

CERCETĂRI PRIVIND CAPTAREA CO₂ REZULTAT DIN ARDEREA COMBUSTIBILILOR FOSILI SAU NECONVENȚIONALI

Teză destinată obținerii
titlului științific de doctor inginer
la
Universitatea "Politehnica" din Timișoara
în domeniul INGINERIE MECANICĂ
de către

ing. Dumitru CEBRUCEAN

Conducători științifici: Prof.univ.dr.ing. habil Ioana IONEL
Prof.univ.dr.ing. Tănase PANAIT

Referenți științifici: Prof.univ.dr.ing. habil László MAKRA
Prof.univ.dr.ing. Nicolae ROBU
Prof.univ.dr. Daniel VIZMAN

Ziua susținerii tezei: 09.07.2010

Seriile Teze de doctorat ale UPT sunt:

- | | |
|------------------------|---|
| 1. Automatică | 7. Inginerie Electronică și Telecomunicații |
| 2. Chimie | 8. Inginerie Industrială |
| 3. Energetică | 9. Inginerie Mecanică |
| 4. Ingineria Chimică | 10. Știința Calculatoarelor |
| 5. Inginerie Civilă | 11. Știința și Ingineria Materialelor |
| 6. Inginerie Electrică | |

Universitatea „Politehnica” din Timișoara a inițiat seriile de mai sus în scopul diseminării expertizei, cunoștințelor și rezultatelor cercetărilor întreprinse în cadrul școlii doctorale a universității. Seriile conțin, potrivit H.B.Ex.S Nr. 14 / 14.07.2006, tezele de doctorat susținute în universitate începând cu 1 octombrie 2006.

Copyright © Editura Politehnica – Timișoara, 2010

Această publicație este supusă prevederilor legii dreptului de autor. Multiplicarea acestei publicații, în mod integral sau în parte, traducerea, tipărirea, reutilizarea ilustrațiilor, expunerea, radiodifuzarea, reproducerea pe microfilme sau în orice altă formă este permisă numai cu respectarea prevederilor Legii române a dreptului de autor în vigoare și permisiunea pentru utilizare obținută în scris din partea Universității „Politehnica” din Timișoara. Toate încălcările acestor drepturi vor fi penalizate potrivit Legii române a drepturilor de autor.

România, 300159 Timișoara, Bd. Republicii 9,
tel. 0256 403823, fax. 0256 403221
e-mail: editura@edipol.upt.ro

Cuvânt înainte

Lucrarea tratează o problemă majoră legată de necesitatea protejării mediului ambiant, prin reducerea emisiilor poluante și a gazelor cu efect de seră emise de instalațiile de ardere și prin captarea CO₂, analizându-se în principal rezultatele obținute în urma arderii combustibililor fosili sau regenerabili (biomasă). Concentrația de CO₂ din atmosfera terestră crește continuu, în prezent fiind cu 40% mai mare decât la începutul erei industriale. Previziunile specialiștilor arată că această creștere va duce la amplificarea efectului de seră, astfel declanșându-se în lanț alte efecte care afectează echilibrul, și așa labil, al ecosistemul natural și implicit calitatea vieții, fauna, flora, clima, zonele costale, alimentația, activități economice, etc.

Pentru îndrumarea profesională și de înaltă competență științifică acordată, pentru aprecierile, înțelegerea și căldura sufletească primite pe parcursul stagiului doctoral, aduc mulțumirile mele și respectul cuvenit conducătorilor științifici, doamnei Profesor doctor inginer habil Ioana Ionel și domnului Profesor doctor inginer Tănase Panait. Mă simt dator să mulțumesc cu recunoștință pentru deschiderea cu care am fost primit în Universitatea „Politehnica” din Timișoara și a faptului că alături de condițiile tehnice oferite am simțit mereu omenirea și prietenia celor care au crezut în mine.

Alese mulțumiri, adresez membrilor comisiei de doctorat, domnului președinte Prof.dr.ing. Dumitru Țucu, prodecanul Facultății de Mecanică din Timișoara, distinșilor domni: Prof.dr.ing. habil László Makra, Prof.dr.ing. Nicolae Robu și Prof.dr. Daniel Vizman, care mi-au analizat teza, făcându-mi recomandări competente.

Se cuvine să adresez mulțumiri și domnului Conf.dr.ing. Dorin Lelea care m-a îndrumat în elaborarea programului de simulare.

Teza de doctorat a fost elaborată pe parcursul activității mele la Catedra de Termotehnică, Mașini Termice și Autovehicule Rutiere din cadrul Facultății de Mecanică a Universității „Politehnica” din Timișoara. Activitatea s-a desfășurat în cadrul Laboratorului Multifuncțional de Mașini Termice și Energii Neconvenționale. Adresez mulțumiri colegilor din catedră pentru schimburile de idei avute în timpul realizării proiectelor și pentru sprijinul acordat pe parcursul desfășurării stagiului doctoral, pentru prietenia și atmosfera de colegialitate și întraajutorarea acordată.

Mulțumesc cu dragoste și respect familiei mele și mai ales soției mele Viorica, pentru răbdarea, înțelegerea, susținerea și participarea sufletească datorite de-a lungul întregii perioade de pregătire a lucrării de doctorat.

Nu în ultimul rând, mulțumesc tuturor celor pe care nu i-am amintit și care, în diferite moduri, m-au îndrumat, sprijinit și ajutat pe parcursul elaborării tezei.

Timișoara, 9 iulie 2010

Dumitru CEBRUCEAN

Dedic această lucrare
Tatălui meu

Cebucean, Dumitru

Cercetări privind captarea CO₂ rezultat din arderea combustibililor fosili sau neconvenționali

Teze de doctorat ale UPT, Seria 9, Nr. 77, Editura Politehnica, 2010, 160 pagini, 59 figuri, 11 tabele.

ISSN: 1842-4937

ISBN: 978-606-554-127-6

Cuvinte cheie:

Captare CO₂, absorbție CO₂, monoetanolamină, post-combustie, ardere în strat fluidizat, cărbune, biomasă, epurarea gazelor de ardere, intensificarea transferului de căldură, simulare numerică.

Rezumat,

Lucrarea tratează o problemă actuală de interes acordat de noi grupuri de cercetare internațională, fiind legată de reducerea emisiei antropice de gaze cu efect de seră, în vederea estompării posibilelor efecte asupra tendinței de încălzire globală și schimbărilor climatice. Are caracter experimental, bazată pe o serie reprezentativă de teste pe o stație pilot de laborator (www.energieregen.mec.upt.ro), dar se completează cu cercetarea teoretică obținută prin simulări numerice în CFD Fluent.

Subiectul tezei are ca obiectiv principal studierea și investigarea experimentală a procesului de separare CO₂ din gazele de ardere, generate în urma arderii cărbunelui și biomasei în strat fluidizat, aplicând absorbția cu soluție apoasă de monoetanolamină (MEA). Teza se referă în plan secundar și asupra reținerii și diminuării emisiilor poluante în general din gazele de ardere înainte ca procesul de absorbție a CO₂ să se producă, se investighează și factorii ce duc la scăderea eficienței de captare CO₂. De asemenea, sunt analizate procedeele de optimizare și îmbunătățire a caracteristicilor termice ale unui schimbător de căldură special, utilizat pentru regenerarea monoetanolaminei din absorbantul bogat în CO₂.

Prin experimentele întreprinse s-a dovedit posibilitatea tehnică de separare a dioxidului de carbon din gazele de ardere cu concentrații inițiale CO₂ diferite (11-15% în volum), cu eficiența de absorbție CO₂ de 67-84%. S-a dovedit că prezența altor poluanți înaintea producerii procesului de absorbție CO₂ afectează întregul proces de captare CO₂ și regenerare MEA.

În concluzie, procedeul de captare post-combustie experimental a concluzionat condițiile și factorii de influență a procesului de captare CO₂, permițând generalizarea tehnologiei propuse spre aplicare industrială, în energetică în special.

CUPRINS

Lista de figuri	vii
Lista de tabele	x
Notații	xi
1. Introducere	15
1.1. Emisii de CO ₂	15
1.2. Metode de captare CO ₂	16
1.3. Obiectivele tezei de doctorat	18
2. Separarea CO₂ din gaze	19
2.1. Absorbția CO ₂ în soluții apoase de etanolamine	19
2.2. Absorbția CO ₂ în soluții apoase de carbonat de sodiu și potasiu	22
2.3. Absorbția CO ₂ în soluție caldă de carbonat de potasiu	25
2.4. Absorbția CO ₂ în apă	30
2.5. Reținerea CO ₂ prin procedeul Giammarco-Vetrocoke	31
2.6. Reținerea CO ₂ prin procedeul Catacorb	32
2.7. Impedimente legate de soluțiile apoase de etanolamine	32
2.7.1. Degradarea soluțiilor de etanolamine	32
2.7.2. Spumarea	35
2.7.3. Coroziunea	36
2.7.4. Alegerea materialelor de construcție	37
2.7.5. Pierderile de amină și consumul de chimicale	38
3. Absorbere cu umplură	40
3.1. Definiție	40
3.2. Funcționarea absorberului cu umplură	41
3.3. Distribuția lichidului	41
3.4. Corpuri de umplere	42
3.5. Caracteristicile corpurilor de umplere	43
4. Transferul de căldură și curgere în schimbătorul de căldură cu fascicul de țevi și manta	45
4.1. Schimbătoare de căldură cu fascicul de țevi și manta	45
4.2. Cercetări privind intensificarea transferului de căldură	45
4.2.1. Îmbunătățirea schimbului de căldură la curgerea fluidului prin țevi	45
4.2.2. Schimbul de căldură în spațiul extratubular	47
4.3. Calculul schimbului de căldură și al pierderilor de presiune	50
4.3.1. Caracteristici geometrice principale	50
4.3.2. Transfer de căldură	52
4.3.3. Pierdere de presiune	56
4.4. Modelarea numerică a procesului termic și de curgere prin spațiul tubular și extratubular a schimbătorului de căldură	63
4.4.1. Domeniul de calcul	63
4.4.2. Ecuațiile diferențiale și condițiile la limită	67
4.4.3. Metoda numerică folosită	67

5. Instalația experimentală	69
5.1. Prezentarea instalației experimentale pentru arderea combustibilului solid în strat fluidizat și epurarea gazelor de ardere	69
5.2. Descrierea echipamentelor	74
5.3. Aparatele și punctele de măsură	75
6. Rezultate	77
6.1. Rezultate experimentale	77
6.1.1. Combustibili utilizați	77
6.1.2. Volumul gazelor de ardere	79
6.1.3. Reținerea CO ₂ din gazele de ardere cu soluție de MEA 30% (masă)	80
6.1.4. Reținerea SO ₂ din gazele de ardere cu soluție de NaOH 1.5% și 2.5% (masă)	84
6.1.5. Efectul soluției de NaOH asupra emisiilor de CO ₂	87
6.1.6. Efectul co-arderii asupra suprafețelor din corpul convectiv	87
6.2. Rezultate numerice	89
6.2.1. Validarea modelului numeric	89
6.2.2. Simularea numerică a procesului de curgere și schimb de căldură în spațiul tubular cu și fără generatori de turbulență	91
6.2.3. Simularea numerică a procesului de curgere și schimb de căldură în spațiul extratubular cu și fără șicane	100
7. Concluzii	107
7.1. Concluzii privind cercetările experimentale	107
7.2. Concluzii privind cercetările numerice	110
7.3. Contribuții personale	113
Bibliografie	114
Anexa A: Simulări numerice aferente spațiului tubular	125
Anexa B: Simulări numerice aferente spațiului extratubular	128
Summary of dissertation	129

LISTA DE FIGURI

Figura 1.1. Emisii de CO ₂ generate în urma utilizării combustibililor fosili și pe sectoare de activitate, 2007	16
Figura 1.2. Metodele principale de captare CO ₂	17
Figura 2.1. Schema tehnologică de absorbție de CO ₂ din gaze cu soluții de carbonat de sodiu sau potasiu	23
Figura 2.2. Schema tehnologică clasică a procedurii cu soluție caldă de carbonat de potasiu	26
Figura 2.3. Schema tehnologică cu flux de absorbant sărac scindat și răcit parțial	27
Figura 2.4. Schema tehnologică cu fluxuri laterale și coloane compartimentate în două zone.....	28
Figura 2.5. Schema tehnologică cu fluxuri laterale și coloane compartimentate în trei zone.....	28
Figura 4.1. Dispunerea țevilor în mantaua schimbătorului de căldură față de direcția fluidului: (a) 60°; (b) 30°	50
Figura 4.2. Rețeaua 3D nestructurată, cu tetraedre, a domeniului de calcul reprezentând separat spațiul tubular și extratubular a schimbătorului de căldură: (a) spațiul tubular; (b) spațiul extratubular fără șicane, 60°, $d_{ir} = 9$ mm; (c) spațiul extratubular cu șicane, 30°, $d_{ir} = 21$ mm.....	65
Figura 5.1. Instalația experimentală (vederea din față)	69
Figura 5.2. Schema instalației experimentale de ardere a combustibilului solid în strat fluidizat cu puterea termică nominală de 40 kW și a sistemului de desprăfuire a gazelor de ardere, desulfurare, absorbție CO ₂ și regenerare absorbant. Prezentarea echipamentelor, punctelor de măsură și prelevare gaze, și citire date	70
Figura 5.3. Sistemul de reținere SO ₂ /CO ₂ din gazele de ardere (în stânga) coloana de desulfurare și de absorbție, și (în dreapta) vederea de sus a coloanelor	71
Figura 5.4. Sistemul de distribuție cu trei duze cap plat	72
Figura 5.5. Stropirea și distribuția lichidului peste un strat de umplutură din inele Raschig ceramice (în timpul încercărilor)	72
Figura 5.6. Coloana de absorbție (în stânga) taler perforat și (în dreapta) umplutură din inele ceramice Raschig 26×26×5.....	73
Figura 5.7. Punctele de măsură pentru partea de reținere SO ₂ și CO ₂	75
Figura 6.1. Mostre de combustibil după măcinare, lignit Motru (în stânga) și rumeguș de fag (în dreapta).....	77
Figura 6.2. Analiza granulometrică a combustibililor	78
Figura 6.3. Participația volumică a CO ₂ în gazele de ardere funcție de coeficientul excesului de aer λ	79
Figura 6.4. Debitul teoretic al gazelor de ardere G_v , calculat funcție de debitul combustibilului B_c (lignit Motru) pentru $\lambda = 1.3$	80
Figura 6.5. Variația CO ₂ înainte și după absorbție cu soluție de MEA 30% (masă) (intrare: 11.5% CO ₂ ; 52 ppm SO ₂ ; 121 ppm NO _x). Teste pe arderea rumegușului cu lignit.....	81

Figura 6.6. Variația CO ₂ înainte și după absorbție cu soluție de MEA 30% (masă) (intrare: 13.5% CO ₂ ; 74 ppm SO ₂ ; 123 ppm NO _x). Teste pe arderea rumegușului cu lignit.....	82
Figura 6.7. Variația CO ₂ înainte și după absorbție cu soluție de MEA 30% (masă) (intrare: 12.8% CO ₂ ; 168 ppm SO ₂ ; 180 ppm NO _x). Teste pe arderea lignitului.....	83
Figura 6.8. Variația CO ₂ înainte și după absorbție cu soluție de MEA 30% (masă) (intrare: 15.2% CO ₂ ; 240 ppm SO ₂ ; 170-185 ppm NO _x). Teste pe arderea lignitului	84
Figura 6.9. Variația SO ₂ înainte și după desulfurare cu soluție de NaOH 1.5 și 2.5% (masă). Teste pe arderea lignitului.....	85
Figura 6.10. Variația SO ₂ înainte și după desulfurare cu NaOH de diferite concentrații (1.5 și 2.5% masă). Concentrație mică de SO ₂ în gazele de ardere	86
Figura 6.11. Concentrația CO ₂ în gazele de ardere la intrare și ieșire din scruber	87
Figura 6.12. Pereții corpului convectiv.....	88
Figura 6.13. Pereții țevilor din corpul convectiv.....	88
Figura 6.14. Țevile din corpul convectiv înainte și după curățare.....	89
Figura 6.15. Compararea coeficientului de convecție a numeric cu cel teoretic pentru domeniul de curgere a gazelor de ardere <i>laminar-tranzitoriu-turbulent</i> prin tub simplu.....	90
Figura 6.16. Compararea pierderilor de presiune Δp numeric cu cel teoretic pentru domeniul de curgere a gazelor de ardere <i>laminar-tranzitoriu-turbulent</i> prin tub simplu.....	90
Figura 6.17. Coeficientul de convecție termică a funcție de debitul gazelor $G_{m,tub}$ prin tub simplu și tuburi cu benzi răscucite.....	92
Figura 6.18. Pierdere de presiune Δp funcție de debitul gazelor $G_{m,tub}$ prin tub simplu și tuburi cu benzi răscucite	93
Figura 6.19. Variația raportului a/a_o funcție de debitul gazelor $G_{m,tub}$ prin tuburi cu benzi răscucite	93
Figura 6.20. Variația raportului $\Delta p/\Delta p_o$ funcție de debitul gazelor $G_{m,tub}$ prin tuburi cu benzi răscucite	94
Figura 6.21. Câmpul de temperaturi la curgerea gazelor de ardere ($G_{m,tub} = 3.2$ kg/h) prin tuburi cu benzi răscucite pentru pasul relativ $\gamma = 3$	95
Figura 6.22. Câmpul de temperaturi la ieșirea gazelor de ardere ($G_{m,tub} = 3.2$ kg/h) din tuburi cu benzi răscucite pentru $\gamma = 3, 4, 5$ și 6	96
Figura 6.23. Compararea dintre coeficientul de convecție mediu abținut prin tub simplu cu cel din tuburi cu benzi răscucite $w/d_i \approx 0.95$ și 0.76	97
Figura 6.24. Compararea dintre valoarea medie a pierderilor de presiune prin tub simplu cu rezultatele din tuburi cu benzi răscucite $w/d_i \approx 0.95$ și 0.76	98
Figura 6.25. Coeficientul de convecție termică a funcție de debitul gazelor G_m prin spațiul tubular fără generatori de turbulență	99
Figura 6.26. Pierdere de presiune totală Δp funcție de debitul gazelor G_m prin spațiul tubular fără generatori de turbulență	99
Figura 6.27. Câmpul de temperaturi la curgerea gazelor de ardere prin spațiul tubular (în stânga) pentru debitul de 10.8 kg/h și (în dreapta) pentru 48.5 kg/h.....	100

Figura 6.28. Curgerea fluidului peste un fascicul de țevi așezat (în stânga) 60° , $d_{ir} = 9$ mm și (în dreapta) 30° , $d_{ir} = 21$ mm.....	101
Figura 6.29. Coeficientul de convecție a calculat numeric și teoretic funcție de debitul lichidului L_m prin spațiul extratubular cu și fără șicane (E1.1, E1.2).....	102
Figura 6.30. Pierdere de presiune Δp calculat numeric și teoretic funcție de debitul lichidului L_m prin spațiul extratubular cu și fără șicane (E1.1, E1.2).....	102
Figura 6.31. Coeficientul de convecție a calculat numeric și teoretic funcție de debitul lichidului L_m prin spațiul extratubular cu și fără șicane (E2.1, E2.2, E3.1, E3.2).....	103
Figura 6.32. Pierdere de presiune Δp calculat numeric și teoretic funcție de debitul lichidului L_m prin spațiul extratubular cu și fără șicane (E2.1, E2.2, E3.1, E3.2).....	104
Figura 6.33. Câmpul de temperaturi, de-a lungul axei z și secțiuni diferite pe axa y , la curgerea lichidului cu debitul de $L_m \approx 26$ kg/h prin spațiul extratubular: (în stânga) fără șicane E2.1, $T_{ies} = 361.6$ K; (în dreapta) cu șicane E2.2, $T_{ies} = 367.6$ K.....	105
Figura 6.34. Câmpul de temperaturi, de-a lungul axei z și secțiuni diferite pe axa y , la curgerea lichidului cu debitul de $L_m \approx 26$ kg/h prin spațiul extratubular: (în stânga) fără șicane E3.1, $T_{ies} = 361.8$ K; (în dreapta) cu șicane E3.2, $T_{ies} = 367.8$ K.....	106
Figura 7.1. Valoarea medie a eficienței de absorbție CO_2 cu MEA 30% (masă) în urma arderii cărbunelui	107
Figura 7.2. Concentrația medie de SO_2 în gazele de ardere înaintea procesului de absorbție CO_2 (testele pe cărbune)	107
Figura 7.3. Valoarea medie a eficienței de absorbție CO_2 cu MEA 30% (masă) în urma arderii simultane a biomasei cu cărbune	108
Figura 7.4. Concentrația medie de SO_2 în gazele de ardere înaintea procesului de absorbție CO_2 (testele pe biomasă/cărbune).....	108
Figura 7.5. Valoarea medie a eficienței de reținere SO_2 din gazele de ardere cu NaOH de 1.5 și 2.5% (masă) în testele pe arderea cărbunelui și biomasei	109
Figura 7.6. Compararea dintre coeficientul de convecție mediu obținut în tub simplu, fără generatori de turbulență, cu cel din tub cu bandă răsucită ($w/d_i \approx 0.95$ și $\gamma = 3, 4, 5, 6$).....	110
Figura 7.7. Compararea dintre valoarea medie a pierderilor de presiune prin tub simplu, fără generatori de turbulență, cu cele din tub cu bandă răsucită ($w/d_i \approx 0.95$ și $\gamma = 3, 4, 5, 6$)	110
Figura 7.8. Compararea dintre coeficientul de convecție mediu obținut în spațiul extratubular fără șicane cu cel din spațiul extratubular cu șicane.....	112
Figura 7.9. Compararea dintre valoarea medie a pierderilor de presiune din spațiul extratubular cu racordul de intrare/ieșire existent (9 mm) cu cel propus (21 mm).....	112

LISTA DE TABELE

Tabelul 2.1. Căldurile de reacție la absorbția CO ₂ în soluții de etanolamine.....	19
Tabelul 2.2. Valorile factorului de corecție	21
Tabelul 2.3. Valorile constantelor C și n în funcție de tipul umpluturii	25
Tabelul 4.1. Lista modelelor geometrice create în GAMBIT2.2	63
Tabelul 4.2. Principale caracteristici geometrice ale schimbătorului de căldură cu și fără șicane, și a generatorului de turbulența de tip bandă răsucită.....	64
Tabelul 4.3. Coeficienții $A_1..A_n$ utilizați în ecuația polinomială pentru determinarea proprietăților termofizice ale gazelor de ardere în funcție de temperatura T și devieri de la valoarea tabelară.....	66
Tabelul 4.4. Coeficienții $A_1..A_n$ utilizați în ecuația polinomială pentru determinarea proprietăților termofizice ale apei în funcție de temperatura T și devieri de la valoarea tabelară.....	66
Tabelul 4.5. Determinarea coeficientului de convecție mediu pe baza rezultatelor numerice	68
Tabelul 5.1. Caracteristicile principale ale umpluturii formată din inele ceramice Raschig 26×26×5.....	73
Tabelul 6.1. Analiza elementară a combustibililor (lignit Motru și rumeguș de fag)	77
Tabelul 6.2. Debitul (teoretic) de absorbant necesar pentru reținerea dioxidului de carbon cu concentrația de ~12,5%.....	81

NOTAȚII

a	-	suprafața specifică a umpluturii, [m ² /m ³]	<i>specific packing area</i>
A	-	suprafața de schimb de căldură, [m ²]	<i>heat transfer surface area</i>
a, b, c	-	parametri geometrici, [-]	<i>geometrical characteristics</i>
A_f	-	secțiunea de curgere a fluidului prin fereastră, [m ²]	<i>window area (excluding the area of tubes in window section)</i>
A_s	-	secțiunea minimă transversală între șicane, [m ²]	<i>minimal cross-sectional area</i>
A_{sm}	-	secțiunea de scurgere a fluidului prin spațiul dintre șicană și manta, [m ²]	<i>gap area between a baffle and the shell</i>
A_{ts}	-	secțiunea de scurgere a fluidului prin spațiile dintre țevi și găurile din șicane, [m ²]	<i>gap areas between the tubes and the holes in the baffles</i>
A_{tsm}	-	secțiunea totală de scurgere a fluidului	<i>total leakage area</i>
A_u	-	suprafața unui corp de umplere, [m ²]	<i>surface area of a single particle</i>
B_c	-	consumul de combustibil, [kg/s]	<i>fuel consumption</i>
c_p	-	căldura specifică, [J/kg·K]	<i>fluid specific heat</i>
d	-	diametrul nominal al corpului de umplere, [mm]	<i>particle nominal diameter</i>
D	-	diametrul interior al coloanei cu umplutură, [mm]	<i>column inner diameter</i>
d_e	-	diametrul exterior al țevii, [mm]	<i>tube outside diameter</i>
d_{ech}	-	diametrul echivalent al umpluturii, [mm]	<i>equivalent packing diameter</i>
D_i	-	diametrul interior al mantalei, [mm]	<i>shell inside diameter</i>
d_j	-	diametrul interior al țevii, [mm]	<i>tube inside diameter</i>
d_i	-	diametrul interior al corpului de umplere, [mm]	<i>particle inner diameter</i>
d_{ir}	-	diametrul interior al racordurilor de intrare și ieșire pe partea de lichid, [mm]	<i>shell inlet/outlet nozzle diameter</i>
d_p	-	diametrul echivalent al corpului de umplere, [mm]	<i>equivalent diameter of the packing element</i>
D_s	-	diametrul șicanei, [mm]	<i>baffle diameter</i>
d_s	-	diametrul perforărilor în șicană, [mm]	<i>diameter of perforations in a baffle</i>
d_s	-	diametrul mediu de suprafață al umpluturii, [mm]	<i>equivalent surface sphere diameter</i>
D_t	-	diametrul fasciculului de țevi, [mm]	<i>tube bundle diameter</i>
d_v	-	diametrul mediu de volum al umpluturii, [mm]	<i>equivalent volume sphere diameter</i>
f	-	coeficientul de frecare, [-]	<i>friction factor</i>

f_a	-	factorul de aranjare a țevilor, [-]	<i>arrangement factor</i>
f_g	-	factorul geometric, [-]	<i>geometrical factor</i>
f_o	-	coeficientul de corecție de ocolire, [-]	<i>bypass factor</i>
f_s	-	coeficientul de corecție de scurgere, [-]	<i>leakage factor</i>
f_z	-	coeficientul de corecție de viscozitate, [-]	<i>viscosity factor</i>
G	-	debitul gazelor, [m ³ /s] sau [kg/s]	<i>flow rate (for flue gas)</i>
h	-	înălțimea unui corp de umplere, [mm]	<i>height of a particle</i>
h_b	-	pasul unei răsuciri de 180°, [mm]	<i>pitch for a 180° tape twist</i>
h_s	-	înălțimea ferestrei șicanei, [mm]	<i>baffle window height</i>
$K_{G\bar{a}}$	-	coeficientul global de transfer de masă raportat la faza gazoasă, [kmol/h·m ³ ·bar]	<i>overall mass transfer coefficient for the gas phase</i>
$K_{L\bar{a}}$	-	coeficientul global de transfer de masă raportat la faza lichidă, [kmol/h·m ³ ·bar]	<i>overall mass transfer coefficient for the liquid phase</i>
L	-	debitul lichidului, [m ³ /s] sau [kg/s]	<i>flow rate (for liquids)</i>
l_p	-	distanța dintre placa tubulară și șicana adiacentă, [mm]	<i>inlet/outlet baffle spacing</i>
l_s	-	distanța dintre șicane, [mm]	<i>baffle spacing</i>
l_t	-	lungimea țevii, [mm]	<i>tube length</i>
M	-	concentrația molară (molaritate), [mol/l]	<i>molarity</i>
N	-	concentrație normală (normalitate), [val/l]	<i>normality</i>
n_f	-	numărul de țevi în fereastra șicanei, [-]	<i>number of tubes in window section</i>
n_o	-	numărul de perechi de obstacole (în direcția curgerii) din spațiul extratubular șicanat, [-]	<i>number of pairs of sealing strips</i>
n_{rf}	-	numărul de rezistențe majore din fereastra șicanei, [-]	<i>number of major restriction in a window section</i>
n_{rp}	-	numărul de rezistențe majore (în direcția curgerii) din spațiul cuprins între placa tubulară și șicana alăturată, [-]	<i>number of major restrictions in the path of the main flow in an end cross flow section</i>
n_{rs}	-	numărul de rezistențe majore (în direcția curgerii) din spațiul cuprins între șicane, [-]	<i>number of major restrictions in the path of the main flow in a cross flow section</i>
n_{rtf}	-	numărul de rânduri de țevi din fereastra șicanei, [-]	<i>number of tube rows in a window section</i>
n_s	-	numărul de șicane, [-]	<i>number of baffles</i>
n_s	-	numărul de șicane tip segment din spațiul extratubular, [-]	<i>number of baffles</i>
n_t	-	numărul total de țevi din fascicul, [-]	<i>number of tubes</i>
p	-	presiune, [Pa]	<i>pressure</i>
P	-	perimetrul udat, [m]	<i>wetted perimeter</i>

Q	-	fluxul de căldură, [W]	<i>heat transfer rate</i>
Q'	-	puterea calorică inferioară a combustibilului, [MJ/kg]	<i>lower heating value</i>
S	-	partea decupată din șicană, [%]	<i>baffle cut</i>
t	-	pasul dintre țevi, [mm]	<i>tube pitch</i>
t, T	-	temperatura, [°C] sau [K]	<i>temperature</i>
t_l	-	pasul longitudinal dintre țevi, [mm]	<i>longitudinal tube pitch</i>
t_t	-	pasul transversal dintre țevi, [mm]	<i>transverse tube pitch</i>
V	-	volumul unui corp de umplere, [m ³]	<i>volume of a single particle</i>
w	-	lățimea benzii răsucite, [mm]	<i>twisted tape width</i>
w, u	-	viteza, [m/s]	<i>velocity</i>
y	-	pasul relativ al benzii răsucite, [-]	<i>twisted tape ratio</i>
Δp	-	pierdere de presiune, [Pa]	<i>pressure drop</i>
ΔT	-	temperatura medie logaritmică, [°C]	<i>log-mean temperature difference</i>
Nu	-	numărul Nusselt	<i>Nusselt number</i>
Re	-	numărul Reynolds	<i>Reynolds number</i>
Pr	-	numărul Prandtl	<i>Prandtl number</i>
Gz	-	numărul Graetz	<i>Graetz number</i>
x, y, z	-	coordonate, [-]	<i>coordinate axis</i>

Simboluri grecești

a	-	coeficientul de convecție, [W/m ² ·K]	<i>heat transfer coefficient</i>
γ	-	unghiul ce corespunde marginii șicanei, [°]	<i>angle corresponding to baffle edge</i>
δ	-	grosime, [mm]	<i>thickness</i>
ε	-	fracția de goluri (porozitatea), [-]	<i>packing void fraction</i>
λ	-	conductivitatea termică, [W/m·K]	<i>fluid thermal conductivity</i>
μ	-	viscozitatea dinamică a fluidului, [kg/m·s]	<i>fluid viscosity</i>
ξ	-	coeficientul de rezistență, [-]	<i>pressure drop coefficient</i>
ρ	-	densitatea fluidului, [kg/m ³]	<i>fluid density</i>
φ	-	factorul de formă (sfericitatea), [-]	<i>shape factor</i>

Indici

in	-	intrare	<i>inlet</i>
ies	-	ieșire	<i>outlet</i>
p	-	perete	<i>wall</i>
v	-	debitul volumetric	<i>volumetric flow rate</i>
m	-	debitul masic	<i>mass flow rate</i>

Formule chimice

CO ₂	-	dioxid de carbon	<i>carbon dioxide</i>
COS	-	sulfură de carbonil	<i>carbonyl sulfide</i>
CS ₂	-	disulfură de carbon	<i>carbon disulfide</i>
DEA	-	dietanolamina (C ₄ H ₁₁ O ₂ N)	<i>diethanolamine</i>
DEG	-	glicolamină	<i>glycolamine</i>
H ₂	-	hidrogen	<i>hydrogen</i>
H ₂ O	-	apă	<i>water</i>
H ₂ S	-	hidrogen sulfurat	<i>hydrogen sulfide</i>
K ₂ CO ₃	-	carbonat de potasiu	<i>potassium carbonate</i>
KHCO ₃	-	bicarbonat de potasiu	<i>potassium bicarbonate</i>
MDEA	-	metildietanolamina (CH ₃ N(C ₂ H ₄ OH) ₂)	<i>methyldiethanolamine</i>
MEA	-	monoetanolamina (C ₂ H ₇ ON)	<i>monoethanolamine</i>
N ₂	-	azot	<i>nitrogen</i>
Na ₂ CO ₃	-	carbonat de sodiu	<i>sodium carbonate</i>
NaHCO ₃	-	bicarbonat de sodiu	<i>sodium bicarbonate</i>
NO _x	-	oxizi de azot	<i>nitrogen oxides</i>
O ₂	-	oxigen	<i>oxygen</i>
SO ₂	-	dioxid de sulf	<i>sulfur dioxide</i>
TEA	-	trietanolamina (C ₆ H ₁₅ O ₃ N)	<i>triethanolamine</i>

Abrevieri

IEA	-	Agenția Europeană pentru Energie	<i>International Energy Agency</i>
IPCC	-	Grupul Interguvernamental privind Schimbările Climatice	<i>Intergovernmental Panel on Climate Change</i>

1. INTRODUCERE

1.1. Emisii de CO₂

Conform celor mai recente date, obținute de la observatorul Mauna Loa, concentrația dioxidului de carbon în atmosferă a ajuns la valoarea de 389.91 ppm (februarie 2010) [T2]. Concentrația de CO₂ a crescut cu 2.5 ppm față de aceeași lună a anului trecut, și cu ~39% față de perioada pre-industrială (~280 ppm).

