

НАЦІОНАЛЬНИЙ ТЕХНІЧНИЙ УНІВЕРСИТЕТ  
“ХАРКІВСЬКИЙ ПОЛІТЕХНІЧНИЙ ІНСТИТУТ”

**Гавриленко Світлана Юріївна**

УДК 661.321

**ЗАКОНОМІРНОСТІ АБСОРБЦІЇ СІРКОВОДНЮ ІЗ ГАЗІВ СОДОВОГО  
ВИРОБНИЦТВА НА ПРОВАЛЬНИХ ТАРІЛКАХ**

Спеціальність 05.17.08 – Процеси та обладнання хімічної технології

Автореферат  
дисертації на здобуття наукового ступеня  
кандидата технічних наук

Харків – 2001

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Національному технічному університеті “Харківський політехнічний інститут” Міністерства освіти і науки України.

**Науковий керівник -**

кандидат технічних наук,  
старший науковий співробітник  
Цейтлін Мойсей Абрамович, Національний  
технічний університет “Харківський політехнічний  
інститут”, професор кафедри хімічної техніки та  
промислової екології.

**Офіційні опоненти:**

доктор технічних наук, професор  
Фокін Віталій Сергійович,  
Національний технічний університет “Харківський  
політехнічний інститут”, професор кафедри  
теплотехніки;  
кандидат технічних наук,

**Провідна установа -**

Анохін Георгій Олексійович,  
ВАТ “УкрНДІХімаш”, м. Харків,  
завідувач лабораторією  
роторноплівчатих апаратів.  
Національний технічний університет “Львівська  
політехніка”, кафедра хімічної інженерії та  
промислової екології, Міністерство освіти і науки  
України, м. Львів.

Захист відбудеться “01” березня 2001 р. о 10.00 годині на засіданні спеціалізованої  
вченої ради Д 64.050.05 в Національному технічному університеті “Харківський  
політехнічний інститут” за адресою: 61002, м. Харків, вул. Фрунзе 21.

З дисертацією можна ознайомитись в бібліотеці Національного технічного  
університету “Харківський політехнічний інститут”.

Автореферат розісланий “30” січня 2001 р.

Вчений секретар  
спеціалізованої вченої ради

Тимченко В.К.

### **ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ**

**Актуальність теми.** Інтенсивний розвиток промисловості в останні десятиріччя, концентрація промислових об'єктів у відносно невеликих по площі регіонах з високою щільністю населення привели до забруднення природного середовища та сприяли підвищенню уваги суспільства та державних організацій до природоохоронної діяльності.

Задача зниження токсичних викидів в атмосферу являє собою актуальну проблему хімічної промисловості та її содової галузі. В порівнянні з іншими хімічними та нафтохімічними підприємствами, содові заводи викидають відносно невеликі об'єми газів, в основному нетоксичних (двооксид вуглецю, аміак та інші). Але серед них є і така токсична речовина, як сірководень. Основні сировинні матеріали, які використовуються для отримання кальцинованої соди, не містять сульфід-іону і тому не виділяють в повітря сірководень. Останній потрапляє в технологічні рідини разом з аміачною водою, яка традиційно поступає з коксохімічних підприємств. Крім того, в амонізований розчин вводять деяку кількість гідросульфиду амонію. Ця речовина перешкоджає корозії чавуну, з якого виготовлена апаратура, і без цього неможливо отримати продукт необхідної якості по вмісту заліза.

Хоча кількість сірководню у газових викидах не перевищує 60 – 70 г на тонну соди, і концентрація його становить  $150 - 250 \text{ мг/м}^3$ , однак це перевищує величину, передбачену нормативами гранично допустимих викидів ( $50 - 80 \text{ мг/м}^3$ ). Тому актуальним є дослідження закономірностей очищення газів содового виробництва від сірководню та розробка на цій основі системи газоочищення, яка б мала за мету зниження вмісту сірководню в викидах до передбаченої нормативами величини. Дана робота присвячена вивченню закономірностей абсорбції сірководню технологічними рідинами содового виробництва на провальних тарілках з газів, що містять сірководень у невеликій кількості.

**Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.** Дисертаційна робота виконувалась в рамках науково-технічної програми 01.003 “Основні напрямки розвитку виробництва кальцинованої соди до 2010 р.”, п.15 (затверджена Державним

комітетом СРСР з науки та техніки №555 від 30.10.85.) і постановою №71 від 3.03.94 Кабінету міністрів республіки Башкортостан “Про невідкладні заходи і основні напрямки природоохоронних робіт в республіці Башкортостан”.

