

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ, МОЛОДІ ТА СПОРТУ УКРАЇНИ
НАЦІОНАЛЬНИЙ ТЕХНІЧНИЙ УНІВЕРСИТЕТ
«ХАРКІВСЬКИЙ ПОЛІТЕХНІЧНИЙ ІНСТИТУТ»



ВАСИЛЬСВ МИХАЙЛО ІЛЛІЧ

УДК 532.528

ІНТЕНСИФІКАЦІЯ СПОЛУЧЕНИХ РЕАКЦІЙНО-МАСООБМІННИХ ПРОЦЕСІВ В
КАРБОНІЗАЦІЙНИХ РЕАКТОРАХ СОДОВОГО ВИРОБНИЦТВА

Спеціальність 05.17.08 – Процеси та обладнання хімічної технології

Автореферат
дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата технічних наук

Харків – 2012

Дисертацією є рукопис

Роботу виконано на кафедрі хімічної техніки та промислової екології Національного технічного університету «Харківський політехнічний інститут» Міністерства освіти і науки, молоді та спорту України.

Науковий керівник: доктор технічних наук, професор
Шапорев Валерій Павлович,
Національний технічний університет «Харківський політехнічний інститут», м. Харків, завідувач кафедри хімічної техніки та промислової екології

Офіційні опоненти: доктор технічних наук,
старший науковий співробітник
Перцев Леонід Петрович,
ПАТ «УкрНДІХімаш», м. Харків, консультант

кандидат технічних наук, доцент
Лазненко Дмитро Олексійович,
Сумський державний університет, м. Суми,
доцент кафедри прикладної екології

Захист відбудеться 31 травня 2012 р. о 10 годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 64.050.05 в Національному технічному університеті «Харківський політехнічний інститут» за адресою: 61002, вул. Фрунзе, 21, м. Харків.

З дисертацією можна ознайомитись у науково-технічній бібліотеці Національного технічного університету «Харківський політехнічний інститут».

Автореферат розіслано 25 квітня 2012 р.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради



Тимченко В.К.

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Одним з напрямків сучасного активного підходу до ефективного використання природних і енергетичних ресурсів що дозволяють більш повно й комплексно переробляти початкову сировину у цільові продукти у хімічній промисловості є спрямоване сполучення реакційних й масообмінних процесів та їх інтенсифікація.

Сполучені процеси в корені міняють технологію й надають нові перспективні можливості; дозволяють одержати вихід продуктів, що перевищує гранично припустимий у закритих або простих проточних системах, збільшити селективність, забезпечити високу рушійну силу процесу, створити більш легкі умови підведення й відведення теплоти, спростити організацію безперервних процесів й зробити більш компактними технологічні схеми.

У виробництві кальцинованої соди сполучені реакційно - масообмінні процеси - це масообмінні процеси абсорбції вуглекислого газу рідиною, що супроводжуються фізико - хімічними перетвореннями в рідині з утворенням й кристалізацією твердої фази. Це спрямовано організовані сполучені процеси, для здійснення котрих та їх інтенсифікації необхідно створити спеціальні умови й використовувати специфічні технологічні прийоми, що засновані на методі інтенсивного енергетичного впливу на реакційне середовище. Тому основним завданням є правильний вибір керованого енергетичного впливу, що забезпечить інтенсифікацію хіміко-технологічного процесу в цілому. У відомих публікаціях з дослідження процесів содового виробництва недостатньо даних, які розкривали б механізми інтенсифікації процесів, що протікають в апаратах та їх взаємному впливі один на інший. У повному обсязі не розкрито кінетику процесів та вплив на кінетику гідродинамічних факторів. Комплексний аналіз гідродинаміки, енергетичного розподілу в системі й характеристик газової фази, їх впливу на кінетику процесів абсорбції й кристалізації, а також хімічні процеси, експериментальні й теоретичні дослідження та їх узагальнення дають можливість науково обґрунтувати технологічні параметри сполучених процесів. Це дозволить розробити основні конструктивні характеристики апаратів, що забезпечать високу продуктивність устаткування, необхідну якість продукції й зменшать її собівартість.

Таким чином наукові дослідження, спрямовані на вивчення питань, пов'язаних з інтенсифікацією сполучених реакційно - масообмінних процесів у виробництві соди за рахунок інтенсивного енергетичного впливу на середовище, що оброблюється, є актуальною, науково-практичною задачею яка визначає науковий напрямок дисертаційної роботи.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Дисертаційну роботу виконано відповідно до плану науково-дослідних робіт, що співпадають з основними напрямками наукової діяльності кафедри "Хімічної техніки та промислової екології" НТУ "ХПІ" за проблемою "Інтенсифікація технологічних процесів хімічних та харчових виробництв шляхом енергетичного впливу на оброблювані середовища" відповідно договору про науково-технічне співробітництво з ВАТ "Кримський содовий завод" (м. Красноперекіпськ), а також з Науково-дослідним і проектним інститутом основної хімії (НДІОХІМ м. Харків). Здобувач брав участь у виконанні зазначених договорів у якості відповідального виконавця окремих етапів.

Мета й завдання дослідження. Метою роботи є розкриття механізму й з'ясування кінетичних та гідродинамічних закономірностей інтенсифікації сполучених реакційно-масообмінних процесів у виробництві кальцинованої соди та створення наукового підґрунтя для відповідних технологічних та конструктивних рішень.

Для досягнення мети поставлені наступні завдання:

- провести системний аналіз фізичної сутності сполучених реакційно-масообмінних процесів, побудувати фізичні та математичні моделі на кожному ієрархічному рівні;
- виявити стадії, що лімітують досліджувані процеси й визначити фактори, що сприяють зміні швидкості фізико-хімічного процесу на цій стадії;
- здійснити підбір фізико-хімічних ефектів, що забезпечують інтенсифікацію хіміко-технологічних процесів й виявити, які з факторів впливу будуть найбільш раціональними;
- виконати розрахунки й провести модельні експерименти, що підтверджують ефективність прийнятого технологічного рішення з визначенням раціональних режимів протікання реакційно-масообмінних процесів;

- розробити практичні технологічні й конструктивні рішення для реалізації встановлених способів і засобів енергетичних впливів на хіміко-технологічний процес у промислових умовах.

Об'єкт дослідження – сполучені реакційно - масообмінні процеси у виробництві кальцинованої соди, очищеного бікарбонату натрію та білої сажі вуглекислотним способом; фактори інтенсифікації цих процесів.

Предмет дослідження – гідродинаміка за різних умов змішання у трифазній системі, механізм й кінетичні закономірності процесів абсорбції вуглекислого газу рідиною; супутні фізико-хімічні перетворення в рідині з утворенням і кристалізацією твердої фази.

Методи дослідження – гідродинаміку процесів досліджували на укрупнених прозорих моделях з використанням створених типів контактних елементів у колонних апаратах і апаратах з різною геометрією реакційних камер. При визначенні структури газорідинного шару застосовано швидкісну фотозйомку; сучасну контрольну-вимірювальну апаратуру для вимірювання гідроопору. Також використано стандартні методики, що прийнято у содовій промисловості для визначення концентрацій компонентів у розчинах, а також мікроскопічний й ситовий аналіз для визначення форми кристалів та їх розподіл за розмірами. При узагальненні результатів досліджень використовували методи математичного моделювання й математичної статистики, основні положення теорій гідродинаміки, масообміну в трифазній системі й кристалізації, фізичної й аналітичної хімії.

Наукова новизна отриманих результатів:

- Встановлено, що сполучені реакційно - масообмінні процеси в содовому виробництві, можуть бути активізовані й інтенсифіковані при певній конструкції контактних елементів, та їх комбінації в колонних апаратах, за умови забезпечення в області контактних елементів ефектів нестационарності й інерційності контактуючих фаз, або при використанні масообмінних апаратів, в котрих гідродинамічна обстановка створюється за рахунок комбінації ефектів від закручування потоків та їх руху по криволінійних каналах. Це дозволило побудувати алгоритм дослідження реакційно - масообмінних процесів для визначення параметрів вищевідзначених конструктивних характеристик;

- отримано емпіричні моделі для розрахунку ступеня використання натрію й вуглекислоти, ефективного коефіцієнта сорбції, величини пересичення, а також часу перебування в апараті й зняття пересичення, при експлуатації промислових карбонізаційних колон виробництва очищеного бікарбонату натрію з використанням концепції "чорного ящика";

- встановлено, що в зоні абсорбції при контактуванні газової й рідкої фаз для інтенсифікації процесів масопередачі необхідно наближуватись до зниження величини коефіцієнта поздовжнього перемішування, тобто наближуватись до створення в цій зоні моделі потоків, що забезпечують на контактному елементі ідеальне змішання, а по зоні - ідеальне витиснення. У зоні кристалізації NaHCO_3 контактні елементи повинні забезпечувати інтенсивний масообмін на контактному елементі, й одночасно вздовж зони кристалізації інтенсивне поздовжнє перемішування (циркуляцію); тобто модель потоку в зоні кристалізації близька до двохпараметрової дифузійної моделі;

- вперше для кожного контактного елемента - пасетних тарілок, сітчастих перехресно-точних з переливом; крупно дірчастих провального типу; дірчастих тарілок з напрямними лопатками над кожним отвором, тарілок конусного типу - проведено комплекс гідродинамічних досліджень з визначенням поперечної неоднорідності потоку на елементі, коефіцієнтів поздовжнього перемішування; величини міжфазової поверхні, частки циркулюючого потоку;

- встановлено емпіричний зв'язок між величиною коефіцієнта поперечної неоднорідності β , коефіцієнтом поздовжнього перемішування E_{ze} , часткою зворотного циркулюючого потоку f , котра однозначно свідчить про те, що при зменшенні β різко зменшується E_{ze} та f . На основі знайденої залежності між β , E_{ze} та f для абсорбційної зони колони рекомендовано дірчасті тарілки з напрямними лопатками або тарілками конусного типу; для перехідної зони - крупно дірчасті тарілки; для кристалізаційної зони - сітчасті перехресно-точні тарілки; колона була оснащена вказаною комбінацією тарілок та встановлено, що в кожній зоні колони спостерігається модель потоків, що забезпечує інтенсифікацію відповідних процесів;

- вперше в експериментальній колоні, оснащених новою комбінацією контактних елементів досліджена динаміка процесів, що протікають в колоні й характер зміни якості кристалів біка-

