>
3. **J. G. Speight**, *Natural Gas: A Basic Handbook*, Texas, Gulf Publishing Company Houston, 2007.
4. **J. G. Speight**, *Handbook of Petroleum Product Analysis*, John Wiley and Sons, 2015. 2.kiadás
5. **Rojey A., Jaffret C., Cornot-Gandolphe S., Durand B., Julian S., Valais M:** *Natural gas: Production Processing, Transport*, Paris, Éditions Technip, 1997.
6. **Arthur J. Kidnay, William R. Parrish, Daniel G. McCartney:** *Fundamentals of Natural Gas Processing*, CRC Press; Taylor and Francis Group, 2011., 2. edition
7. **M. Tagliabue, D. Farrusseng, S. Valencia, S. Aguado, U. Ravon, C. Rizzo, A. Corma, C. Mirodatos:** *Natural gas treating by selective adsorption: Material science and chemical engineering interplay*, Chemical Engineering Journal, 2009., 155, 553-566, <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2009.09.010>
8. **L. Sunggyu, J. G. Speight és S. K. Loyalka:** *Handbook of Alternative fuel Technologies*, Liquid fuels from natural gas, Taylor and Francis Group LLC; CRC Press, 2015, 2. edition, 157-178
9. **J. J. Carroll:** *Acid gas injection and carbon dioxide sequestration*, Massachusetts, USA, John Wiley and Sons Inc., Scrivener Publishing LLC., 2010.
10. **R. N. Maddox:** *Gas and Liquid Sweetening*, Campbell Petroleum Series, Norman OK, 1974., 2. edition
11. **Á. Vágó, D. Rippel-Pethő, G. Horváth, I. Tóth, K. Oláh:** *Removal of hydrogen sulfide from natural gas, a motor vehicle fuel*, Hungarian Journal of Industrial Chemistry, 2011., Veszprém, 39 (2), 283-287
12. **MOL Magyarország Kutatás Termelés Tevékenységének bemutatása**, 2015.07.02., Szolnok, https://www.mfttt.hu/mftttportal/index.php/letoltes/eloadasok/doc_view/155-volter-gyorgymol-hu-introductionszolnok20150702

13. **W. C. Pusey:** *How to evaluate potential oil and gas source rocks*, World Oil, 1973., 176, 71-75
14. **T. Gold:** *The origin of natural gas and petroleum , and the prognosis for future supplies*, Annual Review of Energy, 1985., 10, 53-77, DOI: 10.1146/annurev.eg.10.110185.000413
15. <http://www.oringcng.com/where-does-cng-come-from/>
16. **The NEED Project:** *Natural gas*, Secondary Energy Infobook, 2016., 27-30
17. **X. Wang, M. Economides:** *Advanced Natural Gas Engineering*, Texas, Gulf Publishing Company Houston, 2009.
18. **BP Statistical Review of World Energy**, London, United Kingdom June 2016., 65. edition
19. **International Energy Agency:** *Medium-term Gas Market Report 2015, Market analysis and Forecast to 2020*, Paris, 2015.
20. **L. Dubois, D. Thomas:** *Comparison of Various Alkaline Solutions for H₂S/CO₂ - Selective Absorption Applied to Biogas Purification*, Chemical Engineering Technology, 2010., 33 (10), 1601-1609, DOI: 10.1002/ceat.201000171
21. **D. Panza, V. Belgiorno:** *Hydrogen sulphide removal from landfill gas*, Process Safety and Environmental Protection, 2010., 88 (6), 420-424, <http://dx.doi.org/10.1016/j.psep.2010.07.003>
22. **N. Tippayawong, P. Thanompongchart:** *Biogas quality upgrade by simultaneous removal of CO₂ and H₂S in packed column reactor*, Energy, 2010., 35, 4531-4535, <http://dx.doi.org/10.1016/j.energy.2010.04.014>
23. **E. Üresin, H. İbrahim Saraç, A. Sarıođlan, Ş. Ay, F. Akgün:** *An experimental study for H₂S and CO₂ removal via caustic scrubbing system*, Process Safety and Environmental Protection, 2015., 94, 196–202, <http://dx.doi.org/10.1016/j.psep.2014.06.013>
24. **H.-W. Park, C. H. Lee, S. Choi, D.-W. Park:** *Continuous treatment of hydrogen sulfide on a large scale using wet-electrostatic precipitator*, Chemical Engineering Journal, 2014., 243, 448-454, <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2014.01.031>
25. **R. W. Hohlfeld,** *Selective absorption of H₂S from sour gas*, Journal of Petroleum Technology, 1980., 32, 1083-1089, <http://dx.doi.org/10.2118/7972-PA>