**Мета та задачі досліджень.** *Метою дисертаційної роботи є* дослідження кінетики абсорбції  $H_2S$  технологічними рідинами, які використовуються при виробництві кальцинованої соди, а також розробка наукових основ проектування апаратури для очищення скидних газів содової промисловості від сірководню. У відповідності з метою роботи та на основі розглянутих аспектів проблеми сформульовані такі задачі:

1. Дослідження кінетики абсорбції технологічними рідинами содового виробництва.
2. Дослідження впливу аміаку та двооксиду вуглецю на режим очищення.
3. Дослідження геометрій тарілки та затримки рідини на інтенсивність абсорбції.
4. Розробка технологічної схеми пілотної установки очищення скидних газів содової промисловості від сірководню.
5. Розробка математичної моделі процесу абсорбції в пілотному апараті, перевірка адекватності моделі.

*Об'єктом дослідження є* процес очищення газів содового виробництва від сірководню, а *предметом дослідження* виявлення закономірностей процесу абсорбції сірководню на провальних тарілках.

*Методи досліджень* ґрунтуються на використанні математичного апарату планування експерименту, математичної статистики, фізичного моделювання процесів, які досліджуються. Хімічні аналізи виконувались з використанням об'ємних, вагових методів, фізико-хімічного аналізу, а саме потенціометричного титрування та інших. Математичну модель процесу було реалізовано на ЕОМ.

**Наукова новизна одержаних результатів полягає в тому, що:**

1. Вперше знайдена залежність швидкості абсорбції сірководню на протитечійних провальних тарілках содо-соляним розчином (водяним розчином карбонату та хлориду натрію) і флегмою холодильника газу кальцинації содового виробництва (водяний розчин соди та аміаку) від концентрації аміаку та двооксиду вуглецю в газі, парціального тиску сірководню в газі, швидкості газу та щільності зрошення.
2. Знайдена хімічна ємність абсорбентів по сірководню.
3. Досліджено вплив геометрії тарілки та затримки рідини на ній на відносну інтенсивність абсорбції сірководню та двооксиду вуглецю.
4. Знайдені гідродинамічні умови, за яких витрата активного компоненту абсорбенту на реакцію з двооксидом вуглецю мінімальна.

**Практичне значення одержаних результатів є:**

1. Отримані кінетичні рівняння, які можуть бути використані при проектуванні абсорберів для очищення скидних газів від сірководню.
2. Розроблена математична модель апарату для очищення скидних газів содової промисловості, яка може бути використана для проектних розрахунків.
3. Спроектована та побудована дослідна установка очищення скидних газів від сірководню на Стерлітамакському АТВТ “Сода”.
4. Виконано проект апарату та установки для очищення скидних газів содової промисловості від сірководню на Стерлітамакському АТВТ “Сода”, що підтверджено відповідною довідкою.

**Особистий внесок здобувача.** В роботі [1] автором виконані дослідження залежності швидкості абсорбції сірководню в залежності від спільного впливу

швидкості газу та щільності зрошення, проведена обробка результатів експерименту на ЕОМ. В роботі [2] проведені дослідження на лабораторній установці впливу парціального тиску на швидкість абсорбції сірководню, отримані кінетичні рівняння. В роботі [3] проведені дослідження та знайдені гідродинамічні умови за яких витрати активного компоненту абсорбенту на реакцію з двооксидом вуглецю мінімальні. В роботі [4] досліджена хімічна ємність абсорбентів. В роботі [5] досліджено вплив сорбції аміаку та двооксиду вуглецю на швидкість абсорбції сірководню.

**Апробація результатів дисертації.** Основні положення дисертаційної роботи обговорювались на засіданні науково-технічної ради НДІОХІМ (м.Харків), технічної ради АТВТ “Сода” (м.Стерлітамак), наукових семінарах кафедри ХТПЕ Національного технічного університету “Харківський політехнічний інститут”, на ювілейній науково-технічній конференції НДІОХІМ м. Харків 21 жовтня 1998 р., та на науково-методичній конференції “Людина та навколишнє середовище – проблеми безперервної освіти в вузах”, Одеса, 13-15 вересня 1999 р.

**Публікації.** За результатами досліджень опубліковано 5 статей.

**Структура дисертації.** Робота складеться з вступу, чотирьох розділів та додатків. Повний обсяг роботи складає 126 сторінок. Дисертаційна робота містить 23 рисунки та 8 таблиць по тексту, 4 додатки на 10 сторінках, список використаних літературних джерел в кількості 81 найменувань на 7 сторінках.

## ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

**У вступі** обґрунтована актуальність теми дисертації, зв'язок роботи з науковими програмами, сформульовані мета та задачі досліджень, їх наукова новизна та практичне значення, подана загальна характеристики роботи, анотація основних результатів, інформація про апробацію та впровадження роботи, перелік публікацій.

**В першому розділі** аналізуються існуючі методи очищення газів від сірководню, на основі чого формулюються мета та задачі дисертаційного дослідження.

Очищення газів від сірководню досить поширене у хімічних виробництвах і використовується, наприклад, в коксохімічній промисловості та на азотних підприємствах. Для цього використовуються, головним чином, три технологічні процеси: адсорбція твердою речовиною, хімічне перетворення в іншу сполуку та абсорбція рідиною. Найбільш поширеними методами являються: очищення гідратом окису заліза, тиоарсенатне, етанололамінове очищення, вакуум-карбонатний процес, лужні методи та інші. Кожний з вказаних методів має свої недоліки з точки зору використання його у содовому виробництві. Так очищення гідратом окису заліза дуже громіздке і потребує значних площ для розташування обладнання.

Тиоарсенатний метод використовує миш'як, який являється високотоксичною речовиною, а сода використовується в харчовій промисловості. Вакуум-карбонатний метод має відносно великий відсоток сірководню на виході. Етанололамінові процеси утворюють сполуки, які не регенеруються. Майже всі відомі методи включають окислення сірководню до сірки, що робить неможливим повернення сірководню в содовий цикл. Крім того такі методи потребують переробки сірки, яка була вловлена в процесі очищення, в готовий продукт. В даній роботі ставилася задача вловлену сірку повертати безпосередньо в технологічний процес, а це, в свою чергу, вплинуло на вибір абсорбційного методу очищення.

В процесі лужного очищення від сірководню абсорбентом в тій чи іншій мірі поглинаються і інші кислі компоненти газу, що очищується. Таким компонентом в газах содової промисловості є двооксид вуглецю. Його абсорбція приводить до

невиправданої трати абсорбенту, зниженню його ємності по сірководню. Селективність процесу по сірководню в значній мірі залежить від конструкції скрубєрів. Встановлено, що в апаратах з малим часом контакту селективність вища. Цим умовам відповідають так звані провальні протитечійні тарілки, які добре зарекомендували себе в содовому виробництві.

В якості абсорбентів з технологічних рідин содового виробництва були обрані наступні: содо-соляний розчин, який містить 310 г/л NaCl та 75-80 г/л соди (використовується на стадії розсолочищення), і содо-аміачний розчин, який містить  $50 \pm 1$  г/л  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  і  $15 \text{ г/л} \pm 1 \text{ NH}_3$  (конденсат холодильника газу кальцинації).

Хімізм процесу абсорбції в рідинній фазі може бути описаний реакцією:



Паралельно проходять реакції між сірководнем, аміаком та двоокисом вуглецю. Вважають, що реакція абсорбції сірководню, яка проходить в іонній формі, має більшу швидкість, ніж молекулярна реакція взаємодії аміаку з вуглекислим газом.

Відомо, що при відносно невеликих концентраціях сірководню в воді, газорідинна рівновага підпорядковується закону Генрі. Вважають, що опір абсорбції сірководню лужними абсорбентами становить газова плівка. Це пояснюється тим, що в рідині сірководень розпадається на іони, які вступають в подальші реакції. Іонні реакції мають швидкість, значно перевищуючу перенос компоненту, який абсорбується, в газовій плівці і не чинять опору процесу абсорбції. Проте це потребує додаткового дослідження для абсорбентів, які практично не містять сірководень.

Швидкість процесу абсорбції може бути виражена рівнянням:

$$\frac{dG}{dF} = k(rc + p) \quad (2)$$

де  $G$  – кількість речовини, яка поглинається за час  $t$ ,  $F$  – величина міжфазової поверхні,  $k$  – коефіцієнт швидкості абсорбції,  $r$  – коефіцієнт, розрахований по рівнянню:  $r = H(D_1/D_2)$ ,  $D_1$ ,  $D_2$ ,  $H$  – коефіцієнти дифузії компоненту в газовій та рідинній фазах та коефіцієнт Генрі, відповідно;  $p$ ,  $c$  – величини парціального тиску компоненту в газі та хімічна ємність абсорбенту, відповідно.

**В другому розділі** приведена конструкція лабораторного абсорберу, запропонована методика проведення експерименту. Лабораторний абсорбер являє собою скляний циліндр з провальною тарілкою та патрубками для підводу та відводу газу та рідини. Для виконання ряду дослідів було застосовано абсорбер з регульованим рівнем переливу. Лабораторна установка містить вузол підготовки газової суміші, вузол подачі рідини, абсорбер з каплевідокремлювачем, вузол відводу газу, збірник рідини, термометри та манометри. В установці використовувались синтетичні технологічні рідини та синтетичні гази.