Experții de la Grupul Interguvernamental privind Schimbările Climatice consideră că creșterea concentrației de CO₂ în atmosferă va duce la amplificarea efectului de seră, ceea ce la rândul său va duce inevitabil la încălzirea globală a planetei [I1]. Modelele climatice, dezvoltate de cei de la IPCC, estimează o creștere a temperaturii globale între 1.1°C și 6.4°C până în 2100 [I2].

Anual, peste 28 miliarde tone de CO₂ sunt emise în atmosferă ca rezultat al utilizării combustibililor fosili (cărbune, petrol și gaz). Dintre care, combustibilul cel mai poluant, cu cea mai mare cotă de participare, mai mult de 40%, este cărbunele [I4, I5]. Figura 1.1 arată repartizarea emisiilor totale de CO₂ funcție de combustibil și pe sectoare de activitate pentru anul 2007. Cantitatea de CO₂ emisă în urma arderii cărbunelui a ajuns la valoarea de 12.2 miliarde tone de CO₂, adică o creștere de ~47.2% în comparație cu nivelul anului 1990. Producerea de energie electrică și termică a generat în atmosferă peste 40% (~11 Gt) din emisii totale de CO₂, fiind și cel mai poluant sector.

Potrivit Agenției Internaționale pentru Energie, țările cu cea mai mare cantitate de CO₂ emisă anual sunt China (6071.2 Mt) și SUA (5769.3 Mt), urmată de Federația Rusă (1587.4 Mt), India (1324 Mt) și Japonia (1236.3 Mt) [I4, I5]. După cum se vede, primele două țări generează mai mult de 40% din emisii totale de CO₂.

În 2007, România a emis aproape 92 milioane tone de CO₂ în urma arderii combustibililor fosili, ceea ce reprezintă mai puțin cu ~51% față de nivelul anului 1989 [I4, I5]. Trebuie menționat că această reducere, aparent semnificativă, nu se datorează faptului aplicării unor tehnologii noi, în ultimii 20 de ani, ci consumului de combustibil care a scăzut cu aproximativ 44% [I4, I5]. Conform Agenției Internaționale pentru Energie, cea mai mare parte de CO₂ din România provine din sectorul energetic, responsabil pentru circa 40% din emisiile totale de CO₂. Dintre aceste emisii mai mult de 72% (26.6 Mt CO₂) revin centralelor termo-electrice pe bază de cărbune și circa 25% (9.1 Mt CO₂) din cele pe bază de gaze naturale.

Măsurile principale ce trebuie luate pentru reducerea CO₂ rezultat din utilizarea combustibililor fosili sunt: (i) mărirea eficienței centralelor termice și îmbunătățirea și optimizarea proceselor de producere a energiei; (ii) utilizarea combustibililor cu conținut scăzut de carbon și utilizarea surselor regenerabile de energie; (iii) aplicarea tehnologiilor de captare și stocare CO₂.

Pentru a reduce cantitatea de emisii CO₂ din sectorul energetic, precum și din cel industrial, sunt propuse diverse metode și tehnologii de captare și stocare CO₂ [F2, I1, I10]. Experții IPCC consideră că aplicând tehnologiile de captare și stocare CO₂ ar putea contribui la limitarea emisiilor de gaze cu efect de seră cu până la 55%.

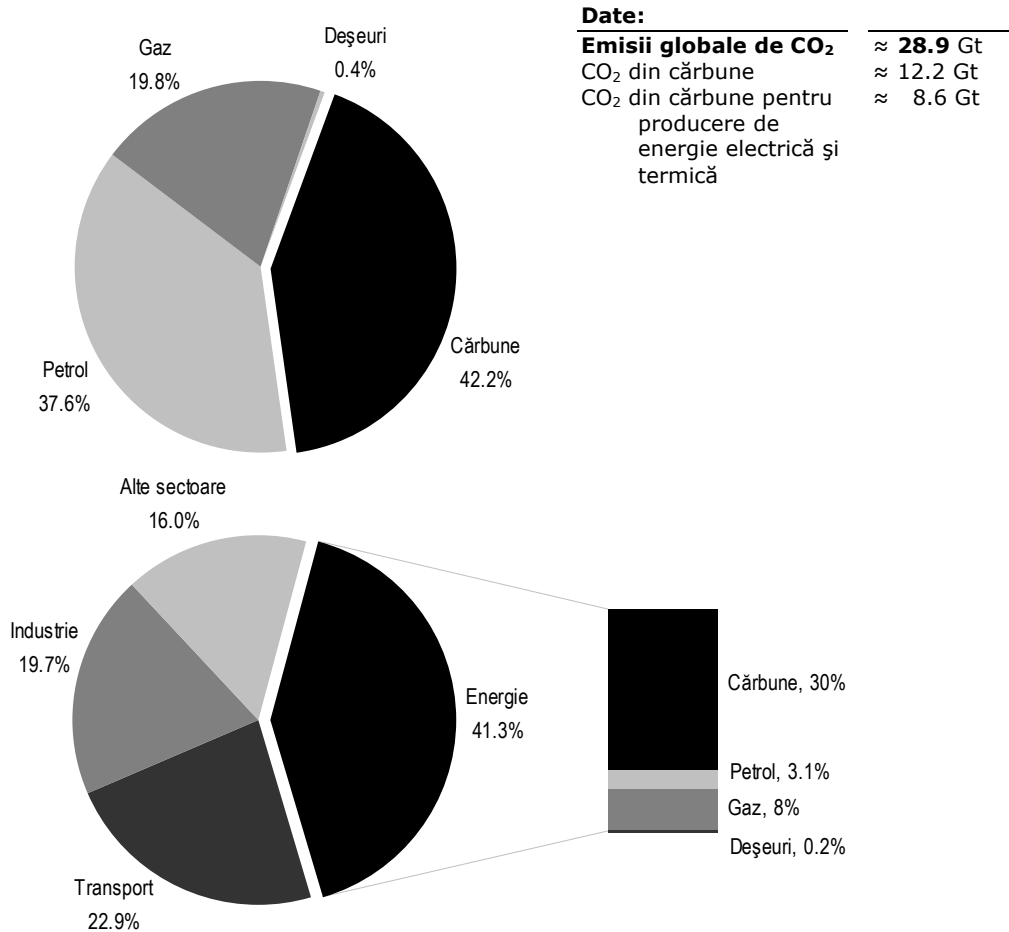


Figura 1.1. Emisii de CO₂ generate în urma utilizării combustibililor fosili și pe sectoare de activitate, 2007

1.2. Metode de captare CO₂

Sunt două opțiuni de captare a dioxidului de carbon (i) înainte, prin decarbonizarea combustibilului, și (ii) după procesul de ardere, din gazele de ardere [F2, I1]. Principala problemă care apare la separarea dioxidului de carbon din gazele de ardere o reprezintă concentrația mică de CO₂, care, în funcție de combustibilul folosit variază între 4% și 15% [B1, D5, I1]. Concentrația dioxidului de carbon în gazele arse poate fi mărită semnificativ folosind oxigenul pur în camera de ardere, în calitate de oxidant al combustibilului, astfel gazele rezultante vor avea un conținut de CO₂ mai mare, de peste 80%. Însă aceasta va duce la creșterea temperaturii în camera de ardere excesiv de mult. O altă soluție, deja menționată, ar fi captarea dioxidului de carbon înainte de procesul de ardere a combustibilului, adică sechestrarea CO₂ din combustibil.

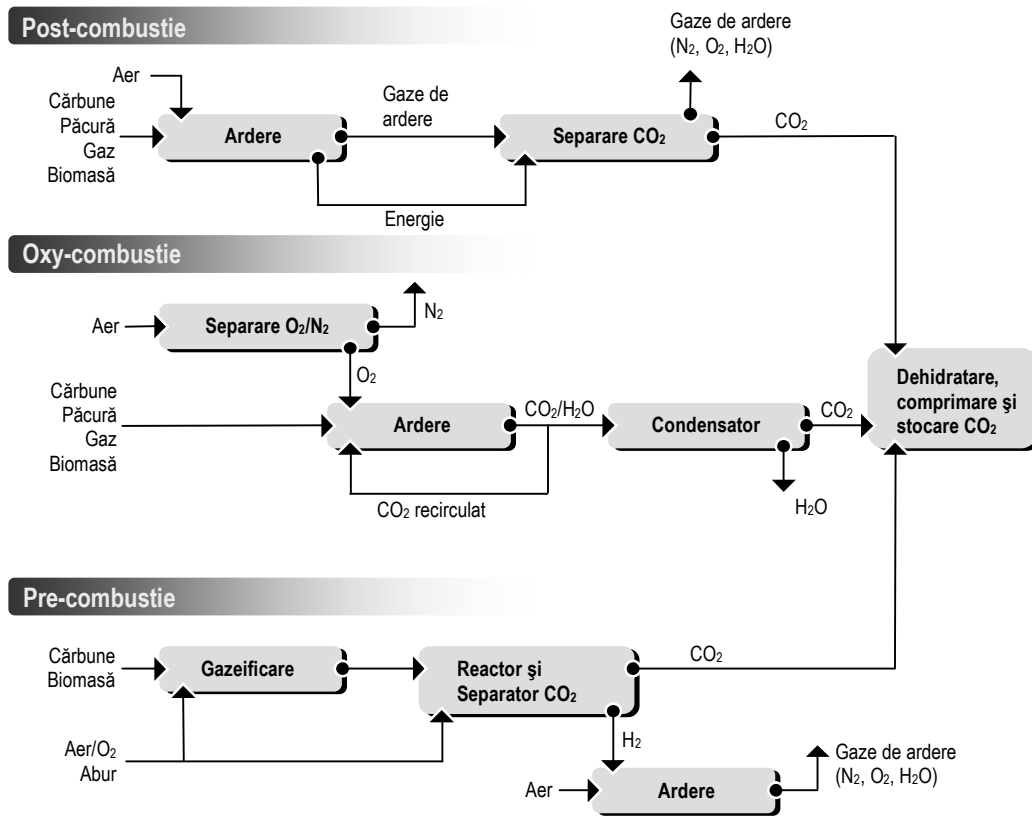


Figura 1.2. Metodele principale de captare CO₂

Există trei metode principale de captare a dioxidului de carbon din centrale termo-electrice: post- și oxy-combustie (după procesul de ardere) și pre-combustie (înaintea procesului de ardere), Figura 1.2 [F2, I1].

Captarea în faza de post-combustie este separarea CO₂ din gazele de ardere. Gazele de ardere înainte de a fi emise în atmosferă sunt trecute printr-un sistem de captare și separare CO₂. Dioxidul de carbon sechestrat este apoi dehidratat, comprimat și stocat, iar gazele rămase, cum ar fi N₂, O₂ și vapori de apă sunt evacuate. În Figura 1.2 (bloc schema de sus) se prezintă schema de principiu a acestui proces. Cel mai des în astfel de instalații, pentru captarea CO₂, sunt folosiți solvenți chimici de absorbție din clasa aminelor, monoetanolamină (MEA) sau dietanolamină (DEA). Datorită concentrației joase a CO₂ în gazele arse, aproximativ 4% pentru centrale cu arderea gazului natural și ~15% cu cărbune, sistemele pe baza absorbției chimice reprezintă tehnologia cea mai aplicată. Mai mult ca atât, această tehnologie se poate aplica fără a fi nevoie de modificări majore ale instalației de ardere [B2, M5, S3, S10].

Metoda oxy-combustie constă în arderea combustibilului într-un mediu cu conținut ridicat de oxigen, iar captarea dioxidului de carbon are loc după procesul de ardere așa cum este prezentat în Figura 1.2 (bloc schema din mijloc). Această tehnologie își propune obținerea unui gaz de ardere ce constă în principal din vapori de apă și un conținut ridicat de dioxid de carbon, 80-90%. O parte din acest gaz

este necesar de recirculat înapoi în camera de ardere cu scopul de a menține controlul asupra temperaturii în focar. În cazul în care combustibilul este ars în oxigen pur, este posibil ca temperatura în focar să crească până la 3500°C, o temperatură foarte înaltă la care aliajul nu rezistă. De exemplu, temperatura de ardere pentru camera de ardere a unei turbine cu gaze este limitată în jurul a 1400°C, iar focarul unui cazan pentru arderea cărbunelui până la 1900°C [I1, M5]. Din gazul ne-reciclat, vaporii de apă sunt condensați, iar dioxidul de carbon astfel separat este în continuare uscat, comprimat și stocat. Un mare dezavantaj a acestei metode este consumul mare de energie necesar pentru separarea oxigenului din aer. În general este utilizată tehnica criogeniei pentru separarea oxigenului de azot, care este, din păcate, scumpă și mare consumatoare de energie. Studiile arată că pentru a furniza oxigen pur necesar pentru combustia unei termocentrale pe cărbune, care funcționează 800 ore pe an, se consumă aproximativ 15% din energia electrică totală generată de respectiva centrală.

Metoda pre-combustie sau procesul de decarbonizare a combustibilului, constă în, combustibilul înainte de procesul de ardere este transformat cu ajutorul unei instalații speciale de gazeificare într-un amestec de monoxid de carbon și hidrogen – gaz de sinteză (sau syngaz). Apoi monoxidul de carbon prezent în amestecul gazos reacționează cu apa în reactorul de cracare, rezultând dioxidul de carbon și hidrogen. Dioxidul de carbon este apoi separat de hidrogen care poate fi utilizat în calitate de „combustibil” la diferite aplicații, pentru a produce energie electrică sau termică. Este de menționat faptul că, concentrația CO₂ în amestecul CO₂/H₂ este de 15-60% și presiunea parțială de până la 7MPa. Tehnologia de pre-combustie este de obicei aplicată la centrale cu ciclul combinat de ardere a cărbunelui. Acesta include gazeificarea cărbunelui și mai multe etape de purificare a gazului de sinterizare, cu scopul de a reduce conținutul de cenușă, sulf și alte impurități. Deși, etapa inițială de conversie a combustibilului este mai complexă și mai costisitoare decât în post-combustie, pot fi utilizate tehnologii mai eficiente pentru separarea CO₂, și anume tehnologii pe baza de solvenți fizici de absorbție [I1, M5].

1.3. Obiectivele tezei de doctorat

Obiectivele principale ale studiului doctoral sunt:

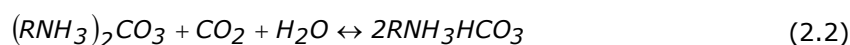
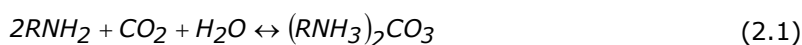
- Aplicarea și cercetarea experimentală a procesului de separare CO₂ din gazele de ardere, generate în urma arderii combustibililor solizi (cărbune, biomasă) în strat fluidizat, cu ajutorul soluției pe bază de amină;
- Investigarea procesului de reținere și diminuare a emisiilor poluante (SO₂, NO_x, cenușă) din gazele de ardere înaintea procesului de captare CO₂ și a influenței acestor poluanți asupra eficienței de absorbție CO₂;
- Cercetarea și identificarea soluțiilor pentru optimizarea și îmbunătățirea caracteristicilor termice ale unui echipament termic, utilizat pentru regenerarea monoetanolaminei din absorbantul bogat în CO₂.

2. SEPARAREA CO₂ DIN GAZE

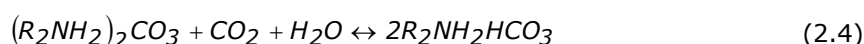
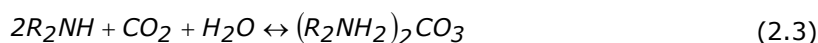
2.1. Absorbția CO₂ în soluții apoase de etanolamine

Principalele reacții care stau la baza procesului de eliminare a CO₂ prin absorbție în soluții apoase de etanolamine sunt [K7, R2]:

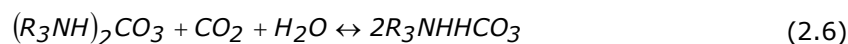
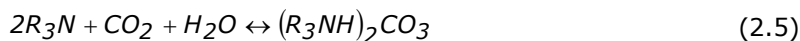
- reacția dintre monoetanolamină (MEA) și CO₂,



- reacția dintre dietanolamină (DEA) și CO₂,



- reacția dintre trietanolamină (TEA) și CO₂,



unde R reprezintă radicalul $HO-CH_2-CH_2-$.

Reacțiile se desfășoară de la stânga la dreapta la presiuni mari și temperaturi mici, și de la dreapta la stânga la presiuni mici și temperaturi mari.

Valorile medii ale căldurii de reacție la absorbția CO₂ în soluții de etanolamine sunt prezentate în Tabelul 2.1 [K7]. Valori ale acestora în funcție de molalitatea soluției de MEA și CO₂ și TEA și CO₂, în limite de temperatură 0-75°C sunt date în diferite lucrări.

Tabelul 2.1. Căldurile de reacție la absorbția CO₂ în soluții de etanolamine

	MEA	DEA
Căldura de reacție, [kJ/kg CO ₂]	1920*	1520

*Valoarea calculată pentru concentrația de 0.4 moli CO₂/mol MEA

În ceea ce privește datele de echilibru gaz-lichid pentru sistemul CO₂-soluție apoasă de etanolamină, pentru diferite concentrații ale aminei și pentru diferite temperaturi, acestea au fost prezentate în [K7, R2]. Pe baza acestor date se calculează necesarul de talere teoretice sau numărul de unități de transfer în

coloanele de absorbție și desorbție și în funcție de tipul coloanei (cu talere sau umplutură) se calculează înălțimea ei.

Calculul necesarului de talere sau de unități de transfer necesită cunoașterea concentrației CO₂ în absorbantul sărac (soluția stripată) și în absorbantul bogat. Pentru soluțiile apoase de MEA, datele practice arată valori cuprinse între 0.05 și 0.2 moli CO₂/mol MEA în funcție de condițiile stripării; o valoare de 0.15 poate fi considerată normală atunci când coloana de stripare operează la presiuni scăzute. În ceea ce privește absorbantul bogat, gradul de încărcare a acestuia cu CO₂ nu trebuie să fie mai mare de 0.35 moli CO₂/mol MEA sau DEA și niciodată nu trebuie să depășească valoarea de 0.4, deoarece în acest caz corозиunile oțelului carbon sunt foarte mari, ceea ce necesită extinderea oțelului inox în toată instalația.

În cazul absorbției CO₂, calculul eficacității talerului sau a umpluturii, respectiv calculul înălțimii coloanei este mult mai dificil și în același timp mai puțin exact decât calculul diametrului coloanei. Această dificultate este și mai mare iar datele obținute mai puțin demne de încredere, în cazul coloanelor de absorbție cu reacție chimică. De aceea, în acest caz, s-a considerat că cel mai bine ar fi corelarea coeficienților de absorbție (de transfer de masă) cu datele de eficacitate ale talerului prin relații empirice care să poată fi aplicate la calculul de proiectare a coloanelor.

Datele publicate în literatură arată că filmul de lichid este factorul care controlează absorbția CO₂ în soluțiile de amine. Cu toate acestea, corelația generală de calcul se bazează pe coeficientul global de transfer de masă raportat la faza gazoasă (K_{Ga}) și nu la faza lichidă (K_{La}) deoarece în primul caz forma relației rezultată din prelucrarea datelor experimentale se pretează la aplicarea directă în calculul de proiectare a coloanelor industriale unde eficacitatea eliminării CO₂ constituie principala problemă urmărită. În general s-a constatat că valoarea coeficientului K_{Ga} crește cu creșterea sarcinii de lichid și descrește cu creșterea concentrației CO₂ în soluție. De asemenea, creșterea temperaturii sau a concentrației aminei conduce la creșterea coeficientului până la o valoare maximă după care începe să scadă. Unele investigații au arătat că odată cu creșterea presiunii parțiale a CO₂ are loc o descreștere a coeficientului K_{Ga} . Cu creșterea vitezei lichidului coeficientul crește, în timp ce debitul de gaz practic nu influențează.

Relația de calcul pentru coeficientul K_{Ga} este:

$$K_{Ga} = \frac{8.85}{(1000\mu)0.68} \left[1 + 5.7(0.5 - c)Me^{0.0067\left(\frac{9}{5}t + 32\right) - 3.44p} \right] \quad (2.7)$$

unde K_{Ga} reprezintă coeficientul global de transfer de masă, [kmoli CO₂/h·m³·bar];

- μ - viscozitatea soluției, [kg/m·s];
- c - concentrația CO₂ în soluție, [moli CO₂/mol MEA];
- M - concentrația molară a aminei în soluție, [moli MEA/l soluție];
- t - temperatura, [°C];
- p - presiunea parțială a CO₂, [bar].

Ecuția (2.7) este valabilă pentru o viteză de masă a lichidului de 3400 kg/h m² și o viteză liniară a gazului cuprinsă între 0.027 și 0.168 m/s.

Dacă rezistența la transferul de masă este dată de filmul de lichid există presupunerea că valoarea K_{Ga} din relația (2.7) ar putea fi extrapolată pentru alte debite de lichid, considerând variația proporțională cu $(L^*)^{2/3}$, deși valoarea

exponentului nu este unanim acceptată. În ceea ce privește extrapolarea pentru alte dimensiuni de umplutură, problema este mult mai complicată. Cu toate acestea, pentru absorbția CO₂ în soluții de MEA s-a propus o relație mai generală, care ia în considerație, pe lângă parametrii din relația (2.7), debitul de lichid și dimensiunea umpluturii [K7].

$$K_{Ga} = 5.5F \left(\frac{L^*}{10^* \mu} \right)^{2/3} \left[1 + 5.7(c_e - c) Me^{0.0067 \left(\frac{9}{5}t + 32 \right) - 3.44p} \right] \quad (2.8)$$

unde L^* reprezintă viteza de masă a lichidului, [kg/h·m²];

c_e - concentrația de echilibru a CO₂ în soluție, [moli CO₂/mol MEA];
 F - factor de corecție pentru dimensiunea și tipul umpluturii, [-].

Relația (2.8) este valabilă numai pentru valori ale presiunii parțiale a CO₂ mai mici de 0.5 bar, temperaturi mai mici de 52°C și raporturi molare CO₂/MEA mai mici de 0.5.

Valorile factorului de corecție sunt prezentate în Tabelul 2.2 conform [K7].

Tabelul 2.2. Valorile factorului de corecție

Tipul umpluturii	F [-]
Inele de sticlă de 5-6 mm	7.1×10^{-3}
Inele de ceramică de 10 mm (coloană cu diametrul de 100 mm funcționând la presiunea atmosferică)	3.0×10^{-3}
Inele de oțel de 25 mm și șei din ceramică de 25 mm (coloană cu diametrul de 200 mm funcționând la presiunea atmosferică)	2.1×10^{-3}
Inele din ceramică de 38 mm și 50 mm (două coloane industriale funcționând la presiuni de 2.1-21 bar)	$(0.4-0.6) \times 10^{-3}$

Întrucât coeficientul K_{Ga} depinde atât de presiunea parțială a CO₂ cât și de gradul de saturație, înseamnă că el variază sensibil de-a lungul coloanei de absorbție. Încercările de a folosi o valoare medie a coeficientului au demonstrat că rezultatele cele mai bune se obțin în baza valorilor medii logaritmice ale ambilor parametri: p și $(c_e - c)$.

Date suplimentare privind absorbția CO₂ în soluții de MEA au fost de asemenea publicate. De exemplu, la absorbția CO₂ într-o soluție de 15% MEA, valorile coeficientului au variat între 0.975 și 3.84 kmoli CO₂/h m³ bar, experiențele fiind efectuate în următoarele condiții:

- coloană de absorbție cu diametrul de 150 mm și înălțimea de umplutură (inele Raschig de ceramică de 25 mm) de 6.35 m;
- presiune de lucru de 21 bar;
- viteză de masă a lichidului între 7800 și 24400 kg/h m²;
- concentrație CO₂ în gaz la intrarea și ieșirea din coloană, 20% și 0.4-2.2%, respectiv.

Studii similare s-au făcut și pentru absorbția CO₂ în soluții mai concentrate (30% MEA), valoarea coeficientului variind în acest caz în limitele 0.8-2.56 kmoli CO₂/h m³ bar.

De asemenea, au fost efectuate lucrări experimentale de absorbție a CO₂ în soluții de DEA pe coloane cu diametrul de 200 mm și umplutură din inele Raschig de 19 mm. Rezultatele au arătat că mărimea $K_G a$ descrește cu creșterea presiunii parțiale a CO₂ și a gradului de saturare și crește cu creșterea debitului de lichid. Valorile coeficientului obținute în cazul soluțiilor de MEA 1N și 2N în funcție de produsul $(L^*)^{2/3}(0.5 - c)$ indică efectul combinat al influenței debitului de lichid și al concentrației CO₂ în soluție. Experiențe similare s-au efectuat și cu soluții de DEA de concentrație 3N și 4N care au arătat o descreștere a coeficientului, probabil din cauza creșterii viscozității.

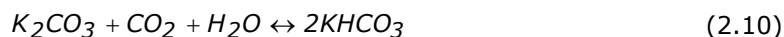
Desorbția CO₂ din soluții de MEA reprezintă o problemă mai dificilă din cauza stabilității relative a complexului CO₂-amină. De regulă, desorbția se realizează în coloane care operează la presiunea absolută de 1.65 bar și o temperatură de 116°C în refierbător sau o presiune de 1.38 bar și o temperatură de 98°C la vârful coloanei.

Prin creșterea temperaturii din refierbător se poate obține o stripare mai bună a soluției. Acest lucru se poate realiza în cazul soluțiilor de MEA prin creșterea presiunii la stripare iar în cazul soluțiilor de glicol-amină (DEG) prin reducerea conținutului de apă. O comparație între rezultate obținute prin cele două metode de creștere a temperaturii a fost prezentată în [K7]. Totuși, temperaturile și presiunile mari din desorbție accelerează degradarea MEA prin reacția cu CO₂ și producerea de compuși neregenerabili, cu temperaturi de fierbere ridicate. De aceea, temperatura de regenerare nu trebuie să depășească niciodată 126°C. Din acest motiv, soluțiile de MEA și DEA, folosite la eliminarea de CO₂ din gaze, nu trebuie să depășească, concentrația de 15-20%, respectiv 20-30% masă. În [R2] sunt publicate date privind variația unor proprietăți fizice (densitate, viscozitate și pH) ale soluției de MEA de concentrație 15 și 30% masă cu temperatura și gradul de încărcare cu CO₂.

2.2. Absorbția CO₂ în soluții apoase de carbonat de sodiu și potasiu

Procedeul de eliminare a CO₂, din gaze de coș prin absorbție în soluție apoasă de carbonat de sodiu (Na₂CO₃) sau potasiu (K₂CO₃) a fost și este mijlocul cel mai utilizat de obținere a CO₂ destinat industriei alimentare (producerea zăpezii carbonice, a băuturilor carbogazoase) [I1, K7].

Procedeul se bazează pe reacția reversibilă dintre CO₂ și carbonat, acesta din urmă fiind transformat parțial în bicarbonat:



Conform acestor reacții, procesul de absorbție a CO₂ are loc la presiuni mari și temperaturi mici când o parte din carbonatul din soluție este convertit la bicarbonat care, la presiuni mici și temperaturi mari, se descompune în carbonat și CO₂. În felul acesta se regenerează soluția inițială de carbonat simultan cu recuperarea CO₂ pus în libertate.

Reacțiile de la stânga la dreapta se desfășoară în coloana de absorbție iar cele de la dreapta la stânga în coloana de desorbție. CO₂ pus în libertate

recuperându-se pe la vârf. Schema tehnologică a procesului de reținere CO₂ din gazele de ardere prin absorbție în soluții de Na₂CO₃ sau K₂CO₃ este prezentată în Figura 2.1.

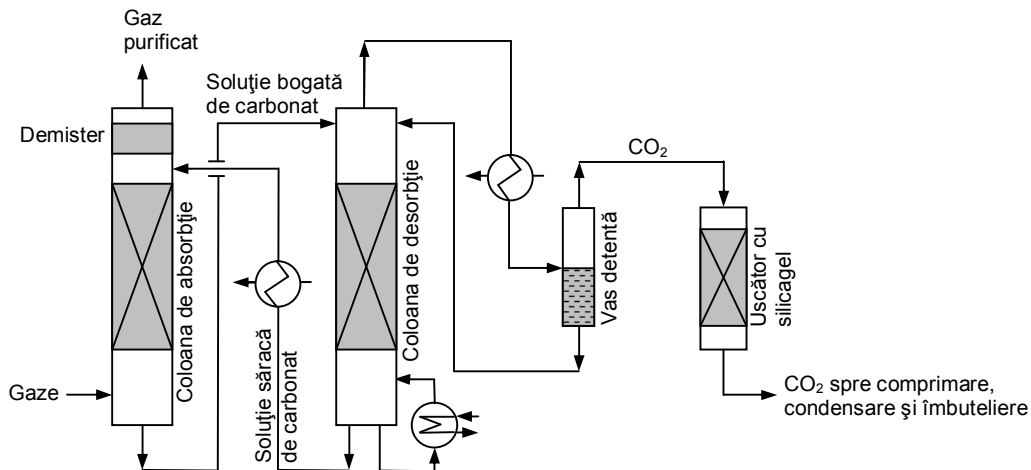


Figura 2.1. Schema tehnologică de absorbție de CO₂ din gaze cu soluții de carbonat de sodiu sau potasiu

Desorbția se poate face fie prin refierbere, fie cu abur, dar în acest ultim caz, apa din nasul de reflux, provenită din condensarea aburului, nu se mai reîntoarce cu reflux la vârful coloanei ci se elimină din sistem. În plus, datorită faptului că CO₂ destinat industriei alimentare sau altor industrii trebuie lichefiat și îmbuteliat în vederea transportului, instalația este prevăzută și cu un sistem de uscare pe silicagel, comprimare la 65-75 bar, condensare la 25-28°C și îmbuteliere.

Absorbția CO₂ în soluția de carbonat decurge cu viteză mică din cauza alcalinității scăzute a acesteia și de aceea coloana de absorbție trebuie prevăzută cu un număr mare de talere sau cu un strat mare de umplutură. Uneori se folosesc două coloane succesive dacă se urmărește un grad înaintat de eliminare a CO₂. Din acest motiv procedeul convențional cu soluție de carbonat s-a îmbunătățit prin adăugarea de catalizatori care să mărească viteza de reacție (procedeele Benfield și Catacarb și procedeul Giammarco Vetrocoke).