рбонату натрію; аналіз результатів по експлуатації колони (КЛ) дозволив встановити, що в КЛ із прийнятої нами комбінацією контактних елементів, у порівнянні із традиційною КЛ із пассетами, масообмінні процеси пов'язані з поглинанням CO_2 , протікають у 1.7 - 2.2 рази більш інтенсивно, що дозволяє підвищити ступінь використання CO_2 та, відповідно, і продуктивність колони в 1.5 рази при збереженні її габаритів, а пробіг колони від чищення до чищення збільшити в 1.5 - 1.8 рази;

- показано, що застосування в колонних апаратах при гідрокарбонатній обробці шламів очищення розсолів содового виробництва з метою повного вилучення солей магнію зі шламу, контактних елементів типу конусних тарілок, які забезпечують інтенсивне поперечне перемішування в зоні контактного елемента, дозволяють інтенсифікувати процес й досягти ступеня вилучення іонів магнію до 99.5%;

- вперше для проведення масообмінного процесу при взаємодії розчину силікату натрію з вуглекислою у виробництві білої сажі вуглекислотним способом, науково обґрунтовано новий тип реактора, проведено дослідження гідродинаміки й структури потоків, визначено модель потоків у реакторі як комбіновану модель ідеального змішання - витиснення, в якій зона ідеального змішання в десятки разів менше зони ідеального витиснення;

- розроблена узагальнена математична модель дворівневого типу для нового газорідного реактора, що дозволяє провести розрахунок хемосорбційних характеристик для будь-якого типу реакцій; експериментально встановлено, що швидкість сорбції CO_2 в новому газорідному реакторі розчином $n\text{Na}_2\text{O} \cdot n\text{SiO}_2$ на два порядки більше, ніж у промисловому реакторі з мішалкою;

- показано, що газорідний реактор ефективно може бути використано у виробництві кальцинованої соди для вловлювання NH_3 та очищення від пилу.

Практичне значення отриманих результатів для содового та суміжних виробництв полягає: В удосконаленні технології та апаратурного оформлення виробництва очищеного бікарбонату натрію а також новому процесі та устаткуванні виробництва білої сажі вуглекислотним способом, що забезпечують інтенсифікацію процесу, підвищення продуктивності, зменшення металоемності та енергетичних витрат й підвищити якість кінцевої продукції (патент України на корисну модель № 50143 від 25.05.2010, № 65361 від 12.12.2011, й акт передачі результатів для впровадження на ВАТ "Кримський содовий завод");

Розроблено практичні рекомендації з інтенсифікації процесу екстракції солей магнію зі шламів рассолоочистки, що забезпечує можливість переробки шламів рассолоочистки на ліквідні продукти;

Результати дисертаційної роботи впроваджено у навчальний процес кафедри ХТПЕ НТУ «ХПІ», під час викладання дисциплін "Теорія та конструювання хімічних реакторів", "Спеціальне устаткування та процеси неорганічних виробництв", Спеціальне устаткування та процеси органічних виробництв", "Машини та апарати хімічних та харчових виробництв", а також при виконанні курсових і дипломних робіт.

Особистий внесок здобувача полягає в аналізі стану питання, участі в розробці методик та проведенні експериментальних досліджень сполучених реакційно-масообмінних процесів, математичному моделюванні та узагальненні результатів досліджень, створенні дослідно-промислових установок на виробництві.

Апробація результатів дисертації. Основні положення дисертації та її результатів доповідалися, обговорювалися й одержали позитивний відгук на: Міжнародній науковій конференції "Молодь у вирішенні регіональних та транскордонних проблем екологічної безпеки" (м. Чернівці, 2005-2007р.); Міжнародній науково-технічній конференції "Гідроаеромеханіка в інженерній практиці" (м. Чернівці, 2009р., м. Київ, 2010р.); Міжнародному конгресі "Захист навколишнього середовища. Енергозбереження. Збалансоване природокористування." (г. Львів, 2009р.); Міжнародній науково-практичній конференції " Інформаційні технології: наука, техніка, технологія, освіта, здоров'я" (м. Харків, 2009-2010р.).

Публікації. Основні результати дисертаційної роботи опубліковано в 10 роботах, з яких: 6 статей у провідних наукових фахових виданнях, 2 деклараційних патентах України.

Структура та обсяг роботи. Дисертація складається із вступу, 4 розділів, висновків та 3 додатків. Повний обсяг дисертації становить 169 сторінок; з них 47 рисунків по тексту; 9 таблиць по тексту; 3 додатки на 16 сторінках; списку використаних джерел із 130 найменувань на 9 сторінках.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтовано актуальність проблеми, яка вирішується у дисертаційній роботі, сформульовано мету і завдання дослідження, охарактеризовано наукову новизну і практичне значення одержаних результатів, наведено відомості щодо апробації роботи.

У першому розділі наведено аналіз науково-технічної інформації, щодо сполучених реакційних та масообмінних процесів у виробництві соди, сучасних методів інтенсифікації масообмінних процесів, особливостей впливу ефектів від інтенсивної енергетичної дії на оброблюваний середок та проблем використання пристроїв для створення інтенсивної енергетичної дії на технологічні середовища. Проведена систематизація сполучених реакційно-масообмінних процесів, що протікають у виробництві кальцинованої соди, особливостей конструкції реакторів для проведення процесу і проблем виробництва щодо інтенсифікації процесів й підвищення продуктивності обладнання. Для дослідження обрано реакційно-масообмінні процеси: виробництва очищеного бікарбонату натрію, екстрагування цільових компонентів з твердих відходів содового виробництва, виробництва білої сажі з розчину силікату натрію. Всі вищезначені процеси мають стадію абсорбції двоокису вуглецю рідиною, що супроводжується фізико-хімічними перетвореннями в рідині з утворенням й кристалізацією твердої фази.

У другому розділі наведено результати досліджень сумісного реакційно-масообмінного процесу, що покладено в основу виробництва очищеного бікарбонату натрію. Розглянуто конструкції колонних апаратів, що використовуються у виробництві очищеного бікарбонату натрію, доведено, що до теперішнього часу не розроблено теоретичні алгоритми технологічного розрахунку колон та їх конструктивного оформлення, що є наслідком складності процесів та недостатністю їх вивченості. Тому на першому етапі аналізу роботи промислових карбонізаційних колон нами використано концепцію «чорного ящика», що дозволяє здобути емпіричну модель процесу в колонні без глибокого дослідження внутрішніх закономірностей процесів, що протікають в колонні. Для розробки емпіричних моделей було використано виробничі показники експлуатації карбонізаційних колон, що працюють на ОАО «Сода» (м. Стерлітамак, Росія) та Лисичанському содовому заводі (м. Лисичанськ). Результати обробки промислових даних дозволили для розрахунку технологічних параметрів карбонізаційних колон з пасетними тарілками побудувати залежності:

$$\bullet \quad U_{Na} = -151.1 + 81.91R_{\hat{a}\hat{e}\hat{o}} + 0.53T_{\hat{a}\hat{o}}, \quad (1)$$

де U_{Na} - ступінь використання натрію, %; $R_{\hat{a}\hat{e}\hat{o}}$ - ступінь карбонізації розчину на виході з колони (КЛ); $T_{\hat{a}\hat{o}}$ - температура розчину на вході до КЛ, °С.

Залежність (1) отримана при обробці об'єму вибірки $N = 95$; залишкова квадратична помилка $S_{oy} = 0.28$ %, множинний коефіцієнт кореляції $R = 0.58$, критерій Фішера $F_R = 1.45$ на основі програмного пакету "Statistica 5.0".

$$\bullet \quad U_{CO_2} = -123.64 + 1.08A_{\hat{c}\hat{a}\hat{a}}^{\hat{a}\hat{o}} + 51.27R_{\hat{a}\hat{e}\hat{o}} + 2.33L_{\hat{a}\hat{o}}, \quad (2)$$

де U_{CO_2} - ступінь використання CO_2 ; $A_{\hat{c}\hat{a}\hat{a}}^{\hat{a}\hat{o}}$ - загальна лужність, н.д.; $L_{\hat{a}\hat{o}}$ - щільність зрошення, $m^3/m^2 \cdot год$. Відповідно $S_{oy} = 4.38$ %; $R = 0.84$; $F_p = 3.24$.

$$\bullet \quad R_{\hat{a}\hat{e}\hat{o}} = 1.83 + 1.95 \cdot 10^{-5} V_{\hat{a}\hat{o}} + 0.28 \cdot 10^{-2} C_{\hat{a}\hat{o}}^{CO_2} - 0.35 \cdot 10^{-2} A_{\hat{c}\hat{a}\hat{a}}^{\hat{a}\hat{o}} - 0.68 L_{\hat{a}\hat{o}}, \quad (3)$$

де $R_{\hat{a}\hat{e}\hat{o}}$ - ступінь карбонізації на виході з колони; $V_{\hat{a}\hat{o}}$ - об'єм газової фази на вході до колони, $m^3/год$; $C_{\hat{a}\hat{o}}^{CO_2}$ - концентрація CO_2 в газі на вході до колони, %. Відповідно $S_{oy} = 0.034$ %; $R = 0.49$; $F_p = 1.25$.

Залежність ефективного коефіцієнту швидкості абсорбції здобуто у вигляді

$$K_{\dot{a}\ddot{o}} = \frac{L_{\dot{a}\ddot{o}}}{H} \ln \frac{2 - R_{\dot{a}\ddot{o}}}{2 - R_{\dot{a}\ddot{o}}} = -0.179 + 0.35 \cdot 10^{-4} V_{\dot{a}\ddot{o}} + 0.55 \cdot 10^{-2} C_{\dot{a}\ddot{o}}^{CO_2} + 0.01 L_{\dot{a}\ddot{o}}, \quad (4)$$

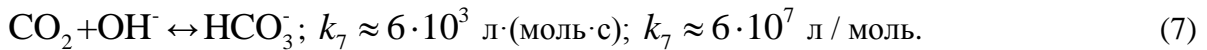
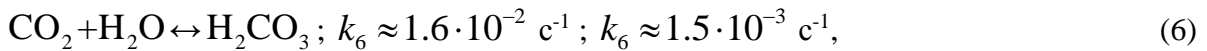
де H - робоча висота колони, м; $N = 59$; $S_{oy} = 0.06$ %; $R = 0.75$; $F_p = 2.25$.