Було виконано ряд дослідів з метою виявлення впливу різних факторів на інтенсивність абсорбції, а потім перевірено наявність взаємодії цих факторів. Первинна обробка результатів експерименту включала в себе розрахунки по даним дослідження таких величин, як: швидкості газу в повному перетині абсорберу, щільності зрошення рідиною, швидкості абсорбції, парціального тиску компонентів газової суміші, рівноважного тиску компонентів газової суміші, коефіцієнту масопередачі, ступеню очищення газу від сірководню.

Результати лабораторного експерименту наведені у **третьому розділі**.

Знайдено, що швидкість абсорбції сірководню содо-аміачним розчином, як видно з рис.1, прямо пропорційна парціальному тиску сірководню і може бути виражена рівнянням:

$$N = K_{\Gamma} p_c \quad (3)$$

де  $N$  – швидкість абсорбції,  $\text{кг}/\text{см}^2$ ,  $p_c$  – парціальний тиск. В діапазоні дослідження змін концентрацій сірководню коефіцієнт  $K_{\Gamma}$  дорівнює величині  $6,26 \cdot 10^{-6} \text{ кг}/\text{см}^2 \text{ Па}$ .

Для содо-соляного розчину швидкість абсорбції лінійно зростає з підвищенням парціального тиску сірководню, але пряма пропорційність відсутня. В рівнянні (4), що отримано методом лінійного регресивного аналізу, є вільний член.:

$$N = 1,629 \cdot 10^{-6} (7,94 + p_c) \quad (4)$$

Це вказує на значний опір з боку рідинної плівки.

Дослідження впливу швидкості газу та щільності зрошення (рис.2) показало, що збільшення швидкості газу від 0,75 до 1,6 м/с дає збільшення швидкості абсорбції сірководню для содо-аміачного розчину в 5 разів, для содо-соляного в 2 рази. Збільшення щільності зрошення в 3 рази приводить до збільшення швидкості абсорбції для содо-соляного розчину в 6 разів, для содо-аміачного лише на 20 %. Таким чином, на кінетику абсорбції  $\text{H}_2\text{S}$  содо-аміачним розчином значний вплив має швидкість газу, а содо-соляним – щільність зрошення. Це дозволяє стверджувати, що в першому випадку опір зосереджено в газовій плівці, а в другому – в рідинній.

Для отримання залежності коефіцієнту абсорбції від сумісної дії швидкості газу та щільності зрошення використовувався метод планування експерименту. Було складено композиційний план експерименту та регресійна модель у вигляді поліному:

$$Y = b_0 + b_1 X_1 + b_2 X_2 + b_{12} X_1 X_2 + b_{11} X_1^2 + b_{22} X_2^2 \quad (5)$$

де  $X_1 = \lg w$ ;  $X_2 = \lg L_f$ ;  $Y = \lg K$ .

Використовуючи стандартний пакет обробки статистичної інформації, були отримані значення коефіцієнтів рівняння та знайдена їх значимість. Розрахунки показали, що коефіцієнти  $b_{12}$ ,  $b_{11}$ ,  $b_{22}$  не значимі для обох абсорбентів. Це означає відсутність переходу контролю швидкості абсорбції від газової плівки до рідинної для содо-аміачного розчину і від рідинної плівки до газової для содо-соляного розчину в даному діапазоні змін швидкостей газу та щільності зрошення.

В результаті дослідів отримано рівняння для розрахунку швидкості абсорбції сірководню содо-соляним та содо-аміачним розчинами в залежності від швидкості газу в повному перетині апарату та від щільності зрошення:

$$K = a w^b L_f^c,$$

(6)

де  $w$  – швидкість газу в повному перетині апарату, м/с;

$L_f$  – щільність зрошення,  $\text{кг}/\text{м}^2 \cdot \text{с}$ ;

$a, b$  та  $c$  – коефіцієнти.

Результати розрахунків коефіцієнтів  $a, b, c$  наведені в таблиці 1 і можуть бути використані для подальших розрахунків.

Таблиця 1.