Neajunsurile cele mai mari ale procedeului se referă la valoarea scăzută a gradului de recuperare a CO₂ și la consumul mare de abur la stripare. De aceea, procedeul a fost înlocuit cu procedeele Benfield și Catacarb și Giammarco Vetrocoke când destinația CO₂ nu este cea alimentară.

Datele de echilibru pentru sistemul CO₂-soluție de carbonat-bicarbonat de sodiu se pot calcula cu relația lui Harte [K7]:

$$p_{CO_2} = \frac{f^2 N^{1.21}}{9.87S(1-f)(185-t)} \quad (2.11)$$

unde p reprezintă presiunea parțială a CO₂, [bar];

- N - normalitatea soluției raportată la sodiu, [-];
- f - fracția din sodiu total (carbonat și bicarbonat) care se găsește în soluție sub formă de bicarbonat, [-];
- $(1 - f)$ - fracția din sodiu total (carbonat și bicarbonat) care se găsește în soluție sub formă de carbonat, [-];
- S - solubilitatea CO₂ în apă la presiunea parțială egală cu cea atmosferică, [moli CO₂/l];
- t - temperatura sistemului, [°C].

Cu ajutorul relației (2.11), valabilă pentru condițiile în care s-au obținut datele experimentale (temperaturi între 20-70°C și concentrația soluției 0.5-2N) și cu o anumită aproximație și pentru valori extrapolate, se pot calcula curbele de echilibru la temperaturile și presiunile din absorbție și desorbție. În cazul folosirii carbonatului de potasiu ca absorbant, calculul curbelor de echilibru se poate face cu o relație similară relației (2.11).

$$p_{CO_2} = \frac{f^2 N^{1.21}}{30S(1-f)(150-t)} \quad (2.12)$$

În acest procedeu, ca și în celelalte procedee, problema dificilă constă nu în stabilirea numărului de talere teoretice, ci a eficacității talerului și a umpluturii, respectiv a numărului de talere reale și a înălțimii stratului de umplutură pentru realizarea unui anumit grad de absorbție, la o anumită rație de absorbant sau a unui anumit grad de absorbție la o anumită rație de abur.

Conform literaturii relația de calcul a coeficientului global de transfer de căldură este:

$$K_G a = 4.82 C n \left(\frac{L^*}{4.88} \right)^{1-n} a_g \quad (2.13)$$

unde a_g reprezintă suprafața specifică a umpluturii, [m²/m³];

C, n - constante, [-].

Valorile constantelor C și n pentru o soluție de carbonat sunt prezentate în Tabelul 2.3.

Tabelul 2.3. Valorile constantelor C și n în funcție de tipul umpluturii

Tipul umpluturii	a_g [m ² /m ³]	C [-]	n [-]
Inele Raschig de 9.5 mm	485	1.53×10^{-4}	0.56
Inele Raschig de 25 mm	190	0.81×10^{-4}	0.36
Șei Berl de 25 mm	259	1.00×10^{-4}	0.42

Rezultatele din literatură indică valori mici ale coeficientului $K_G a$, cuprinse între 0.63-1.90 kmoli/h m³ bar. De aceea se consideră ca este neeconomic folosirea soluției de carbonat la absorbția CO₂ la presiunea atmosferică.

Creșterea temperaturii peste 25°C conduce la o creștere rapidă a coeficientului global. De exemplu, prin creșterea temperaturii de la 25 la 55°C, coeficientul de transfer se dublează.

Studii privind absorbția CO₂ în soluții de carbonat de sodiu și potasiu au fost efectuate și de Roper pe o coloană de laborator cu discuri, descrisă în [K7]. Aceste studii au condus la relația:

$$K_G = 8.77 \cdot 10^{-6} F_N F_C \left(\frac{L_1}{1.49} \right) (t + 9) \quad (2.14)$$

unde K_G reprezintă coeficientul global, [kmoli/h m² bar];

- L_1 – debitul de lichid raportat pe unitatea de circumferință a coloanei, [kg/h m];
- F_N – coeficient dependent de normalitatea totală a soluției raportată la sodiu, [-];
- F_C – coeficient dependent de procentul conversiei la bicarbonat, [-].

Aceleași studii au arătat că în cazul folosirii soluțiilor de carbonat de potasiu, coeficienții de absorbție K_G au valori cu 36% mai mari decât cei corespunzători soluțiilor de carbonat de sodiu.

2.3. Absorbția CO₂ în soluție caldă de carbonat de potasiu

Acest procedeu a fost dezvoltat de U.S. Bureau of Mines ca parte integrantă a programului de fabricare a combustibililor sintetici lichizi din cărbune în vederea reducerii costului purificării gazelor rezultate în proces, ținând seama de unele particularități ale acestora: temperatură mare și presiuni parțiale ale CO₂ ridicate [K7].

Datorită avantajelor pe care le prezintă (investiții scăzute și consum mic de abur la stripare) procedeul s-a extins. Lucrările ulterioare efectuate de U.S. Bureau of Mines pe o instalație pilot au condus la stabilirea consumului de abur la striparea CO₂ când se urmărește un grad avansat de absorbție a acestuia (concentrația CO₂ în gazul purificat 0.02%). Tot în cadrul acestor cercetări s-a studiat eliminarea simultană a CO₂ și H₂S în vederea aplicării procedurii și la alte surse de gaze: gaze naturale, gaze de sinteză de la fabricarea amoniacului și hidrogenului, gaze de rafinare, etc., unde presiunea parțială a CO₂ sau a CO₂ și H₂S este mare fie datorită presiunii mari a gazelor de alimentare fie datorită concentrației mari a CO₂

sau a CO₂ și H₂S. Astfel, s-a stabilit că la purificarea gazelor naturale, concentrația H₂S poate fi redusă până la valorile normale, impuse de transportul lor prin conducte (5.7-22.8 mg/Nm³). Pentru absorbția CO₂ se folosesc soluții de carbonat de sodiu cu temperaturi apropiate de temperatura normală de fierbere a acestora, regenerarea lor făcându-se prin detentă și stripare cu abur.

De regulă, procedeul prezintă avantaje în cazul când se aplică la gaze cu presiuni mai mari de 18 bar și cu concentrații de CO₂ sau (CO₂ + H₂S) cuprinse între 5% și 50%. În aceste condiții conținutul de CO₂ în gazul purificat se poate reduce în mod normal până la 0.5%, realizarea unor purități mai ridicate impunând unele considerații speciale. Mai mult, alegerea unei scheme tehnologice sau a alteia depinde de concentrația CO₂, în gazul de alimentare, de gradul de purificare cerut, de presiunea în absorbție și de consumul de abur în desorbție. Când cheltuielile legate de consumul de abur sunt ridicate, atunci se preferă investiții suplimentare pentru o instalație mai complexă care se justifică prin scăderea consumului de abur la desorbție. În continuare sunt prezentate diferite scheme tehnologice în funcție de cei doi parametri.

În Figura 2.2 este prezentată cea mai simplă schemă tehnologică a procedurii cu soluție caldă de carbonat de potasiu. Ea este asemănătoare schemei clasice cu amină, diferența majoră constă în lipsa răcitorului de absorbant sărac și a schimbătorului de căldură absorbant bogat-absorbant sărac datorită faptului că absorbția se realizează la aceeași temperatură ridicată ca și desorbția. Prin aceasta, cheltuielile de investiții sunt mai mici. Schema poate avea în plus un schimbător de căldură între gazul purificat cald și gazul de alimentare rece în vederea recuperării căldurii și uscării parțiale a gazului purificat (prin răcirea gazului purificat umed o parte din apă condensează). Această schemă se aplică la purificarea gazelor care conțin cel puțin 5% CO₂ sau (CO₂ + H₂S) și poate realiza o scădere a concentrației CO₂ în gazul purificat până la o valoare de circa 1%.

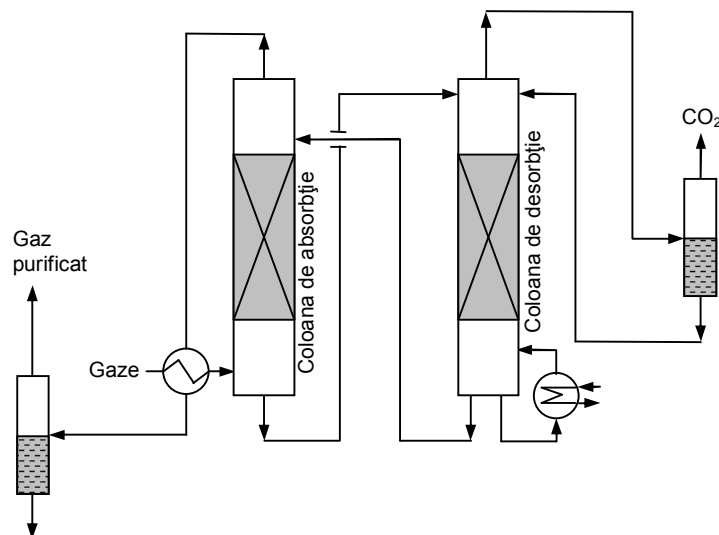


Figura 2.2. Schema tehnologică clasică a procedurii cu soluție caldă de carbonat de potasiu

În Figura 2.3 este prezentată o schemă tehnologică cu flux de absorbant sărac scindat în două. Fluxul mai mic (flux secundar) răcit cu 16-32°C se introduce la vârful coloanei de absorbție. Fluxul principal se introduce sub punctul de intrare a fluxului răcit. În acest caz se poate obține un gaz purificat cu un conținut de CO₂ mai mic decât cel obținut cu schema din Figura 2.2.

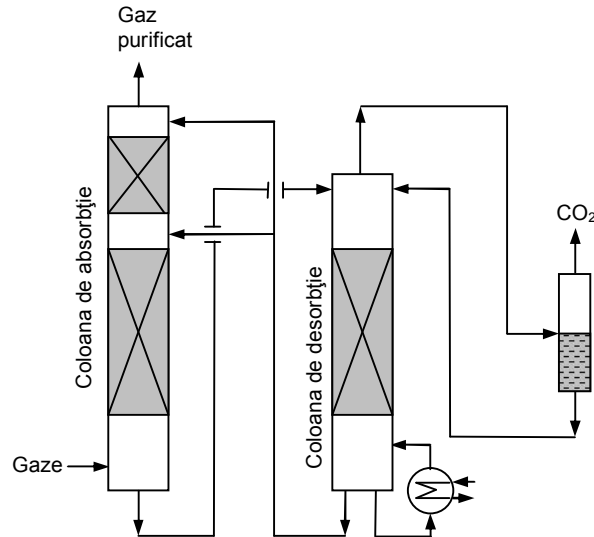


Figura 2.3. Schema tehnologică cu flux de absorbant sărac scindat și răcit parțial

În Figura 2.4 este prezentată o altă schemă tehnologică cu fluxuri laterale de absorbant care împart cele două coloane în câte două zone. Conform acestei scheme partea principală din fluxul de absorbant regenerat parțial este preluată lateral din coloana de desorbție și introdusă ca absorbant deasupra zonei inferioare a coloanei de absorbție. În acest fel partea mai mică din absorbantul parțial regenerat (fluxul secundar) va fi stripat în continuare mult mai bine datorită faptului că în zona inferioară a coloanei de desorbție ea vine în contact cu întreaga cantitate de abur din reținer. Această parte foarte bine stripată se reîntoarce la vârful coloanei, trecând în prealabil printr-un răcitor cu apă. Această schemă tehnologică se poate folosi cu bune rezultate în cazul când se urmărește un grad înaintat de purificare. Tot pentru purificarea avansată a gazelor se poate folosi și schema tehnologică cu fluxuri laterale din Figura 2.5 unde cele două coloane sunt compartimentate în trei zone.

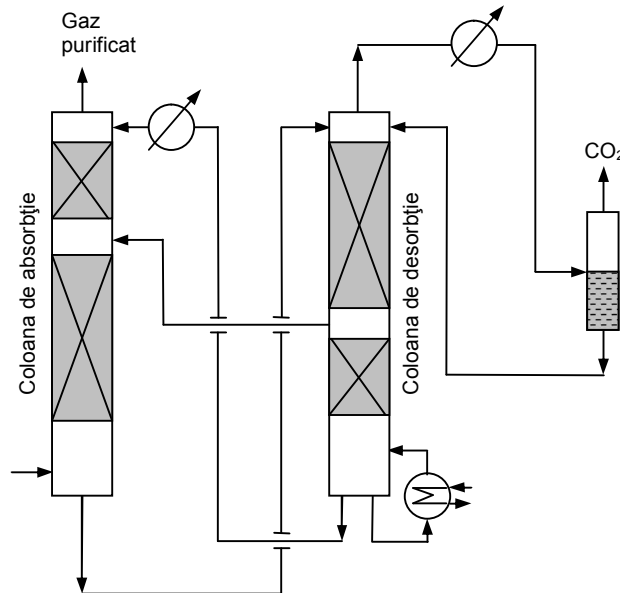


Figura 2.4. Schema tehnologică cu fluxuri laterale și coloane compartimentate în două zone

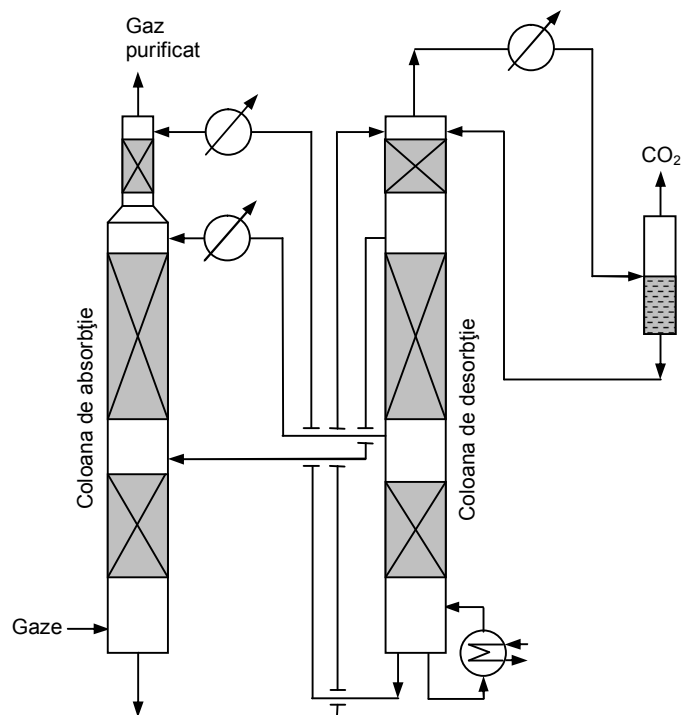


Figura 2.5. Schema tehnologică cu fluxuri laterale și coloane compartimentate în trei zone

Alegerea uneia din cele patru scheme tehnologice depinde în primul rând de concentrația CO₂ admisă în gazul purificat și în măsură mai mică de costul și disponibilitatea aburului de presiune mică.

În general, la purificarea gazelor cu presiuni de minimum 20 bar se poate folosi schema din Figura 2.2 dacă CO₂ din gaze trebuie redus la aproximativ 1.5%. Când se urmărește reducerea CO₂ în domeniul 0.8-1.5% se apelează la schema din Figura 2.3, unde fluxul mai mic se răcește la circa 87°C. Dacă scopul urmărit este reducerea CO₂ sub 0.8% atunci se apelează la schema din Figura 2.4 întrucât numai în acest fel se poate obține o eficiență ridicată a regenerării.

Studiile efectuate pe o instalație pilot precum și unele date din instalațiile industriale au arătat că CO₂ se poate reduce până la 0.05% folosind schema din Figura 2.4. Dacă se urmărește reducerea mai avansată a conținutului de CO₂ (între 0.01 și 0.02), atunci trebuie să se folosească schema din Figura 2.5 cu fluxuri laterale și coloane compartimentate în trei zone, fără însă a depăși consumul de abur peste valoarea cerută.

Dacă se urmărește o reducere suplimentară a consumului de abur la striparea soluției de carbonat față de valorile înregistrate în schemele prezentate mai sus, acest lucru se poate realiza prin folosirea unei coloane de desorbție prevăzută cu două ejectoare cu abur. În acest caz soluția de carbonat se împarte în două fluxuri care sunt trimise în două vase separatoare unde se menține o presiune mai scăzută cu ajutorul celor două ejectoare cu abur. Datorită acestui fapt, la intrarea în cele două vase, soluția va suferi o detentă, vaporii de apă rezultați fiind preluați și comprimați de ejectorul cu abur până la presiunea din coloana de desorbție. Vaporii de apă rezultați prin detenta soluției se introduc în coloană unde vor acționa ca agent de stripare a CO₂ ca și aburul de la refierbător.

Din cele prezentate rezultă că și în cazul procedurii cu soluție caldă de carbonat de potasiu problema importantă este legată tot de consumul de căldură respectiv de abur la striparea soluției. Consumul este funcție în primul rând de conținutul CO₂ în gazul purificat care, la rândul lui depinde de gradul de stripare a soluției și apoi de presiunea parțială a CO₂ în gazul de alimentare și de schema adoptată. Dacă se exprimă acest consum în kg abur/m³ soluție recirculată se poate aprecia că, în cazul procedurii cu soluție caldă de carbonat, consumul variază între 72 și 96 în comparație cu valorile 132-156, în cazul procedurii cu soluție apoasă de MEA.

Ca și în celelalte procedee prezentate, calculul tehnologic al coloanelor de absorbție și desorbție (calculul numărului de talere teoretice) necesită cunoașterea datelor de echilibru pentru sistemul CO₂-soluție de carbonat la diferite temperaturi. Asemenea date au fost prezentate în literatura de specialitate pentru soluții de concentrație 20 și 40% masă carbonat. Datele de solubilitate indică posibilitatea apariției cristalelor de bicarbonat de potasiu sub forma unei paste la concentrații ale soluției de 40% masă carbonat echivalent sau mai mult dacă soluția se răcește într-un punct din circuit. Scăderea concentrației la 30% sau mai puțin elimină acest neajuns care ar conduce la eroziuni mari, mai ales la rotorul pompelor.

Transformarea numărului de echilibre teoretice obținut prin metoda grafică, pe baza curbei de echilibru și a dreptei de operare, în înălțime de umplutură sau în talere practice, sau stabilirea direct a înălțimii stratului de umplutură cere cunoașterea și a altor date de proiectare, cum ar fi: coeficientul global de transfer de masă și eficacitatea talerului.

Printre primele date publicate în acest sens au fost efectuate pe două instalații pilot de către Benson și de Buck și Leitch [K7]. Prima serie de experiențe s-a efectuat pe o instalație pilot cu o coloană de absorbție de diametru 100 mm și o

Înălțimea a stratului de umplutură de aproximativ 2.7 m, umplutura fiind formată din inele Raschig de 13 mm, și o coloană de desorbție cu diametrul de 150 mm și un strat din aceeași umplutură, dar cu o înălțime de numai 1.45 m. A doua serie de experiențe s-a efectuat pe o instalație pilot cu o coloană de absorbție prevăzută cu un strat de umplutură de 9 mm și diametru 150 mm, umplutura fiind constituită din inele Raschig de porțelan de 13 mm și o coloană de desorbție cu diametrul de 200 mm și un strat de 13 m de umplutură din inele Raschig de 13 mm.

La obținerea coeficienților de absorbție în prima serie de experiențe s-au folosit concentrații ale soluției (40% K₂CO₃) și gazului precum și raporturi lichid/gaz cuprinse în domeniile întâlnite în practica industrială. De aceea, valorile lor pot fi apreciate ca deosebit de folositoare în proiectarea instalațiilor industriale. Aceste valori sunt reprezentate grafic de Kohl și Nielsen [K7] cu scopul de a evidenția influența presiunii parțiale a CO₂ asupra coeficientului de transfer.

De asemenea au fost efectuate un număr mai mic de experiențe și pentru absorbția simultană a CO₂ și H₂S. Datele obținute au arătat că eficacitatea absorbției H₂S este numai cu puțin mai mare decât a CO₂ spre deosebire de celelalte procedee de absorbție cu săruri alcaline la temperaturi joase care, în general, sunt mult mai selective față de H₂S.

În afară acestor date obținute pe instalații pilot, în literatură s-au publicat și unele date obținute pe instalații industriale de capacități relativ mici.

Concentrația CO₂ în soluție descrește rapid cu descreșterea presiunii parțiale a CO₂ din gazul de deasupra soluției. Din acest motiv este recomandabil ca regenerarea să se facă la presiune scăzută. Această presiune trebuie să fie cuprinsă între 1.14 și 1.7 bar (presiune absolută) dar cea mai favorabilă este de 1.14 bar.

Deoarece absorbția se face la presiuni ridicate iar desorbția la presiuni scăzute și întrucât concentrația CO₂ în soluție scade rapid cu scăderea presiunii parțiale a acestuia în faza vapori, la trecerea soluției din coloana de absorbție în coloana de desorbție, datorită scăderii presiunii, o parte importantă din CO₂ se desoarbe. În felul acesta, soluția se regenerează parțial înainte de intrarea în coloana de desorbție; se pare că prin această detentă CO₂ desorbit variază între 33 și 66%.

O altă problemă importantă de proiectare și care conferă un oarecare avantaj procedeeului cu soluție caldă de carbonat de potasiu o constituie coroziunea. În condiții obișnuite de operare procesul poate fi considerat necorosiv. Observațiile din instalațiile industriale indică faptul că oțelul carbon este adecvat pentru realizarea întregii instalații. Se recomandă totuși folosirea oțelului inox în locuri unde viteza fluidului este mare și anume: pentru pompele de soluție, pentru robinetii de reglare și pentru țevile refierbătorului deși în acest din urmă caz, oțelul carbon a dat de multe ori rezultate satisfăcătoare.

2.4. Absorbția CO₂ în apă

Eliminarea CO₂ din gaze prin absorbție în apă a fost unul dintre procedeele importante de purificare a gazelor cu presiuni ridicate și concentrații mari de CO₂ [K7, R2]. Acest procedeu a fost înlocuit de-a lungul anilor cu procedee mult mai eficiente prezentate în acest capitol, care folosesc absorbanți cu capacități de absorbție mult mai mari decât cea a apei și mult mai selectivi. Cu toate acestea, în cazurile când presiunea parțială a CO₂ este mai mare de 4 bar (de exemplu, în cazul gazelor de la sinteza amoniacului presiunea în absorbție trebuie să fie minimum 16

bar deoarece concentrația CO₂ în acest gaz este de aproximativ 25% volum) procedeul de absorbție cu apă se mai folosește datorită avantajelor pe care le prezintă:

- simplitatea schemei tehnologice (instalația nu necesită schimbător de căldură, coloană de regenerare, reținerător și condensator de abur);
- procedeul nu necesită consum de căldură;
- folosește un absorbant extrem de ieftin (deci cheltuielile cu pierderile de absorbant sunt neînsemnate);
- solventul nu reacționează cu COS, O₂ sau alte impurități;
- prezintă o selectivitate evidentă față de CO₂.

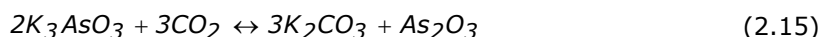
Dintre dezavantajele principale ale procedurii se menționează:

- capacitate de absorbție mică a apei față de CO₂ ceea ce necesită rații mari de absorbant respectiv consumuri energetice de pompare ridicate;
- nu realizează grade mari de eliminare a CO₂;
- CO₂ recuperat nu este de puritate avansată.

2.5. Reținerea CO₂ prin procedeul Giammarco-Vetrocoke

Acest procedeu se bazează pe absorbția CO₂ în soluția de carbonat de potasiu activată cu trioxid de arsen (As₂O₃), glicină (glicocol) și diverse etanolamine [I1, K7]. Soluția activată cu compusul arsenic realizează absorbția CO₂ cu o viteză de 10-20 de ori mai mare decât soluția de carbonat de potasiu neactivată și de 2-3 ori mai mare decât soluția caldă de carbonat de potasiu. Prin aceasta se reduce necesarul suprafeței de transfer de masă respectiv înălțimea coloanei de absorbție. Mai mult, prezența trioxidului de arsen conferă soluției absorbante o protecție anticorrosivă chiar și la temperaturi ridicate. Dezavantajul procedurii constă în faptul că trioxidul de arsen este foarte otrăvitor și, ca atare, soluția trebuie mânăuită cu multă atenție; în nici un caz procedeul nu poate fi folosit la recuperarea CO₂ cu destinație alimentară.

La baza procedurii stau următoarele reacții reversibile:



Conform procedurii originale, absorbția CO₂ are loc la temperaturi medii de 50-100°C și presiuni cuprinse între presiunea atmosferică și 75 bar sau mai mari.

În ceea ce privește regenerarea soluției, aceasta poate avea loc prin una din următoarele două metode:

- prin stripare cu abur direct sau cu reținerător la presiunea atmosferică sau mai mare;
- prin stripare cu aer la temperatura atmosferică.

Datorită faptului că trioxidul de arsen este foarte otrăvitor, au fost introduși și alți compuși de activare a reacției de absorbție cum ar fi glicocolul, despre care se spune că ar fi la fel de bun ca și trioxidul de arsen dar sigur este unul dintre cei mai buni compuși de activare neotrăvitori.

Recentele scheme tehnologice ale procedului Giammarco-Vetrocoke pare să reducă necesarul de căldură. Conform acestora, absorbția se realizează la temperaturi obișnuite fără a mai apela la clasicul schimbător de căldură. Astfel, gazele se introduc la baza coloanei de absorbție la o temperatură de 220-250°C. În felul acesta căldura adusă de gaze este preluată aproape integral de absorbantul bogat prin schimb de căldură direct cu gazul fără a reduce absorbția chimică la vârful coloanei. Absorbantul bogat astfel încălzit este supus detentei, aburul rezultat prin detentă fiind utilizat ca abur direct de stripare la coloana de regenerare a soluției. În consecință, conform acestei scheme tehnologice, căldura conținută de gaze poate fi preluată de absorbantul bogat și folosită la regenerarea acestuia prin schimb de căldură direct, renunțându-se la clasicul schimbător de căldură și la refierbător.

2.6. Reținerea CO₂ prin procedeul Catacarb

Procedeul Catacarb se bazează pe absorbția CO₂ într-o soluție de carbonat de potasiu la care se mai adaugă o substanță chimică (activator) care să mărească viteza reacției chimice dintre CO₂ și carbonat în procesul de absorbție și desorbție [I1, K7].

Acest procedeu a fost aplicat pentru prima dată la eliminarea CO₂ din gazele rezultate la fabricarea amoniacului când, pentru mărirea capacității unei instalații de fabricare a amoniacului de la 180 la 200 t/zi, s-a pus și problema mării capacității de purificare a instalației de eliminare a CO₂ din gaze care inițial se făcea prin procedeul Benfield. Pentru rezolvarea acestei probleme, s-a propus adăugarea unor activatori în soluția de carbonat de potasiu, sugestie care a fost acceptată. În felul acesta a apărut procedeul Catacarb.

Acest procedeu folosește ca absorbant o soluție de carbonat de potasiu la care se mai adaugă ca activator un boratamină, netoxic pentru catalizatorul de nichel precum și un inhibitor de coroziune. Schema tehnologică a procedului poate fi clasică sau cu fluxuri lateral ca și în cazul procedului cu soluție caldă de carbonat de potasiu. Dacă, din proces, gazele care se supun purificării rezultă cu temperatură mare, ele pot fi folosite ca agent termic la refierbătorul coloanei de regenerare a soluției.

2.7. Impedimente legate de soluțiile apoase de etanolamine

2.7.1. Degradarea soluțiilor de etanolamine

În procesul de absorbție-desorbție, în afara pierderilor de amină prin vaporizare și antrenare mecanică, au loc pierderi considerabile și datorită degradărilor termice și chimice ale aminelor din soluție, care conduc la deteriorarea calității acestora [B4, D4, S5, S7, S11]. Problema are o importanță deosebită în păstrarea capacității de absorbție a soluției și în funcționarea normală a instalației.

Deteriorarea soluțiilor de amină are loc prin:

- Reacții de degradare oxidativă a aminelor;
- Reacții de formare a tiosulfaților;

- Reacții de descompunere termică;
- Alte reacții chimice.

În condițiile din instalație, aminele se pot degrada oxidativ datorită oxigenului prezent în gazele de ardere precum și a oxigenului solubilizat în soluția de amină din rezervorul de depozitare sau a oxigenului care ar putea pătrunde în instalație în cazul în care coloana de desorbție sau de purificare a soluției ar lucra sub vid [B4, S7, S11].

Dintre aminele folosite, monoetanolamina pare să fie cea mai sensibilă la reacțiile de degradare oxidativă. Sunt posibile mai multe mecanisme de reacție. De exemplu, oxigenul reacționează cu hidrogenul sulfurat din gaz, formând sulf liber care reacționează cu amina, rezultând ditiocarbamați, tiouree și alți compuși care prin simpla încălzire nu mai pot fi transformați din nou în amină.

În prezență de CO_2 și O_2 etanolamina se poate oxida la glicerină și acizii glicolic și oxalic. Acești acizi organici atacă suprafața oțelului din coloane și schimbătoare de căldură, formând săruri de fier din care, cele mai multe, suferă reacții de schimb cu CO_2 formând carbonat de fier care precipită din soluție și în felul acesta acidul organic rămas liber va reacționa cu noi cantități de fier. Alte mecanisme care explică cauza coroziunii sunt descrise în [K7]. Deși între aceste mecanisme și cel descris mai sus nu există concordanță deplină, se poate afirma cu certitudine că acesta constituie totuși una din cauzele coroziunii și că oxigenul este elementul dăunător soluției de amină.

Legat de acest proces complex de degradare oxidativă a aminelor au fost identificați și acizii formic și acetic. Aceștia se pot combina cu aminele formând săruri care, de asemenea, nu se pot regenera prin încălzire. Prezența acizilor în sistem deranjează deoarece sunt capabili să neutralizeze într-un timp relativ scurt întreaga cantitate de soluție. Purificarea soluției de sărurile acestor acizi se poate realiza prin distilare în prezență de sodă calcinată.

Datorită faptului că toate aceste reacții de degradare oxidativă au loc numai datorită prezenței oxigenului în sistem, soluția evidentă pentru evitarea lor, respectiv a pierderilor de amină o constituie eliminarea acestuia deși folosirea unor inhibitori de oxidare este binevenită.

După părerea multor autori există totuși unele cauze reale care ar putea să explice descompunerea termică a aminelor. Dintre acestea se menționează supraîncălzirile locale din rețea care au loc de obicei în acele rețea care folosesc ca mediu de încălzire ulei cu temperaturi ridicate. Dacă totuși în coloana de desorbție se folosesc temperaturi peste cele normale pot apărea produși de descompunere termică ce contribuie și ei la coroziunea din instalație. Eliminarea acestor produși se face prin distilare. Dintre aminele folosite, monoetanolamina pare să fie cea mai stabilă, iar dietanolamina cea mai puțin stabilă termic.

Pierderile de amină cele mai obișnuite au loc datorită reacțiilor nereversibile ale mono- și dietanolaminei cu CO_2 . Aceste reacții sunt lente în condiții normale dar în condițiile de regenerare pot decurge cu viteze care nu mai pot fi neglijate. Datele de literatură arată că în condiții similare, viteza de conversie a DEA în prezență de CO_2 este net superioară vitezei de conversie a MEA. De exemplu, când o soluție apoasă de amină de concentrație 20% masă, saturată cu CO_2 , este încălzită timp de 8 ore la 126°C și 17.5 bar, 22% din DEA se convertește, în timp ce din MEA nu se convertește practic nimic.

Când gazele conțin sulfură de carbonil (COS) și disulfură de carbon (CS_2) acestea pot reacționa cu aminele primare și secundare mărind pierderile. Reacția dintre COS și MEA este analoagă cu cea dintre CO_2 și MEA dar în condițiile de temperatură din instalație decurge cu o viteză considerabil mai mare. Sulfura de

carbonil reacționează de asemenea și cu DEA dar viteza de reacție este mult mai mică. În plus, produsul de reacție rezultat în acest caz se descompune în condițiile din desorbție permițând astfel recuperarea aminei. Din acest motiv la tratarea gazelor care conțin COS se preferă DEA în loc de MEA. Ceilalți compuși din gaze cum ar fi: mercaptanii, disulfurile și tiofenii nu reacționează cu aminele și deci nu influențează pierderile.