Залежність розміру кристалів $NaHCO_3$ від основних параметрів на виході з колони має вигляд

$$\Theta = 222.69 - 1.64 T_{\dot{a}\ddot{o}} + 0.01 R_{\dot{a}\ddot{o}} - 200.76 W, \quad (5)$$

де W - швидкість газу у вільному перетині колони, м/с; Θ - розмір кристалів, мкм.

Аналіз здобутих залежностей з використанням політерми розчинності в системі $Na_2CO_3 - NaHCO_3 - H_2O$ довів, що раціональний температурний інтервал в колоні карбонізації повинен знаходитись у межах 60 - 80 °С, причому 80 °С повинно відноситись до температури розчину, що надходить на карбонізацію. Процес абсорбції CO_2 лімітується реакціями:



Швидкість абсорбції може бути визначена рівнянням

$$\frac{dU_{CO_2}}{dt} = -\frac{L_{\dot{a}\ddot{o}}}{H} \ln \left[\frac{2 - R_{\dot{a}\ddot{o}}}{2 - R_{\dot{a}\ddot{o}}} (P_{CO_2} - P_{CO_2}^*) \right], \quad (8)$$

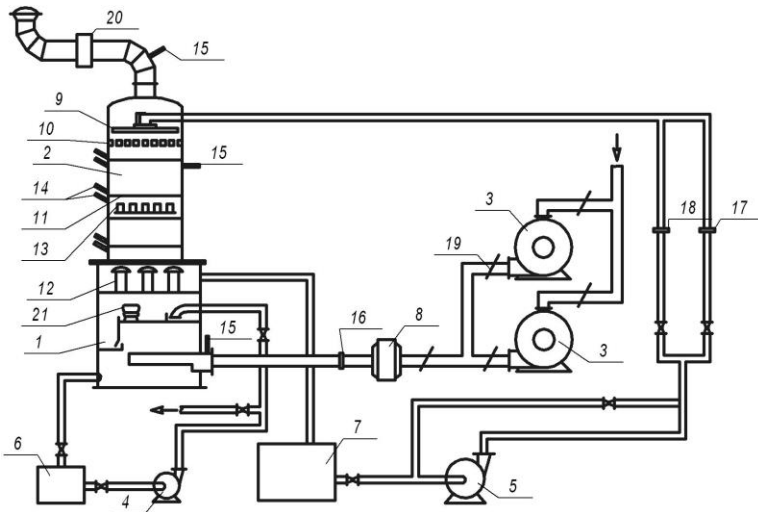


Рис. 1. Принципова схема стенової установки для дослідження роботи контактних пристроїв колонної апаратури: 1 - база; 2 - царги колони (змінні); 3 - повітродувка; 4, 5 - насоси; 6, 7 - ємності для рідини; 8 - калорифер; 9 - пристрій рівномірного розподілу потоку рідини; 10 - розподільна тарілка; 11 - досліджувані контактні елементи; 12 - пристрій для розподілу газоповітряної суміші; 13 - крапкові датчики витрати рідини; 14 - штуцер для дифманометра; 15 - термопара; 16 - 18 - датчики для виміру витрати рідини й пароповітряної суміші; 19 - засувка; 20 - бризковловлювач; 21 - пристрій для зволоження повітря.

Величина пересичення по $NaHCO_3$ в колоні залежить від вели-

чин $\frac{dU_{CO_2}}{dt}$ та W рівняння (5), (8). Ана-

ліз довів, що коли починається криста-

лізація $NaHCO_3$ величина $\frac{dU_{CO_2}}{dt}$ по-

винна аномально збільшуватись, а коли утворюється $NaHCO_3$ - прямувати до нуля. Все вищезначене свідчить про те, що в колоні по висоті повинно розрізнятися три зони: суто абсорбційна; зона початку кристалізації та аномально інтенсивного поглинання CO_2 ; зона кристалізації, в якій протікає реакція $NaHCO_{3\text{за}} \rightarrow NaHCO_{3\text{об}}$. Визначено, що основним показником, який характеризує третю зону є час перебування суспензії в зоні, що визначається співвідношенням

$$\tau_s = \left[\frac{\sqrt{\dot{I}}}{16\pi\rho} \right]^{1/4} (K_N \cdot K_G)^{-1/4} \left[\frac{C_{Na^+}^0 \cdot C_{HCO_3^-}^0}{\dot{I}} \right]^{-2}, \quad (9)$$

де K_N - константа нуклеації; K_G - константа швидкості росту кристалів; $C_{Na^+}^0$ та $C_{HCO_3^-}^0$ - концентрація іонів у пересиченому розчині; ρ - щільність кристалів; \dot{I} - добуток розчинності, моль²/м⁶.

Таким чином, основний вплив на якість процесів в колоні має гідродинаміка, тобто особливості розподілу та руху газової фази по зонам колони й умови змішання газу та рідини в кожній зоні. Аналіз наведених даних доводить, що конструкція колони повинна забезпечувати умови в абсорбційній зоні, при яких досягатимуться високі значення коефіцієнту масовіддачі k_{la} , а в зоні кристалізації значно збільшувалась б кількість стримувальної рідини. Доведено також, що співвідношення V_L / V_A в колонних апаратах є близьким до оптимального й таким чином інтенсифікація процесів за рахунок збільшення відносної швидкості фаз недоцільна. Виходячи з цього, для інтенсифікації процесів в колонні карбонізації необхідно вибрати контактні елементи (тарілки), котрі б забезпечували в кожній зоні необхідну структуру (модель) потоків контактуючих фаз. Як витікає з наведеного аналізу, пасетні контактні елементи (тарілки) не забезпечують вищезначених умов, і, як наслідок, ступінь утилізації натрію та CO_2 не перевищує 75 %, а пробіг колони від чищення до чищення складає не більше 9-10 діб, що пов'язано з ростом кристалів у кінетичній області та їх віскерізацією.

Таким чином встановлено, що інтенсифікація процесу виробництва очищеного бікарбонату натрію й підвищення якості продукту може бути досягнута за умови секціонування колони контактними елементами, які б забезпечували наявність відповідних зон по висоті колони, а в зонах - відповідні структури (моделі) потоків. Так, в зоні абсорбції повинно бути забезпечено мінімальне поздовжнє перемішування, а в зоні кристалізації ефективний поздовжній та радіальний розподіл твердої фази. Спочатку визначаємо гідродинамічні параметри та параметри масопередачі в колонні за умови секціонування її різними контактними елементами. Типи контактних елементів вибрані з тих, що найчастіше використовуються для секціонування колон у содовій та суміжних виробництвах. Це – сітчаста перехресно-точна тарілка з переливами (ПТ); тарілка, що забезпечує на кожній ступені зміну напрямку вектора швидкості потоків контактуючих фаз (ТК); протитечійна дірчаста тарілка (ДТ); конусна перфорована тарілка (КП). Дослідження, проведені на гідродинамічному стенді рис. 1 в системі «вода-повітря» при варіації витрат води від 20 до 100 м³/м² та швидкості газового потоку у вільному перетині 0.1 – 0.35 м/с, а результати досліджень порівнювались з пасетами. В першу чергу було визначено залежність коефіцієнта поперечної нерівномірності β в газорідинній системі на кожному контактному елементі.

Встановлено, що залежність коефіцієнта β від різних показників має вигляд

$$\beta = 1.115D^{0.2} \left(\frac{G}{L} \right)^{0.344}, \quad (10)$$

критерій значимості : $t_0 = 7.2$; $t_{G/L} = 3.36$, вірогідність збіжності 95%.

На рис. 2 наведено радіальні профілі розмірів газових бульбашок і газотримання, залежність питомої поверхні розділу фаз та коефіцієнтів поздовжнього перемішування від швидкості газу в

перетині колони. З аналізу даних (рис. 2) коефіцієнт поздовжнього перемішування E_{ze} монотонно зростає з ростом швидкості газу U_r . Обробка здобутих даних з використанням методів регресійного аналізу показала, що для всіх типів контактних елементів E_{ze} пропорційно $U_r^{1/3}$. Але коефіцієнти в рівняннях регресії для контакторів ПС, ПТ, ДТ в 1.4 - 1.6 разів більше ніж коефіцієнти для ТК. Різниця є наслідком різного масштабу турбулентного змішування, що визначається розміром газових бульбашок та концентрацією твердої фази. Взагалі з приведених даних видно, що для досліджуваного випадку коефіцієнти поздовжнього перемішування значно нижчі з використанням контакторів ТК і КП, ніж для контакторів ПС, ПТ, ДТ. Аналіз залежності k_{la} від U_r підтверджує

цей висновок. Крім того, здобуті експериментальні дані (рис. 2) свідчать про незначний вплив

концентрації твердої фази C_m в досліджуваних діапазонах на величину k_{la} . Це узгоджується з

припущенням, що з виключенням дуже мілких часток з твердої фази, зміна k_{la} та C_m викликана зміною міжфазної поверхні внаслідок зміни газотримання. Крім того, порівняння величини β для кожного контактора зі спостереженням за зміною E_{ze} та величинами циркуляційних потоків f дозволяє затверджувати, що зменшення величини β веде до різного зменшення величин E_{ze} та f . Та

ким чином визначено особливості гідродинаміки обраних для дослідження контакторів, що дозволяє цілеспрямовано використовувати їх для секціювання колони та створення по її висоті необхідних реакційних зон.