Значення коефіцієнтів рівняння (6) для використаних абсорбентів.

| № п/п | Вид абсорбенту       | Значення коефіцієнтів |       |       | Коефіцієнт кореляції |
|-------|----------------------|-----------------------|-------|-------|----------------------|
|       |                      | $a \cdot 10^6$        | $b$   | $c$   |                      |
| 1     | Содо-аміачний розчин | 5,275                 | 2,075 | 0,345 | 0,9970 99,40         |
| 2     | Содо-соляний розчин  | 2,530                 | 0,806 | 1,66  | 0,9944 98,90         |

Досліджено, що швидкість абсорбції лінійно падає при підвищенні концентрації сірководню в розчині. Як видно з рис.3, для содо-аміачного розчину спад значно більший, ніж для содо-соляного. При парціальному тиску  $H_2S$  в газі 9 Па абсорбція сірководню зупиняється при концентрації  $H_2S$  в абсорбенті –0,062 г/л, а содо-соляного – при 0,33 г/л.

Отримані рівняння для розрахунків рівноважного тиску сірководню над розчином:

$$\text{содо-аміачним - } p_{H_2S} = 145C_{H_2S} \quad (7)$$

$$\text{содо-соляним - } p_{H_2S} = 27,3C_{H_2S} \quad (8)$$

де  $p_{H_2S}$  – парціальний тиск сірководню над розчином, Па;  $C_{H_2S}$  – концентрація сірководню в розчині.

Для порівняння, ряд дослідів було виконано з розчином їдкою натру з масовою концентрацією 15 г/л (саме таку концентрацію має відхід виробництва каустику, що може використовуватись на розсолоочистці содового виробництва). Знайдено, що для даного абсорбенту опір зосереджений в газовій плівці. Ємність цього розчину значно перевищує содо-соляний та содо-аміачний розчини. При парціальному тиску  $H_2S$  в газі 9 Па абсорбція зупиняється при концентрації сірководню в рідині 2,2 г/л.

Досліди показали, що при використанні содо-аміачного розчину, активний компонент витрачається тільки на реакцію з сірководнем. Але при цьому має місце десорбція аміаку та двооксиду вуглецю.

З'ясувалось, що швидкість абсорбції двооксиду вуглецю содо-соляним розчином майже лінійно зростає з підвищенням швидкості газу, причому трохи швидше, ніж швидкість абсорбції сірководню. В результаті відносна швидкість абсорбції лінійно падає при підвищенні швидкості газу. Щільність зрошення не впливає на швидкість абсорбції  $CO_2$ . Швидкість абсорбції сірководню і швидкість абсорбції двооксиду вуглецю, як видно з рис.4, лінійно падає з підвищенням доли вільного перетину. Відносна швидкість абсорбції збільшується, але збільшення не перевищує 10 %. Швидкість абсорбції двооксиду вуглецю збільшується з підвищенням рівня піни на тарілці, швидкість абсорбції сірководню змінюється мало. Таким чином, для зниження витрати соди на реакцію з двооксидом вуглецю, необхідно працювати за умови швидкості газу, яка відповідає початку утворення пінного шару на тарілці, та при найбільш можливій щільності зрошення. При

проектуванні абсорберу необхідно застосовувати провальні тарілки з великою долею вільного перетину або пінні з переливом, який встановлено на мінімальний рівень.

**В четвертому розділі** описані дослідження процесу очищення газу від сірководню на пілотній установці. Установка містила скруббер, сепаратор для очищення газу від бризок, абсорбер, ємкісне обладнання та насоси.

Для перевірки адекватності залежностей, які були отримані в лабораторних дослідах, нами була розроблена математична модель промислового апарату, яка містила 4 тарілки. Модель зв'язувала вхідні та вихідні потоки з коефіцієнтами масопередачі та дозволяла розраховувати останні за параметрами (витрата, концентрація) вхідних та вихідних потоків.

Математична модель апарату представляє собою систему рівнянь, записаних для кожної із 4 тарілок:

$$\begin{aligned} y_i &= a y_{i+1} + b x_{i+1}, \\ x_i &= c y_{i+1} + d x_{i+1}, \end{aligned} \quad (9)$$

де  $a = \exp(-kSP/G)$ ;  $b = H(1-a)$ ;  $c = \frac{G}{L}(a-1)$ ;  $d = 1 + GH(1-a)/L$   
де  $G, L$  - мольні витрати газу та рідини, відповідно, моль/с;  $i$  - номер тарілки ( $i \in [0, 4]$ ),  $y_i, y_{i+1}$  - мольні долі сірководню в газі на вході та виході тарілки, відповідно;  $x_i, x_{i+1}$  - мольні долі сірководню в рідині на тарілці та на виході в неї відповідно;  $S$  - перетин апарату,  $m^2$ ;  $P$  - сумарний тиск на тарілці, Па;  $k$  - коефіцієнт масопередачі, моль/с\*Па\* $m^2$ ;  $H$  - константа Генрі.