26. **L. Chen, J. Huang, C.-L. Yang:** *Absorption of H₂S in NaOCl Caustic Aqueous Solution*, Environmental Progress, 2001., 20 (3), 175-181, DOI: 10.1002/ep.670200313
27. **V. Bontozoglou, A. J. Karabelas:** *Simultaneous Absorption of H₂S and CO₂ in NaOH Solutions: Experimental and Numerical Study of the Performance of a Short-Time Contactor*, Industrial & Engineering Chemistry Research, 1993., 32 (1), 165-172, DOI: 10.1021/ie00013a022
28. **A. Kohl, R. Nilsen:** *Gas purification*. 5. edition,
29. **J. Carroll:** *Natural Gas Hydrates: a Guide for Engineers*, Gulf Professional Publishing Elsevier, 2014. 3. edition.
30. **S. Mokhatab, W. A. Poe, J. G. Speight:** *Handbook of Natural gas Transmission and Processing*. USA, Elsevier Inc., 2006.
31. **James G. Speight:** *Gas Processing: Environmental Aspects and Methods*. Butterworth-Heinemann Ltd., Oxford, England, 1993.
32. **J.M. Campbell:** *Gas Conditioning and Processing- the Equipment Modules*. Norman, OK : Campbell PetroleumSeries, 1992. 7. kötet.
33. **Engineering Data Book:** *Dehydration*, Gas Process Supply Association, 2004., Tulsa, OK, Sec.20.
34. **R. L. Hickd, E.A. Senuels:** *New gas water-TEG equilibria*, Hydrocarbon Process, 1991., 70(4), 54-58
35. **J. L. Wilson, J. Yuvancic:** *Process selection for dehydrating Gulf of Mexico offshore platform gas*, Proceeding of the Laurance Reid Gas Conditioning Conference, 2004., Norman, OK, 125-132
36. **S. M. Wilhelm, N. Bloom:** *Mercury in petroleum*, Fuel Process Technology, 2000., 63 (1), 1-27, [http://dx.doi.org/10.1016/S0378-3820\(99\)00068-5](http://dx.doi.org/10.1016/S0378-3820(99)00068-5)
37. **L. F. Kozin, S. C. Hansen.** *Mercury Handbook: Chermistry Aplications and Environmental Impact*. The Royal Society of chemistry publishing, UK, 2013.
38. **N. Eckersley:** *Advanced mercury removal technologies*, Hydrocarbon Processing, 2010., 89 (1), 29-35
39. **J. Stiltner:** *Mercury removal from natural gas and liquid stream*, Proceeding of the Eight-first Annual Conversion of the Gas Processors Association, 2002., Tulsa, OK