În sistemul închis de circulație a soluției de amină, aceasta se impurifică în timp cu substanțe solide și semi-solide insolubile. Aceste substanțe trebuie eliminate din soluție deoarece prin acțiunea lor abrazivă produc eroziuni în instalație. În plus, fenomenul de eroziune intensifică coroziunea în sistem deoarece prin acțiunea abrazivă a substanțelor amintite, pelicula protectoare de sulfură de fier formată pe suprafața echipamentului de oțel este îndepărtată și atunci noi suprafețe de oțel sunt expuse la reacția de formare a sulfurii de fier. De asemenea, aceste substanțe au tendința de a se acumula și depune pe la coturi și în alte zone provocând înfundarea coloanelor, ventilelor, conductelor și schimbătoarelor de căldură. Eliminarea lor se face prin filtrarea soluției de amină după regenerare, fluxul de soluție filtrată reprezentând 5-10% din debitul de soluție recirculată.

În practică se folosesc diverse tipuri de filtre, iar deșeurile de bumbac, sacii de pânză, împletiturile de bumbac, etc., constituie elemente de filtrare folosite cu succes la îndepărtarea particulelor solide cu dimensiuni mai mari. Uneori, în cazul folosirii unor împletituri speciale se pot îndepărta particule cu dimensiuni mai mici de 100 microni. Avantajul de filtrare constă în faptul că sunt relativ ieftine și realizează filtrarea cu pierderi mici de presiune.

Folosirea diatomitului la filtrare, deși necesită cheltuieli mai mari, permite îndepărtarea particulelor foarte mici. De aceea, în unele cazuri, diatomitul se combină cu unul din elementele de filtrare menționate mai înainte, formând două filtre în serie.

Pentru soluțiile care manifestă tendință de spumare se folosesc straturi formate din cărbune activ sau mangal care permit îndepărtarea urmelor din agenții activi de suprafață.

Din cele prezentate rezultă că pentru o funcționare în bune condiții a instalației, soluțiile de amine trebuie purificate.

Soluțiile de MEA se purifică cu ajutorul instalației de distilare semicontinuă. Această instalație compusă în principal dintr-un rețierbător cu spațiu de vapori este alimentată cu cca. 2% din soluția regenerată care părăsește coloana de desorbție. Rețierbătorul, încălzit cu abur, funcționează la presiunea atmosferică sau în vid și elimină pe la partea superioară soluția de amină în fază vapori care se reîntoarce la coloana de desorbție iar pe la partea inferioară impuritățile solubile și insolubile (particulele fine care nu au putut fi îndepărtate la filtrarea soluției de amină), nevolatile, cum sunt: sărurile stabile termic, produșii de descompunere termică și degradare oxidativă, etc.

În procesul de distilare se adaugă carbonat sau hidroxid de sodiu pentru eliberarea aminei din sărurile acizilor formați în proces și reducerea coroziunii. Introducerea carbonatului se poate face direct în rețierbător înainte de încărcarea acestuia cu soluție de amină. După încărcare, rețierbătorul este alimentat continuu cu soluție de amină (1-3% din debitul de soluție recirculată) iar în același timp se încălzește treptat cu abur în așa fel încât vaporii care părăsesc rețierbătorul (și care sunt la echilibru cu lichidul din care au provenit) să aibă același conținut de amină ca și fluxul ce alimentează rețierbătorul. Aceasta înseamnă că în cazul în care alimentarea rețierbătorului conține 15% MEA vaporii trebuie să conțină tot 15%, dar

atunci lichidul din re fierbător, fiind la echilibru cu vaporii, va avea o concentrație mult mai mare (din curba de echilibru lichid-vapori rezultă valoarea de 62% MEA).

În timpul distilării, temperatura din re fierbător crește datorită acumulării substanțelor solide și a celor cu temperatură de fierbere ridicată. Alimentarea re fierbătorului se oprește când temperatura atinge valoarea de 140°C, dar distilarea continuă încă un scurt timp, concomitent cu adăugarea de apă în re fierbător sau direct abur, pentru îndepărtarea monoetanolaminei din soluția reziduală. După aceea re fierbătorul se curăță, se încarcă și ciclul se repetă.

Acest sistem se aplică cu bune rezultate în cazul purificării soluției de MEA care are o presiune de vapori suficient de mare ca să permită distilarea la temperaturi la care amina nu se descompune termic.

Pentru amine superioare (DEA și TEA) se folosesc alte metode de purificare. De exemplu, una dintre metode constă în prelucrarea unui mic flux lateral din soluția de amină, adăugarea de hidroxid de sodiu sau de potasiu și îndepărtarea prin distilare a unei părți însemnate din apă. După aceasta, soluția de amină concentrată care mai conține 5-10% masă apă se amesteca cu alcool (de preferință alcool izopropilic) care produce precipitarea sărurilor de sodiu sau potasiu ale acizilor organici și anorganici. După separarea prin filtrare a acestor săruri, alcoolul se îndepărtează prin fracționare iar amina se reîntoarce în fluxul principal al soluției de amină regenerată. Experiența arată că purificarea soluției de amină joacă un rol deosebit de important în reducerea coroziunii, spumării și depunerilor.

2.7.2. Spumarea

Soluțiile apoase de amină au tendință de spumare mai ales în instalațiile noi [K7, K8]. Spumarea are loc în primul rând în coloana de absorbție, dar ea poate fi întâlnită și în coloana de desorbție. Această problemă este deosebit de importantă în exploatarea instalațiilor deoarece spumarea produce antrenarea mecanică a soluțiilor de amină în gazul purificat, măbind în felul acesta pierderile de amină, respectiv cheltuielile de exploatare. Una din cauzele spumării o constituie particule fine din gaze.

Altă cauză a spumării o constituie prezența acizilor organici rezultați prin degradarea oxidativă a aminelor și care formează cu aceasta compuși capabili să producă spumarea. Ungerea pompelor și ventilelor poate constitui de asemenea o sursă de agenți de suprafață capabili de spumare.

Spumarea poate fi controlată prin îndepărtarea agenților de suprafață cu ajutorul fierberii sau prin adăugarea unor inhibitori de spumare sau agenți antispummanți. Dintre aceștia se menționează alcoolii cu masă moleculară mare (alcoolul oleic), siliconii și alchilfenoxietanolii (octilfenoxietanolul). Dietilenglicolul și trietilenglicolul acționează ca agenți antispummanți foarte activi.

Dintre inhibitorii cunoscuți, cei mai folosiți sunt siliconii. Ei se folosesc în stare pură sau sub forma unei emulsii cu apă; în general se prepară siliconi puri. Deoarece în instalație pierderile de inhibitori sunt continue, el trebuie adăugat în mod continuu, în așa fel încât concentrația lui în soluție apoasă de amină să fie de ordinul 10-15 ppm maxim 0.6% volum pentru a putea evita satisfăcător spumarea.

2.7.3. Coroziunea

Coroziunea reprezintă una dintre cele mai serioase probleme ale instalațiilor de eliminare CO₂ din gaze cu soluții apoase de amine.

În literatură sunt prezentate numeroase teorii privind mecanismul coroziunii. După Kohl și Nielsen [K7] principalii agenți de coroziune sunt tocmai gazele acide CO₂ și H₂S. Această ipoteză se bazează pe observația că odată cu creșterea concentrației gazelor acide în soluție, crește și coroziunea. Acest lucru este confirmat și de faptul că în cazul folosirii unor soluții apoase mult mai concentrate în amină, coroziunea crește, deoarece, în acest caz, soluția absoarbe pe unitatea de volum o cantitate mai mare de gaz acid.

Hidrogenul sulfurat atacă oțelul ca un acid cu formarea sulfurii de fier insolubile. Acest compus formează un strat protector pe suprafața metalului care însă nu aderă compact și de aceea nu oferă o protecție satisfăcătoare la coroziune.

Reacția cu CO₂ produce și ea coroziuni serioase, mai ales la temperaturi ridicate și în prezență de apă. Se pare că mecanismul coroziunii în acest caz constă în reacția dintre fier și acidul carbonic cu formarea de bicarbonat de fier; prin încălzirea soluției, CO₂ este pus în libertate iar fierul precipită sub formă de carbonat. Nu există corelații satisfăcătoare care să exprime în cazul amestecului de CO₂ și H₂S influența raportului H₂S/CO₂ asupra coroziunii. Unele date experimentale arată că viteza de coroziune crește de 10 ori când raportul H₂S/CO₂ crește de 6 ori. Este clar însă că amestecurile de H₂S și CO₂ dizolvate în apă sunt mult mai corosive decât binarele H₂S-apă și CO₂-apă.

Alți agenți de coroziune sau promotori ai coroziunii CO₂ și H₂S sunt produșii de degradare oxidativă, aminele propriu-zise nefiind corosive pentru oțelul carbon chiar la temperaturi relativ ridicate. Mai mult, ele acționează ca un inhibitor de coroziune în prezență de CO₂. O comparație între vitezele de coroziune ale oțelului carbon în apă, în soluție de MEA și în soluție de amestec glicol-amină în prezență de CO₂ se poate observa față de apă, MEA joacă rolul unui inhibitor de coroziune.

Sistemele care folosesc ca absorbant soluții apoase de DEA, TEA și metildietanolamina (MDEA) prezintă mai puține probleme de coroziune decât cele care folosesc MEA. Explicația poate fi căutată în faptul că aceste amine au un caracter bazic mai slab și deci pot fi stripate mult mai bine.

În instalațiile de eliminare a CO₂ din gaze cu soluții de amină, coroziunile predomină în acele locuri unde concentrația CO₂ în soluție și temperatura sunt mai mari. Din acest motiv, în cazul soluțiilor de MEA, partea din instalație cea mai susceptibilă la coroziune pare să fie reținerul, iar în cazul soluțiilor de DEA, TEA și MDEA a căror stripare este mult mai ușoară (deci concentrația gazului acid în soluția din reținer mult mai mică), coloana de desorbție va fi partea cea mai susceptibilă la coroziune; în cazul soluțiilor de glicol și amină, îndepărtarea practic totală a CO₂ se realizează în coloana de desorbție (deci, soluția regenerată nu va mai conține practic CO₂), concentrația cea mai mare de CO₂ la temperatura cea mai ridicată va fi în soluția de absorbant bogat în CO₂ din schimbător de căldură. De aceea, coroziunea cea mai mare va fi în zona cu temperaturi mai mari a acestui schimbător, pe partea absorbantului bogat în CO₂. Astfel, în cazul acestui sistem, zonele de coroziune din instalație vor fi mai mici în comparație cu cele din cadrul sistemelor de amine. Practica industrială arată totuși că, atât în cazul folosirii soluției de MEA cât și a soluțiilor de glicol și amină, tuburile schimbătorului de căldură sunt corodate pe ambele părți și, după cum era de așteptat, mai mult în zona cu temperaturi mai mari. Este adevărat că la soluția de glicol-amină, coroziuni mai puternice s-au găsit pe partea absorbantului bogat. În ceea ce privește mantaua

schimbătorului de căldură, fabricată din oțel carbon, aceasta este foarte puțin susceptibilă la coroziune.

Coloana de desorbție este supusă și ea coroziunii, gradul de coroziune fiind în funcție de temperatura din coloană, de tipul absorbantului și de concentrația CO₂ în soluție. Folosirea unei temperaturi mari în desorbție conduce la creșterea coroziunii. Coroziunea are loc atât în spațiul vaporilor cât și în cel al lichidului și este mult mai pronunțată în zona de sub punctul de alimentare, mai ales spre baza coloanei.

În ceea ce privește răcitorul soluției de amină și condensatorul vaporilor de la vârful coloanei de desorbție, acestea practic ar trebui să nu se corodeze. Totuși, în practică, se constată coroziuni și la răcitor pe partea soluției, mai ales în cazul când aceasta nu este stripată bine.

Pentru reducerea coroziunii în instalații, literatura recomandă folosirea simultană a mai multor procedee:

- folosirea unor temperaturi mai mici în refierbător și în coloana de desorbție;
- folosirea unui abur cu temperatură nu prea mare;
- folosirea unor presiuni mai mici în coloana de desorbție pentru reducerea temperaturii din coloană;
- împiedicarea pătrunderii oxigenului în sistem prin menținerea unei perne de gaz inert în rezervoarele cu soluție de amină care ar putea fi expuse la aerul atmosferic purificarea soluției de amină prin distilare și filtrare;
- folosirea în zonele cele mai susceptibile la coroziune a unor oțeluri aliate;
- folosirea unor inhibitori de coroziune.

2.7.4. Alegerea materialelor de construcție

Datorită susceptibilității diferite la coroziune a diverselor zone și aparate din instalație, materialele folosite vor fi diferite. Conform literaturii, în soluțiile apoase de MEA, DEA, TEA sau MDEA, tipurile de oțel austenitic 8TiNiCr180 și 8TiMoNiCr175 sunt foarte rezistente la coroziune chiar dacă în sistem există fie CO₂, fie CO₂ și H₂S. De asemenea, în anumite condiții se mai poate folosi monelul, unele aliaje de aluminiu și alama marină.

În general părțile din instalație cele mai expuse la coroziune sunt: baza coloanei de absorbție, ventilul de reglare automată a nivelului de lichid din baza acesteia, vasul de degazare, schimbătorul de căldură, coloana de desorbție și refierbătorul. Ținând seama de datele prezentate în [K7, K8] se pot face următoarele recomandări:

- Coloana de desorbție se poate construi din oțel carbon, dar baza coloanei se va placa cu unul din oțelurile aliate prezentate mai sus;
- Pentru ventilul automat de reglare a nivelului se va folosi de asemenea unul din cele două oțeluri austenitice. Datorită coroziunilor severe în cazul folosirii de MEA se recomandă folosirea a două ventile automate în paralel, unul fiind de rezervă;
- Pentru vasul de degazare folosit în cazul purificării gazelor cu presiuni ridicate, sunt valabile specificațiile de la coloana de absorbție;
- Pentru țevile schimbătorului de căldură se poate folosi unul din cele două oțeluri aliate sau un aliaj de aluminiu;
- Coloana de stripare se poate construi din oțel carbon placată cu oțel aliat. Din același oțel aliat se vor construi și talerele. Unele coloane de

desorbție se construiesc din oțel carbon protejat anticorosiv, iar în locul talerelor se folosesc inele ceramice, în cazul soluțiilor de glicol-amine se protejează zona din apropierea punctului de alimentare prin acoperiri cu aliaje de aluminiu; din același se construiesc și talere respective. Zona de protecție cuprinde 6 talere în jos și 2 talere în sus față de punctul de alimentare;

- Tuburile re fierbătorului se construiesc numai din cele două oțeluri aliate;
- Pentru condensatorul de la vârful coloanei de desorbție se poate folosi oțelul carbon chiar în acele condiții severe când vaporii conțin 50% CO₂ și H₂S și 50% apă. Pentru eliminarea sau reducerea coroziunii la acest condensator sau la răcitorul cu apă a soluției de amină se pot folosi și țevi bimetalice care conțin la exterior alamă marină și la interior oțel carbon.

2.7.5. Pierderile de amină și consumul de chimicale

Pierderile de amină pot avea loc în trei moduri:

- prin antrenare mecanică;
- prin vaporizare datorită gazului purificat care acționează ca un gaz inert;
- prin degradări termice și oxidative.

Pierderea de amină prin antrenări mecanice are loc în partea superioară a coloanelor de absorbție și desorbție și se datorează în principal fenomenului de spumare. Această pierdere trebuie evitată nu numai datorită faptului că mărește consumul de chimicale, ci și a faptului că lichidul antrenat poate contamina gazul purificat. Diminuarea acestor pierderi se poate realiza prin separarea hidrocarburilor grele din gazul bogat ce alimentează coloana de absorbție sau prin operarea acesteia la o temperatură cu 5-10°C mai mare decât temperatura de intrare a gazului bogat, prin introducerea de agenți antispumanți și prin montarea la vârful celor două coloane a unor demistere.

Pierderile de amină prin vaporizare au loc la vârful coloanei de absorbție. Cu toate că la temperatura de lucru din coloană presiunile de vapori ale aminelor sunt extrem de mici, totuși datorită debitului mare de gaz purificat care acționează ca un gaz inert, pierderile pot fi relativ mari. Aceste pierderi, în afara faptului că măresc consumul de chimicale, pot crea probleme serioase în cazul în care gazul purificat s-ar folosi într-un proces catalitic deoarece ar otrăvi catalizatorul.

În cazul în care s-ar folosi ca absorbant amină pură, calculul pierderilor de amină la vârful coloanei se poate face cu relația antrenării cu gaz inert a unui sistem monocomponent:

$$O_A = \frac{G_0}{\frac{p}{p_v} - 1} \quad (2.18)$$

unde O_A reprezintă pierderile de amină pură, [kmol/h];

- G_0 – debitul de gaz purificat, [kmol/h];
- p – presiunea din coloană, [bar];
- p_v – presiunea de vapori a aminei la temperatura de la vârful coloanei, [bar].

Se observă că pierderile sunt cu atât mai mici, cu cât amina are presiunea de vapori mai mică. Din acest punct de vedere folosirea aminelor superioare (DEA, TEA, MDEA) ar constitui un mijloc de reducere a pierderilor de amină. Dezavantajul constă în faptul că aminele superioare sunt mai puțin eficiente din punct de vedere al absorbției.

Întrucât în practică nu se folosesc ca absorbant amine pure ci soluții apoase, calculul pierderilor se poate face riguros cu relațiile lui Robu [R3] referitoare la antrenarea cu gaz inert a unui amestec binar neideal (apă-etanolamină). Un calcul rapid se poate face cu aceeași relație, cu condiția folosirii presiunii parțiale a aminei din soluție în locul presiunii de vapori a aminei pure.

Pentru diminuarea acestor pierderi se folosesc diferite metode. Cea mai simplă metodă constă în spălarea gazului purificat cu apă folosind un număr suplimentar de talere (2-4) la vârful coloanei de absorbție. Datele din literatură [K7, K8] arată că fiecare taler poate realiza un grad de absorbție a aminei de 40-50%, ceea ce înseamnă că trei sau patru talere sunt suficiente pentru scopul urmărit.

Altă metodă constă în folosirea de glicol ca absorbant pentru amină în locul apei. Acesta se introduce tot în vârful coloanei, dar este preluat lateral după 3-5 talere și supus distilării într-un mic rețierbător în vederea separării aminei, vaporii rezultați din rețierbător alimentând coloana de desorbție; în felul aceste amina reintră în circuitul soluției absorbante.

Vaporii de amină pot fi îndepărtați din gazul purificat și prin contact intim cu mici cantități de CO_2 . S-a constata că în cazul asigurării unui timp de contact suficient, MEA reacționează cu CO_2 în faza vapori formând sarea acidului hidroxietilcarbamic care datorită faptului că are o presiune de vapori foarte mică, condensează și poate fi reținută de un demister. În felul acesta se poate îndepărta din gaze cca. 50% din amină.

O altă metodă de reducere a pierderilor prin vaporizare constă în adsorbția vaporilor de amină într-un strat de bauxită, recuperarea aminei făcându-se prin încălzire și stripare cu abur.

3. ABSORBERE CU UMLUTURĂ

3.1. Definiție

Utilajele pentru absorbție – absorberele – sunt aparate staționare sau mașini cu piese mobile care trebuie să realizeze următoarele condiții necesare sau avantajoase absorbției [F1, K8]:

- conducerea adecvată a gazului și lichidului, de preferință în contracurent;
- suprafața cât mai mare de contact între gaz și lichid prin divizarea fluidelor în filme subțiri, stropi sau bule;
- viteze mari ale fluidelor, uneori prin recircularea lor;
- evitarea înfundării prin eventuale depuneri de precipitate, cruste, etc.;
- evacuarea căldurii rezultate din solvirea gazului sau a reacției dintre gaz și lichid;
- pierdere mică de presiune la curgerea fluidelor;
- consum mic de energie;
- eficacitate mare, cost redus, funcționare sigură;
- materiale rezistente la agresivitatea chimică a fluidelor.

În mod convențional, absorberele se împart în următoarele categorii:

- absorbere de suprafață;
- absorbere prin barbotare;
- absorbere cu umplutură;
- absorbere prin pulverizarea absorbantului (scubere);
- absorbere diverse.

Coloanele de absorbție cu umplutură au avantaje importante: suprafață mare de absorbție pe unitate de volum, construcție simplă și deci posibilitatea de a le executa din materiale rezistente la coroziune, pierdere mică de presiune. Ele sunt indicate pentru lucrări experimentale, pentru coloane industriale cu diametrul <1.8 m, pentru tratarea fluidelor corosive [F1, K8].

Ca umplutură se pot folosi: (i) materiale neregulate (coacs, cuarț), (ii) corpuri de umplere cu forme geometrice bine definite (inele Raschig, șei Berl, și altele), turnate neregulat sau așezate regulat în coloană, și (iii) grătare. Noile tipuri de umplutură de mare eficacitate permit separarea în coloane cu umplutură, a componentelor care au temperaturi de fierbere apropiate.

Coloanele cu umplutură se utilizează în deosebi la prelucrarea substanțelor organice sau de mare viscozitate. De asemenea se utilizează când sunt necesare căderi mici de presiune sau când cantitatea de lichid din coloană este mică.

Interioarele aparatelor tip coloană depind de natura procesului fizico-chimic precum și de parametrii procesului. La aceste coloane transferul de substanță are loc pe suprafața peliculei de lichid care se formează pe corpurile de umplere, între lichid și vapori (sau gaze).

Datorită principiului lor de funcționare, coloanele cu umplutură nu sunt adecvate pentru a lucra cu gaze sau cu lichide impurificate. Impuritățile pot astupa spațiile libere ale umpluturii, ceea ce ar determina creșterea accentuată a rezistenței hidraulice a umpluturii (la trecerea gazelor sau vaporilor) și micșorarea în timp a eficacității coloanei. În coloanele cu diametru interior mai mare de 800 mm, pe anumite porțiuni, vaporii (gazele) și lichidul pot circula pe secțiuni diferite, fără a

veni în contact ceea ce micșorează eficacitatea separării. Deoarece la peretele coloanei volumul de goluri este maxim (rezistența hidraulică este minimă), lichidul are tendința să se deplaseze în lungul peretelui; zona centrală fiind în acest caz insuficient udată. Pentru a obține o eficacitate a separării este necesară organizarea rațională a regimului de lucru al coloanei. În acest scop, pe înălțimea umpluturii sau între două straturi distincte de umplutura se prevăd dispozitive de redistribuire, care aduc lichidul spre zona centrală a umpluturii. Umplutura se pune pe toată înălțimea coloanei sau înălțimea se fracționează. Ultima variantă este valabilă atunci când, datorită greutateii umpluturii, dimensiunile grătarelor ar urma să fie prea mari, sau când construcția ar fi puternic solicitată în zona de asamblare a grătarului cu corpul coloanei.

La coloanele de absorbție, în partea inferioară a coloanei, se prevăd dispozitive pentru uniformizarea circulației gazelor. Sub grătarul stratului de umplură, în zona de evacuare a lichidului, se prevede de exemplu, un taler cu clopote, care are rolul de a egaliza viteza gazelor pe secțiunea coloanei.

3.2. Funcționarea absorberului cu umplură

Construcția interiorului coloanei urmărește mărirea la maximum a suprafeței de contact dintre faze; rolul principal îl are umplutura [F1, K8]. Lichidul și vaporii circulă în general în contracurent. Transferul de substanță are loc între lichid și vapori pe suprafața peliculei de lichid formată pe corpurile de umplere.

Intensitatea contactului gaz-lichid, într-un caz dat (coloana și corpuri de umplere de dimensiuni date), depinde de dinamica lichidului și gazelor (vaporilor) prin coloană. Funcționarea optimă a coloanei are loc la rapoarte determinate între cantitatea de lichid care udă umplutura și viteza sau cantitatea vaporilor (gazelor) care circulă în contracurent. Stropirea umpluturii cu o cantitate insuficientă de lichid, duce la micșorarea suprafeței de contact între gaze și lichide. Stropirea în exces duce la înecarea coloanei deoarece spațiile dintre corpurile umpluturii se umplu cu lichid și partea respectivă a umpluturii nu mai participă la procesul de transfer de substanță. Funcționarea coloanei se înrăutățește în ambele cazuri.

Viteza vaporilor sau a gazului prin coloană trebuie să fie inferioară vitezei critice w_{cr} , care corespunde începutului saturării umpluturii. Aceasta are loc în momentul egalării forței de frecare dintre vapori (gaz) și lichid cu forța de gravitație care acționează asupra lichidului, ceea ce duce la încetarea curgerii lichidului. La viteze ale vaporilor (gazului) mai mari ca bulele de vapori (gaz) pătrund în lichid (care ocupă întregul volum liber) și produce emulsionarea acestuia. Starea procesului care marchează trecerea la regimul de emulsionare, corespunde punctului de înecare după care lichidul va fi antrenat afară din coloană.

3.3. Distribuția lichidului

Buna funcționare a coloanelor cu umplură depinde mult de repartizarea uniformă a lichidului în stratul de umplură. Neirigarea întregii umpluturi, formarea de canale în interiorul umpluturii, curgerea preferențială a lichidului în apropierea pereților sunt cauzele principale care micșorează producția coloanei ca urmare a distribuției defectuoase de lichid absorbant [F1, K8, R2].

Debitul minim de lichid pentru ca întreaga suprafață a umpluturii să fie umezită, este de 80 l/h pe metru de periferie. Noțiunea de periferie corespunde aici la aria totală, în metri pătrați, a umpluturii, pe metrul de înălțime. Scăderea debitului sub această valoare minimă, coboară repede eficacitatea umpluturii.

Umplutura turnată (neșezată regulat) are un efect de uniformizare a distribuției lichidului în secțiunea coloanei. Valoarea acestui efect depinde de forma umpluturii și de materialul din care este confecționată.

Efectul dezavantajos al peretelui descrește cu cât raportul d/D dintre diametrul nominal al corpurilor de umplere și diametrul coloanei este mai mic.

3.4. Corpuri de umplere

Corpurile de umplere trebuie să aibă suprafață specifică mare (favorabilă transferului de substanță), volum liber mare (deci rezistentă mică la trecerea gazului sau vaporilor), densitate în vrac mică (influențează solicitarea grătarelor și peretelui coloanei), rezistență la coroziune față de substanțele prelucrate, rezistență la compresiune și cost redus [K8].

Corpurile de umplere pot avea formă regulată sau neregulată. Pentru umplutură se poate utiliza orice material rezistent (chimic și mecanic) în condițiile regimului de lucru din coloană. Așezarea corpurilor de umplere în coloană se poate face ordonat (după o anumită rețea) sau în vrac (neregulat).

Materialele de construcție pentru corpurile de umplere sunt: materiale ceramice, materiale plastice (policlorură de vinil, polistiren, poliamidă, polietilenă, polipropilenă), lemn, metale (oțel, aluminiu, cupru, monel), cuarț, cocs, fibre de sticlă, grafit, etc.

Corpurile de umplere metalice se obțin prin turnare sub presiune sau din platbandă, iar cele din material plastic se realizează prin injectare.

Pentru a obține caracteristici mecanice mai bune se utilizează ca material de umplutură fibre de sticlă în loc de talc sau fibre de azbest. Utilizarea unor stabilizatori adecvați permit menținerea în timp a caracteristicilor fizice și chimice a corpurilor de umplere din materiale plastice.

Umplutura metalică se utilizează în cazurile în care este posibilă depunerea de sediment și este necesară curățirea repetată a coloanei (în special în cazul umpluturilor cu configurație complicată), în coloane care funcționează sub vacuum. Umplutura ceramică (inclusiv cea din porțelan), se utilizează când nu este necesară curățirea frecventă a coloanei, precum și la prelucrarea mediilor corosive. Grafitul, sticla și materialele plastice pot fi utilizate la prelucrarea produselor agresive. Materialele plastice pot fi utilizate la temperaturi.

La alegerea dimensiunilor corpurilor de umplere se va avea în vedere ca raportul dintre diametrul interior al coloanei și diametrul a celui mai mare corp de umplere $D/d \geq 10$.

Alegerea tipului de umplutură depinde de parametrii de proces specifici coloanelor cu umplutură, care rezultă din principiul de funcționare al coloanei.

Eficacitatea unei umpluturi depinde în primul rând de forma și dimensiunile corpurilor de umplere. Eficacitatea unui anumit tip de corpuri de umplere depinde de dimensiunile acestora dar și de natura materialului din care sunt executate. Natura materialului influențează eficiența procesului, prin capacitatea de udare a acestuia de către lichidul prelucrat în coloană. La scăderea debitului lichidului sub o anumită limită, eficacitatea coloanei scade brusc, datorită scăderii sub limita admisă a udării

suprafeței acesteia. Debitul de lichid nu trebuie să depășească valoarea corespunzătoare înecării umpluturii cu lichid. Densitatea maximă de stropire cu lichid se ia $(4-6)q_{min}$, unde orientativ densitatea de stropire minimă se ia $10-12 \text{ m}^3/\text{m}^2 \text{ h}$ (depinde de dimensiunile corpurilor de umplere).

Dacă în condițiile procesului nu se poate asigura o densitate a stropirii cel puțin egală cu q_{min} , se va lucra cu recirculație de lichid. Dacă din motive tehnologice nu se poate aplica recircularea lichidului, iar acesta este în cantitate insuficientă pentru a asigura densitatea de stropire minimă, se recurge la utilizarea unei coloane cu barbotare.

3.5. Caracteristicile corpurilor de umplere

Principalele caracteristici geometrice ale corpurilor de umplere de care se face uz la calculul coloanelor cu umplură sunt [F1, F3, K8, P1, T3]:

Diametrul nominal, d , este diametrul exterior al corpurilor de umplere.

Diametrul mediu de volum, d_v , este diametrul sferei care are același volum cu corpul de umplere:

$$d_v = \left(\frac{6V_u}{\pi} \right)^{1/3} \quad (3.1)$$

unde V_u este volumul unui corp de umplere.

Diametrul mediu de suprafață al umpluturii, d_s , este diametrul sferei care are aceeași suprafață cu corpul de umplere:

$$d_s = \left(\frac{A}{\pi} \right)^{1/2} \quad (3.2)$$

unde A este suprafața unui corp de umplere.

Diametrul echivalent al corpului de umplere, d_p , reprezintă diametrul unei sfere care are același volum și aceeași suprafață ca și corpul de umplere:

$$d_p = \frac{6V_u}{A} \quad (3.3)$$

Diametrul echivalent al golurilor, d_{ech} , este diametrul unui cilindru având același raport dintre volum și suprafața peretelui. În unitatea de volum a unui strat de umplură, volumul liber, ε , și suprafața pereților corpurilor de umplere este egală cu suprafața specifică, a , deci diametrul echivalent al golurilor este:

$$d_{ech} = \frac{4\varepsilon}{a} = \frac{2}{3} \frac{d_p \varepsilon}{(1-\varepsilon)} \quad (3.4)$$

Sfericitatea sau factorul de formă, φ , este raportul dintre aria sferei de volum egal cu volumul corpului de umplere și aria corpului respectiv. Ea se calculează cu relația:

$$\varphi = \left(36\pi \frac{V_u^2}{A^3} \right)^{1/3} \quad (3.5)$$

Porozitatea sau fracția de goluri, ε , reprezintă raportul dintre volumul de goluri al umpluturii și volumul total ocupat de umplutură:

$$\varepsilon = \frac{V - V_n}{V} \quad (3.6)$$

unde V_n reprezintă volumul tuturor corpurilor de umplere din volumul total de umplutură V .

Fracția de goluri se poate calcula dacă se cunoaște numărul corpurilor de umplere în unitatea de volum și volumul unui corp de umplere. Pentru o cunoaștere mai exactă a fracției de goluri, aceasta trebuie determinată experimental. Fracția de goluri a unei umpluturi depinde de modul cum este turnată aceasta în coloană.