Далі було отримано аналітичне рішення даної системи, що зв'язувало параметри матеріальних потоків на вході та виході системи. При цьому отримано рівняння:

$$y_0 = e y_4 + f x_4, \quad (10)$$

де  $e = (a^4 + 3a^2bc + 2abcd + b^2c^2 + bcd^2)$ ;  $f = b(a^3 + 2abc + 2bcd + a^2d + ad^2 + d^3)$ ,  
яке доповнюється рівнянням матеріального балансу:

$$x_0 = x_4 - G/L (y_4 - y_0) \quad (11)$$

Далі при  $G/L \gg 0$  отримуємо:

$$a^4 = \frac{y_0 - y_4^*}{y_4 - y_4^*} = \frac{y_0 - Hx_4}{y_4 - Hx_4} \quad (12)$$

Рівняння (12) дозволяє по результатам експерименту знайти величину  $a$ , а по ній коефіцієнт масопередачі  $k$ .

Розрахунки підтвердили достовірність результатів виробничих та лабораторних дослідів. Значення коефіцієнтів масопередачі на дослідній установці, як і слід було чекати, виявилися трохи меншими, ніж на лабораторній установці. Таким чином, за умови корекції коефіцієнтів кінетичних рівнянь абсорбції сірководню, отриманих на дослідній установці, математична модель адекватно описує процес.

На рис.5 наведена залежність ступеня очищення сірководню від швидкості газу. Лінії – розрахунок по відкоректованому рівнянню (6), крапки – експеримент. Як видно з графіків, розрахунок та експеримент добре співпадають.

Отримані графіки для перевірки допустимого ступеня рециркуляції абсорбенту



при заданому ступені очищення.

Запропоновані рекомендації для проектування промислової установки очищення скидних газів содового виробництва від сірководню. Із двох розглянутих абсорбентів перевагу слід віддати содо-соляному розчину, тому що при однаковій з содо-аміачним розчином якості очищення, він не завдає повторного забруднення газу аміаком. Рекомендовано газ на очистку содо-соляним абсорбентом подавати після вакуум машин, а содо-аміачним – перед промивачами повітря фільтрів.

**У додатках** наведені довідка, яка підтверджує практичне використання результатів роботи, текст розробленої програми для обчислювання експериментальних даних та результати цих розрахунків, оцінка загальної економічної ефективності природоохоронних мір по очистці газів содового виробництва від сірководню, та розрахунок абсорберу для очищення газів промивача повітря фільтрів від сірководню.

## ВИСНОВКИ

В роботі вирішена задача очищення скидних газів содової промисловості від сірководню, досліджені закономірності процесу абсорбції сірководню на провальних, протитечійних тарілках, розроблена математична модель апарату, спроектована та побудована дослідна установка.

1. Досліджено процес абсорбційного очищення повітря фільтрів содового виробництва від сірководню технологічними рідинами, а саме: содо-соляним розчином, який містить 310 г/л NaCl та 75-80 г/л кальцинованої соди (використовується на стадії розсолювання) та содо-аміачним розчином, який містить  $50 \pm 1$  г/л  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  і  $15$  г/л  $\pm 1$   $\text{NH}_3$  (конденсат холодильника газу кальцинації)
2. Знайдено, що при застосуванні абсорбенту що містить тільки соду процес контролюється опором у рідинній плівці. Додавання до содового розчину аміаку приводить до підвищення швидкості абсорбції і контролюючим стає опір у газовій плівці.
3. Вперше знайдені залежності швидкості абсорбції сірководню на протитечійних провальних тарілках содо-соляним та содо-аміачним розчинами від концентрації аміаку і двооксиду вуглецю в газі, парціального тиску сірководню в газі, швидкості газу та щільності зрошення.
4. Отримані рівняння для розрахунків швидкості абсорбції і коефіцієнтів абсорбції сірководню використаними абсорбентами в залежності від сумісного впливу швидкості газу в повному перетині апарату та щільності зрошення.
5. Знайдена хімічна ємність по сірководню приведених абсорбентів.
6. Досліджено вплив геометрії тарілки та затримки рідини на ній на відносну інтенсивність абсорбції сірководню та двооксиду вуглецю.
7. Розроблена та досліджена промислова установка очищення газів содової промисловості від сірководню.
8. Розроблена математична модель процесу абсорбції в пілотному апараті.
9. Отримані графіки залежності ступеню очищення газу від концентрації сірководню в абсорбенті, які можуть бути використані для розрахунків допустимого ступеня рециркуляції рідини при заданому ступені очищення.

10. Розроблено рекомендації для промислового впровадження установки очищення газів содового виробництва від сірководню. Рекомендовано газ на очистку содо-соляним абсорбентом подавати після вакуум-фільтрів, а содо-аміачним – перед промивачами повітря фільтрів.