Секціювання абсорбційної зони КЛ контактними елементами ТК дозволить інтенсифікувати процеси масопередачі в процесі абсорбції та досягти максимального пересичення розчину по NaHCO_{3p} , а секціюван-

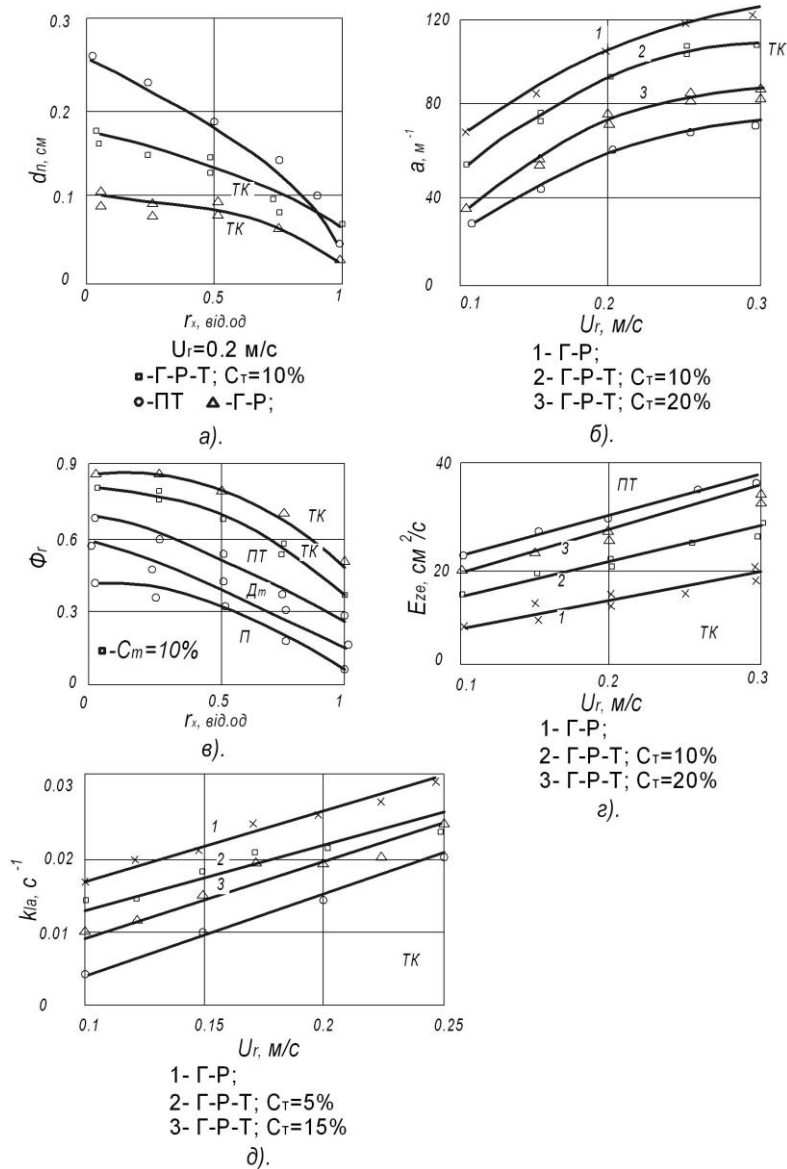


Рис. 2. Кінетичні характеристики для різних контакторів: а - радіальні профілі діаметрів бульбашок d_n ; б - радіальні профілі газотримання Φ ; в - залежність питомої поверхні розділу фаз a від U_r ; г - залежність E_{ze} від U_r ; д - залежність k_{la} від U_r .

ня зони кристалізації контакторами ПТ дозволить досягти необхідного значення τ_s та поступового зменшення величини пересичення зі швидкістю не більше $2.94 \text{ г/дм}^3 \cdot \text{хв}$ (0.7 н.д./хв).

Останнє значення встановлено в класичних роботах Те-Пан-Го, К.І.Дворніченко та характерно для дифузійного росту з утворенням бездефектних кристалів.

На основі здобутих результатів досліджень створено модель – колону, що підключена в якості супутника до промислової колони. Принципову схему установки наведено на рис. 3. Колона мала внутрішній діаметр 1м, висоту 12.5м, робочу висоту (висота заливу) - 12м.

На карбонізацію надходив розчин з концентрацією Na_2CO_3 - 68 - 72 н. д. ($285.6 - 302.4 \text{ г/дм}^3$) з температурою $80 \text{ }^\circ\text{C}$ (353 K), концентрація CO_2 в газі вапнякових печей складала 40 %. Витрати газу змінювались поступово від 10 до $20 \text{ м}^3/\text{год}$. За цими даними розрахунки показали, що абсорбційна зона повинна дорівнювати приблизно 7-8 м, зона кристалізації – 3-3.5 м. В абсорбційній зоні встановлено 10 контакторів типу ТК з міжтарілчастою відстанню 0.7 м, в зоні кристалізації 5 контакторів типу ПТ з міжтарілчастою відстанню 0.6 м, між цими зонами (2 м) встановлено 2 контактора типу ДТ. На цій установці досліджено гідродинаміку процесів, які протікають в колоні та якість кристалів бікарбонату натрію, що утворювались. Результати експериментальних даних порівнювались з експериментальними даними, здобутими при секціюванні установки в зоні абсорбції пасетними тарілками.

В першу чергу на моделі - супутнику шляхом імпульсного вводу трасера здобуто С-криві відклику для кожної зони колони. В роботі наведено дані, що підтверджують достовірність здобутих результатів з похибкою до 15%. Характер кривих відклику свідчить, що в колонні, яку осна-

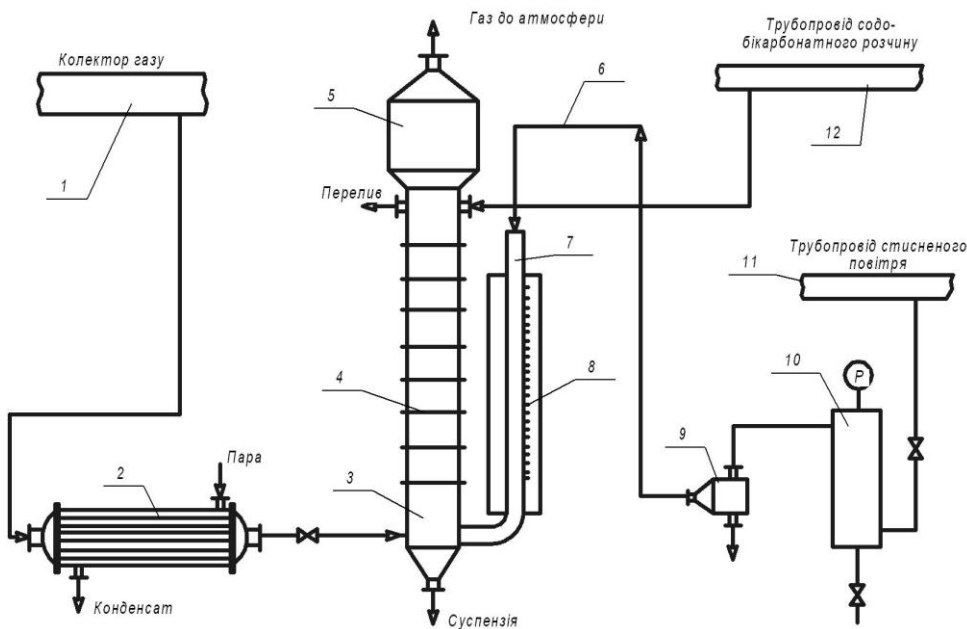


Рис. 3. Схема дослідної установки для вивчення процесу карбонізації содо-бікарбонатних розчинів: 1 - колектора газу вапняно-випалювальних печей; 2 - теплообмінник; 3 - модель - колона; 4 - абсорбційна зона моделі; 5 – сепараційний пристрій;

щено комбінацією контакторів ТК, ДТ, ПТ чітко визначаються зони по її висоті. С-криві в зоні абсорбції близькі до ячeyчатої моделі потоків, тобто в абсорбційній зоні на контакторі досягається ідеальне змішування, а в цілому по зоні – ідеальне витиснення. В зоні кристалізації С-криві відповідають циркуляційній моделі, тобто на контакторі та вздовж зони спостерігається досить рівномірний розподіл фаз.

Наведені результа-

ти підтверджують те, що запропонована комбінація контакторів в колоні дозволяє досягти в апараті необхідних моделей потоків, і таким чином процес карбонізації в новій колоні буде протікати значно більш інтенсивно (рис. 4, 5).

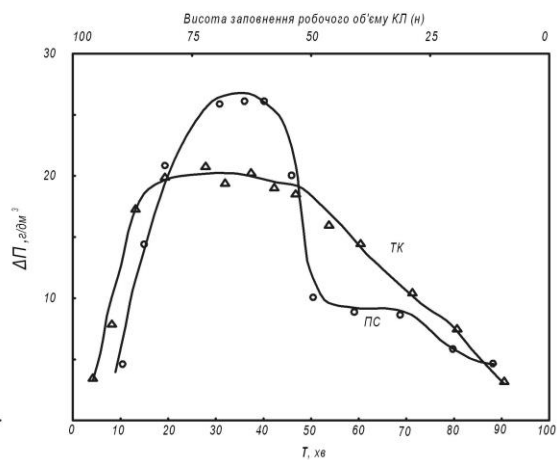
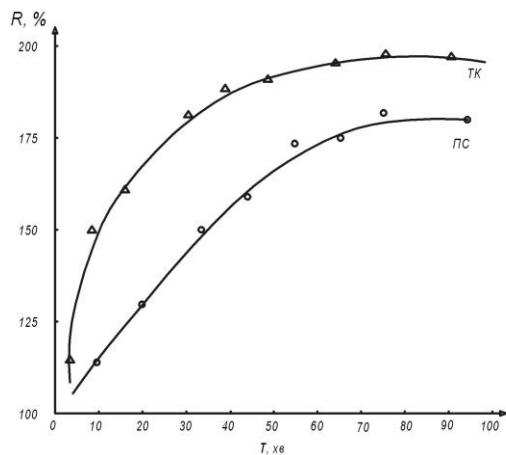


Рис. 4. Зміна ступеня карбонізації розчину за часом. Рис. 5. Зміна ступеня пересыщення розчину по NaHCO_3 за часом.