40. **M. J. Bourke, A. F. Mazzoni:** *Roles of activated carbon in gas conditioning*, Proceeding of the Laurance Reid Gas Conditioning Conference, 1989., Norman, OK, 137-158
41. **Engineering Data Book:** *Hydrocarbon Treating*, Gas Processors supply Association, 2004., 12. edition, Tulsa, OK , Sec21.
42. **J. A. Rios, D. A. Coyle, A. A. Durr, B. M. Frankie:** *Removal of trace mercury contaminants from gas and liquid streams in the LNG and gas processing industry*, Proceeding of Seventy-seventh Annual Convention of the Gas Processors Association, 1998., Tulsa, OK, 191-196
43. **E. J. Hoffman:** *Membran Separation Technology Single-stage, Multistage and Differential Permeation*, Gulf Professional Publishing, Elsevier Inc., USA , 2003.
44. **I. Howard,** *Hannibals Experience*, Proceeding of the Laurence Reid of Gas Conditioning Conference, Norman, OK, 1998., 194-215
45. **H. C. Cheng, F. B. Hill:** *Separation of helium-methane mixtures by pressure swing adsorption*, AIChE Journal, 1985., 31 (1), 95-102
46. **M. Mitariten:** *New technology improves nitrogen-removal economics*, Oil & Gas Journal, 2001., 99 (17), 42-44
47. **E. M. Krupp, C. Johnson, C. Rechsteiner, M. Moir, D. Leong, J. Feldmann:** *Investigation into the determination of trimethylarsine in natural gas and its partitioning into gas and condensate phases using (cryotrapping)/gas chromatography coupled to inductively coupled plasma mass spectrometry and liquid/solid sorption technique*, Spectrochimica Acta Part B, 2007., 62, 970-977
48. **D. O. Trahan:** *Arsenic compounds in natural gas pipeline operations*, Pipeline & Gas Journal, 2008., 235 (3), 95-97
49. **A. Henico, Y. Barthel, J. Cosyns, P. Courty:** *Mercury and arsenic removal in the natural gas, refining and petrochemical industries*, Oil Gas: European Magazine, 1991., 17, 36-38
50. **P. Sarrazin, C.J. Cameron, Y. Barthel, M.E. Morrizon:** *Process prevent detrimental effects from As and Hg in feedstock*, Oil Gas Journal, 1993., 91 (4), 86-90
51. **C. Organo:** *Status of the implementation of the European Directive 96/29 Euratom in Ireland in relation to NORM*, Naturally occurring radioactive materials (NORM IV), Australia, 2005., Proceedings of an international Conference, International Atomic Energy Agency (IAEA), 446-458

52. **TOTAL FINA ELF - Excerpt from PRODEM:** *Oil and Gas Processing Plant Design and Operation Training Course - Gas Sweetening Processes*, 2002., 1-43
53. **E. Cuevasanta, M. N. Moller, B. Alvarez:** *Biological chemistry of hydrogen sulfide and persulfides*, Archives of Biochemistry and Biophysics, 2016., 1-17, <http://dx.doi.org/10.1016/j.abb.2016.09.018>.
54. **W. Sun, S. Nestic:** *A Mechanistic Model of H₂S Corrosion of Mild Steel*, NACE, International Corrosion Conference and Expo, 2007., Paper No.: 07655
55. **E. Ryckebosh, M. Drouillon, H. Vervaeren:** *Techniques for transformation of biogas to biomethane*, Biomass and Bioenergy, 2011., 35, 1633-1645, <http://dx.doi.org/10.1016/j.biombioe.2011.02.033>
56. **Galyas A. B.:** *Gázminőségek vizsgálata az egységes európai gázszolgáltatási szabvány vonatkozásában*, Műszaki Földtudományi Közlemények, 2015., 85 (1), 64-72
57. **Srdjan Nešić, Hui Li, Jing Huang and Dusan Sormaz:** *An Open Source Mechanistic Model for CO₂ / H₂S Corrosion of Carbon Steel*, NACE, International Corrosion Conference and Expo, 2009., Paper No. 09572
58. **A. H. Younger:** *Natural gas processing principles and technology-part II.*, University of Calgary, 2004.
59. **D. Mamrosh, K. McIntush, K. Fisher:** *Caustic scrubber designs for H₂S removal from refinery gas stream*, Buda, Texas, USA, Trimeric Corporation, 2014.
60. **H. N. Weinberg, B. Eisenberg, F. J. Heinzelman, D. W. Savage:** *New gas treating alternatives for saving energy in refining and natural gas processing*, 11th World Petroleum Congress, 31 August 1983., London, England
61. **G. Chitnis, J. Seagraves, D. Motes:** *Selective Gas Treating to Enhance Upstream and Refining Projects*, Dubai, IGTC Conference, 2015., Flexorb Technology and Flexorb SE Hybrid Technology Suite
62. **R. Ochieng, A. S. Berrouk, C. J. Peters, J. Slagle, L. Lyddon, P. Krouskop:** *Simulation of the Benfield HiPure Process of Natural Gas Sweetening for LNG Production and Evaluation of Alternatives*, 2012.
63. **D. Duissenov:** *Production and processing of sour crude and natural gas - challenges due to increasing stringent regulations*, Petroleum Engineering, NTNU - Trondheim, Norwegian University of Science and Technology, 2013., 60-66