**Положення дисертації відображені в публікаціях:**

1. Цейтлин М.А., Гавриленко С.Ю., Райко В.Ф. Абсорбция сероводорода из газов щелочными жидкостями содового производства. - Вестник ХГПУ “Новые решения в современных технологиях”, - Харьков: Бизнес Информ, №55, 1999 . -С. 14-15.
2. Цейтлин М.А., Гавриленко С.Ю., Райко В.Ф. Влияние парциального давления сероводорода в газе на скорость абсорбции. - Вестник ХГПУ “Новые решения в современных технологиях”, - Харьков: Бизнес Информ, №80, 2000. -С. 5-6.
3. Цейтлин М.А., Гавриленко С.Ю., Райко В.Ф. Исследование влияния геометрии тарелки и задержки жидкости на интенсивность одновременной абсорбции сероводорода и диоксида углерода. - Вестник ХГПУ “Новые решения в современных технологиях”, - Харьков: Бизнес Информ, №81, 2000. -С. 62-64.
4. Цейтлин М.А., Гавриленко С.Ю., Райко В.Ф. Определение химической емкости абсорбента при очистке газов содового производства от сероводорода. - Вестник ХГПУ “Новые решения в современных технологиях”, - Харьков: Бизнес Информ, №82, 2000. -С. 7-9.
5. Цейтлин М.А., Гавриленко С.Ю., Райко В.Ф. Влияние сорбции диоксида углерода на расход активного компонента в процессе очистки газов от сероводорода. - Вестник ХГПУ “Новые решения в современных технологиях”, - Харьков: Бизнес Информ, №83, 2000. -С. 45-47.

**АНОТАЦІЇ**

**Гавриленко С.Ю. Закономірності абсорбції сірководню із газів содового виробництва на провальних тарілках. – Рукопис.**

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 05.17.08.- процеси та обладнання хімічної технології.- Національний технічний університет “Харківський політехнічний інститут”,

м. Харків, 2001 р.

В роботі досліджені закономірності процесу абсорбції сірководню та розроблені наукові основи проектування апаратури для очищення скидних газів содового виробництва від сірководню. Досліджена кінетика абсорбції сірководню технологічними рідинами содової промисловості на протитечійних провальних тарілках, розглянуто вплив геометрії тарілки та затримки на ній рідини на відносну інтенсивність абсорбції сірководню і двооксиду вуглецю, знайдені гідродинамічні умови, за яких витрата активного компоненту абсорбенту на реакцію з двооксидом вуглецю мінімальна, визначено хімічну ємність зазначених абсорбентів по сірководню, отримані кінетичні рівняння. Для порівняння ряд дослідів виконано з розчином їдкоого натру.

По даним досліджень спроектована та побудована дослідна установка очищення газів від сірководню, яка переведена в промислову експлуатацію. Для перевірки адекватності залежностей, що отримані на лабораторній установці, розроблена математична модель дослідної установки. Отримано, що при корекції співмножників, рівняння адекватно описують процес. Отримані графіки для перевірки допустимого ступеня рециркуляції абсорбенту, при заданому ступені очищення. Запропоновані

рекомендації для промислового впровадження установки очищення скидних газів содового виробництва від сірководню.

Ключові слова: сода, очищення, сірководень, абсорбція, протитечійна провальна тарілка, кінетичні рівняння, математична модель, дослідна установка.

### **Гавриленко С.Ю. Закономерности абсорбции сероводорода из газов содового производства на провальных тарелках. – Рукопись.**

Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.17.08 - процессы и оборудование химической технологии. - Национальный технический университет “Харьковский политехнический институт”, г. Харьков, 2001 г.

В работе исследованы закономерности процесса абсорбции сероводорода и разработаны научные основы проектирования аппаратуры для очистки сбросных газов содового производства от сероводорода. В качестве абсорбентов использовались технологические жидкости содового производства, а именно содо-соляной рассол, используемый на стадии рассолоочистки, и содо-аммиачный раствор, конденсаты из промывателя газа содовых печей.

Содо-аммиачный раствор содержал  $50 \pm 1$  г/л  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  и  $15 \pm 1$  г/л  $\text{NH}_3$ , содо-соляной рассол содержал 310 г/л  $\text{NaCl}$  и 75 - 80 г/л кальцинованной соды. Для сравнения наших результатов с результатами других авторов несколько опытов было выполнено с раствором едкого натра в качестве абсорбента.