Suprafața specifică a umpluturii, a , este definită ca suprafața corpurilor de umplere din unitatea de volum a umpluturii, care se poate calcula cu:

$$a = \frac{6(1 - \varepsilon)}{\varphi d_v} = \frac{6(1 - \varepsilon)}{\varphi^{3/2} d_s} = \frac{6(1 - \varepsilon)}{d_p} \quad (3.7)$$

4. TRANSFERUL DE CĂLDURĂ ȘI CURGERE ÎN SCHIMBĂTORUL DE CĂLDURĂ CU FASCICUL DE ȚEVI ȘI MANTA

4.1. Schimbătoare de căldură cu fascicul de țevi și manta

Schimbătoare de căldură tubulare sunt cele mai reprezentative și cele mai răspândite aparate termice din diferite ramuri ale industriei [D6, K1, K3, M7, T1]. Ele sunt pe larg utilizate în: industria chimică și cea a petrolului; industria metalurgică și materialelor de construcții; în sectorul energetic la instalațiile de cazane, de turbine cu gaze, etc.

Un schimbător de căldură tubular, de tip fascicul de țevi și manta, este construit (i) dintr-un fascicul de țevi fixate la capete în găurile a două placi tubulare, care sunt (ii) cuprinse într-o manta cilindrică, (iii) la extremitățile fasciculului tubular sunt două camere acoperite cu capace, și (iv) patru racorduri, dintre care două la capetele mantalei și câte unul la fiecare capac. Astfel, în interiorul schimbătorului se formează două spații separate, spațiul tubular (din interiorul țevilor) și extratubular (dintre țevi și manta).

4.2. Cercetări privind intensificarea transferului de căldură

4.2.1. Îmbunătățirea schimbului de căldură la curgerea fluidului prin țevi

Intensificarea schimbului de căldură între un curent de fluid și peretele țevii se poate realiza prin dispunerea unor generatoare de turbulență în calea fluidului: inele, discuri, sârme înfășurate, elici, benzi elicoidale, benzi răsucite și altele [W4]. Cercetările au arătat că prin turbionarea curentului coeficientul de convecție termică α se mărește, care devine mai accentuată la viteze mari ale fluidului.

Promvonge [P5] a studiat experimental efectul generatoarelor de turbulență de tip sârmă, cu secțiune transversală pătrată (2 și 3 mm), formând o spirală în interiorul tubului, cu pași diferiți (15 și 20 mm), asupra transferului de căldură și coeficientului de frecare. Fluidul de lucru a fost aer, cu temperatura de intrare 25°C. Domeniul de curgere analizat a cuprins numere Re de la 5000 până la 25000. Rezultatele au arătat, că odată cu creșterea lui Re și micșorarea pasului, se observă o creștere a lui Nu de aproape 2.6 și 2.4 ori față de tubul simplu, pentru secțiunea 2 mm și, respectiv, 3 mm. Coeficientul de frecare f a crescut considerabil de până la 6.8 ori pentru sârma cu secțiunea 2 mm și 7.6 ori pentru 3 mm față de tub fără inserții. De asemenea, o comparație dintre secțiunea pătrată a sârmei și circulară, asupra lui Nu , a fost prezentată. Astfel, pentru aceleași condiții de lucru, Nu este mai mare, cu 10-20% funcție de Re , pentru secțiunea pătrată față de cea circulară. În [W4] se prezintă date referitor la performanțele termohidraulice a unei țevi în

interiorul căreia este montat un fir de sârmă, ce formează o spiră elicoidală pe toată lungimea țevii. Apa și amestecul apă/propilen glicol au fost considerate ca fluide de lucru ($Pr = 2.8-150$). Testele au cuprins domeniul de curgere $80 < Re < 90000$. S-a observat că, pentru numere Reynolds mari, schimbul de căldură crește de 4 ori în comparație cu tub simplu, iar pierderile de presiune de până la 9 ori. Pentru $Re < 500$, are loc o creștere mică a lui Nu , devenind mai accentuată în domeniul $500 < Re < 2000$.

Eiamsa-ard și Promvonge [E1] au folosit benzi elicoidale pentru a îmbunătăți convecția termică într-un schimbător de căldură țeavă în țeavă. Agentul termic cald (aer) circulă prin țeava interioară, iar cel rece (apa), în contracurent, prin țeava exterioară. Benzi elicoidale, de tip continuu, cu și fără ax, au fost montate în țeava interioară. De asemenea, a fost analizată opțiunea folosirii benzilor elicoidale, de tip discontinuu, fără ax, așezate uniform la distanțe egale una față de alta. În urma experimentelor, s-a observat că numărul Nusselt mediu a crescut cu 160% și 150% pentru banda elicoidală continuu cu ax și, respectiv, fără ax față de tub simplu. Pierderile de presiune au crescut, semnificativ, de până la 10 ori. Pentru banda elicoidală continuu fără ax, Δp sunt cu aproape 30% mai mici în comparație cu cele cu ax. În cazul benzilor elicoidale uniform distanțate (i) Nu crește cu aproximativ 145% pentru benzi cu spațiul dintre ele de 100 mm (cel mai mic) și 129% cu spațiul dintre benzi de 400 mm (cel mai mare), iar (ii) pierderile de presiune s-au micșorat cu 45-62% față de pierderile înregistrate pentru banda elicoidală, de tip continuu, fără ax. Pe baza rezultatelor experimentale, autorii recomandă utilizarea benzilor elicoidale uniform distanțate, cu raportul minim dintre spațiul liber și lungimea benzii, în special pentru numere Reynolds mici.

În prezent una din cele mai folosite tehnici pentru mărirea coeficientului de convecție, de partea fluidului care circulă prin spațiul tubular a schimbătoarelor de căldură cu fascicul de țevi și manta, este cel de turbionarea curentului cu ajutorul benzilor metalice răsucite. Acestea sunt simple, ieftine și eficiente.

Banda răsucită, introdusă în canalul de curgere al fluidului, poate fi strânsă față de perete (fără joc), aderentă (joc maxim de 0.25 mm) sau cu joc (joc mai mare de 0.25 mm). Geometria benzii răsucite se caracterizează prin factorul geometric y , pasul relativ, care reprezintă raportul dintre lungimea benzii pentru o răsucire de 180° , w , și lățimea benzii d_b .

Abu-Khader [A1] a cercetat, din punct de vedere teoretic, performanțele termice la curgerea fluidului prin tuburi cu benzi răsucite în regim laminar, tranzitoriu și turbulent. Efectul caracteristicilor geometrice principale, a pasului relativ y și a diametrului țevii d_i , asupra schimbului de căldură și pierderilor de presiune sunt analizate. Relațiile de calcul folosite pentru determinarea lui Nusselt și coeficientului de frecare sunt cele definite de Manglik și Bergles [M1-M3]. Rezultatele teoretice arată că micșorarea pasului relativ al benzii y duce la creșterea coeficientului de convecție termică a , dar și a pierderilor de presiune Δp . Pentru țevi cu diametre mari, se recomandă folosirea benzilor răsucite cu y redus, pentru mărirea convecției termice. Autorul subliniază faptul că utilizarea benzilor răsucite este mai eficientă în regim laminar de curgere decât în regim tranzitoriu sau turbulent.

Una dintre primele lucrări publicate referitor la studiu numeric de intensificare a procesului de schimb de căldură în tuburi cu benzi răsucite este lucrarea lui Date și Singham [D3]. În această lucrare, autorii s-au concentrat, în principal, asupra transferului de căldură în regim laminar de curgere a unui fluid vâscos. Flux de căldură constant pe suprafață tubului a fost aplicat. Grosimea benzii a fost considerată egală cu zero. Apoi, Date [D1] a propus o analiză numerică a

fluxurilor ce se formează la curgerea fluidului în tuburi cu benzi răsucite în regim complet dezvoltat. Du Plessis [P3] a cercetat numeric transferul de căldură și caracteristicile fluidului în domeniul laminar de curgere printr-un tub cu bandă răsucită și temperatura constantă a peretelui. Mai târziu, în lucrarea [P4] a fost evaluat numeric, coeficientul de frecare la curgerea fluidului în regim laminar. Date și Saha [D2] au folosit ecuațiile Navier-Stokes și de curgere a energiei în forma lor tridimensională pentru a vedea evoluția curgerii și a transferului de căldură într-un tub echipat pe întreaga lungime cu elemente de bandă răsucită uniform distanțate. Sarma et al. [S4] au modificat expresia lui van Driest, pentru difuzivitate turbulentă, cu scopul de a determina coeficientul de convecție, coeficientul de frecare și, performanțele termice și fluidodinamice ale benzilor răsucite de diferite mărimi. Rezultatele au arătat că analiza numerică propusă de ei este în acord rezonabil cu relațiile de calcul bine cunoscute în literatura de specialitate. Zimparov [Z5, Z6] a efectuat o simulare relativ simplă pentru determinarea coeficientului de frecare și a coeficientului de convecție termică la curgerea turbulentă a fluidului prin țevi ondulate cu benzi răsucite. Iar efectul curentului secundar format la curgerea fluidului prin țevi cu benzi răsucite asupra câmpului de temperatură și a mecanismului de intensificare a transferului de căldură a fost numeric cercetat de către Kazuhisa et al. [K2].

Recent, în lucrarea [R1] a fost utilizat modelul de turbulență *k-e RNG* pentru a calcula coeficientul de frecare, numărul *Nu* și a determina performanțele termohidraulice a benzii răsucite modificată geometric (perforată, crestată și zimțată), și au comparat rezultatele cu banda răsucită clasică. Diferența dintre rezultatele experimentale și cele numerice nu a depășit 0.6% pentru temperatură și 6.5% pentru presiune, în domeniul $2950 < Re < 11800$. De asemenea, autorii au descris și fenomenul de curgere a fluidului (viteza tangențială și intensitatea turbulentă) prin banda răsucită.

Chiu și Jang [C11] au analizat numeric și experimental caracteristicile termice și hidrodinamice a unui tub cu diferite tipuri de generatori de turbulență (bandă netedă dreaptă cu și fără orificii, și benzi răsucite). Aerul a fost utilizat ca fluidul de lucru. Viteza medie a aerului la intrare în țevă a variat între 3 și 18 m/s ceea ce corespunde domeniului $Re = 7000-42000$, și temperatura constantă de 150°C. Rezultatele au arătat că benzile răsucite sunt mai eficiente din punct de vedere termic. Astfel, coeficientul de convecție determinat a fost cu până la 61% mai mare decât a tubului simplu și cu aproape 20% mai mare decât a tubului cu benzi drepte. Căderea de presiune pentru cazurile cu benzi răsucite a fost de 150-370% mai mare față de tubul simplu. Iar în lucrarea [E3] a fost aplicat modelul periodic de curgere pentru a analiza influența lățimii benzii asupra transferului de căldură, coeficientului de frecare și eficienței termice. Studiul, de asemenea, a cuprins și o comparație între modelele numerice de turbulență *k-e (standard și RNG)* și *k-w (standard și SST)*. Rezultatele au arătat că numărul *Nu* și coeficientul de frecare *f* calculate numeric cu modelul turbulent *k-w SST* sunt cel mai apropiate de rezultatele experimentale obținute de Manglik și Bergles [M1, M2].

4.2.2. Schimbul de căldură în spațiul extratubular

Montarea șicanelor, tip segment, în spațiul extratubular duce la mărirea vitezei fluidului, și deci a coeficientului de convecție dar și a pierderilor de presiune. Distanța dintre șicane l_s este unul dintre parametrii geometrici principali de care se

ține cont la proiectare. Creșterea coeficientului de convecție α se realizează cu micșorarea distanței dintre șicane. Aceasta, însă, va duce și la creșterea pierderilor de presiune. Influența acestui parametru l_s asupra modului de curgere, transferului de căldură și pierderilor de presiune a fost studiată experimental și teoretic de mai mulți cercetători. Li și Kotkke [L4] au analizat efectul spațiului dintre șicane asupra procesului termic. Ei au găsit că mărirea lui l_s duce la creșterea coeficientului global de schimb de căldură, iar coeficientul de convecție local este puțin afectat de această mărime. Taborek [T1] a sugerat că spațiul dintre două șicane adiacente poate varia între minimum 20% din diametrul mantalei D_i și maximum egal cu diametrul mantalei. Distanța optimă dintre șicane este 0.3-0.6 D_i după cum recomandă Mukherjee [M7]. Saffar-Avval și Damangir [S1] au studiat efectul spațiului dintre șicane asupra suprafeței necesare de schimb de căldură și a pierderilor de presiune, concluzionând că l_s are un rol decisiv asupra puterii de pompare, și are un efect vizibil asupra suprafeței de schimb de căldură. Autorii au dezvoltat și o metodă de calcul pentru determinarea spațiului optim dintre șicane pentru schimbătoarele de căldură tip E. În lucrarea lui Eryener [E4] se investighează raportul optim dintre spațiul dintre șicane și diametrul mantalei l_s/D_i prin aplicarea metodei de analiză termoeconomică.

Scurgerea fluidului prin spațiul format între țevi și găurile din șicane, și între șicană și mantaua schimbătorului pot influența procesul termic. Efectul scurgerilor asupra transferului de căldură în schimbătoarele de căldură cu fascicul de țevi și manta a fost cercetat de Roetzel și Lee [R4, R5]. În prima lucrare [R4] rezultatele experimentele au arătat că debitul de fluid ce se scurge prin spațiul format dintre șicană și manta are un efect negativ asupra coeficientului global de schimb de căldură. În cea de-a doua lucrare [R5], Roetzel și Lee cercetează influența acestor scurgeri asupra performanțelor termice la curgerea fluidului prin spațiul extratubular cu l_s variat. O serie de experimente conduse de Li și Kottke [L3] au avut ca scop determinarea pierderilor de presiune și a coeficientului de convecție local în regim complet dezvoltat. Ei au observat că curentul de fluid, format dintre șicana și manta, micșorează semnificativ coeficientul de convecție mediu, până la 21% pentru $Re = 500$, și 17% pentru $Re = 16000$, iar Δp scade cu aproximativ 74% și 69% pentru numere Reynolds 500 și, respectiv, 16000. Scurgerea fluidului prin spațiul format între țevi și găurile din șicane are efect pozitiv asupra îmbunătățirii transferului de căldură și reducerii pierderilor de presiune.

Performanțele termice a unui schimbător de căldură cu fascicul de țevi și manta, cu șicane tip segment, pot fi îmbunătățite prin blocarea spațiului format dintre șicană și peretele mantalei [W3]. Rezultatele experimentale au arătat că coeficientul de convecție a fluidului din spațiul extratubular crește cu 18.2-25.5%, coeficientul global cu 15.6-19.7% și eficiența cu ~14% aplicând astfel de procedură tehnică.

Pentru a îmbunătăți caracteristicile termice și hidrodinamice a unui schimbător de căldură cu fascicul de țevi și manta, Lutcha și Nemcansky [L7] au propus un nou tip de șicane, denumit șicane elicoidale. Experimentele conduse de ei au arătat că curgerea elicoidală a fluidului peste un fascicul de țevi a îmbunătățit performanțele termice a schimbătorului de căldură și a redus pierderile de presiune. Peng et al. [P2] au prezentat rezultate experimentale pentru două aparate cu șicane elicoidale continuu. Ele indică că utilizarea șicanelor elicoidale continuu duce la creșterea coeficientului de convecție cu aproape 10% peste cele convenționale, șicane segment, pentru aceleași pierderi de presiune în spațiul extratubular. Efectul unghiului șicanei elicoidale asupra curgerii fluidului și transferului de căldură a fost studiat numeric în [L2]. Șapte unghiuri, cuprinse între 15° și 50°, a șicanelor

elicoidale continuu au fost investigate. Regimul analizat a cuprins domeniul de curgere a fluidului $500 < Re < 3000$. Rezultatele au arătat că Nu crește cu mărirea unghiului până la $< 30^\circ$ și scade când unghiul crește peste $> 30^\circ$. Creșterea lui Re duce la creșterea pierderilor de presiune pentru toate cazurile analizate. Pentru numere Reynolds mari, creșterea lui Δp devine mai accentuată, în special pentru șicanele elicoidale de 15° și 20° . De asemenea, rezultatele numerice indică faptul că șicanele elicoidale pot reduce, sau chiar elimina, formarea zonelor „moarte” la curgerea fluidului în spațiul extratubular a schimbătorului de căldură.

Căderea de presiune și transferul de căldură în schimbătoare cu șicane elicoidale discontinuu au fost cercetate experimental și numeric de Lei et al. [L1]. Rezultatele au arătat că, pentru același debit, raportul $a/\Delta p$ este mai mare pentru schimbătorul cu șicane elicoidale, cu unghiul de 20° față de axa țevilor, în comparație cu schimbătorul cu șicane tip segment. Această creștere a fost de 35-65%.

Zhang et al. [Z2-Z4] au analizat experimental și numeric procesul de schimb de căldură și de curgere ale fluidului prin spațiul extratubular cu șicane tip elicoidal discontinuu, legătura dintre două șicane făcându-se la mijloc. Studiul experimental a cuprins șicane elicoidale cu unghiuri de 20° , 30° , 40° și 50° față de axa țevilor și domeniul de curgere a fluidului cuprins între $60 < Re < 800$. Rezultatele au arătat că unghiul optim pentru șicane elicoidale, cu conexiune mijloc, este de 40° . Utilizând modelul de turbulență *k-e renormalizat (RNG)*, Zhang et al. [Z2] au studiat procesul de curgere, câmpul de temperatură și presiune prin spațiul extratubular, întreg, cu șicane elicoidale cu unghiul optim de 40° . Iar în lucrarea [Z3] a fost utilizat modelul numeric simplificat de periodicitate.

Wang et al. [W1] propun un schimbător de căldură cu mai multe treceri prin spațiul extratubular, cu șicane elicoidale continuu, cu unghiul de 25° , în pasul exterior și șicane segment în pasul interior. Performanțele termice a schimbătorului propus au fost comparate cu cele ale schimbătorului cu șicane tip segment. Modelul de turbulență *k-e realizabil (R)* a fost aplicat. Rezultatele numerice au arătat că pentru aceeași pierdere de presiune totală prin spațiul extratubular Δp , schimbul de căldură Q este cu $\sim 5.6\%$ mai intens pentru schimbătorul propus față de aparatul cu șicane segment și o singură trecere prin spațiul extratubular.

Avantajele schimbătoarelor de căldură cu șicane tip elicoidal, în comparație cu șicane tip segment, sunt: micșorarea pierderilor de presiune la curgerea fluidului prin spațiul extratubular, eliminarea formării zonelor „moarte” și reducerea formării stratului de depuneri dintre șicane, și diminuarea vibrațiilor țevilor din fascicul. Totuși, fabricarea șicanelor elicoidale și montarea lor în spațiul extratubular este destul de complicată. Pentru debite foarte mici ale fluidului care circulă printre țevile fasciculului, cum este cazul analizat în această lucrare, pierderile de presiune vor fi și ele foarte mici, și prin spațiul extratubular cu șicane tip segment. După cum se va vedea din rezultatele lucrării, diametrul racordurilor de intrare și ieșire influențează decisiv pierderile de presiune totale. În același timp, trebuie de menționat că riscul formării zonelor „moarte” și a depunerilor, în spațiul extratubular cu șicane tip segment, rămâne foarte mare.

4.3. Calculul schimbului de căldură și al pierderilor de presiune

4.3.1. Caracteristici geometrice principale

Pentru spațiul tubular cu n_t număr de țevi, de lungimea l_t , cu diametrul interior și exterior d_i și, respectiv, d_e , aria totală de curgere a gazelor și suprafața de schimb de căldură vor fi [K1, K10, S6]:

$$A_t = \frac{\pi d_i^2}{4} n_t \quad (4.1)$$

$$A = \pi d_e l_t n_t \quad (4.2)$$

În Figura 4.1 este arătată dispunerea țevilor, 60° și 30° față de direcția curgerii fluidului (în hexagon), în secțiunea transversală a schimbătorului [G1, G2, K1, K10, S6].

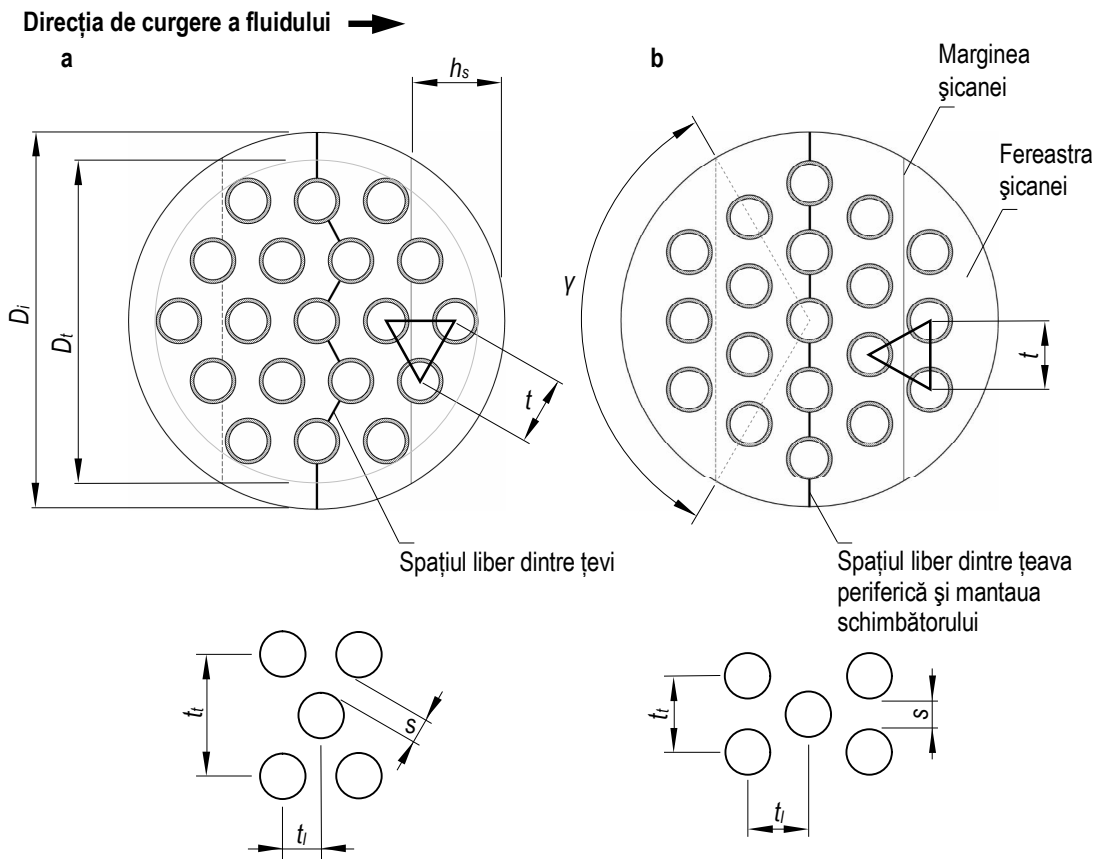


Figura 4.1. Dispunerea țevilor în mantaua schimbătorului de căldură față de direcția fluidului: (a) 60° ; (b) 30°

Secțiunea minimă transversală, între două șicane adiacente, măsurată în dreptul sau aproximativ în dreptul diametrului D_i se calculează conform relației [G1, G2]:

$$A_s = l_s L_s \quad (4.3)$$

în care l_s este distanța dintre șicane, [m];

L_s – suma distanțelor dintre țevi și dintre țevile periferice și mantaua schimbătorului, măsurată în dreptul sau aproximativ în dreptul diametrului D_i , [m].

Linia îngroșată din Figura 4.1 reprezintă distanță cea mai mică la curgerea fluidului în dreptul (b) sau aproximativ în dreptul (a) diametrului D_i .

$$L_s = 2s' + \sum s \quad (4.4)$$

unde s' este spațiul liber dintre țeava periferică și mantaua schimbătorului, [m];

s – spațiul liber dintre țevi, [m].

Unghiul γ , din Figura 4.1, se calculează cu formula:

$$\gamma = 2 \cos^{-1} \left(1 - \frac{2h_s}{D_s} \right) \quad (4.5)$$

Aria secțiunii de scurgere a fluidului prin spațiul dintre țevi și găurile din șicane A_{ts} și aria secțiunii de scurgere a fluidului prin spațiul dintre șicană și manta A_{sm} este:

$$A_{ts} = \frac{\pi}{4} (d_s^2 - d_e^2) (n_t - n_f) \quad (4.6)$$

și

$$A_{sm} = \frac{\pi}{4} (D_i^2 - D_s^2) \frac{360 - \gamma}{360} \quad (4.7)$$

Pasul relativ transversal a , longitudinal b și diagonal c sunt funcție de pasul transversal t_t și longitudinal t_l dintre țevi, și diametrul exterior d_e .

$$a = \frac{t_t}{d_e}, \quad b = \frac{t_l}{d_e}, \quad c = \sqrt{0.25a^2 + b^2} \quad (4.8)$$

$$\text{dacă } b \geq 0.5\sqrt{2a+1}: \quad s = (a-1)d_e \quad (4.9)$$

$$\text{dacă } b < 0.5\sqrt{2a+1}: \quad s = (c-1)d_e \quad (4.10)$$

4.3.2. Transfer de căldură

Transferul de căldură prin spațiul tubular

Gazele de ardere circulă prin spațiul tubular al schimbătorului de căldură. Pentru calculul coeficientului de convecție termică a , literatura de specialitate propune mai multe relații de calcul.

În alegerea relației corecte este esențială cunoașterea regimului de curgere a fluidului, caracterizat prin numărul Reynolds. Se cunoaște că cu creșterea temperaturii, gazele se dilatăză termic, adică are loc o expansiune a gazelor, și deci se mărește viteza de curgere.

Criteriul Reynolds, modificat, pentru determinarea regimului de curgere a gazelor prin țevi, se va calcula cu relația [K1, K10, S6]:

$$Re = \theta \cdot \frac{4G_m}{n n_t d_i \mu} \quad (4.11)$$

unde θ este factorul de temperatură $= (273 + t_{med})/273$, [-];

- G_m - debit masic al gazelor de ardere, [kg/s];
- d_i - diametrul interior al țevii, [m];
- n_t - numărul total de țevi, [-];
- t_{med} - temperatura medie a gazelor de ardere, [°C];
- μ - viscozitatea dinamică a gazelor la t_{med} , [kg/m s].

Dacă $Re < 2100$, atunci regimul de curgere a gazelor prin țevi este laminar. Relația lui Hausen este recomandată pentru determinarea lui Nu :

$$Nu = 3.66 + \frac{0.19Gz^{0.8}}{1 + 0.117Gz^{0.467}} \left(\frac{\mu}{\mu_p} \right)^{0.14} \quad (4.12)$$

unde Gz este numărul lui Graetz $= RePr (d_i/l_t)$, [-];

- μ_p - viscozitatea dinamică a gazelor la t_p , [kg/m s].

Formulă (4.12) este aplicată atât gazelor cât și lichidelor în intervalul numărului Graetz, $0.1 < Gz < 10000$.

Pentru curgerea laminară, se mai poate utiliza și relația lui Sieder și Tate [K10, S6] care este, de asemenea, aplicabilă atât gazelor cât și lichidelor:

$$Nu = 1.86Gz^{1/3} \left(\frac{\mu}{\mu_p} \right)^{0.14} \quad (4.13)$$

relația (4.13) este valabilă când temperatura peretelui este constantă și în următoarele intervale:

$$0.48 \leq Pr \leq 16700 \quad 0.0044 \leq \left(\frac{\mu}{\mu_p} \right) \leq 9.75 \quad Gz^{1/3} \left(\frac{\mu}{\mu_p} \right)^{0.14} \geq 2$$

În cazul regimului tranzitoriu, $2100 < Re < 10^4$, tot Hausen a scris formula [K6, K10, S6]:

$$Nu = 0.116 \left(Re^{2/3} - 125 \right) Pr^{1/3} \left[1 + \left(\frac{d_i}{l_t} \right)^{2/3} \right] \left(\frac{\mu}{\mu_p} \right)^{0.14} \quad (4.14)$$

Când curgerea este turbulentă, $Re > 10^4$, se pot utiliza mai multe relații de calcul în funcție de proprietățile fluidului și caracteristicile geometrice ale țevii prin care curge fluidul. McAdams a sugerat să fie utilizată relația lui Dittus și Boelter:

$$Nu = 0.023 Re^{0.8} Pr^n \quad (4.15)$$

în care exponentul n are valorile $n = 0.4$ pentru încălzire și $n = 0.3$ pentru răcire.

Pentru un regim turbulent de curgere prin țevi se mai poate utiliza și relația dată de Sieder și Tate [K10, S6] care au înlocuit efectul de încălzire sau răcire cu exponentul pentru Pr de $1/3$ și au adăugat factorul de corecție de vâscozitate. Pentru țevi relativ scurte ($10 < l_t/d_i < 60$), relației i se adaugă de obicei un factor de corecție $[1 + (d_i/l_t)^{2/3}]$. Relația are forma:

$$Nu = 0.027 Re^{0.8} Pr^{1/3} \left[1 + \left(\frac{d_i}{l_t} \right)^{2/3} \right] \left(\frac{\mu}{\mu_p} \right)^{0.14} \quad (4.16)$$

valabilă pentru fluide $0.5 < Pr < 100$.

O relație alternativă pentru calculul lui Nusselt, pentru regimul tranzitoriu și turbulent, a fost propusă de Gnielinski [G3]:

$$Nu = \frac{(f/8)(Re - 1000)Pr}{1 + 12.7\sqrt{f/8}(Pr^{2/3} - 1)} \left[1 + \left(\frac{d_i}{l_t} \right)^{2/3} \right] \quad (4.17)$$

în care f este coeficientul de frecare calculat cu relația (4.31), [-].

relația (4.17) este validă pentru $2100 < Re < 10^6$ și $0.6 < Pr < 2000$.

Coeficientul de convecție mediu ce circulă prin spațiul tubular se determină din următoarea formulă:

$$\alpha = \frac{\lambda Nu}{d_i} \quad (4.18)$$

în care λ este conductivitatea termică a fluidului, [W/m K].

Transferul de căldură prin spațiul extratubular cu șicane

Transfer termic la curgerea fluidului prin spațiul extratubular șicanat este foarte complex care depinde de mai multe variabile, de exemplu: proprietățile fluidului, condițiile de lucru, caracteristicile geometrice ale spațiului extratubular și altele.

Metoda de calcul prezentată de Gaddis și Gnielinski [G1] pentru determinarea coeficientului de convecție de partea fluidului ce circulă prin spațiul extratubular, a fost extrasă și dezvoltată din metoda de calcul a transferului de căldură la curgerea ideală a fluidului perpendicular peste un fascicul de țevi. Procedura de calcul deferă de la cazul ideal prin faptul că șicanele odată montate în spațiul dintre țevi și manta duc la schimbarea profilului de mișcare a fluidului, parțial transversal și parțial longitudinal față de fasciculul de țevi. Apoi, formarea inevitabilă, în cazul tehnic real, a spațiilor libere între șicană și manta, și între țevile și orificiile din șicană produc scăpări de fluid ce afectează direct procesul de schimb de căldură. Această metodă ține cont de aceste condiții prin introducerea unor factori de corecție.

Numărul Nu mediu de partea fluidului din spațiul extratubular se determină din [G1]:

$$Nu = \left[0.3 + \left(0.44 Re Pr^{2/3} + \frac{0.001369 Re^{1.6} Pr^2}{\left[1 + 2.443 Re^{-0.1} (Pr^{2/3} - 1) \right]^2} \right)^{0.5} \right] f_a f_g f_s f_o \quad (4.19)$$

în care f_a este factorul de aranjare ce depinde de modul de aranjare a țevilor, [-];

- f_g - factorul geometric ce depinde de mișcarea fluidului, [-];
- f_s - coeficientul de corecție de scurgere, [-];
- f_o - coeficientul de corecție de ocolire, [-].

relația (4.19) este aplicabilă când regimul de curgere prin spațiul extratubular este cuprins între $10 < Re < 10^6$ și proprietățile fluidului $0.6 < Pr < 10^3$.