64. **B. Burr, L. Lyddon:** *A Comparison of Physical Solvents for Acid Gas Removal*, 2008., Bryan Research & Engineering, Inc., Bryan, Texas, U.S.A.,
65. **A. Schomaker, A. Boerboom, A. Visser, A. Pfeifer:** *Anaerobic digestion of agro-industrial wastes: Information Networks*, Technical Summary on Gas Treatment, 2000., Nederland, AD-NETT, Project FAIR-CT96-2083 (DG12-SSMI)
66. **M. Tagliabue, G. Bellussi, P. Broccia, A. Carati, R. Millini, P. Pollesel, C. Rizzo:** *High pressure hydrogen sulphide adsorption on silica-aluminas*, Chemical Engineering Journal, 2012., 210, 398-403, <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2012.08.076>
67. **D. Montes, E. Tocuyo, E. González, D. Rodríguez, R. Solano, R. Atencio, M. A. Ramos, A. Moronta:** *Reactive H₂S chemisorption on mesoporous silica molecular sieve-supported CuO or ZnO*, Microporous and Mesoporous Materials, 2013., 168, 111-120, <http://dx.doi.org/10.1016/j.micromeso.2012.09.018>
68. **M. K. Amosa, I. A. Mohammed, S. A. Yaro:** *Sulphide Scavengers in Oil and Gas Industry – A Review*, NAFTA, 2010., 61 (2), 85-92
69. **G. Kenrec:** *Special Report: Plant Design, Engineering and Construction*, Hydrocarbon Processing, Texas, 2014. December, 73-76
70. <https://www.gewater.com/products/h2s-scavenger-chemicals>
71. <http://nalcochampion.ecolab.com/solution/h2s-scavengers/?application=asset-integrity>
72. <http://www.weatherford.com/doc/wft247024>
73. **C. Cline, A. Hoksberg, R. Abry, A. Janssen:** *Biological Process for H₂S Removal from Gas Streams the Shell-Paques/THIOPAQ™ Gas Desulfurization Process*, Paper for the LRGCC, 23-26 February 2003., Norman (Oklahoma), USA
74. **J. Krischan, A. Makaruk, M. Harasek:** *Design and scale-up of an oxidative scrubbing process for the selective removal of hydrogen sulfide from biogas*, Journal of Hazardous Materials, 2012., 215-216, 49-56
75. **R. Álvarez-Cruz, B.E. Sánchez -Flores, J. Torres-González, R. Antano-López, F. Castaneda:** *Insights in the development of a new method to treat H₂S and CO₂ from sour gas by alkaly*, Fuel, 2012., 100, 173-176