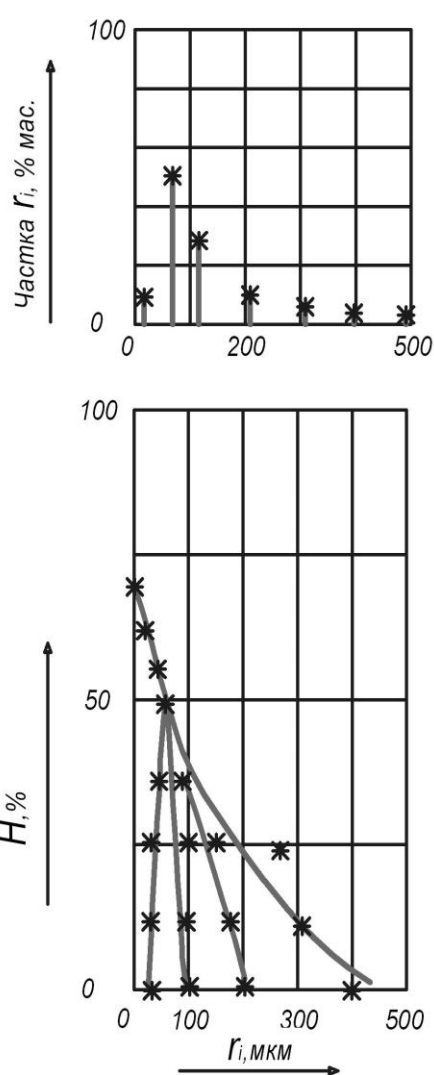


Рис. 6. Діаграма розподілу кристалів по висоті КП з ПС

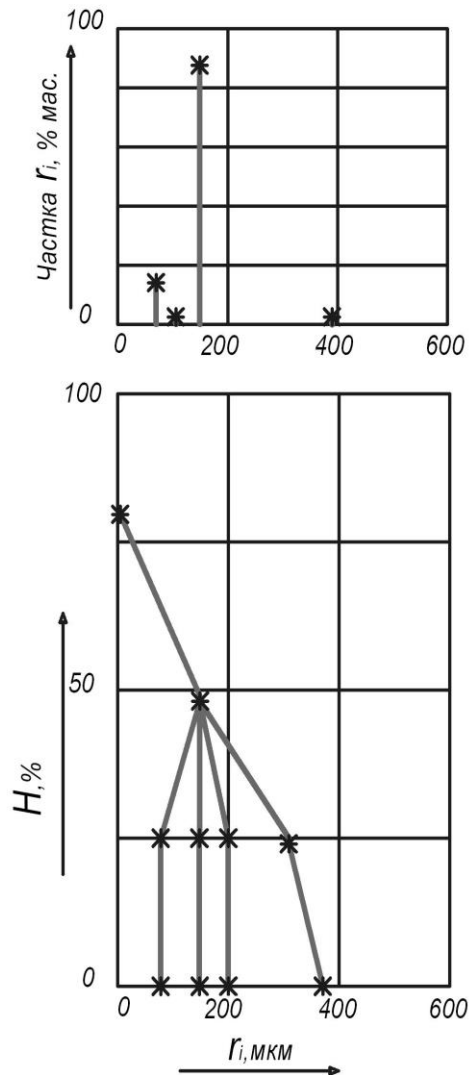


Рис. 7. Діаграма розподілу кристалів по висоті КП з ТК

Як свідчать дані, наведені на рис. 4, в колоні з контакторами ТК процес карбонізації протікає більш інтенсивно та дозволяє підвищити ступінь карбонізації розчину, і, відповідно, ступінь використання CO_2 (U_{CO_2}). Тобто це дозволяє підвищити продуктивність колони.

На рис. 5 наведено дані щодо зміни ступеню пересичення NaHCO_3 в розчині (ΔP , г/дм³) в залежності від тривалості процесу (τ , хв). Дані свідчать, що в новій колоні максимальне значення ступеню пересичення менше, ніж в колоні з пасетами. При цьому термін зняття початкового та остаточного пересичення в новій колонні не змінюється.

Це пов'язано з тим, що в колоні з ТК в зоні кристалізації є рівномірний розподіл реагентів по об'єму зони, а в зоні абсорбції забезпечується інтенсивне поглинання CO_2 . Спостереження за допомогою електронного мікроскопу за ростом кристалів NaHCO_3 в кожному перетині колони по її висоті дозволило встановити, що в новій колоні кристали ростуть по дифузійному механізму і на виході з колони мають бездефектну структуру. Останнє підтверджується діаграмами розподілу кристалів по висоті колони (рис. 6, 7).

Обґрунтовано, що в колоні з новою комбінацією контакторів масообмінні процеси пов'язані з поглинанням CO_2 протікають більш інтенсивно, ніж в колоні з пасетами у 1.7 - 2.3 рази, що дозволяє підвищити ступінь використання CO_2 до 90 % та, відповідно продуктивність колони у 1.5 рази при збереженні її габаритів, а пробіг від чистки до чистки збільшити у 1.5 - 1.8 рази (18-20 діб замість 10).

Конструкція карбонізаційної колони з новою комбінацією контактних елементів по відповідним зонам захищена патентом України на корисну модель та рекомендована до проектування при створенні виробництва очищеного бікарбонату натрію на ВАТ «Кримський содовий завод».

У третьому розділі наведено експериментальні дані щодо інтенсифікації процесу екстракції сполук магнію зі шламу розсолоочистки содового виробництва та поліпшення якості кінцевих продуктів. Для проведення процесу екстракції запропоновано колонний апарат, який оснащено тарілками конусного типу (КП). Наведено експериментальні результати з дослідження гідродинамічних характеристик в колоні з КП, барботажній колонні без контакторів, тільки з барботером, реакторі з турбулентною мішалкою. Визначались: радіальні профілі діаметрів газових бульбашок; розподіл газотримання; залежність питомої поверхні фаз від швидкості газової фази; залежність коефіцієнтів поздовжнього перемішування та об'ємних коефіцієнтів масовіддачі від швидкості газової фази. Аналіз здобутих результатів підтвердив, що колона, оснащена конусними тарілками, порівняно з іншими реакторами, має найменші значення E_{ze} та найбільші значення k_{la} . На основі експериментальних даних побудована залежність для k_{la} у вигляді

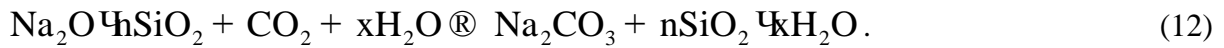
$$\frac{k_{La}}{D_{\text{CO}_2}^{0.5}} = 28.0 \mathbf{C}U_A^{0.44} \mathbf{C}U_B^{0.42}, \quad (11)$$

де D_{CO_2} – коефіцієнт дифузії CO_2 у рідкій фазі.

Таким чином, за рахунок інтенсивного протікання процесу екстракції в колонному апараті з тарілками КП, ступінь вилучення сполук магнію зі шламу розсолоочистки досягла 99.9 %. Після вилучення сполук магнію у придонній фазі залишається чиста, хімічно осаджена крейда, яка є ліквідним продуктом. Після видалення з екстрагента сполук магнію у вигляді гідрокарбонатів рідина

являє собою насичений соляний розсіл NaCl, який відповідає вимогам содового виробництва. Вищезначене дозволило запропонувати безвідходну технологію утилізації шламу розсолоочистки у виробництві кальцинованої соди.

У четвертому розділі наведено результати досліджень масообмінного процесу при взаємодії розчину силікату натрію з газом, що містить CO₂ з утворенням гідратованої кремнієвої кислоти. Процес описується хімічною взаємодією, що протікає за рівнянням



Встановлено, що процес протікає послідовно в три етапи: суто абсорбція CO₂ до появи наноколоїдних часток ($R_1 = 27 - 29\%$, $pH = 10.8$); абсорбція CO₂ у присутності твердої фази та трансформація твердої фази до утворення гелю ($R_2 = 65-70\%$, $pH = 10$); стабілізація системи з утворенням суспензії $n\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ ($R_3 = 90-98\%$, $pH = 9.2$). Причому, наприкінці другого етапу та на початку третього ефективна в'язкість системи досягає величини порядку 0.25 – 0.35 Па·с. В цей період вказана величина в'язкості консервативно впливає на процес диспергації газової фази у суспензії. Практично, наприклад, в реакторах з рамною або пропелерною мішалками, які використовуються в промисловості, спостерігається снарядний режим руху газової фази, відповідно ефективність процесу масопередачі є низькою. Останнє притаманно також протіканню процесу на другому етапі, бо на цьому етапі ефективна в'язкість системи зростає від значень 0.12 – 0.13 Па·с до 0.2 – 0.25 Па·с.

Для проведення процесу на третьому етапі (стабілізації системи) рекомендовано мішалки, за допомогою яких перемішування в'язкої системи при наявності барботера забезпечується за рахунок зворотного-поступового руху перфорованих плоскостей в об'ємі желеподібної маси. Таке технічне рішення дозволяє вирішити питання структуровування та стабілізації системи. Але, як показують результати досліджень, на перших двох етапах ефективність процесу масопередачі дуже низька. Про це свідчить те, що для реалізації процесу використовується концентрований по CO₂ газ (більше 55%), а ступінь використання газу не перевищує 55%. При цьому в реакторі з мішалкою швидкість сорбції CO₂ спочатку першого етапу має значення ~ 1.4 кг/м·хв, та швидко, за одну хвилину, падає до значення 0.6 кг/м·хв, і тільки наприкінці третього етапу спостерігається зростання швидкості сорбції CO₂ до початкових значень. Таким чином, вочевидь, що необхідно суттєва інтенсифікація процесу сорбції CO₂ на перших двох етапах, а крім того бажано для проведення процесу використовувати газ вапнякових печей, в якому концентрація CO₂ складає 38 – 40%.

Враховуючи особливості досліджуваної системи, для інтенсифікації процесу на перших двох етапах можна використати трубчасті змішувачі з аксіально – лопатковим завихрювачем для закрутки потоків.

Наведено результати досліджень процесу взаємодії розчину силікату натрію та газу вапнякових печей в трубчастих реакторах вказаного типу. Було визначено залежності кута закрутки потоку на газотримання в потоці, та відношення l/D (довжина реактора до діаметра) на затухання закрутки потоку. Встановлено, що найбільше газотримання в потоці спостерігається при куті закрутки 15 – 30 ° та складає 75-80%, в той час, як в промисловому реакторі ця величина складає 30-35%. Доведено, що закрутка потоку на відстані від інтенсифікатора 10 - 15 l/D практично затухає, тому для того, щоб досягти необхідного значення $R_{1,2} = 75\%$ необхідно 4 ступеня реак-

тора з чотирма інтенсифікаторами. Час перебування в останньому випадку у чотирьох ступенях складає 3 хв, порівняно з тим, як час перебування газорідної суспензії у двох послідовно з'єднаних реакторах з мішалками складає 35-45 хв. Таким чином, використання трубчатого змішувача з аксіальним лопатковим завихрювачем (АЛЗ) дозволяє інтенсифікувати процес абсорбції CO_2 на перших етапах, але установка 4-х модулів АЛЗ у трубчатому реакторі приводить до різкого підвищення гідравлічного опору й підвищення енерговитрат.