Criteriul Reynolds se calculează din [G1]:

$$Re = \frac{n L_m d_e}{2 l_s D_i \varepsilon \mu} \quad (4.20)$$

în care ε este fracția de goluri, [-].

Fracția de goluri sau porozitatea fasciculului este funcție de valoarea numerică a pasului relativ longitudinal b .

$$\text{pentru } b \geq 1: \quad \varepsilon = 1 - n/4a \quad (4.21)$$

și

$$\text{pentru } b < 1: \quad \varepsilon = 1 - n/4ab \quad (4.22)$$

Factorul de aranjare pentru țevile așezate decalat:

$$f_a = 1 + \frac{2}{3b} \quad (4.23)$$

Factorul geometric este definit ca:

$$f_g = 1 - \frac{2n_f}{n_t} + 0.524 \left(\frac{2n_f}{n_t} \right)^{0.32} \quad (4.24)$$

în care n_f și n_t sunt numărul de țevi din fereastra șicanei și, respectiv, numărul total de țevi, [-]. Relația (4.24) este valabilă în următoarele condiții: $2n_f/n_t \leq 0.8$ și $0.2 \leq l_s/D_i \leq 1$.

Coeficientul de corecție de scurgere:

$$f_s = 0.4 \frac{A_{ts}}{A_{tsm}} + \left(1 - 0.4 \frac{A_{ts}}{A_{tsm}} \right) \exp \left(-1.5 \frac{A_{tsm}}{A_s} \right) \quad (4.25)$$

valabilă pentru $A_{tsm}/A_s \leq 0.8$. Notațiile din relația (4.25) au fost deja introduse în secțiunea 4.3.1.

Geometria schimbătorului de căldură analizată în această lucrare, construită pentru simularea numerică, este considerată „tehnic” ideală astfel încât nu sunt scurgeri prin șicană ($f_s = 1$).

Coeficientul de corecție de ocolire:

$$f_o = \exp[-\beta(A_o/A_s)] \quad (4.26)$$

valabilă pentru $A_o/A_s \leq 0.5$.

Coeficientul β este funcție de regimul de curgere, laminar sau turbulent, $\beta = 1.5$ pentru curgere laminară ($Re < 100$) și $\beta = 1.35$ pentru regim tranzitoriu și curgere turbulentă ($Re > 100$).

Având Nu se poate determina coeficientul de convecție mediu al fluidului ce circulă prin spațiul extratubular.

$$a = \frac{2\lambda Nu}{nd_e} \left(\frac{Pr}{Pr_p} \right)^n \quad (4.27)$$

în care n este un exponent ce depinde de raportul Pr/Pr_p , [-].

$$n = 0.25 \text{ pentru } Pr/Pr_p > 1$$

$$n = 0.11 \text{ pentru } Pr/Pr_p < 1$$

Metoda prezentată mai sus, de determinare a coeficientului de convecție a fluidului ce circulă prin spațiul extratubular șicanat, a fost verificată de Gaddis și Gnielinski cu datele experimentale pentru un număr mare de schimbătoare de căldură de diferite geometrii. Trebuie de menționat că coeficientul de convecție

calculat cu relația (4.27) este valabil, și are o valoare mai precisă, când numărul de rânduri de țevi în direcția curgerii fluidului este mai mare ca zece.

Pentru a fi comparate, și validate, rezultatele numerice cu cele teoretice vor fi prezentate grafic atât valoarea coeficientului de convecție calculată prin metoda descrisă mai sus (metoda Gaddis și Gnielinski) cât și coeficientul de convecție calculat numeric.

4.3.3. Pierdere de presiune

Pierderile de presiune prin spațiul tubular

Pierderea de presiune totală la curgerea unui fluid prin spațiul tubular este dată de formula [K1, K6, K10, S6]:

$$\Delta p = f \frac{l_t}{d_j} \frac{\rho w^2}{2} + \sum \xi \frac{\rho w^2}{2} \quad (4.28)$$

în care:

- w – viteza medie de curgere a gazelor, [m/s];
- $\sum \xi$ – suma coeficienților de rezistență locală, [-].

Coeficientul de frecare în regim laminar de curgere ($Re < 2100$) este dat de:

$$f = \frac{64}{Re} \quad (4.29)$$

În regim tranzitoriu și turbulent, coeficientul de frecare se alege din diagrama lui Moody, care depinde în principal de caracterul curgerii fluidului și de rugozitatea suprafeței conductei (Re , e/d_j). Diagrama pentru determinarea lui f poate fi găsită în diferite surse [F3, K10, P1, T3]. Când numărul Reynolds este foarte mare, coeficientul de frecare nu mai depinde de Re și se determină numai după valoarea raportului dintre înălțimea medie a asperităților și diametrul conductei (e/d_j).

Dacă se consideră că tubul este neted, atunci se aplică relația lui Blasius, valabilă pentru $3000 < Re < 10^6$:

$$f = 0.3164 Re^{-0.25} \quad (4.30)$$

sau relația lui Petukhov, valabilă pentru $3000 < Re < 5 \times 10^6$:

$$f = (0.79 \ln Re - 1.64)^{-2} \quad (4.31)$$

Viteza medie a gazelor de ardere din relația (4.28) se calculează din formula:

$$w = \theta \frac{G_m}{\rho A} \quad (4.32)$$

în care A este secțiunea de curgere, $[m^2]$.

Coeficienții de rezistență locală sunt date în literatura de specialitate. În lucrarea dată pentru a se putea determina pierderea de presiune pentru învingerea rezistențelor locale în spațiul intratubular al schimbătorului de căldură s-au folosit (i) coeficientul de rezistență locală $\xi = 1.5$ pentru camera de intrare și ieșire, și (ii) $\xi = 1.0$ pentru intrarea în țevi și ieșirea din ele.

Pierderile de presiune prin spațiul extratubular

Căderea totală de presiune la curgerea fluidului prin spațiul extratubular fără șicane se compune din căderea de presiune din interiorul aparatului și cea din racordurile de intrare și ieșire [G2]:

$$\Delta p = \Delta p_p + \Delta p_r \quad (4.33)$$

Se presupune că într-un schimbător de căldură fără șicane, curgerea în spațiul extratubular este paralelă cu axa țevilor. Căderea de presiune este dată de următoarea formulă:

$$\Delta p_p = f \frac{l_t}{d_{ech}} \frac{\rho w_p^2}{2} \quad (4.34)$$

în care

$$d_{ech} = \frac{D_i^2 - n_t d_e^2}{D_i + n_t d_e} \quad (4.35)$$

$$w_p = \frac{4L_m}{n(D_i^2 - n_t d_e^2)\rho} \quad (4.36)$$

În cazul în care schimbătorul de căldură este prevăzut cu mai multe treceri prin spațiul extratubular, formula (4.34) se va înmulți cu numărul total de treceri.

Ca rezultat al lărgirii și îngustării bruște la intrare și, respectiv, ieșire din aparat, pierderea de presiune în ambele racorduri se poate calcula cu:

$$\Delta p_r = \xi_r \frac{\rho w_r^2}{2} \quad (4.37)$$

Coeficientul de rezistență ξ_r reprezintă suma dintre coeficientul de rezistență locală prin racordul de intrare și coeficientul de rezistență locală prin racordul de

ieșire. După cum a fost prezentat în [G2] valoarea lui ξ_r pentru ambele regimuri, laminar și turbulent, este aproape egal cu 2.

Calculul pierderilor de presiune prin spațiul extratubular cu șicane tip segment este mai complicat. Pierderile totale de presiune la curgerea fluidului prin spațiul extratubular șicanat al schimbătorului de căldură cuprinde pierderile de presiune la curgerea fluidului între șicane, între placa tubulară și șicana adiacentă, în fereastra șicanei și cele prin racordurile de intrare și ieșire:

$$\Delta p = (n_s - 1)\Delta p_s + 2\Delta p_{sp} + n_s\Delta p_f + \Delta p_r \quad (4.38)$$

Pierderea de presiune între șicane Δp_s se formează la curgerea fluidului în secțiunea cuprinsă între două șicane adiacente și suprafețe (imaginare) ce ating marginile celor două șicane. Δp_s poate fi calculată cu următoarea formulă:

$$\Delta p_s = n_{rs}\xi \frac{\rho w_s^2}{2} f_s f_o \quad (4.39)$$

în care n_{rs} este numărul de rezistențe majore în direcția fluxului principal dintre șicane, [-];

- w_s - viteza fluidului dintre șicane, [m/s];
- ξ - coeficientul de rezistență, [-];
- f_{sr}, f_o - coeficienții de corecție, [-].

Procedura de evaluare a numărului total de rezistențe majore în direcția curgerii fluidului între șicane este foarte bine descrisă în [G2]. Acest număr este egal cu numărul de rânduri de țevi întâlnite de fluxul principal în timpul curgerii dintre șicanele adiacente.

Viteza fluidului între șicane se calculează din:

$$w_s = \frac{L_m}{\rho A_s} \quad (4.40)$$

în care secțiunea minimă transversală de curgere a fluidului între două șicane adiacente A_s se va calcula cu relația (4.3).

Regimul de curgere a fluidului prin spațiul extratubular și caracteristicile geometrice ale fasciculului de țevi sunt principalii factori ce determină coeficientul de rezistență ξ . Acesta se calculează diferit pentru așezarea decalată a țevilor față de cea în coridor (în linie). Astfel, relația de calcul a coeficientului de rezistență la curgerea fluidului peste un fascicul, așezat 30° sau 60° este:

$$\xi = \xi_l f_{zl} + \xi_t f_{zt} \left[1 - \exp\left(-\frac{Re + 200}{1000}\right) \right] \quad (4.41)$$

unde ξ_l și ξ_t sunt coeficienții de rezistență (pentru regim laminar și turbulent), [-];

- f_{zl}, f_{zt} - coeficienții de corecție de viscozitate (pentru regim laminar și turbulent), [-].

$$\xi_l = \frac{f_{alv}}{Re} \quad (4.42)$$

pentru $b \geq 0.5\sqrt{2a+1}$:

$$f_{alv} = \frac{280n \left[(b^{0.5} - 0.6)^2 + 0.75 \right]}{(4ab - n)a^{1.6}} \quad (4.43)$$

și

pentru $b < 0.5\sqrt{2a+1}$:

$$f_{alv} = \frac{280n \left[(b^{0.5} - 0.6)^2 + 0.75 \right]}{(4ab - n)c^{1.6}} \quad (4.44)$$

$$\xi_t = \frac{f_{atv}}{Re^{0.25}} \quad (4.45)$$

$$f_{atv} = 2.5 + \frac{1.2}{(a - 0.85)^{1.08}} + 0.4 \left(\frac{b}{a} - 1 \right)^3 - 0.01 \left(\frac{a}{b} - 1 \right)^3 \quad (4.46)$$

În relațiile (4.42) și (4.45), f_{alv} și f_{atv} sunt factorii de aranjare ce țin cont de efectul geometriei fasciculului de țevi asupra căderilor de presiune. Iar caracteristicile geometrice a , b și c , ce apar în relațiile de mai sus, pot fi determinate dacă se cunoaște pasul transversal t_t și longitudinal t_l dintre țevi, și diametrul exterior d_e al țevilor. Pentru determinarea lui a , b și c se aplică relația (4.8).

Regimul de curgere este definit de:

$$Re = \frac{w_s d_e \rho}{\mu} \quad (4.47)$$

Factorii de corecție de viscozitate f_{zl} și f_{zt} iau în considerare schimbarea de presiune datorită schimbării viscozității a fluidului în timpul încălzirii sau răcirii lângă perete la curgere în regim laminar și, respectiv, turbulent. Factorii de corecție de viscozitate sunt date conform relațiilor următoare:

$$f_{zl} = \left(\frac{\mu_p}{\mu} \right)^{0.57 / \{[(4ab/n) - 1] Re\}^{0.25}} \quad (4.48)$$

și

$$f_{zt} = \left(\frac{\mu_p}{\mu} \right)^{0.14} \quad (4.49)$$

După cum a fost menționat curgerea fluidului prin spațiul extratubular șicanat este foarte complex. Șicanele din spațiul extratubular ghidează fluidul să curgă parțial transversal și parțial longitudinal față de fasciculul de țevi. Debitul total de fluid este împărțit în trei curenți diferite [G2]. Astfel, pe lângă debitul principal mai apare un debit de scurgere și altul de ocolire. Debitul de scurgere practic este format din două, cel al fluidului care curge prin spațiile libere rămase dintre țevi și

găurile din șicane prin care trec acestea și cel al fluidului care curge prin spațiul dintre șicană și mantaua schimbătorului. Debitul de ocolire se formează la curgerea fluidului prin spațiul dintre fasciculul de țevi și manta, ocolind astfel zona țevilor. Acestea două debite pot modifica semnificativ debitul principal.

Coeficientul de corecție f_s , din relația (4.39), ține seama de curgerea fluidului prin spațiul format între țevi și găurile din șicane și, între șicană și mantaua schimbătorului. Iar f_o este un coeficient de corecție ce este determinat de debitul de ocolire a fasciculului de țevi.

Conform lui Taborek [T1] coeficientul de corecție de scurgere a fluidului prin șicană f_s poate fi calculat cu:

$$f_s = \exp\left\{-1.33\left[1 + (A_{sm}/A_{tsm})\right]\left(A_{tsm}/A_s\right)^{-0.15\left[1 + (A_{sm}/A_{tsm})\right] + 0.8}\right\} \quad (4.50)$$

în care A_{tsm} este suma dintre aria secțiunii de scurgere a fluidului prin spațiile dintre țevi și găurile din șicane A_{ts} și aria secțiunii de scurgere a fluidului prin spațiul dintre șicană și manta A_{sm} .

După cum a fost menționat debitul de ocolire se formează la curgerea fluidului prin spațiul dintre fasciculul de țevi și manta. Pentru a micșora acest debit se montează niște benzi de ocolire (obstacole) care deviază acest flux de fluid să curgă peste țevi. Taborek [T1] a prezentat o relația de calcul a coeficientului de corecție de ocolire f_o care ține seama de mai multe aspecte, și anume, depinde de secțiunea minimă transversală de curgere a fluidului dintre fasciculul de țevi și manta A_o , de numărul de perechi de obstacole în zona de ocolire n_o și de un coeficient β ce este funcție de regimul de curgere ($\beta = 4.5$ pentru $Re < 100$ și $\beta = 3.7$ pentru $Re \geq 100$).

În lucrare geometria reală a schimbătorului de căldură (și cea numeric analizată) nu include benzi de ocolire în spațiul extratubular. Coeficientul de corecție de ocolire modificat se va calcula cu următoare relație:

$$f_o = \exp\left[-\beta(A_o/A_s)\right] \quad (4.51)$$

Secțiunea minimă transversală A_o pentru condiția $s < (D_i - D_t)$ are forma:

$$A_o = l_s(D_i - D_t - s) \quad (4.52)$$

în care D_t este diametrul exterior al fasciculului de țevi. În cazul când $s \geq (D_i - D_t)$, secțiunea minimă transversală $A_o = 0$.

Căderea de presiune Δp_{sp} se formează la curgerea fluidului în secțiunea cuprinsă între placa tubulară și șicana adiacentă. Pe lângă debitul principal care curge peste țevi, participând activ la procesul termic, în secțiunea de intrare și ieșire se formează și un debit de ocolire, sus menționat. Deși acest debit se formează, în lipsa benzilor de ocolire, și reduce din pierderile de presiune, el este ineficient din punct de vedere al transferului de căldură. De asemenea, distanța dintre placa tubulară și șicana adiacentă are un efect semnificativ asupra căderilor de presiune în aceste zone.

Pierdere de presiune la curgerea transversală a fluidului peste fasciculul de țevi, la un capăt al spațiului extratubular poate fi calculată cu formula:

$$\Delta p_{sp} = n_{rp} \xi \frac{\rho w_{sp}^2}{2} f_o \quad (4.53)$$

în care n_{rp} este numărul de rezistențe majore întâlnite în direcția curgerii a debitului principal dintre placa tubulară și șicana adiacentă și w_{sp} este viteza fluidului din secțiunea analizată (intrare sau ieșire).

Procedura de evaluare a lui n_{rp} este similară cu cea pentru n_{rs} . Așezarea țevilor în 30° și 60° față de curgerea fluidului și funcție de înălțimea ferestrei șicanei va rezulta în n_{rp} diferit. Modelele geometrice investigate în această lucrare au numărul de rezistențe majore egal cu 4.0 și 7.5 pentru fasciculul de țevi dispus 30° și, respectiv, 60°.

Viteza fluidului în zona dintre placa tubulară și șicana alăturată este:

$$w_{sp} = \frac{L_m}{\rho A_{sp}} \quad (4.54)$$

cu

$$A_{sp} = l_{sp} L_e \quad (4.55)$$

în care A_p este secțiunea minimă transversală de curgere a fluidului dintre placa tubulară și șicana adiacentă, măsurată în dreptul diametrului $D_{i'}$ [m²];

l_{sp} – distanța dintre placa tubulară și șicana adiacentă, [m].

Coeficientul de rezistență ξ se va calcula conform relației (4.41) în care numărul Reynolds trebuie să fi înlocuit cu numărul Re ce caracterizează regimul de curgere în secțiunea A_{sp} . Coeficientul de corecție de ocolire f_o se va calcula cu relația (4.51).

Căderea de presiune rezultată în urma curgerii fluidului prin fereastra șicanei Δp_f este dată de relația:

$$\Delta p_f = \sqrt{\Delta p_{fl}^2 + \Delta p_{ft}^2} f_z f_s \quad (4.56)$$

unde

$$\Delta p_{fl} = \frac{28 n_{rf} w_c \mu}{e} + \frac{26 l_s w_c \mu}{d_{ech}^2} + \rho w_c^2 \quad (4.57)$$

și

$$\Delta p_{ft} = (0.3 n_{rf} + 1) \rho w_c^2 \quad (4.58)$$

în care Δp_{fl} și Δp_{ft} sunt pierderile de presiune prin fereastra șicanei la curgerea fluidului în regim $Re \leq 100$ și, respectiv, $Re > 100$, [Pa];

- f_z – factorul de corecție de viscozitate ($f_z = f_{z1}$ pentru $Re < 100$ și $f_z = f_{z2}$ pentru $Re > 100$), [-];
- n_{rf} – numărul de rezistențe majore din fereastra șicanei, [-];
- d_{ech} – diametrul echivalent a secțiunii de curgere prin fereastră, [m²];
- w_c – viteza caracteristică a fluidului prin fereastra șicanei, [m/s].

Numărul de rezistențe majore din fereastra șicanei poate fi determinat din:

$$n_{rf} = \frac{0.8h_s}{t_l} \quad (4.59)$$

valabilă pentru $n_{rf} \leq 2n_{rtf}$, unde n_{rtf} este numărul de rânduri de țevi din secțiunea ferestrei. Când nu este satisfăcută această condiție numărul de rezistențe din fereastra șicanei este $n_{rf} = 2n_{rtf}$.

Diametrul echivalent a secțiunii de curgere a fluidului prin fereastra șicanei este de patru ori secțiunea ferestrei șicanei raportată la perimetrul udat.

$$d_{ech} = \frac{4A_f}{P_f} \quad (4.60)$$

Secțiunea de curgere a fluidului prin fereastra A_f șicanei reprezintă diferența dintre aria totală a ferestrei șicanei și aria țevilor ce trec prin această fereastră.

$$A_f = \frac{\pi D_i^2}{4} \frac{Y}{360} - \frac{(D_i - 2h_s)D_s}{4} \sin\left(\frac{Y}{2}\right) - \frac{\pi d_e^2}{4} n_f \quad (4.61)$$

iar perimetrul udat P_f :

$$P_f = \pi D_i \frac{Y}{360} + \pi d_e n_f \quad (4.62)$$

Viteza fluidului în fereastra șicanei în cazul idealizat, când tot volumul de fluid ar trece prin secțiunea ferestrei, se determină din:

$$w_f = \frac{Lm}{\rho A_f} \quad (4.63)$$

în cazul real, când se formează și debite secundare în spațiul extratubular, viteza fluidului în secțiunea ferestrei șicanei va fi:

$$w_c = \sqrt{w_s w_f} \quad (4.64)$$

4.4. Modelarea numerică a procesului termic și de curgere prin spațiul tubular și extratubular a schimbătorului de căldură

4.4.1. Domeniul de calcul

Simularea numerică a procesului de schimb de căldură și de curgere a fluidului prin spațiul tubular (gaze) și extratubular (apă) a schimbătorului de căldură cu fascicul de țevi și manta s-a realizat cu ajutorul programului comercial CFD FLUENT6. Modelele au fost create cu programul de desenare a geometriei domeniului GAMBIT2.2.

Lista modelelor geometrice create în GAMBIT, șase modele pentru spațiul tubular și șase pentru extratubular, este dată în Tabelul 4.1 cu cod geometrie pentru fiecare caz analizat. Geometria spațiului tubular T0 și extratubular E1.1 reprezintă cazul real al schimbătorului de căldură.

Tabelul 4.1. Lista modelelor geometrice create în GAMBIT2.2

Descriere	Cod geometrie
<i>Tubular</i>	
tubular întreg	T0 (real)
tub simplu	T1
tub cu bandă răsucită, $\gamma = 3$	B1
tub cu bandă răsucită, $\gamma = 4$	B2
tub cu bandă răsucită, $\gamma = 5$	B3
tub cu bandă răsucită, $\gamma = 6$	B4
<i>Extratubular</i>	
fără șicane, 60° , $d_{ir} = 9$ mm	E1.1 (real)
8 șicane, 60° , $d_{ir} = 9$ mm	E1.2
fără șicane, 60° , $d_{ir} = 21$ mm	E2.1
8 șicane, 60° , $d_{ir} = 21$ mm	E2.2
fără șicane, 30° , $d_{ir} = 21$ mm	E3.1
8 șicane, 30° , $d_{ir} = 21$ mm	E3.2

În Tabelul 4.2 sunt date dimensiunile principale ale schimbătorului de căldură analizat, și anume, diametrul mantalei și numărul, diametrul, lungimea și poziția țevilor. De asemenea, sunt prezentate caracteristicile geometrice șicanei tip segment și a benzii răsucite. Primele șase poziții din tabel sunt mărimile reale ale schimbătorului de căldură.

Tabelul 4.2. Principale caracteristici geometrice ale schimbătorului de căldură cu și fără șicane, și a generatorului de turbulența de tip bandă răsucită

Descriere	
diametrul interior al mantalei, D_i [mm]	207
diametrul țevelor, d_i/d_e [mm]	21/25
lungimea țevelor, l_t [mm]	690
numărul de țevi, n_t [-]	19 (13)
pasul dintre țevi, t [mm]	38
așezarea țevelor	30°, 60°
<i>Spațiul extratubular cu șicane tip segment</i>	
grosimea șicanei, δ_s [mm]	3
numărul șicanelor, n_s [-]	8
partea decupată din șicană, S [%]	25
spațiul dintre șicane, l_s [mm]	72
<i>Bandă răsucită</i>	
lățimea benzii, w [mm]	20
grosimea benzii, δ_b [mm]	1
pasul unei răsuciri de 180°, h_b [mm]	60, 80, 100, 120
pasul relativ, γ [-]	3, 4, 5, 6

Domeniul de calcul pentru spațiul tubular (T0) și extratubular (E1.1 și E3.2) a schimbătorului de căldură este prezentat în Figura 4.2. După cum se vede, modelele geometrice create sunt tridimensionale pentru care s-a putut aplica condiția de simetrie. Această condiție, însă, nu s-a aplicat și modelelor geometrice B1, B2, B3 și B4. Pentru toate modelele create, discretizarea domeniului de calcul s-a făcut cu celule tip tetraedre, formând o rețea 3D nestructurată. De asemenea, calitatea rețelei formate a fost verificată și analizată pentru fiecare model înainte de a fi exportată în FLUENT.

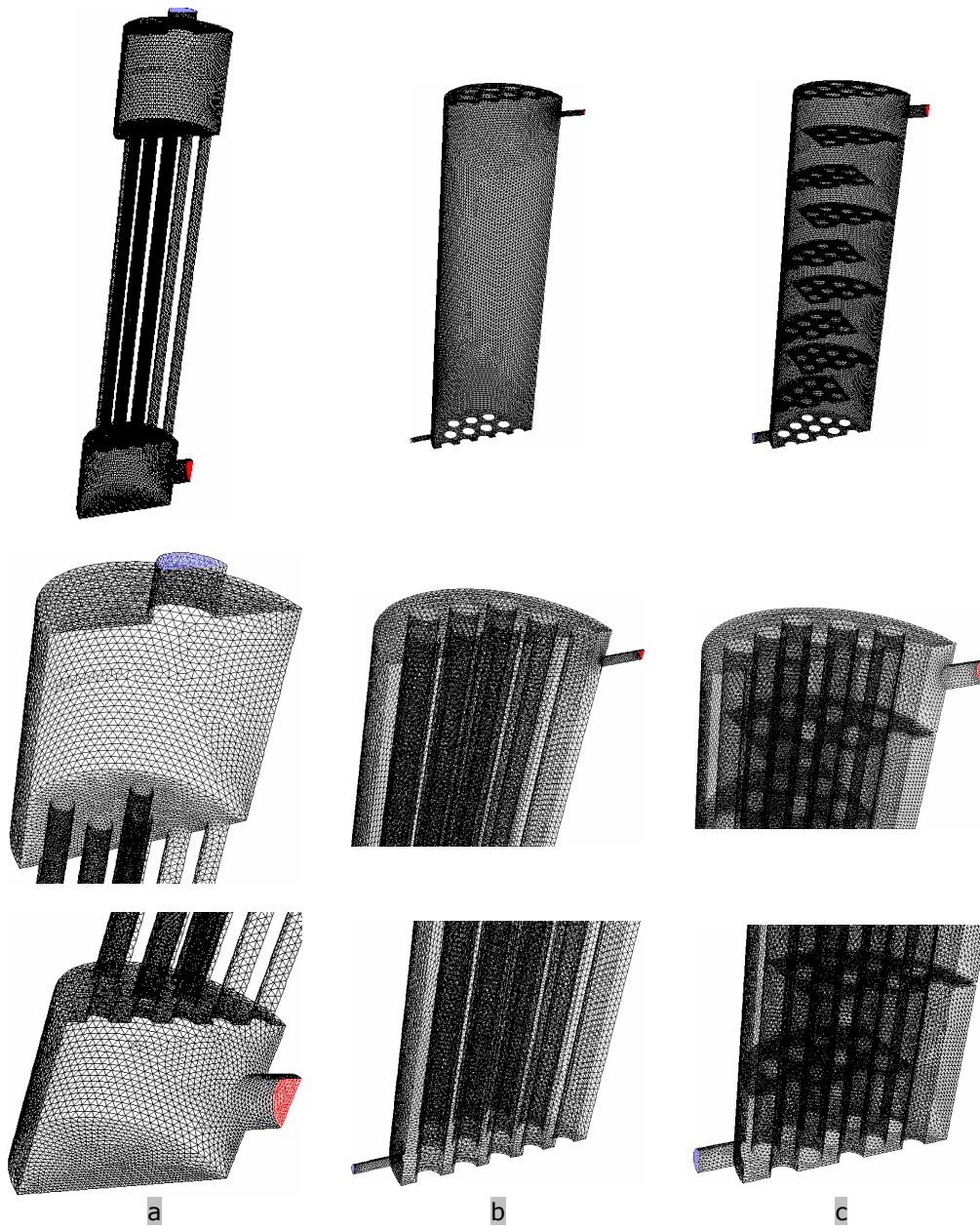


Figura 4.2. Rețeaua 3D nestructurată, cu tetraedre, a domeniului de calcul reprezentând separat spațiul tubular și extratubular a schimbătorului de căldură: (a) spațiul tubular; (b) spațiul extratubular fără șicane, 60° , $d_{ir} = 9$ mm; (c) spațiul extratubular cu șicane, 30° , $d_{ir} = 21$ mm

Proprietățile termofizice ale agenților termici sunt variabile pe domeniul modelat, în funcție de temperatură. FLUENT6.1 oferă mai multe posibilități de calcul pentru determinarea acestor proprietăți [F4]. Funcția polinomială este utilizată pentru calculul densității ρ , capacității specifice masice c_p , conductivității termice λ și a viscozității dinamice μ a fluidului de lucru, funcție de temperatura T .

$$f(T) = A_1 + A_2T + A_3T^2 + \dots + A_nT^{n-1} \quad (4.65)$$

unde $A_1..A_n$ sunt constante (Tabelul 4.3 și 4.4), și T este temperatura în grade Kelvin.

Coeficienții din tabelele de mai jos au fost determinați în următoarele intervale de temperaturi: (i) $0 < t_g < 300^\circ\text{C}$ pentru agentul termic cald (gaze de ardere, din [M6]); și (ii) $0 < t_l < 96^\circ\text{C}$ pentru agentul termic rece (apa, din [S9]). În Tabelul 4.3 și 4.4 este indicată și diferența dintre valoarea tabelară și cea calculată. După cum se vede eroarea nu depășește $\pm 1.5\%$.

Tabelul 4.3. Coeficienții $A_1..A_n$ utilizați în ecuația polinomială pentru determinarea proprietăților termofizice ale gazelor de ardere în funcție de temperatura T și devieri de la valoarea tabelară

	ρ [kg/m ³]	c_p [J/kg K]	μ [kg/m s]	λ [W/m K]
A_1	3.2743	962.4367	1.2266×10^{-6}	-1.5864×10^{-3}
A_2	-1.0949×10^{-2}	2.9813×10^{-1}	5.9153×10^{-8}	9.0641×10^{-5}
A_3	1.5940×10^{-5}	-3.2583×10^{-5}	-2.1143×10^{-11}	-5.7495×10^{-9}
A_4	-8.5869×10^{-9}			
<i>Eroare, [%]</i>				
maximum	1.00	0.08	0.25	0.31
minimum	-1.29	-0.10	-0.15	-0.39

Tabelul 4.4. Coeficienții $A_1..A_n$ utilizați în ecuația polinomială pentru determinarea proprietăților termofizice ale apei în funcție de temperatura T și devieri de la valoarea tabelară

	ρ [kg/m ³]	c_p [J/kg K]	μ [kg/m s]	λ [W/m K]
A_1	300.2234	3.7876×10^4	0.3812	-0.7545
A_2	6.1598	-3.9812×10^2	-4.3620×10^{-3}	7.4635×10^{-3}
A_3	-1.6961×10^{-2}	1.7640	1.8829×10^{-5}	-9.7089×10^{-6}
A_4	1.3881×10^{-5}	-3.4785×10^{-3}	-3.6252×10^{-8}	
A_5		2.5791×10^{-6}	2.6235×10^{-11}	
<i>Eroare, [%]</i>				
maximum	0.01	0.02	1.31	0.09
minimum	-0.01	-0.02	-1.48	-0.07

4.4.2. Ecuațiile diferențiale și condițiile la limită

Pentru a modela curgerea fluidului și transferul de căldură, FLUENT folosește ecuația de continuitate, de mișcare și de conservare a energiei [F4].

Ecuația de continuitate (ecuația de conservare a masei):

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j) = 0 \quad (4.66)$$

Ecuația de mișcare (ecuația de conservare a impulsului):

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j u_j) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\mu \frac{\partial u_j}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial p}{\partial x_j} \quad (4.67)$$

Ecuația de conservare a energiei:

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j T) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{k}{c_p} \frac{\partial T}{\partial x_j} \right) \quad (4.68)$$

Condițiile la limită setate pentru modelele create au fost următoarele: (i) intrare, $w_{in} = \text{constant}$ (profilul vitezei la intrare uniform) și $T_{in} = \text{constant}$ (temperatura fluidului la intrare uniformă, 523 K pentru gaze și 293 K pentru apă); (ii) suprafața țevilor din fascicul, $T_p = \text{constant}$ (423 K și 363 K pentru gaze și, respectiv, apă); (iii) proprietățile fluidelor de lucru (gaze, apă) sunt funcție de temperatură; (iv) peretele exterior, dacă este cazul, este modelat ca adiabatic; și (v) conductivitatea termică a materialelor din interiorul domeniului de calcul este neglijată.