76. **J. B. Siemak, M. Gelbs:** *Operating Experience with a Two-Stage H₂S Scrubber Using Caustic Soda*, Bakersfield, California: Society of Petroleum Engineers, 1985., 519
77. **K. T. Hsieh, R.C. Aiken:** *Selective Gas Absorption under Pressure*. Chemical Engineering Communications, 1984., 31, 367-382
78. **V. Srinivasan, R.C. Aiken:** *Selective absorption of H₂S from CO₂ - Factors controlling selectivity toward H₂S*, Fuel Processing Technology, 1988., 19, 141-152
79. **J. J. Kai, K. Hawboldt, M. A. Abdi:** *Contaminant removal from natural gas using dual hollow fiber membrane contactors*, Journal of Membrane Science, 2012., 397-398, 9-16, <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2011.12.017>
80. **D. Mamrosh, C. Beitler, K. Fisher:** *Consider improved scrubbing designs for acid gases*, Gas Processing Developments, 2008. January, 69-74
81. **G. Astarita, F. Gioia:** *Hydrogen sulphide chemical absorption*, Chemical Engineering Science, 1964., 19 (12), 963-97, doi:10.1016/0009-2509(64)85103-4
82. **E. Bendall, R. C. Aiken, F. Mandas:** *Selective absorption of H₂S from larger quantities of CO₂ by absorption and reaction in fine sprays*, AIChE Journal, 1983., 29 (1), 66-72
83. **W. Karmann:** *Pulse Radiolysis of H₂S in Aqueous Solution*, Naturforsch B22, 1967., 3 (2), 273
84. **B.W.R. Pinsent, L. Pearson, F.J.W. Roughton:** *Transactions of the Faraday Society*, 1956., 52, 1512
85. **J.H. Perry,** *Vegyészmérnökök kézikönyve*, Műszaki könyvkiadó, 1968.
86. **G. Astarita, F. Gioia:** *Simultaneous absorption of hydrogen sulfide and carbon dioxide in aqueous hydroxide solutions*, Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals, 1965., 4 (3), 317-320
87. **R. B. Cassinis, W. A. Farone:** *Improved H₂S Caustic Scrubber*, SPE 38273-MS, Society of Petroleum Engineers, 1997., <http://dx.doi.org/10.2118/38273-MS>
88. **A. Couvert, I. Charron, A. Laplace C. Renner, L. Patria, B. Requime:** *Treatment of odorous sulphur compounds by chemical scrubbing with hydrogen peroxide - application to a laboratory plant*. Chemical Engineering Science, 2006., 61, 7240-7248, <http://dx.doi.org/10.1016/j.ces.2006.07.030>

89. **M. Miltner, A. Makaruk, J. Krischan, M. Harasek:** *Chemical -oxidative scrubbing for the removal of hydrogen sulphide from raw biogas: potentials and economics*, Water Science and Technoogy, 2012., 66 (6), 1354-1360, DOI: 10.2166/wst.2012.329
90. **A. Trupin, A. Couvert, A. Laplanche, A. Paillier:** *Experimental study of mass transfer and H₂S removal efficiency in a spray tower*, Chemical Engineering and Processing, 2008., 47, 886-892, <http://dx.doi.org/10.1016/j.cep.2007.02.002>
91. **Turba J., Dr. Németh J.** *A porlasztás elmélete és alkalmazása a vegyiparban - kézirat Mérnök Továbbképző Intézet előadássorozatából.* Budapest, 1962.
92. **Turba J.** *Porlasztók.* Budapest, Műszaki Könyvkiadó, 1976.
93. **Dr. Liszi J., Fizikai Kémia,** Veszprém, Pannon Egyetemi Kiadó, 1993.
94. **D. S. F. Atkinson, W. Strauss:** *Droplet size and surface tension in venury scrubbers*, Journal of the air pollution control association, 2012., 1114-1118, <http://dx.doi.org/10.1080/00022470.1978.10470714>
95. **Dr. Bálint A.:** *Műszaki Áramlástan.* Veszprém, Pannon Egyetemi Kiadó, 2002.
96. **Dr. Szentgyörgyi S. Dr. Molnár K., Dr. Parti M.:** *Transzportfolyamatok.* Budapest, Tankönyvkiadó, 1986.
97. **Dr. Szolcsányi P.:** *Transzportfolyamatok.* Budapest, Tankönyvkiadó, 1972.
98. **G. Horn, M. W. Thring:** *Angle of Spread of Free Jets*, Nature, 1956., 178. kötet, 205-206, doi:10.1038/178205a0
99. **Dr. Horváth G.:** *Részjelentés: "Földgázok kénhidrogén tartalmának szelektív eltávolítása NaOH vegyszerrel" c. kutatási munkáról.* Veszprém, 2007.
100. **Fonyó Z., Fábry G.:** *Vegyipari művelettani alapismeretek*, Budapest, Nemzeti Tankönyvkiadó, 1998. ISBN: 9631890406.
101. **Cséfalvay E., Deák A., Farkas T., Hanák L., Mika L. T., Mizsey P., Sawinsky J., Simándi B., Szánya T., Székely E., Vágó E.** *Vegyipari Műveletek II., Anyagátadó műveletek és kémiai reaktorok.* Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, 2011.
102. **Dr. Benedek P., Dr. László A.:** *A vegyész-mérnöki tudomány alapja.* Budapest, Műszaki Könyvkiadó, 1964.
103. **O. Kakusaburo, T. Hiroshi, K. Takeshi, Y. Kenjiro:** *Simultaneous Absorption of Hydrogen Sulphide and Carbon Dioxide in Aqueous Sodium Hydroxide Solution*, Journal of Chemical Engineering of Japan, 1972., 5(1), 27-33.