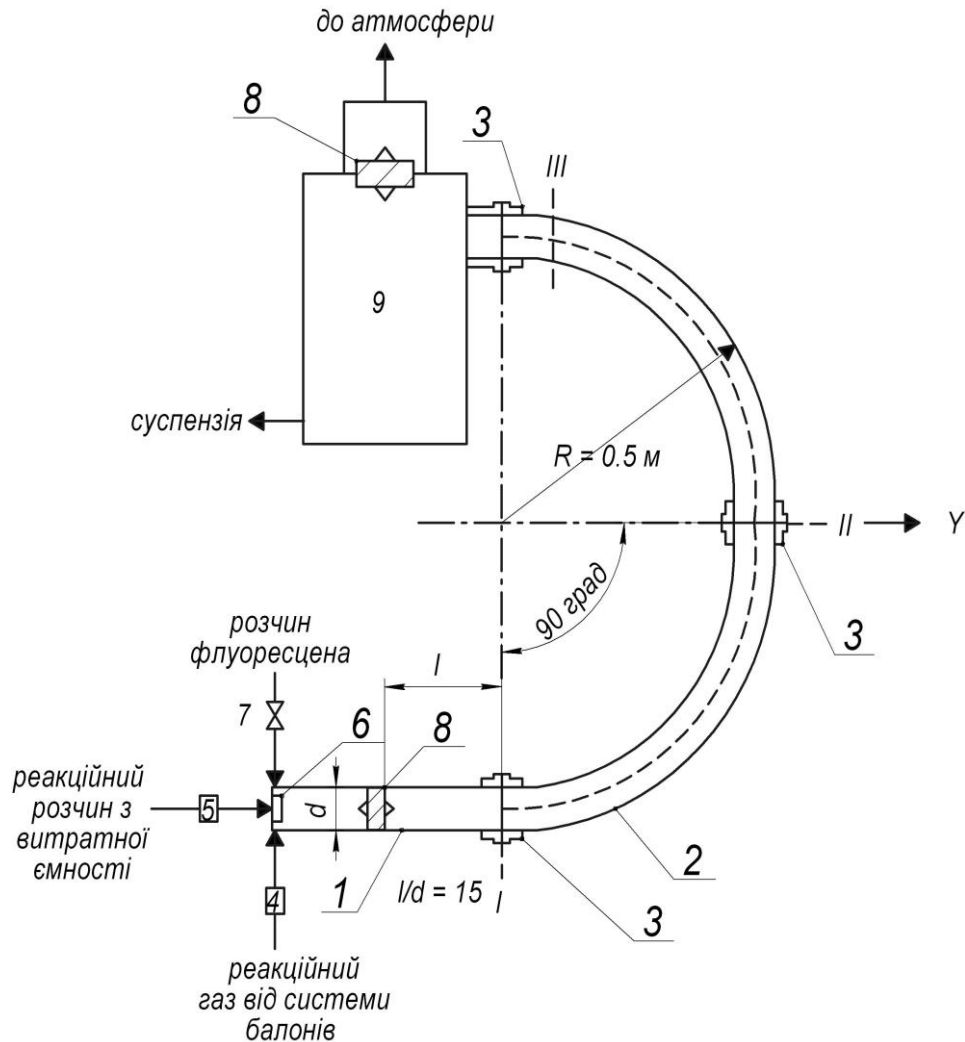


Рис. 8 Схема експериментальної установки

Визначено технічне рішення, яке дозволило за інтенсифікатором створити таку конструкцію трубчатого реактора, яка б перешкождала затуханню крутки потоку. Одним з таких рішень може бути установка за прямою ділянкою труби після інтенсифікатора, де прогнозується початок затухання крутки, ділянок трубчатого реактора з геометрією у вигляді змійовику, або полутору. Як відомо, останній тип має менший опір, ніж змійовик (рис. 8). Всі експерименти виконані при двох значеннях швидкості реакційної суміші після АЛЗ – 0.84 та 2 м/с ($Re = 0.79 \cdot 10^4$ та $1.5 \cdot 10^4$ відповідно), витрата рідини (розчин $\text{mNa}_2\text{O} \cdot \text{ChSiO}_2$) складала $7.4 \text{ м}^3/\text{год}$ ($0.002 \text{ м}^3/\text{с}$), витрата газу з концентрацією CO_2 - 40 % складала $14 \text{ м}^3/\text{год}$ ($0.0040 \text{ м}^3/\text{с}$), та $20 \text{ м}^3/\text{год}$ ($0.005 \text{ м}^3/\text{с}$).

Визначено схеми течії у криволінійному каналі, розподіл усередненої швидкості (\bar{U}) в перетинах каналу та середньо-квадратичної швидкості ($\sqrt{\bar{U}^2}$) пульсацій поздовжньої швидкості потоку. Аналіз здобутих результатів доводить, що збурений потік під час руху криволінійним каналом

не затухає та являє собою нестационарну турбулентну течію з періодичним виникненням областей, що відрізняються суттєвими градієнтами тиску й швидкостей. Картину течії закрученої газорідної системи у криволінійному каналі можна представити як комбіновану модель потоку ідеального змішання – ідеального витиснення. Для цього випадку можна прийняти, що обмін компонентами між граничним шаром та ядром потоку рідини описується відомим рівнянням

$$J_{i\hat{a}i} = \frac{3}{4} U \frac{\hat{a}}{\hat{a}_0} \int_0^\pi C \langle \hat{a}, \theta \rangle \sin \theta \cdot \sin(2\theta) \cdot d\theta. \quad (13)$$

Тоді модель реактора запишеться у вигляді:

$$\begin{aligned} U_0 \frac{d\bar{C}_1}{dZ} &= -k\bar{C}_1\bar{C}_2 + \frac{3}{4} a_v U \frac{b}{a_0} \int_0^\pi C_1 \langle b, \theta \rangle \sin \theta \cdot \sin(2\theta) \cdot d\theta \\ U_0 \frac{d\bar{C}_2}{dZ} &= -k\bar{C}_1\bar{C}_2 + \frac{3}{4} a_v U \frac{b}{a_0} \int_0^\pi C_2 \langle b, \theta \rangle \sin \theta \cdot \sin(2\theta) \cdot d\theta \end{aligned}, \quad (14)$$

де $J_{i\hat{a}i}$ – обмінний потік; b – величина прикордонного шару; U – швидкість рідини відносно міжфазної поверхні; U_0 – швидкість рідкої фази в реакторі; a – розмір газової бульбашки; C_i , \bar{C}_i – безрозмірні концентрації i -го компонента у прикордонному шарі та масі рідини; k – константа швидкості необоротної реакції; Z – поздовжня координата реактора; a_v – питома міжфазна пове-

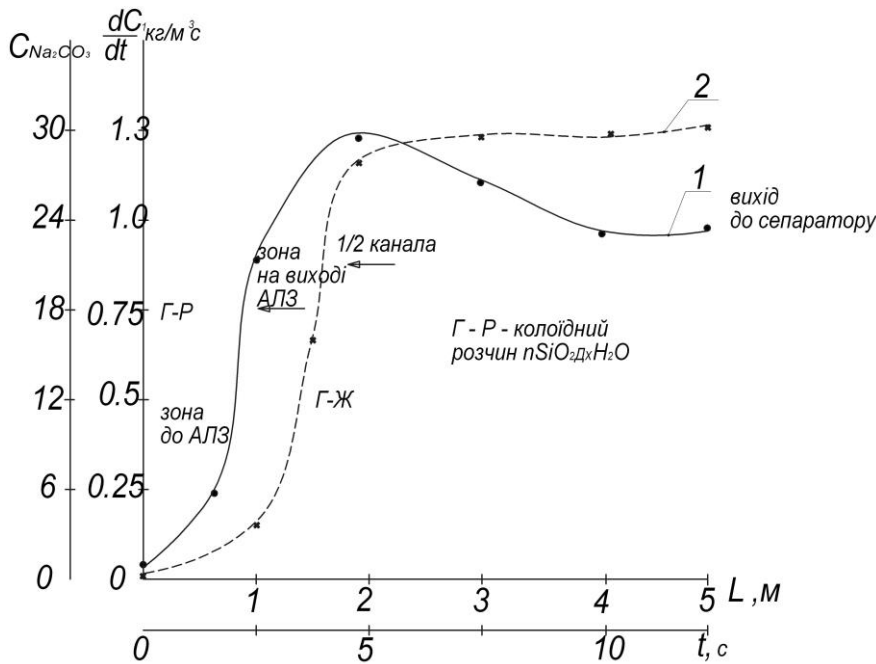


Рис. 9 Залежність швидкості поглинання CO_2 розчином $m\text{Na}_2\text{O} \cdot n\text{SiO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$.

рхня; θ – кут суміщеної полярної осі у сферичній системі координат з напрямком потоку, що обтікає.

Система рівнянь (14) являє собою дворівневу модель газорідного реактору. Аналіз моделей дозволив встановити, що прийнятний режим обміну між компонентами реалізується за умов

$$\frac{\tau}{\tau_k} \frac{a_v}{2} b \sqrt{\frac{D_1}{u/l}} \cdot \frac{C_1^*}{C_{20}} \gg 1, \quad (15)$$

де τ - термін контакту = $1/u$; τ_k - характерний час хімічної реакції ($\tau_k = 1/(k \cdot C_{20})$).