4.4.3. Metoda numerică folosită

Solver-ul utilizat în FLUENT este segregat, care rezolvă ecuațiile diferențiale succesiv, și modul de linearizare este implicit. Pentru toate cazurile modelate regimul de curgere este laminar (și turbulent pentru spațiul tubular dacă este cazul), staționar, cu proprietăți variabile ale agentului termic. Coeficienții de subrelaxare au următoarele valori prestabilite: 0.3 la presiune; 1.0 la densitate și energie; și 0.7 la cele trei componente ale vitezei. Cuplarea câmpului de presiune cu cel de viteză se face prin algoritmul SIMPLE. Opțiunea dublă precizie este selectată la viteze și energie, și normal la presiune pentru discretizarea ecuațiilor. Convergența este obținută când reziduurile pentru continuitate scad sub ordinul de 10^{-3} și pentru energie sub 10^{-6} .

Rezultatelor numerice sunt prezentate sub forma de (i) coeficientul de convecție termică a pentru interpretarea și descrierea procesului termic și (ii) cădere de presiune Δp pentru descrierea procesului de curgere.

Coeficientul de convecție este evaluat conform pașilor din Tabelul 4.5.

Tabelul 4.5. Determinarea coeficientului de convecție mediu pe baza rezultatelor numerice

Spațiul calculat	Tubular	Extratubular
Coeficientul de convecție, [W/m ² K]	$a = Q/A\Delta t$	
Fluxul de căldură, [W]	$Q = G_m c_p (T_{in} - T_{ies})$	$= L_m c_p (T_{ies} - T_{in})$
Suprafața de schimb de căldură, [m ²]	$A = n_t n d_i l_t$	$= n_t n d_e l_t$
Temperatura medie logaritmică, [K]	$\Delta T = \frac{T_{in} - T_{ies}}{\ln \frac{T_{in} - T_p}{T_{ies} - T_p}}$	$= \frac{T_{ies} - T_{in}}{\ln \frac{T_p - T_{in}}{T_p - T_{ies}}}$

Cantitatea de căldură transmisă Q și suprafața totală de schimb de căldură A pot fi calculate sau luate direct din lista rezultatelor calculate numeric în FLUENT. Pierderea de presiune Δp este diferența dintre presiunea medie la intrare p_{in} și presiunea medie la ieșire p_{ies} .

5. INSTALAȚIA EXPERIMENTALĂ

5.1. Prezentarea instalației experimentale pentru arderea combustibilului solid în strat fluidizat și epurarea gazelor de ardere

În Figura 5.1 este prezentată instalația experimentală pentru arderea simultană sau separată a combustibililor solizi (de exemplu: cărbune, biomasa lemnoasă sau agricolă) în strat fluidizat și epurarea gazelor de ardere este prezentată. Instalația este amplasată în Laboratorul Multifuncțional de Mașini Termice și Energii Neconvenționale din cadrul Universității „Politehnica” din Timișoara.

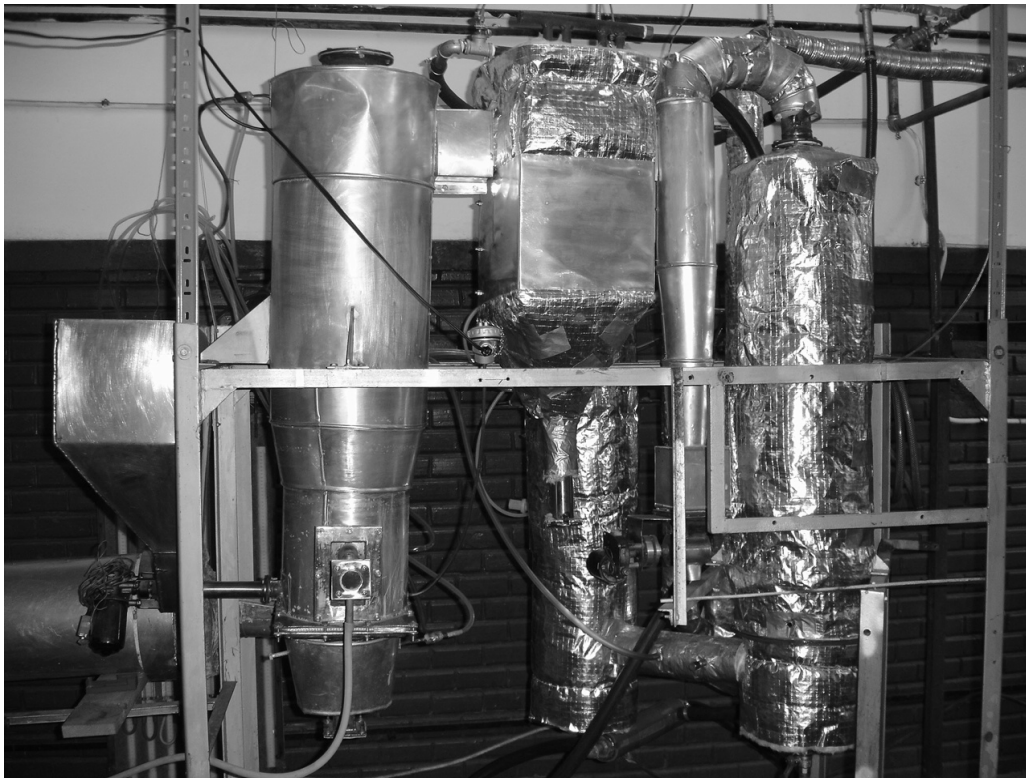
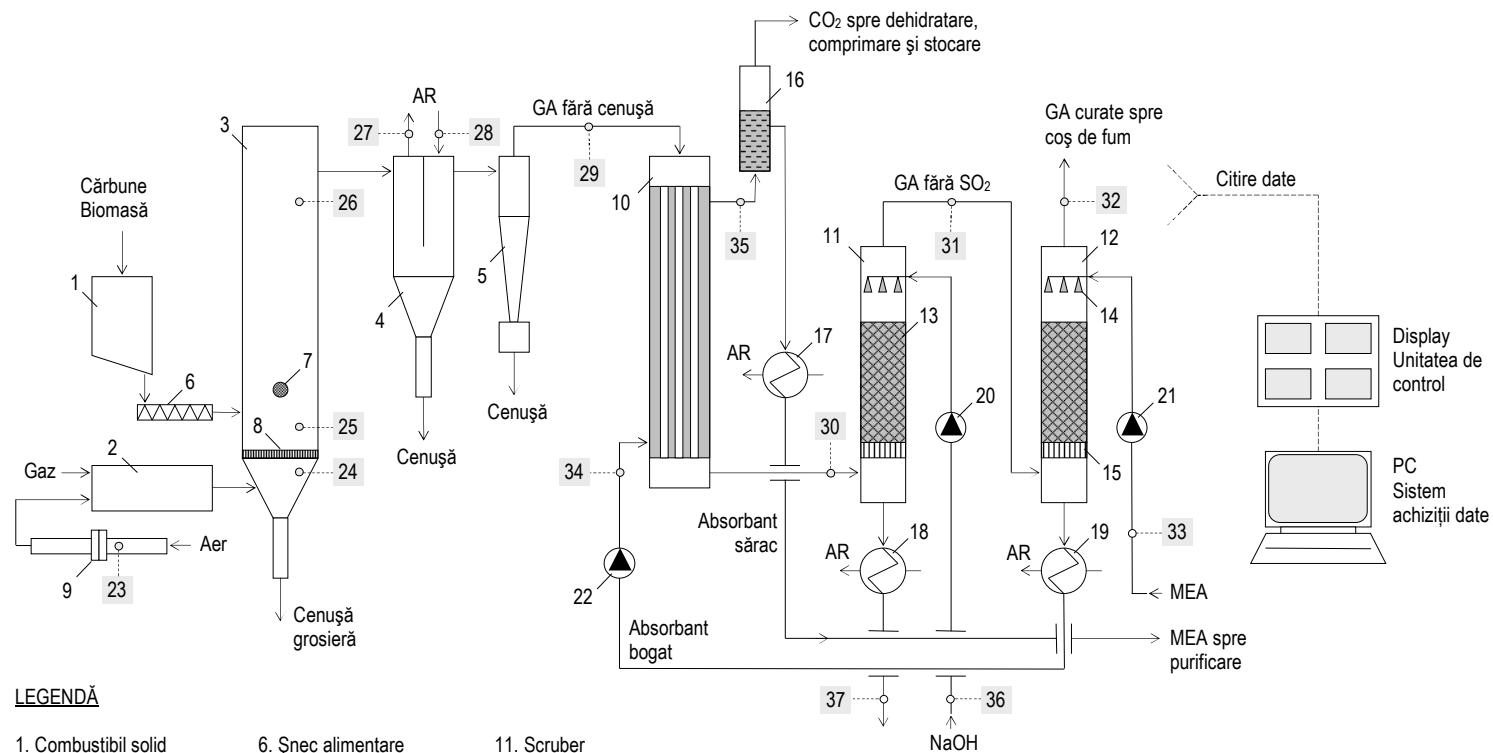


Figura 5.1. Instalația experimentală (vederea din față)

În urma procesului de ardere, gazele de ardere trec printr-o serie de etape legate, în principal, de transfer de căldură și de masă. În Figura 5.2 se prezintă schema de lucru a instalației experimentale.



LEGENDĂ

- | | | | |
|---------------------------|---------------------------|-----------------------------------|--|
| 1. Combustibil solid | 6. Șnec alimentare | 11. Scruber | 22. Pompă (Absorbant bogat) |
| 2. Pre-încalzitor de aer | 7. Fereastră | 12. Absorber | 23-37. Puncte de măsură: Δp, t, |
| 3. Focar | 8. Grătar | 13. Umplutură Raschig | O ₂ , NO _x , SO ₂ , H ₂ S, CO, |
| 4. Corp convectiv (GA-AR) | 9. Diafragmă | 14. Duze | CO ₂ , pH |
| 5. Ciclon | 10. Schimbător de căldură | 15. Taler | |
| | | 16. MEA/CO ₂ separator | |
| | | 17. Răcitor (Absorbant sărac) | |
| | | 18. NaOH/SO ₂ răcitor | |
| | | 19. Răcitor (Absorbant bogat) | |
| | | 20. Pompă (NaOH) | |
| | | 21. Pompă (MEA) | |

Figura 5.2. Schema instalației experimentale de ardere a combustibilului solid în strat fluidizat cu puterea termică nominală de 40 kW și a sistemului de desprăfuire a gazelor de ardere, desulfurare, absorbție CO₂ și regenerare absorbant. Prezentarea echipamentelor, punctelor de măsură și prelevare gaze, și citire date

Combustibilul este ars într-un focar de formă cilindrică, vertical în care agentul de fluidizare este introdus prin partea inferioară a focarului. Gazele de ardere după ce au fost răcite și desprăfuite trec, în contracurent cu agentul termic de răcire, printr-un schimbător de căldură tubular, rigid, vertical, în care gazele de ardere sunt răcite înainte de a fi introduse în coloana de desulfurare.

Gazele de ardere se introduc în scrubber prin partea de jos a coloanei și sunt spălate cu o soluție de hidroxid de sodiu (NaOH), Figura 5.3. Pentru a intensifica schimb de substanță a fost format în coloană un strat din inele ceramice tip Raschig.

După ce marea parte a dioxidului de sulf este reținută, gazele trec printr-un absorber în care dioxidul de carbon este absorbit de o soluție apoasă de monoetanolamină (MEA), Figura 5.3. Reacția de absorbție între CO_2 și MEA are loc la temperaturi de $\sim 50^\circ\text{C}$. Pentru a recupera MEA și de a separa CO_2 din amestec, este nevoie ca absorbantul bogat în CO_2 să fie încălzit, și procesul de încălzire are loc în schimbătorul de căldură tubular.



Figura 5.3. Sistemul de reținere SO_2/CO_2 din gazele de ardere (în stânga) coloana de desulfurare și de absorbție, și (în dreapta) vederea de sus a coloanelor

În Figura 5.4 și 5.5 sunt prezentate sistemul de distribuție (lichid) utilizat în coloana de absorbție și în coloana de reținere de SO_2 . În timpul încercărilor s-a folosit un strat din inele Raschig de 150 mm și distanța dintre dispozitivul de stropire și umplutura a fost de ~ 100 mm. S-a observat ca lichidul a spălat toată umplutura având profilul după taler uniform pe toată suprafața suportului.



Figura 5.4. Sistemul de distribuție cu trei duze cap plat



Figura 5.5. Stropirea și distribuția lichidului peste un strat de umplutură din inele Raschig ceramice (în timpul încercărilor)

În Figura 5.6 este arătată coloana de absorbție în interior înainte de umplere cu inele Raschig și după.



Figura 5.6. Coloana de absorbție (în stânga) taler perforat și (în dreapta) umplută din inele ceramice Raschig 26×26×5

În Tabelul 5.1 sunt prezentate caracteristicile principale ale umpluturii utilizată în experimente calculate conform relațiilor (3.1-3.7).

Tabelul 5.1. Caracteristicile principale ale umpluturii formată din inele ceramice Raschig 26×26×5

Denumire		Valoare
Diametrul exterior, d	[mm]	26
Diametrul interior, d_i	[mm]	16
Înălțimea unui element de umplură, h	[mm]	26
Volumul unei particule de umplură, V	[m ³]	8.57×10^{-6}
Suprafața unei particule de umplură, A	[m ²]	4.09×10^{-3}
Diametrul mediu de volum al umplurii, d_v	[mm]	25.4
Diametrul mediu de suprafață al umplurii, d_s	[mm]	36.1
Diametrul echivalent al unui corp de umplere, d_p	[mm]	12.6
Fracția de goluri (porozitatea), ε	[m ³ /m ³]	0.71
Factorul de formă (sfericitatea), φ	[-]	0.495
Suprafața specifică a umplurii, a	[m ² /m ³]	138.31
Diametrul echivalent al umplurii, d_{ech}	[mm]	20.5
Numărul de elemente, n	[bucăți/m ³]	33830

5.2. Descrierea echipamentelor

Preîncălzitorul de aer (2) are forma unui cilindru, orizontal, confecționat din oțel inoxidabil refractar de marca W4841. La un capăt este prevăzut cu o flanșă cu un arzător și racord la ventilator. Este echipat cu un arzător de pornire cu scânteie (piezoelectrică), dispozitiv de protecție și un vizor suflat cu aer de la ventilator. La celălalt capăt este amplasată o flanșă de racord la distribuitorul de aer-gaze al focarului.

Pe focarul (3) a fost amplasat un vizor (7) destinat pentru vizualizarea procesului de ardere. Pentru a nu fi blocat, vizorul este suflat cu aer de la ventilator.

Corpul convectiv (schimbătorul de căldură gaze de ardere-apă) (4), este amplasat după focar (3) și este destinat pentru răcirea gazelor de ardere și evacuarea particulelor de cenușă. Are forma unui paralelipiped cu baza trunchi de piramidă. Corpul convectiv este compartimentat cu un perete vertical iar în fiecare compartiment sunt amplasate câte două serpentine din oțel refractar de marca OLT35K. Apa de răcire circulă prin serpentine fiind în contracurent cu gazele de ardere.

Pentru evacuarea particulelor de cenușă fină a fost utilizat ciclonul (5), efectuându-se racordul la ieșirea din corpul convectiv și la intrarea în schimbătorul de căldură gaze de ardere-absorbant bogat pe la partea superioară.

Schimbătorul de căldură cu fascicul de țevi și manta (10) are rolul (i) de a încălzi absorbantul bogat în CO_2 și (ii) în același timp de a răci gazele. Absorbantul bogat circulă prin spațiul extratubular, iar gazele de ardere circulă prin țevi, în contracurent. Materialul utilizat este oțel inoxidabil de marca W4541, rezistent la șocuri termice.

Soluția bogată în CO_2 intră pe la baza schimbătorului, unde este încălzită până la temperatura necesară separării CO_2 de soluția amină, și este evacuată prin partea superioară în coloană de separare CO_2 de MEA (16). CO_2 trebuie apoi de comprimat și de îmbuteliat.

Răcitorul soluției amine (17), sărăcit în CO_2 , are rolul de a răci soluția sub 40°C înainte de deversarea în vasul de stocare. Această soluție este apoi recirculată în sistemul de absorbție. În acest răcitor cilindric, apa de răcire intră pe la baza și iese prin partea de sus, iar lichidul sărăcit în CO_2 circulă în contracurent, intră pe sus și iese pe partea de jos.

Coloana de desulfurare (11), scruberul, are formă cilindrică, confecționat din oțel inoxidabil marca AISI308 rezistent la coroziune. Este prevăzut cu umplutura din inele Raschig (13). La partea superioară are duze de stropire cu reactivi de desulfurare, lichidul fiind alimentat cu o pompă (20).

Coloana de absorbție (12), absorberul, de formă cilindrică, este confecționat din oțel inoxidabil marca AISI308. Are un strat de umplutura de inele Raschig. De asemenea este prevăzut la partea superioară cu un sistem de duze (14) pentru spălare cu soluția amină a stratului de umplutură și a gazelor desulfurate anterior.

Răcitorul în contracurent de soluție de reactivi de desulfurare (18) și răcitorul în contracurent de soluție amină încărcată cu CO_2 (19) sunt niște schimbătoare de căldură de tip țevă în țevă, care sunt confecționate din material marca AISI308. Răcirea lichidelor are loc în contracurent cu apa de răcire.

5.3. Aparatele și punctele de măsură

În Figura 5.7 sunt prezentate punctele de măsură pentru partea de desulfurare și absorbție CO_2 din gazele de ardere. De asemenea, este arătat principiul de legare a tuburilor de tip „U” pentru citirea pierderilor de presiune în scruber și absorber. Același principiu a fost aplicat și la măsurarea pierderilor de presiune în camera de ardere (pierderile de presiune prin grătar, în strat și totale).

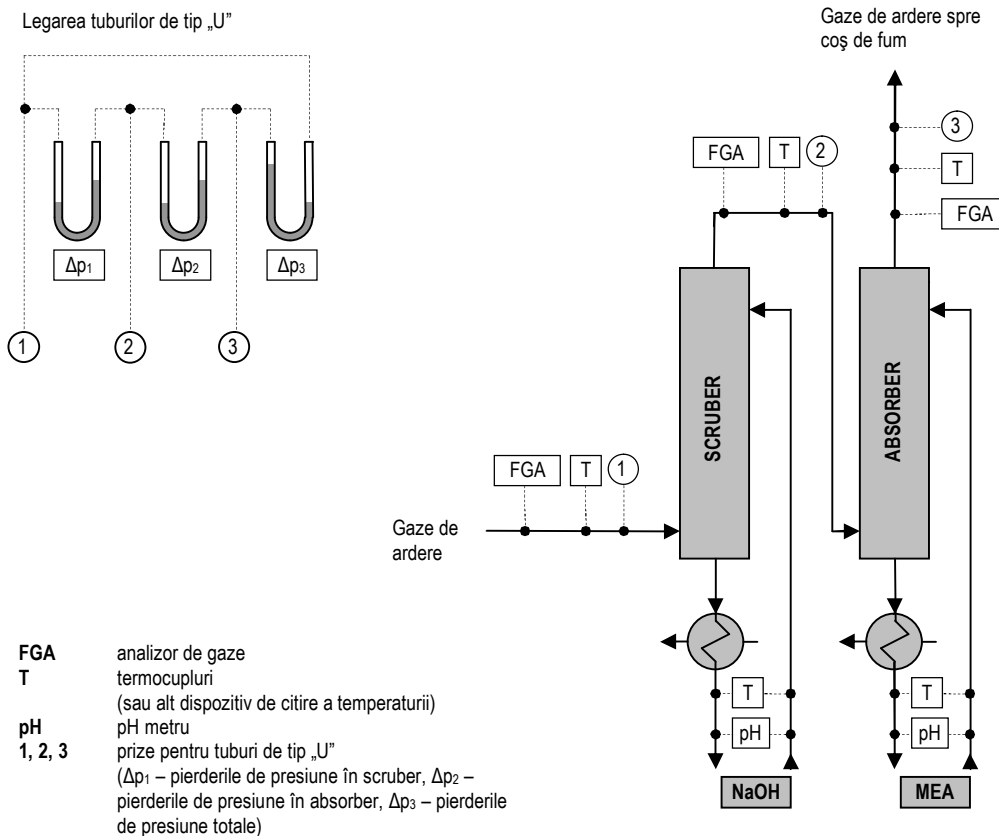


Figura 5.7. Punctele de măsură pentru partea de reținere SO_2 și CO_2

Prelevarea gazelor de ardere se face în patru puncte de măsură cu ajutorul gazo-analizorului TESTO 300 XXL. Punctele de prelevarea gazelor se află (i) între ciclone și schimbătorul de căldură pentru regenerarea absorbantului, (ii) la intrare în scruber și (iii) la intrare și ieșire din absorber.

Temperatura gazelor de ardere este citită pe tot traseu (camera de ardere, sistem de epurarea gazelor de ardere, evacuare) cu ajutorul termocuplurilor Cromel-Alumel Tip K.

Temperatura apei de răcire și a absorbantului bogat în CO_2 ($\text{MEA} + \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$) au fost înregistrate la intrare și ieșire din corpul convectiv și, respectiv, schimbătorul de căldură pentru regenerarea MEA, cu ajutorul termocuplurilor Cromel-Alumel Tip K ($< 100^\circ\text{C}$).

Temperatura și pH-ul soluțiilor apoase de monoetanolamină și hidroxid de sodiu, înainte și după spălarea gazelor de ardere, sunt citite cu ajutorul pH-metrului HANNA HI991002 ($-2.0 < \text{pH} < 16.0$, $-5.0 < t < 105.0^\circ\text{C}$).

Debitul aerului este măsurat cu ajutorul unei diafragme aflată în canalul de aproximativ 1.5 m lungime dintre ventilatorul Cole Parmer A0704745 și preîncălzitorul de aer. În același timp, pentru confirmarea rezultatelor obținute cu diafragma, debitul de aer este măsurat cu termo-anemometrul TESTO 425.

Toate echipamentele de măsură au fost calibrate înainte și după fiecare experiment.

Temperatura gazelor și a lichidelor, citită în diferite puncte, este afișată pe display-ul unității de control și înregistrată în calculator prin sistemul de achiziție a datelor. Valorile înregistrate de gazo-analizorul TESTO 300 XXL, în timpul testelor, au fost analizate și stocate direct în calculator.

6. REZULTATE

6.1. Rezultate experimentale

6.1.1. Combustibili utilizați

Obiectivul principal al cercetării este reținerea dioxidului de carbon din fluxul de gaze de ardere, generate în urma procesului de ardere a combustibilului fosil și neconvențional. Au fost considerate următoarele tipuri de combustibil: (i) lignit, din bazinul de cărbune Motru (România), Figura 6.1 (stânga); și (ii) rumeguș de fag, Figura 6.1 (dreapta).



Figura 6.1. Mostre de combustibil după măcinare, lignit Motru (în stânga) și rumeguș de fag (în dreapta)

Analiza elementară a acestor combustibili este dată în Tabelul 6.1, iar analiza granulometrică este prezentată în Figura 6.2. Analiza granulometrică s-a realizat cu ajutorul aparatului de cernut AS200 și site cu ochiuri cuprinse între 0.18 mm și 4 mm.

Tabelul 6.1. Analiza elementară a combustibililor (lignit Motru și rumeguș de fag)

	C	H	S	(O+N)*	Cenușă	Umiditate
	[% masă, proba inițială]					
Lignit	24.75	2.45	0.54	15.96	32.0	24.30
Rumeguș	28.65	4.94	0.17	45.40	1.6	19.24

*Valoare calculată

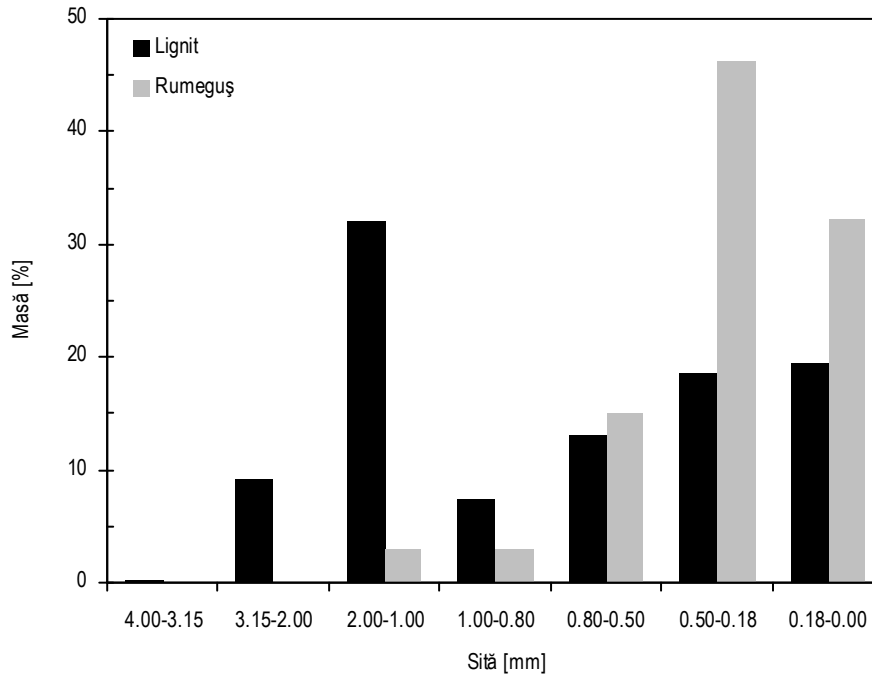


Figura 6.2. Analiza granulometrică a combustibililor

După cum se observă din Tabelul 6.1: (i) conținutul de carbon pentru ambii combustibili este aproximativ același; (ii) pentru rumeguș, cantitatea de sulf și cenușă este de ~3.1 ori și, respectiv, 20 ori mai mică decât a lignitului; și (iii) conținutul de umiditate este mai mare pentru lignit.

Valoarea energetică a lignitului și rumegușului este de aproape 9.7 MJ/kg (puterea calorifică inferioară) și, respectiv, ~14.6 MJ/kg. Dacă se consideră un amestec rumeguș/lignit, cu participația masică a rumegușului, de 10, 20 sau 30% aceasta va reprezenta 14, 27 și, respectiv, 39% de energie „verde” rezultată în urma procesului de ardere, relația (6.1).

$$\%Energie\ „verde” = \frac{\%_r Q_r^i}{(100 - \%_r) Q_c^i + \%_r Q_r^i} \cdot 100 \quad (6.1)$$

în care Q_c^i și Q_r^i sunt puterea calorifică inferioară a cărbunelui și, respectiv, a rumegușului, [MJ/kg];
 $\%_r$ – participația masică a rumegușului, [%].

Din Figura 6.2 rezultă că cea mai mare parte a rumegușului (aproape 80%) are o granulație sub 0.5 mm. Analiza granulometrică a cărbunelui a arătat că 41% din masa totală a cărbunelui are granulație cuprinsă între 1.0 și 3.15 mm.

6.1.2. Volumul gazelor de ardere

Înainte procesului de ardere, conform metodei prezentată în [U1] au fost calculate (i) puterea calorifică inferioară a combustibilului, (ii) cantitatea de oxigen minimă necesară arderii, (iii) cantitatea de aer minimă și reală necesară arderii pentru $\lambda = 1.0-1.3$, (iv) cantitatea diferitor specii de gaze în urma arderii perfecte a combustibilului, și (v) volumul total al gazelor de ardere.

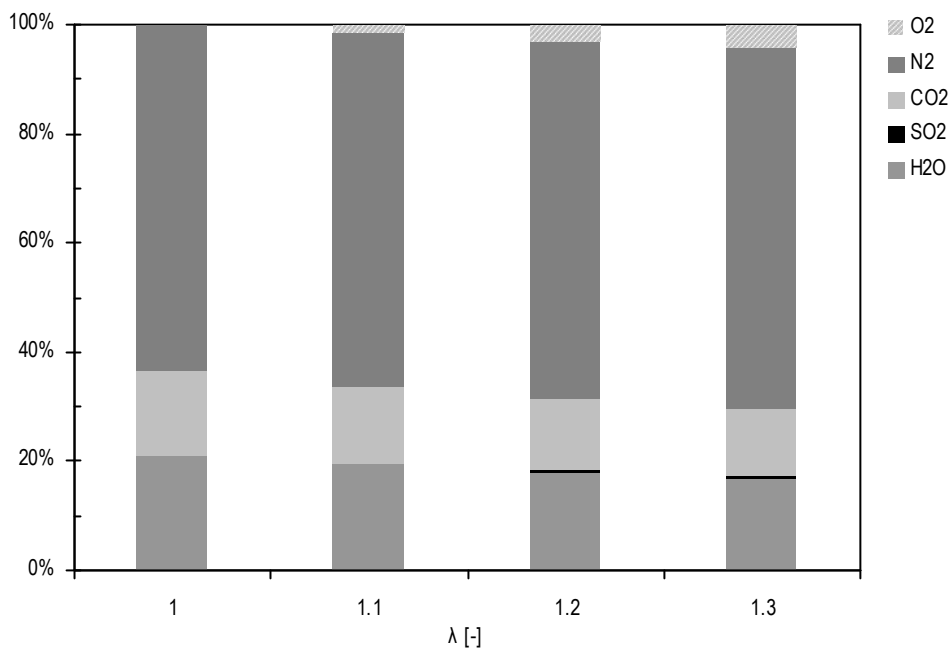


Figura 6.3. Participația volumică a CO₂ în gazele de ardere funcție de coeficientul excesului de aer λ

În Figura 6.3 este redată participația volumică a O₂, N₂, CO₂, SO₂ și H₂O în gazele de ardere calculată funcție de coeficientul excesului de aer λ . După cum se observă, creșterea infiltrărilor de aer fals duce la scăderea concentrației de CO₂ de la aproximativ 15.6% până la 12.5%, SO₂ de la 0.13% până la 0.1%, și a vaporilor de apă de la 20.8% până la 17%. Concentrația de azot și oxigen se mărește cu creșterea excesului de aer de la 64% la 66% și, respectiv, de la 0 la 4%.

Conform literaturii de specialitate [B3, L6, O1, S8] arderea completă a cărbunelui, sau a amestecului biomasă/cărbune, în strat fluidizat are loc în condițiile excesului de aer $\lambda = 1.2-1.3$ (pentru strat fluidizat circulant λ este între 1.1 și 1.2).

Volumul gazelor de ardere, calculat teoretic, rezultat în urma arderii cărbunelui (lignit Motru), în condițiile $\lambda = 1.3$, este dat în Figura 6.4. Se observă că, în cazul în care consumul de combustibil este de $B_c = 10 \text{ kg/h}$, volumul total al gazelor de ardere rezultat este $\sim 37 \text{ m}^3/\text{h}$, din care aproape $5 \text{ m}^3/\text{h}$ este CO₂ [U1].