104. **Erdősné Sélley CS.:** *Mérnöki optimalizáció*, Typotex Kiadó, 2012. ISBN 978-963-279-538-6.
105. **R. A. Fisher:** *The design of experiments, 9. edition, Macmilan*, 1935., ISBN 0-02-844690-9
106. **S.L. Ferreira, R. E. Brund, H. S. Ferreira, G. D. Matos, J. D. David, G. C. Brandão, E. G. da Silva, L. A. Portugal, P. S. dosReis, A. S. Souza, W. N. dos Santos:** *Box-Behnken design: An alternative for the optimization of analytical methods*, *Analytica Chimica Acta*, 2007., 597, 179-186, <http://dx.doi.org/10.1016/j.aca.2007.07.011>
107. <https://www.drager.com>
108. **J. D. Norton, L. R. Pederson:** *Ammonia in simulated Double-Shell Tank Wastes Solubility and Effects on Surface Tension*, 1994., PNL-10173; UC-600
109. **SOLVAY Technical and Engineering Service:** *Caustic Soda*, Bulletin, 1967., 6, <https://www.solvaychemicals.com>
110. **C. Crowley, Jr. Allen:** *Fluid Distributor*, United States Patent, 1985, Research Triangle Institute, Patent Number: 4 537 217

Köszönetnyilvánítás

Ezúton szeretnék köszönetet mondani két témavezetőmnek Rippelné Dr. Pethő Dóra adjunktusasszonynak és Dr. Horváth Géza egyetemi docens úrnak dolgozatom összeállításában nyújtott segítségükért, és szakmai támogatásukért.

Köszönettel tartozom a Vegyipari Műveleti Intézeti Tanszék mindazon dolgozóinak, akik PhD hallgatói munkámhoz bármilyen módon hozzájárultak.

Különösképpen Dr. Tóth Imrének, Bocsi Róbertnek, és Bobek Jankát szeretném megköszönni laboratóriumi munka során nyújtott támogatásukat.

Hálás vagyok továbbá családomnak és barátaimnak is, akik mindvégig mellettem álltak és támogattak.

Molnár Éva

Mellékletek

1. számú Melléklet

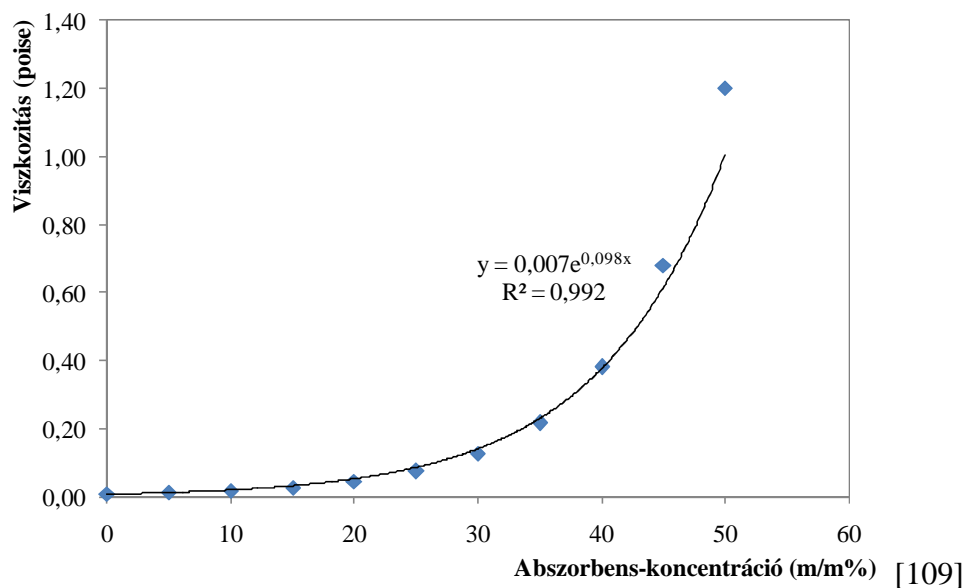
A kísérleti terv alapján kapott mérési eredmények a matematikai modell megalkotásához