Исследована кинетика абсорбции данными абсорбентами на противоточных провальных тарелках. Получено, что на кинетику абсорбции сероводорода содо-аммиачным абсорбентом решающее влияние оказывает скорость газа через поперечное сечение абсорбера, а содо-соляным – плотность орошения. Таким образом, в первом случае лимитирующим является сопротивление со стороны газовой пленки, во втором – жидкостной.

Исследование показало, что скорость абсорбции сероводорода содо-аммиачным раствором прямо пропорциональна движущей силе абсорбции. При использовании в качестве абсорбента содо-соляного раствора, скорость абсорбции сероводорода линейно возрастает с увеличением движущей силы, однако пропорциональность отсутствует. В кинетическом уравнении имеет место значимый свободный член, что указывает на существенное сопротивление со стороны жидкостной пленки.

Получены уравнения для расчета скорости абсорбции и коэффициентов абсорбции сероводорода содо-соляным и содо-аммиачным растворами в зависимости от совместного влияния скорости газа через поперечное сечение абсорбера и плотности орошения. Использовался метод планирования эксперимента. Был составлен композиционный план и его регрессионная модель в виде полинома. Используя стандартный пакет обработки статистической информации, найдены значения коэффициентов и определена их значимость. Полученное уравнение может быть использовано для определения коэффициента массопередачи.

Исследование химической емкости показало, что скорость абсорбции падает с увеличением концентрации сероводорода в растворе, причем для содо-аммиачного абсорбента это падение более существенно, чем для содо-соляного. Эмпирическим путем получены уравнения для расчета равновесного давления сероводорода над исследованными растворами.

Опыты с раствором едкого натра показали, что для данного абсорбента лимитирующим является также сопротивление со стороны газовой пленки. Емкость данного абсорбента превышает содо-соляной и содо-аммиачный абсорбенты.

Исследовано влияние геометрии тарелки и задержки жидкости на ней на относительную интенсивность абсорбции сероводорода и диоксида углерода. Найдены гидродинамические условия, при которых расход активного компонента абсорбента на реакцию с диоксидом углерода минимальный.

По данным исследований спроектирована и построена опытная установка. Для проверки адекватности зависимостей, полученных в лабораторных условиях, разработана математическая модель опытного аппарата. Найдено, что при корректировке множителей кинетических уравнений абсорбции сероводорода, полученных в лабораторных условиях, математическая модель адекватно описывает процесс и может быть использована при проектных расчетах. Получены графики для определения допустимой степени рециркуляции орошающей жидкости, обеспечивающие заданную степень очистки.

Даны рекомендации для промышленного использования установки. Из двух рассмотренных абсорбентов преимущество следует отдать содо-соляному абсорбенту, так как при прочих равных условиях он не создает вторичного загрязнения газа аммиаком. Рекомендовано газ на очистку содо-соляным абсорбентом подавать после вакуум фильтров, а содо-аммиачным – перед промывателями воздуха фильтров. Ключевые слова: сода, очистки, сероводород, абсорбция, противоточная провальная тарелка, кинетические уравнения, математическая модель, опытная установка.

### **Gavrilenko S.U. Regularities of absorption of hydrogen sulphide from soda-ash plant gases on fall-through plates. - Manuscript.**

Thesis on competition of a scientific degree of the candidate of engineering science on a speciality 05.17.08 - processes and equipment of a chemical process engineering.-National Technical University “ The Kharkov Polytechnic Institute ”, Kharkov, 2001.

The regularities of absorption of hydrogen sulphide were investigated and the scientific fundamentals of designing of plant for clearing sods-ash production gases from hydrogen sulphide were developed. The kinetics of absorption of hydrogen sulphide by technological liquids of soda-ash plant on countercurrent fall-through plates was investigated. The influence of geometry of a plate and hold of a liquid on it on relative intensity of absorption of hydrogen sulphite and carbon dioxide were considered. The hydrodynamic conditions, under which expenditure of active component on absorption of carbon dioxide are minimum, were retrieved. The chemical capacitance of absorbents for hydrogen sulphide was retrieved and the kinetic equations were obtained.

The pilot plant for gas cleaning from hydrogen sulphide has been constructed using the results of the investigation. The plant was transferred to commercial operation. The mathematical model of a pilot plant was developed for check of adequacies of kinetic equations obtained on laboratory plant. The data for evaluation of an admissible degree of a recirculation of an absorbent are obtained at a preset degree of cleaning. The recommendations for industrial implementation of a plant for purification of soda-ash plant gases from hydrogen sulphide are offered.

Keywords: soda-ah, cleaning, hydrogen sulphide, absorption, countercurrent fall-through plate, kinetic equations, mathematical model, pilot plant.