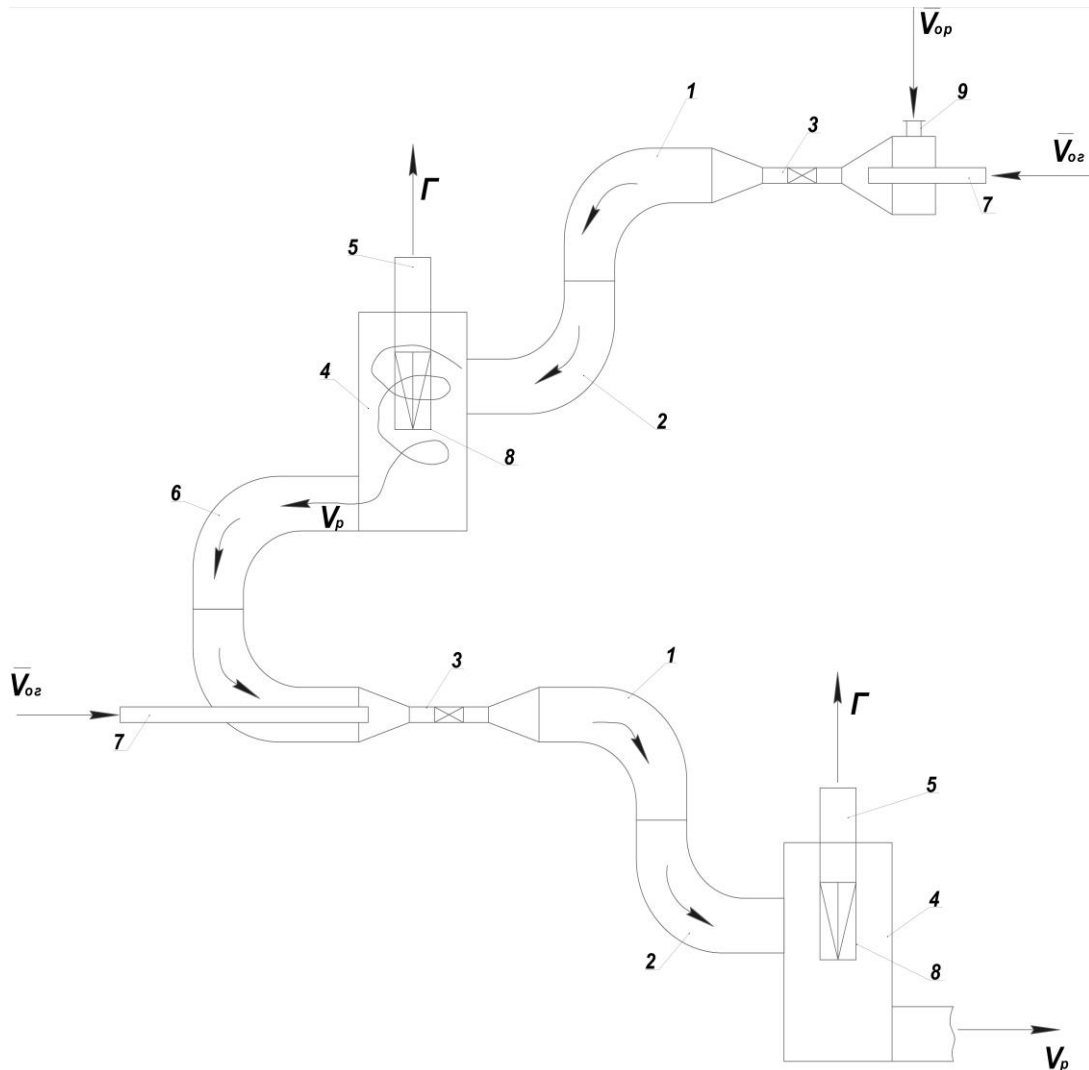


Рис. 10 Принципова схема абсорбера: 1, 2 - тороїдальні сектори; 3 - зона змішування газ та рідини; 4 - сепаратор; 5 - вихлопна труба відпрацьованого газу; 6 - , переточний пристрій рідини на другий контактний ступень; 7 - патрубок вводу газу; 8 - конічний закручувач; 9 - патрубки для вводу рідини або суспензії).

Нерівність (15) відповідає інтенсивному масообміну в реакторі, що підтверджується сорбційними характеристиками досліджуваного процесу.

Так, на рис. 9 наведено залежність швидкості поглинання CO_2 розчином $m\text{Na}_2\text{O} \cdot n\text{SiO}_2$ до початку процесу коагуляції (до середини третього етапу) та кількість здобутого продукту реакції в модульному реакторі.

З наведених даних видно, що в порівнянні з інтенсивністю процесу в промислових реакторах швидкість поглинання CO_2 в запропонованому варіанті майже в 50 разів вище, а термін обробки рідини зменшується на два порядки. Ступінь використання CO_2 в промисловому реакторі не перевищує 55 %, а в запропонованому реакторі досягає 92-95 %. На основі вищезрозглянутих досліджень розроблено конструкцію газорідинного реактора для проведення абсорбційних процесів, що наведена на рис. 10.

Наведена конструкція захищена патентом України на корисну модель.

В роботі також наведено якісні результати досліджень з використання конструкції реактора для абсорбції аміаку та CO_2 у виробництві кальцинованої соди, де доведено ефективність реактору.

ВИСНОВКИ

Дисертаційна робота присвячена вирішенню науково-практичної задачі виявлення та систематизації кінетичних та гідродинамічних закономірностей реакційно - масообмінних процесів у карбонізаційних реакторах, створенню наукового підґрунтя інтенсифікації сполучених хіміко-технологічних процесів у содовому та суміжних виробництвах.

До основних результатів роботи необхідно віднести наступне:

- Систематизовано технологічні показники при експлуатації промислових карбонізаційних колон виробництва очищеного бікарбонату натрію з використанням концепції "чорного ящика", отримано емпіричні моделі для розрахунку ступеня використання натрію й вуглекислоти, ефективного коефіцієнта сорбції, величини пересичення, а також часу перебування в апараті й зняття пересичення;

- Встановлено, що сполучені реакційно – масообмінні процеси у содовому виробництві можуть бути активізовані й інтенсифіковані при певній конструкції контактних елементів, та їх комбінації в колонних апаратах, за умови забезпечення в області контактних елементів ефектів нестационарності та інерційності контактуючих фаз, або при використанні масообмінних апаратів, в яких вищевідзначена гідродинамічна обстановка створюється за рахунок комбінації ефектів від закручування потоків та їх руху по криволінійним каналам;

- Встановлено, що в зоні абсорбції при контактуванні газової й рідкої фаз, для інтенсифікації процесів масопередачі необхідно вести до зниження величини коефіцієнту поздовжнього перемішування, тобто наближуватись до створення в даній зоні моделі потоків, що забезпечують на контактному елементі ідеальне змішання, а по зоні - ідеальне витиснення; в зоні кристалізації NaHCO_3 контактні елементи повинні забезпечувати інтенсивний масообмін на контактному елементі та водночас уздовж зони кристалізації інтенсивне поздовжнє перемішування (циркуляцію); тобто модель потоку в зоні кристалізації повинна бути близька до двохпараметрової дифузійної моделі;

- Для кожного контактного елемента проведено комплекс гідродинамічних досліджень із визначенням поперечної неоднорідності потоку на елементі, коефіцієнтів поздовжнього перемішування, величини міжфазної поверхні, частки циркулюючого потоку. За їх результатами встановлено емпіричний зв'язок між величиною коефіцієнта поперечної неоднорідності β , коефіцієнтом поздовжнього перемішування E_{z1} , та часткою зворотного циркулюючого потоку f , та рекомендовано для абсорбційної зони колони дірчасті тарілки з напрямними лопатками або тарілки конусного типу; для перехідної зони - крупно дірчасті тарілки; для кристалізаційної зони - сітчасті перехресно-точні тарілки;

- В експериментальній колоні, оснащній новою комбінацією рекомендованих контактних елементів у відповідних зонах, досліджена динаміка процесів, що протікають в колоні, та характер зміни якості кристалів бікарбонату натрію; аналіз результатів з експлуатації колони дозволив встановити, що в колоні із прийнятою нами комбінацією контактних елементів, в порівнянні із

традиційною схемою із пасетами, масообмінні процеси, пов'язані з поглинанням CO_2 протікають більш інтенсивно у 1.7 – 2.2 рази, що дозволяє підвищити ступінь використання CO_2 та, відповідно, продуктивність колони у 1.5 рази при збереженні її габаритів, а пробіг колони від чищення до чищення збільшити у 1.5-1.8 рази; встановлено, що ріст кристалів у модернізованій колоні протікає відповідно до дифузійного механізму, утворюються бездефектні кристали з визначальним розміром 110-140 мкм, доля цієї фракції 84%, що у 1.8 рази більше, ніж у КЛ із пасетами, та свідчить про однорідні за розмірами кристали, що забезпечує інтенсивне зневоднювання суспензії після колони й витратою води на промивання у 3-4 рази менше;

- Для проведення масообмінного процесу при взаємодії розчину силікату натрію з вуглекислою у виробництві білої сажі вуглекислотним способом науково обґрунтовано новий тип реактора; проведено дослідження гідродинаміки та визначена модель потоків у реакторі як комбінована модель ідеального змішання - витиснення, в якій зона ідеального змішання у десятки разів менше зони ідеального витиснення; розроблена повна математична модель дворівневого типу що дозволяє провести розрахунок хемосорбційних характеристик для будь-якого типу реакцій; експериментально встановлено, що швидкість сорбції CO_2 в новому газорідному реакторі розчином $m\text{Na}_2\text{O} \cdot n\text{SiO}_2$ на два порядки більше, ніж у промисловому реакторі з мішалкою; показано, що газорідний реактор ефективно може бути використаний у виробництві кальцинованої соди для вловлювання NH_3 та очищення від пилу;

- Результати роботи впроваджено до використання на ВАТ "Кримський содовий завод" та у навчальний процес кафедри хімічної техніки та промислової екології НТУ «ХП».

СПИСОК ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. Васильев М.И. Вопросы интенсификации массообменных процессов при протекании реакций в сложно-реакционных гетерогенных системах / Васильев М.И., Шапоров В.П. // Східно-європейський журнал передових технологій. – Харків: Технологічний центр, 2008. – № 6/4 (36). – С.39-46.

Здобувач провів аналіз літературних джерел, запропонував нові конструктивні рішення щодо інтенсифікації процесу в апараті.

2. Васильев М.И. Гидродинамические и массообменные исследования модели карбонизатора для обработки суспензии шлама рассолоочистки в производстве соды / Макки А.Ф., Васильев М.И., Нечипоренко Д.И., Шапоров В.П. // Інтегровані технології та енергозбереження. – Харків: НТУ «ХП», 2008. – № 4. – С.3-11.

Здобувач брав участь у проведенні експерименту та визначив основні залежності експериментальних даних.

3. Васильев М.И. Интенсификация тепло- массообмена при местной закрутке трехфазного потока аксиальным лопаточным завихрителем. / Васильев М.И., Шапоров В.П., Луценко Т.Ю. // Східно-європейський журнал передових технологій. – Харків: Технологічний центр, 2009. – № 2/7 (38). – С.10-15.

Здобувач проводив експериментальні дослідження на лабораторній установці, визначив основні параметри процесу.

4. Васильєв М.И. Исследование структуры многофазного закрученного потока в криволинейном канале и математическая модель газожидкостного реактора. / Васильєв М.И., Шаповрев В.П. // Вісник Національного технічного університету «ХПІ». – Харків: НТУ «ХПІ», 2009. – № 37. – С.3-12.

Здобувач приймав участь у створенні експериментальної установки та обґрунтував характеристики етапів протікання процесу у реакторі.