	Tényezők				Hatásfok eredmények különböző gázkeverékekre [%]				
	X ₁	X ₂	X ₃	X ₄	M ₁	M ₂	M ₃	M ₄	M ₅
					X ₅ =0% CO ₂	X ₅ =20% CO ₂	X ₅ =40% CO ₂	X ₅ =60% CO ₂	X ₅ =80% CO ₂
1	0,5	2	0,125	90	70,00	5,56	13,95	11,54	4,76
2	0,5	6	0,125	90	87,00	48,57	23,26	17,95	16,67
3	2,5	2	0,125	90	89,00	6,19	34,88	22,92	12,94
4	2,5	6	0,125	90	92,00	65,93	58,14	45,83	45,88
5	1,5	4	0,05	80	92,00	42,86	37,21	12,82	22,58
6	1,5	4	0,05	100	92,00	43,81	31,08	31,25	19,35
7	1,5	4	0,2	80	93,00	52,22	50,00	33,33	29,03
8	1,5	4	0,2	100	83,00	35,56	44,19	21,79	21,51
9	0,5	4	0,125	80	84,00	42,38	16,28	11,54	9,52
10	0,5	4	0,125	100	80,00	20,88	26,74	10,26	9,52
11	2,5	4	0,125	80	90,00	14,29	48,84	37,50	34,12
12	2,5	4	0,125	100	92,00	21,90	50,00	36,46	38,89
13	1,5	2	0,05	90	90,00	19,78	23,26	2,56	9,68
14	1,5	2	0,2	90	90,00	34,29	31,40	24,36	11,83
15	1,5	6	0,05	90	93,00	50,55	50,00	21,79	32,26
16	1,5	6	0,2	90	93,00	63,33	51,16	41,03	38,71
17	0,5	4	0,05	90	80,00	16,67	18,60	10,26	8,33
18	0,5	4	0,2	90	84,00	22,22	34,88	19,23	5,95
19	2,5	4	0,05	90	90,00	13,33	44,19	35,42	22,22
20	2,5	4	0,2	90	90,00	58,89	60,47	45,83	45,56
21	1,5	2	0,125	80	90,00	30,48	27,91	12,82	13,98
22	1,5	2	0,125	100	78,00	24,76	18,60	8,97	7,53
23	1,5	6	0,125	80	93,00	58,24	53,49	32,05	38,71
24	1,5	6	0,125	100	93,00	58,24	51,16	35,90	41,94
25	1,5	4	0,125	90	89,00	42,86	33,72	24,36	2,15