5. Васильєв М.И. Очистка отходящих промышленных газов от CO_2 растворами углеаммонийных солей / Васильєв М.И., Шаповрев В.П., Макки А.Ф. // Збірник матеріалів I міжнародного конгресу «Захист навколишнього середовища, енергоощадність, збалансоване природокористування». – Львів: Нац. унів. «Львівська політехніка», 2009. – С.12, 19.

Здобувач встановлено залежність поглинання CO_2 від ступеня карбонізації розчину, та проведена математична обробка результатів.

6. Васильєв М.И. Гидродинамические исследования модели карбонизатора для обработки суспензии шлама рассолоочистки / Васильєв М.И., Сурков А.Н. Сердюков О.Е. // Матеріали III Університетської науково – практичної студентської конференції магістрантів НТУ «ХПІ». – Харків: НТУ «ХПІ», 2009. – С.140.

Здобувач брав участь у проведенні експерименту, запропонував та обґрунтував нове конструктивне оформлення досліджуваного реактора.

7. Васильєв М.И. Деякі аспекти моделювання пристрою контактування фаз / Шаповрев В.П., Васильєв М.И. // Промислова гідравліка і пневматика. – Вінниця: ВНАУ, 2011. – С.41-43.

Здобувач розробив математичну модель реактора.

8. Васильєв М.И. Дослідження апарату сумісного очищення відпрацьованих рідин та газів у виробництві кальцинованої соди / Васильєв М.И., Шаповрев В.П. // Тези доповідей Всеукраїнської науково-практичної конференції «Регіональні та транскордонні проблеми екологічної безпеки. Горбуновські читання». – Чернівці: «Прут», 2011. – С.35-36.

Здобувачем вивчено процес очищення відпрацьованих рідин та газів у виробництві кальцинованої соди та суміжних виробництв.

9. Пат. № 50143 Україна, МПК (2009) B01J 19/00, B01D 53/04. Пристрій для контактування фаз / Васильєв М.И., Шаповрев В.П., Моїсєєв В.Ф., Бубликова Є.В. – № у 2009 12836; заявл. 10.12.2009; опубл. 25.05.2010, Бюл.№10.

Здобувач створив масштабну модель реактору та на її основі обґрунтував зони встановлення завихрювачів й криволінійних каналів.

10. Пат. № 65361 Україна, МПК (2011.01) B01J 8/00. Карбонізаційна колона для здійснення складно-реакційного гетерогенного процесу / Васильєв М.И., Пітак І.В., Моїсєєв В.Ф., Цейтлін М.А., Шаповрев В.П., Алаа Файяд Макки. – № у 2011 02687; заявл. 09.03.2011; опубл. 12.12.2011, Бюл.№23.

Здобувач обґрунтував раціональну комбінацію контактних елементів та провів дослідження, що підтвердили запропоновані конструкції.

АНОТАЦІЇ.

Васильєв М.І. Інтенсифікація сполучених реакційно-масообмінних процесів в карбонізаційних реакторах содового виробництва. – На правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 05.17.08 – процеси та обладнання хімічної технології. - Національний технічний університет «Харківський політехнічний інститут» Міністерства освіти і науки, молоді та спорту України, Харків. 2012.

Дисертація присвячена теоретичним та експериментальним дослідженням механізму та кінетики реакційно-масообмінних процесів у содовому та суміжних виробництвах під впливом різних гідродинамічних режимів. У вказаних виробництвах до таких процесів відносяться процеси абсорбції CO_2 , що супроводжуються хімічними реакціями, утворенням та кристалізацією твердої фази. Для дослідження обрані процеси, що протікають у виробництвах очищеного бікарбонату натрію, екстракції сполук магнію зі шламу розсолоочистки виробництва білої сажі вуглекислотним способом. На основі експериментальних й теоретичних досліджень отримано залежності для визначення коефіцієнтів масовіддачі за умови створення різних гідродинамічних режимів у апаратах та різних умов дисипації введеної енергії. Узагальнені результати щодо карбонізації содових розчинів у колонних апаратах та утворення й кристалізація $NaHCO_3$, процесу екстракції сполук магнію зі шламу розсолоочистки бікарбонатним методом і карбонізації розчину силікату натрію та утворення SiO_2 (білої сажі). Розроблено математичні моделі, що описують й дають змогу прогнозувати результати процесів. На основі проведених теоретичних та експериментальних досліджень розроблено нові технологічні рішення, які забезпечують інтенсифікацію процесів та підвищення якості продукції. Це досягається за рахунок конструктивних особливостей колонних апаратів та трубчастих газорідних реакторів, які забезпечують ефекти нестационарності й інерційності потоків контактуючих фаз. В колонних апаратах ці умови створюються за рахунок комбінації різного виду контактних елементів (тарілок) за їх висотою, а в трубчастих газорідних реакторах зазначена гідродинамічна обстановка забезпечується за рахунок геометрії каналів й ефекту закручення потоків. Дослідження гідродинаміки й масообміну в зазначених апаратах дозволили встановити, що нестационарний рух потоків представляє розгінно-гальмівний рух реакційного середовища, і воно є періодичним й пульсаційним. Встановлено основні закономірності зазначеного руху, які дозволили створити нові конструкції апаратів. Основні результати дисертаційної роботи передано для впровадження у виробництво содових та суміжних продуктів, а також впроваджено у навчальний процес.

Ключові слова: сполучені реакційно-масообмінні процеси, содове виробництво, гідродинаміка, масообмін, кінетика, карбонізаційна колона, контактні пристрої.

Васильев М.И. Интенсификация совмещенных реакционно - массообменных процессов в карбонизационных реакторах содового производства. – На правах рукописи.

Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.17.08 - процессы и оборудования химической технологии. - Национальный технический уни-

верситет «Харьковский политехнический институт» Министерства образования и науки, молодежи и спорта Украины, Харьков. 2012 г.

Диссертация посвящена теоретическим и экспериментальным исследованиям механизма и кинетики реакционно-массообменных процессов в содовом и смежных производствах под влиянием разных гидродинамических режимов. В указанных производствах к таким процессам относятся процессы абсорбции CO_2 , которые сопровождаются химическими превращениями, образованием и кристаллизацией твердой фазы. Для исследования выбраны процессы, которые протекают в производствах очищенного бикарбоната натрия, экстракции соединений магния из шлама рассолоочистки производства белой сажи углекислотным способом. На основе экспериментальных и теоретических исследований получены зависимости для определения коэффициентов массоотдачи при условии создания разных гидродинамических ситуаций в аппаратах, и разных условий диссипации введенной энергии. Обобщены результаты, относительно карбонизации содовых растворов в колонных аппаратах, а также образования и кристаллизации $NaHCO_3$, относительно процесса экстракции соединений магния из шлама рассолоочистки бикарбонатным способом, относительно карбонизации раствора силиката натрия и образования SiO_2 (белой сажи). Разработаны математические модели, которые описывают и дают возможность прогнозировать результаты процессов. На основе проведенных теоретических и экспериментальных исследований разработаны новые технологические решения, которые обеспечивают интенсификацию процессов и повышение качества продукции. Это достигается за счет конструктивных особенностей колонных аппаратов и трубчатых газожидкостных реакторов, которые обеспечивают эффекты нестационарности и инерционности потоков контактирующих фаз. В колонных аппаратах эти условия создаются за счет комбинации различного вида контактных элементов (тарелок) по их высоте, а в трубчатых газожидкостных реакторах указанная гидродинамическая обстановка обеспечивается за счет геометрии каналов и эффекта закрутки потоков. Исследования гидродинамики и массообмена в указанных аппаратах позволили установить, что нестационарное движение потоков представляет разгонно-тормозное движение реакционной среды, и оно есть периодическое и пульсационное. Установлены основные закономерности указанного движения, которые позволили создать новые конструкции аппаратов. Основные результаты переданы для внедрения в производство содовых и смежных продуктов, а также внедрены в учебный процесс.

Ключевые слова: совмещенные реакционно-массообменные процессы, производство соды, гидродинамика, массообмен, кинетика, карбонизационная колонна, контактные устройства.

Mikhail I. Vasiliev. intensification of combined reactive mass transfer processes in reactors karbonizatsionnyh soda production. - Manuscript.

Dissertation on reception of scientific degree of candidate of engineering sciences on specialty 05.17.08 - processes and equipment of chemical technology. – National technical university «Kharkiv polytechnic institute» Ministry of education and science, youth and sports of Ukraine, Kharkiv. 2012.

Dissertation is devoted to theoretical and experimental studies of the mechanism and kinetics of the reaction-mass transfer processes in soda and related industries under the influence of violent hydrodynamic conditions. In these industries to such processes include

the process absorption CO_2 , accompanied by chemical transformations, the formation and crystallization of the solid phase. In order to study selected processes that occur in the production of refined sodium bicarbonate, magnesium compounds extracted from the slurry brine production of white soot carbon-dioxide method. Based on experimental and theoretical studies to determine the dependences of the mass transfer coefficient, provided that a different hydrodynamic situations in the apparatus, and the various conditions imposed by the dissipation of energy. Summarizes the findings regarding carbonation in soda solutions of column apparatus, as well as education and crystallization $NaHCO_3$ on the process of extraction of magnesium compounds from the brine purification sludge bicarbonate method, with respect to carbonation of the solution of sodium silicate and formation of SiO_2 (carbon white). The mathematical models that describe and enable to predict the results of processes. On the basis of theoretical and experimental research, new technology solutions that provide the intensification of the processes and improving product quality. The main results given for the introduction in the production of soda and related products, as well as embedded in the learning process.

Keywords: combined reaction-mass transfer processes, production of soda, mass transfer, intensification, kinetics, karbonizatsionnaya column, fluid dynamics.

A handwritten signature in black ink, appearing to be 'A. B. ...', located in the lower right quadrant of the page.

Формат 60x84/16. Ум. друк. арк. 0.9. Тир. 100 прим. Зам. № 169-12.
Підписано до друку 23.04.12. Папір офсетний.

Надруковано з макету замовника у СПД ФО Бровін О.В.
61022, м. Харків, майдан Слободи, 7, корп.1, к.19. Т. (057) 758-01-08, (066) 822-71-30
Свідоцтво про внесення суб'єкта до Державного реєстру
видавців та виготовників видавничої продукції серія ДК № 3587 від 23.09.09 р.

СТИЛЬ 
 **ИЗДАТ**
ТИПОГРАФИЯ