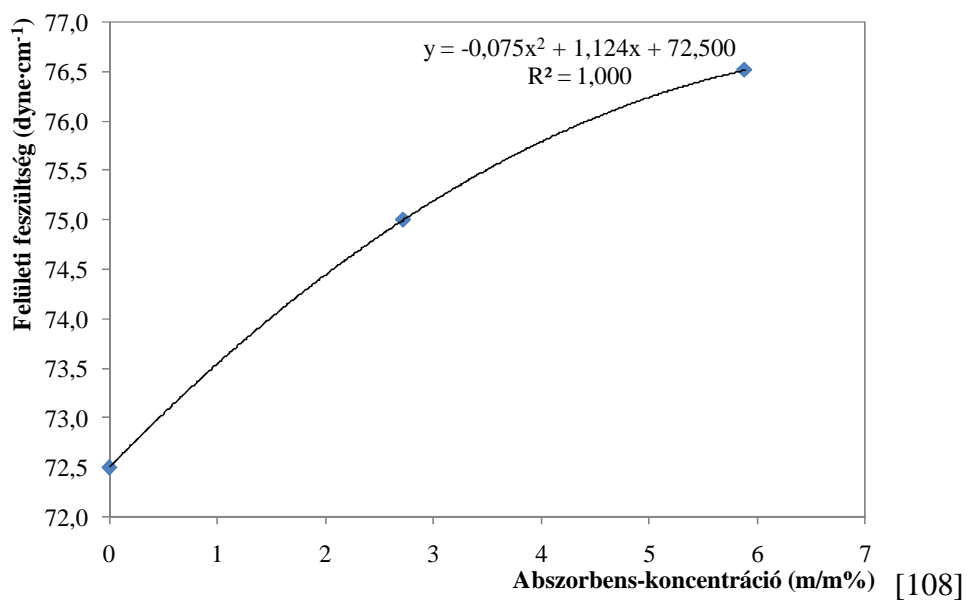
2. számú Melléklet

Nátrium-hidroxid oldatok fizikai jellemzőinek koncentrációfüggése 20°C-on

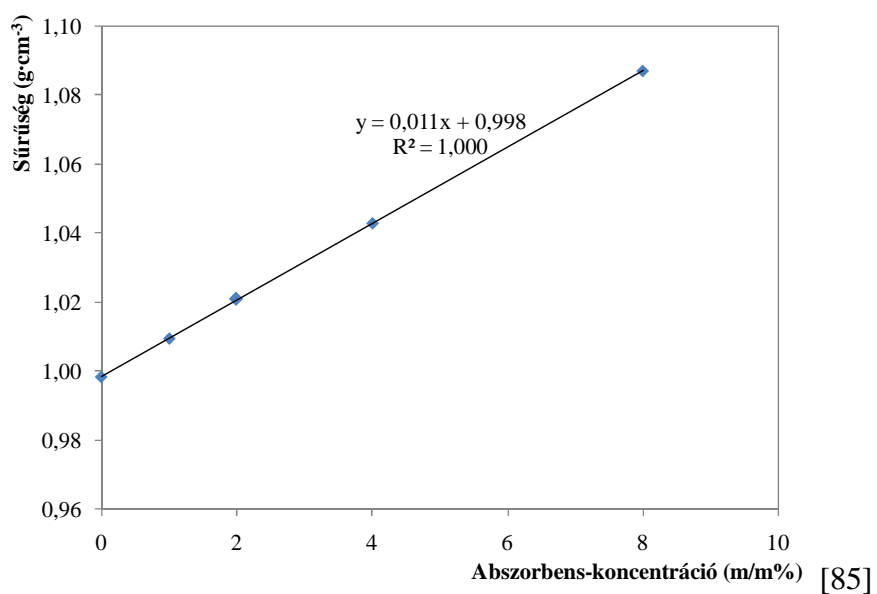
2.1 Nátrium-hidroxid oldatok viszkozitásának változása a koncentrációval



2.2 Nátrium-hidroxid oldatok felületi feszültségének változása a koncentrációval



2.3 Nátrium-hidroxid oldatok sűrűségének változása a koncentrációval



2.4 Nátrium-hidroxid oldatok fizikai jellemzőinek összefoglalása a vizsgált tartományban

Abszorbens koncentráció (m%·m%)	Viszkozitás (poise)	Felületi feszültség (dyne·cm ⁻¹)	Sűrűség (g·cm ⁻³)
0,5	0,0074	73,0433	1,0035
1	0,0077	73,5490	1,0090
1,5	0,0081	74,0173	1,0145
2	0,0085	74,4480	1,0200
2,5	0,0089	74,8413	1,0255

[85; 108-109]

3. számú Melléklet

A méretnöveléshez ajánlott többfűvókás berendezés sematikus ábrája