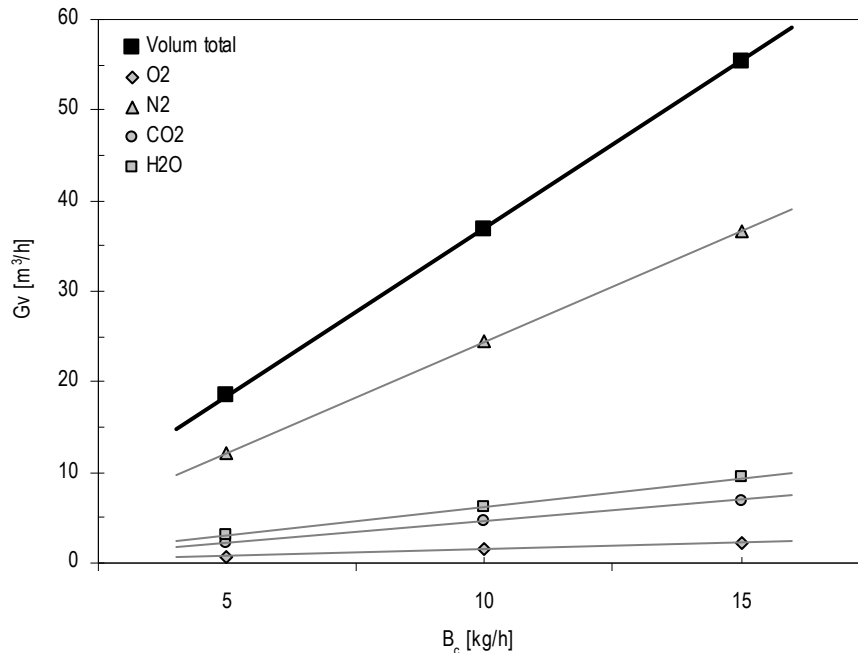


Figura 6.4. Debitul teoretic al gazelor de ardere G_v calculat funcție de debitul combustibilului B_c (lignit Motru) pentru $\lambda = 1.3$

6.1.3. Reținerea CO_2 din gazele de ardere cu soluție de MEA 30% (masă)

Soluția apoasă de monoetanolamină este cea mai utilizată amină pentru separarea dioxidului de carbon din gazele de ardere.

Conform schemei de lucru, gazele de ardere trec printr-o coloană, absorber, în care CO_2 este absorbit de soluția MEA. Concentrația soluției folosite este de 30% (masă). Contactul între cele două faze are loc în contracurent, circulând printr-un strat de umplutură format din inele ceramice de tip Raschig. Temperatura de lucru din absorber este de $\sim 50^\circ C$.

După cum a fost menționat, reacția între CO_2 și MEA este reversibilă. La temperaturi joase are loc absorbția CO_2 de amină, în schimb când este încălzită ea eliberează cea mai mare parte a dioxidului de carbon. Pentru a recupera MEA și de a separa CO_2 , este nevoie ca absorbantul bogat în CO_2 să fie încălzit. Astfel, din absorber, absorbantul bogat în CO_2 este introdus într-un schimbător de căldură. Aici, soluția este încălzită de gazele de ardere până la temperaturi necesare separării (totale sau parțiale) CO_2 de MEA. Absorbantul sărac este apoi recirculat în absorber.

Experimentele efectuate au avut ca scop principal separarea dioxidului de carbon din gazele de ardere cu concentrație CO_2 de 11-15% (volum). De asemenea, s-a investigat (i) efectul concentrației CO_2 asupra eficienței de absorbție în MEA 30%, precum și (ii) influența concentrației de SO_2 din gaze asupra procesului de

reținere CO₂. Gazele de ardere au fost generate în urma arderii simultane a rumegușului cu lignit în strat fluidizat, și arderii numai lignitului.

Debitul de absorbant necesar pentru reținerea CO₂ cu concentrația de ~12.5% din fluxul de gaze este prezentat în Tabelul 6.2. Calculele s-au făcut pentru un raport de 0.4 mol CO₂/mol MEA.

Tabelul 6.2. Debitul (teoretic) de absorbant necesar pentru reținerea dioxidului de carbon cu concentrația de ~12,5%

B_c	G_v (gaze de ardere)	G_v (CO ₂)	L_v (MEA)
[kg/h]	[m ³ /h]	[m ³ /h]	[l/h]
5	18.4	2.3	15.5
10	36.9	4.6	30.9
15	55.3	6.9	46.4

În Figura 6.5 este prezentată variația dioxidului de carbon înainte și după procesul de absorbție. Concentrația CO₂ în gazele de ardere înainte de absorber a variat între 10.8 și 12.0%. Rezultatele experimentale arată că după procesul de absorbție în MEA 30%, concentrația de CO₂ în gazele de ardere s-a micșorat de ~6.1 ori. Eficiența de absorbție CO₂ a fost de 83.8%. De asemenea, trebuie menționată concentrația mică de SO₂ în gazele de ardere înainte de absorber, ~52 ppm. Această valoare este aproape de cea recomandată de Barchas și Davis [B2] și Suda et al. [S10]. Emisiile de NO_x au fost de două ori mai mari decât cele recomandate.

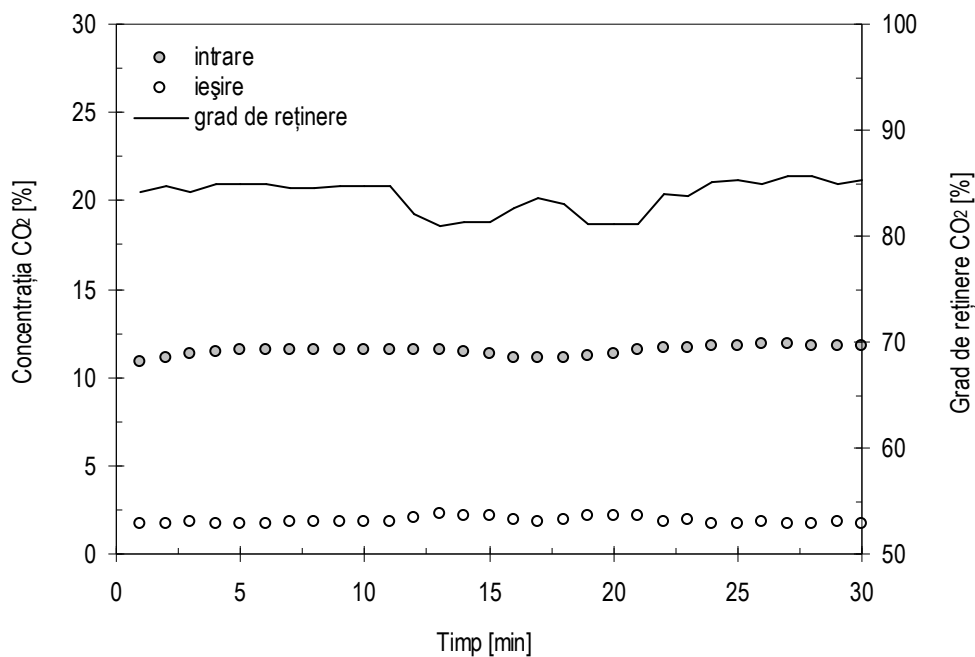


Figura 6.5. Variația CO₂ înainte și după absorbție cu soluție de MEA 30% (masă) (intrare: 11.5% CO₂; 52 ppm SO₂; 121 ppm NO_x). Teste pe arderea rumegușului cu lignit

Creșterea concentrației de dioxid de carbon în gazele de ardere (13.5%) a dus la scăderea eficienței de absorbție cu până la 4% față de cazul precedent, Figura 6.6. Eficiența medie de absorbție CO₂ în MEA 30% a fost de 82.5%. Această scădere poate fi atribuită și conținutului de SO₂ în gazele de ardere mai ridicat.

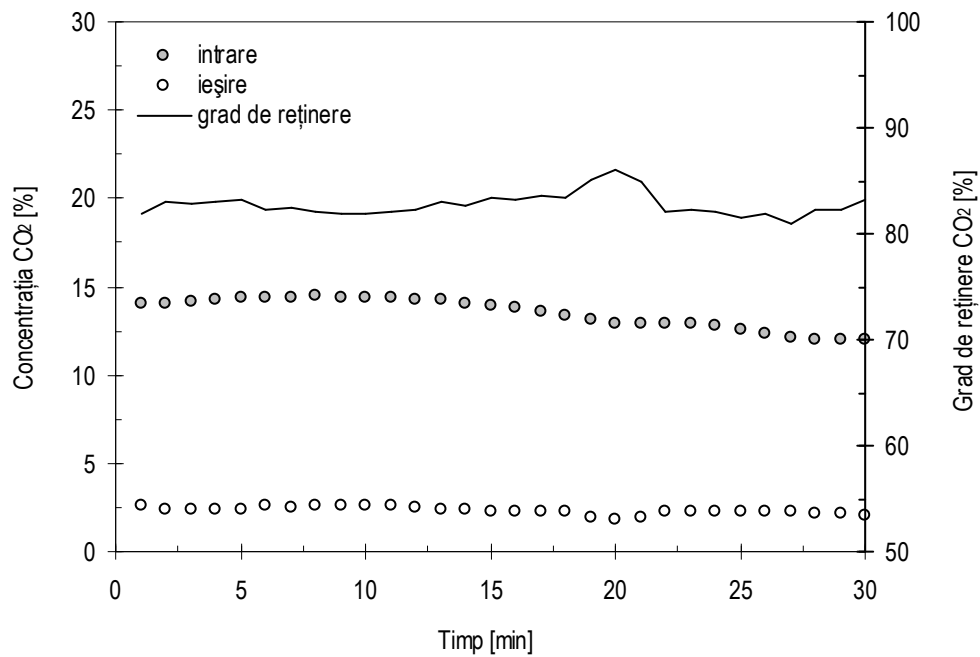


Figura 6.6. Variația CO₂ înainte și după absorbție cu soluție de MEA 30% (masă) (intrare: 13.5% CO₂; 74 ppm SO₂; 123 ppm NO_x). Teste pe arderea rumegușului cu lignit

În Figura 6.7 este prezentată variația CO₂ în gazele de ardere înainte și după absorbție. Se observă efectul negativ al emisiilor SO₂ asupra absorbției CO₂ în MEA. Concentrația dioxidului de carbon înainte de absorbție a variat între 11.7 și ~15%. După injectarea soluției de monoetanolamină, concentrația CO₂ a scăzut până la 2.8-3.9%. Aceasta reprezintă un grad de reținere CO₂ de 75.8%.

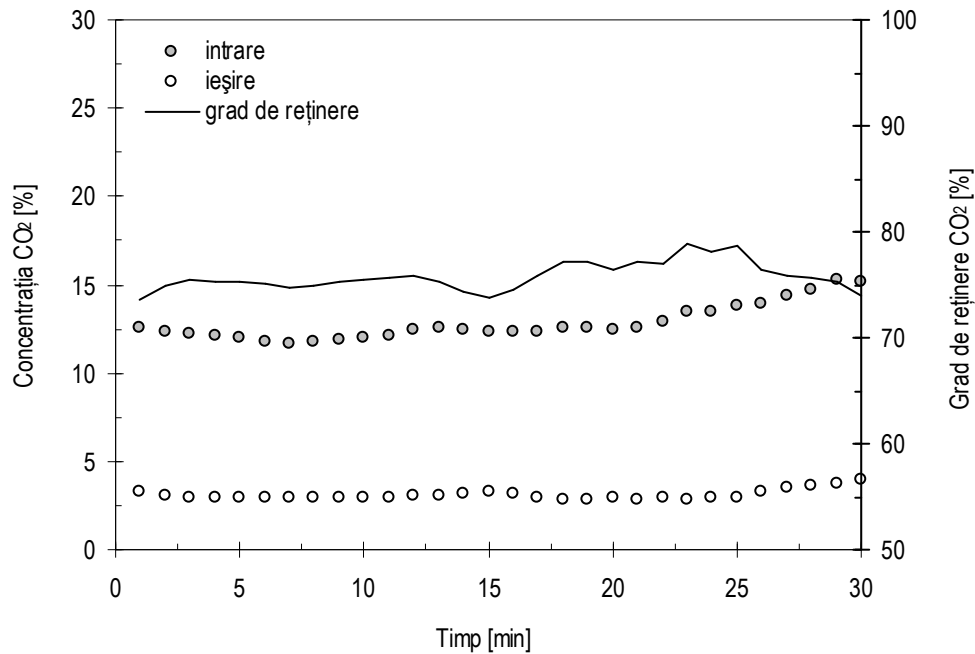


Figura 6.7. Variația CO₂ înainte și după absorbție cu soluție de MEA 30% (masă) (intrare: 12.8% CO₂; 168 ppm SO₂; 180 ppm NO_x). Teste pe arderea lignitului

Absorbția CO₂ din gazele de ardere este afectată prin varierea în limitele mari a concentrației de CO₂ înainte de absorber, Figura 6.8. De asemenea, se observă influența negativă a emisiilor de SO₂ asupra procesului de absorbție CO₂. Eficiența de reținere CO₂ a scăzut până la aproape 67%. Această valoare este cu 9% mai mică față de cazul precedent, în care concentrația medie a emisiilor de SO₂ înregistrată înainte de absorber a fost de 1.5 ori mai mică.

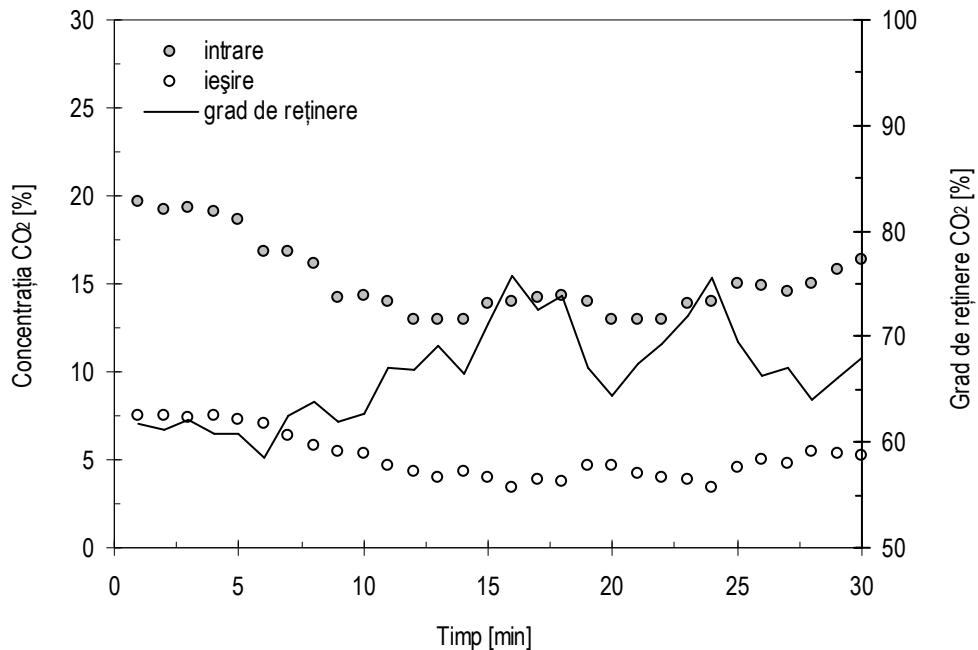


Figura 6.8. Variația CO₂ înainte și după absorbție cu soluție de MEA 30% (masă) (intrare: 15.2% CO₂; 240 ppm SO₂; 170-185 ppm NO_x). Teste pe arderea lignitului

Din rezultatele experimentale prezentate se poate observa că concentrația emisiilor de CO₂ în gazele de ardere este mai mică în cazul arderii simultane a rumegușului cu lignit decât în cazul testelor pe arderea lignitului. Totuși, trebuie menționat, că cantitatea de CO₂ în gazele de ardere depinde de mai multe variabile, cum ar fi, caracteristicile combustibilului, condițiile de lucru și operare.

După cum s-a văzut, prezența altor emisii afectează procesul de absorbție care duce, inevitabil, la diminuarea eficienței de absorbție precum și la degradarea solventului utilizat. Este nevoie de a micșora concentrația lor în gazele de ardere pentru o mai bună absorbție de CO₂.

6.1.4. Reținerea SO₂ din gazele de ardere cu soluție de NaOH 1.5% și 2.5% (masă)

Procesul de desulfurare a gazelor de ardere este un proces absolut obligatoriu, nu numai din motive de a îmbunătăți procesul de absorbție a dioxidului de carbon, ci și de a respecta normele de emisie privind conținutul de sulf în fum.

Obligativitatea reținerii SO₂ înainte de absorbție CO₂ se explică prin faptul că, dioxidul de sulf reacționează cu soluția amină formând un compus stabil din care amina nu se mai regenerează. Reducerea conținutul de sulf în gazele de ardere, înainte de absorber, micșorează riscul degradării rapide a soluției amine în timpul procesului de absorbție.

În prezent, sunt cunoscute mai multe metode de reținere a emisiilor de SO_2 din centrale termo-electrice [B3, I12, O1, Z1], de exemplu (i) prin desulfurarea combustibililor în faza de pre-combustie sau (ii) utilizând procesul de desulfurare primară, adică introducerea de sorbenți în focarele cazanilor, sau (iii) aplicând desulfurarea gazelor de ardere, adică după procesul de ardere.

După cum se poate observa din schema instalației experimentale, este aplicat procedeul de desulfurare post-combustie. Gazele de ardere se introduc în scrubler prin partea de jos a coloanei și sunt spălate cu o soluție de hidroxid de sodiu. Două concentrații diferite ale soluției NaOH au fost considerate, de 1.5% și 2.5% (masă). Pentru a intensifica schimbul de substanță s-au folosit inele ceramice de tip Raschig care au format un strat de aproape 200 mm. În scrubler anhidra sulfuroasă este absorbită de soluția de spălare formând un compus dintre sulfitul de sodiu și apă. În același timp sulfitul de sodiu format absoarbe și el dioxidul de sulf formând sulfitul hidrogenat de sodiu. Astfel, sulfurul poate fi reținut în proporție de 80% și mai mult funcție de mai mulți factori (concentrația NaOH în soluție, concentrația SO_2 în gazele de ardere, prezența altor emisii și altele).

Concentrația dioxidului de sulf în gazele de ardere înainte de scrubler și după desulfurare este prezentată în Figura 6.9.

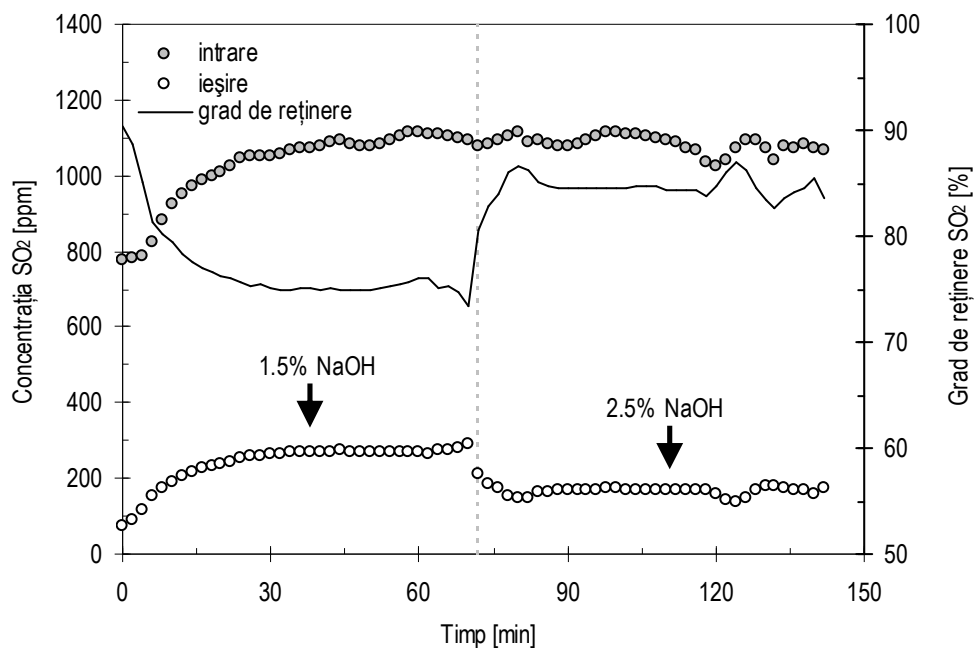


Figura 6.9. Variația SO_2 înainte și după desulfurare cu soluție de NaOH 1.5 și 2.5% (masă). Teste pe arderea lignitului

Pentru generarea gazelor de ardere, cu concentrație mare de SO_2 , s-a folosit numai lignit în procesul de ardere. Rezultatele experimentale au arătat că emisiile de SO_2 variază între 1000 și 1120 ppm. Folosirea soluției NaOH de 1.5% și 2.5% a redus concentrația SO_2 în gazele de ardere la ieșirea din scrubler până la aproape 240 ppm și, respectiv, 167 ppm. Gradul de reținere SO_2 a reprezentat 76.6% cu

folosirea soluției de hidroxid de sodiu cu concentrație de 1.5% și 84.5% pentru soluția mai concentrată de NaOH de 2.5%.

În Figura 6.10 este prezentată variația SO_2 înainte și după aplicarea procedurii de desulfurare cu NaOH de 1.5% și 2.5%. Pentru a vedea efectul concentrației SO_2 în gazele de ardere asupra procesului de reținere, s-au ars simultan rumegușul de fag cu lignitul (în proporție 30% rumeguș și 70% lignit) care au generat emisii de dioxid de sulf de ~542 ppm. În prima parte a testelor, prelevarea gazelor după scrubler a arătat că emisiile de SO_2 au scăzut până la aproape 52-83 ppm cu injectarea NaOH de 1.5%. Aceasta reprezintă un grad de reținere mediu de 86.6%. Folosirea soluției de desulfurare mai concentrată, NaOH 2.5%, a rezultat în emisii de SO_2 între 36 și 71 ppm la ieșire din scrubler. După cum se vede, aproape 90% din totalul de emisii de dioxid de sulf au fost reținute în soluția de NaOH 2.5%.

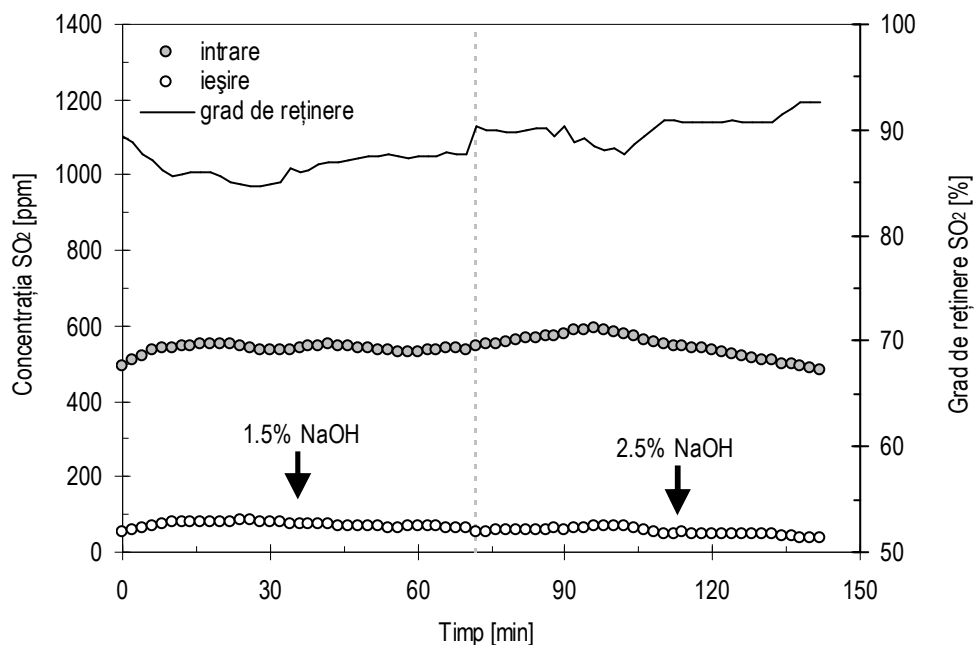


Figura 6.10. Variația SO_2 înainte și după desulfurare cu NaOH de diferite concentrații (1.5 și 2.5% masă). Concentrație mică de SO_2 în gazele de ardere

Comparând rezultatele experimentale din Figura 6.9 cu cele din Figura 6.10, se poate remarca efectul pozitiv al utilizării biomasei, ca combustibil secundar, asupra emisiilor de SO_2 . Arderea simultană a amestecului combustibil, 30% rumeguș și 70% lignit, a condus la scăderea emisiilor de SO_2 de aproximativ 1.9 ori. Însă, această valoare poate fi și mai mare dacă biomasa utilizată ar avea un conținut de sulf și mai mic decât cel al rumegușului din acest studiu.

6.1.5. Efectul soluției de NaOH asupra emisiilor de CO₂

Figura 6.11 arată efectul soluției apoase de hidroxid de sodiu asupra concentrației emisiilor de CO₂ după coloana de reținere SO₂. Se poate observa efectul nesemnificativ a soluției de NaOH asupra comportării emisiilor de CO₂.

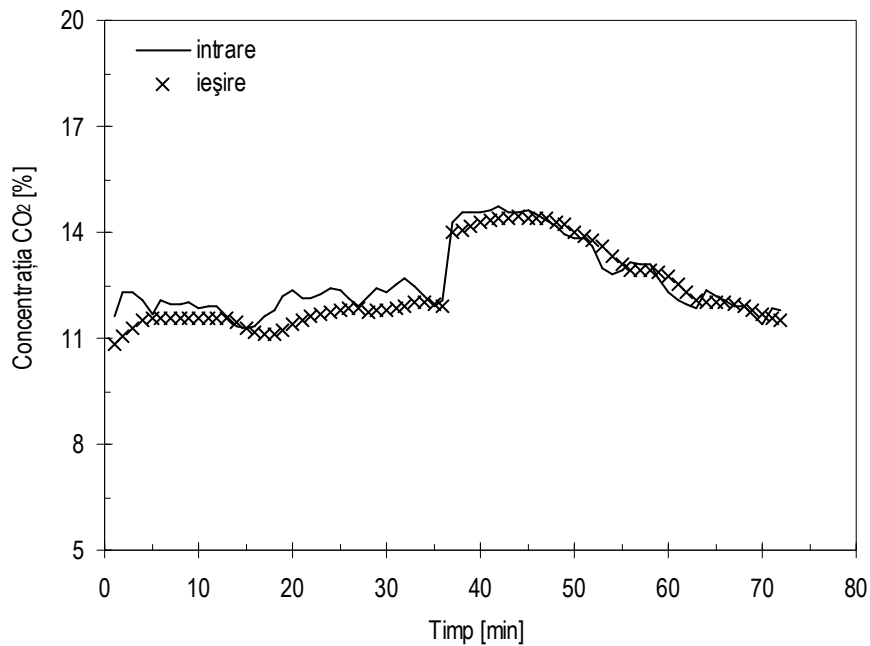


Figura 6.11. Concentrația CO₂ în gazele de ardere la intrare și ieșire din scrubber

6.1.6. Efectul co-arderii asupra suprafețelor din corpul convectiv

Figura 6.12 și 6.13 arată suprafața corpului convectiv și a țevilor după mai multe ore de funcționare a instalației pe arderea simultană a rumegușului cu cărbune. Trebuie de menționat că instalația intră în regim de lucru, relativ constant, după 2-4 ore. Se poate observa efectul nociv asupra suprafețelor din schimbător în timpul destabilizării regimului de lucru prin adăugarea biomasei la combustibilul principal.

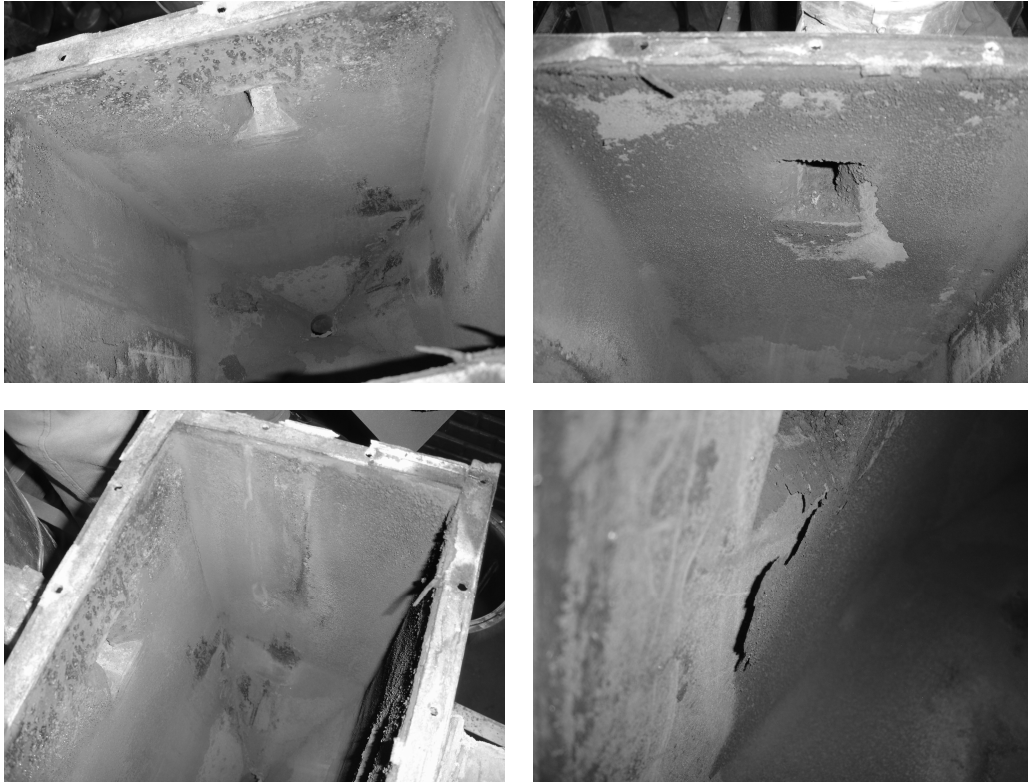


Figura 6.12. Pereții corpului convectiv



Figura 6.13. Pereții țevilor din corpul convectiv

În Figura 6.14 se prezintă serpentina din corpul convectiv înainte și după curățare.



Figura 6.14. Țevile din corpul convectiv înainte și după curățare

6.2. Rezultate numerice

6.2.1. Validarea modelului numeric

Modelul numeric *laminar* și două modele ce descriu regimul turbulent de curgere *k-e (standard, RNG)* și *k-w (standard, SST)* au fost considerate în acest studiu. Opțiunea *Enhanced Wall Treatment* a fost inclusă pentru modele de turbulență.

Figura 6.15 și 6.16 compară rezultatele numerice cu cele teoretice pentru coeficientul de convecție termică a și, respectiv, pierderea de presiune Δp la curgerea gazelor de ardere printr-un tub neted, cu geometria dată în Tabelul 4.2.

Coeficientul de convecție teoretică a s-a calculat din relația (4.18) în care Nu este dat de Hausen (*laminar*) și Gnielinski (*tranzitoriu-turbulent*), iar căderea de presiune este calculată cu relația (4.28), în care coeficientul de frecare f se determină din relația lui Poiseuille (*laminar*) și Petukhov (*tranzitoriu-turbulent*).

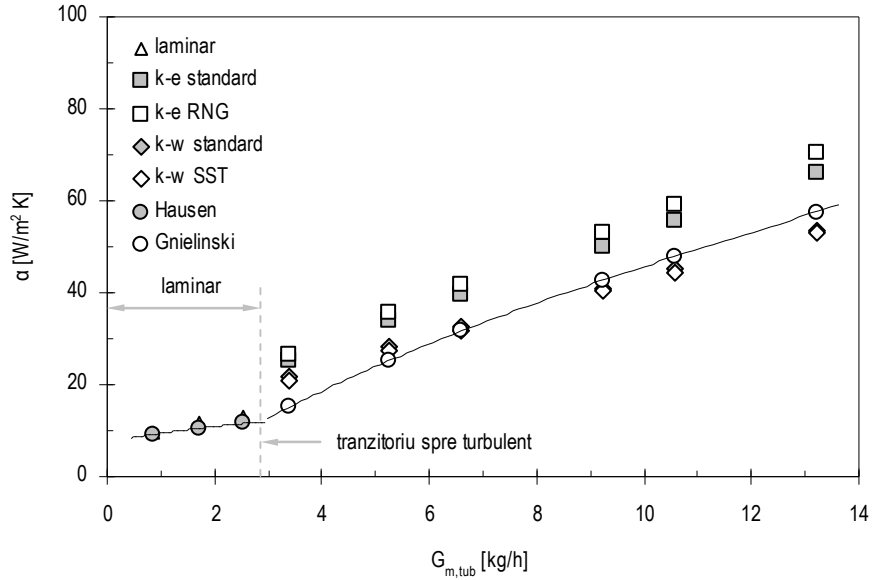


Figura 6.15. Compararea coeficientului de convecție a numeric cu cel teoretic pentru domeniul de curgere a gazelor de ardere *laminar-tranzitoriu-turbulent* prin tub simplu

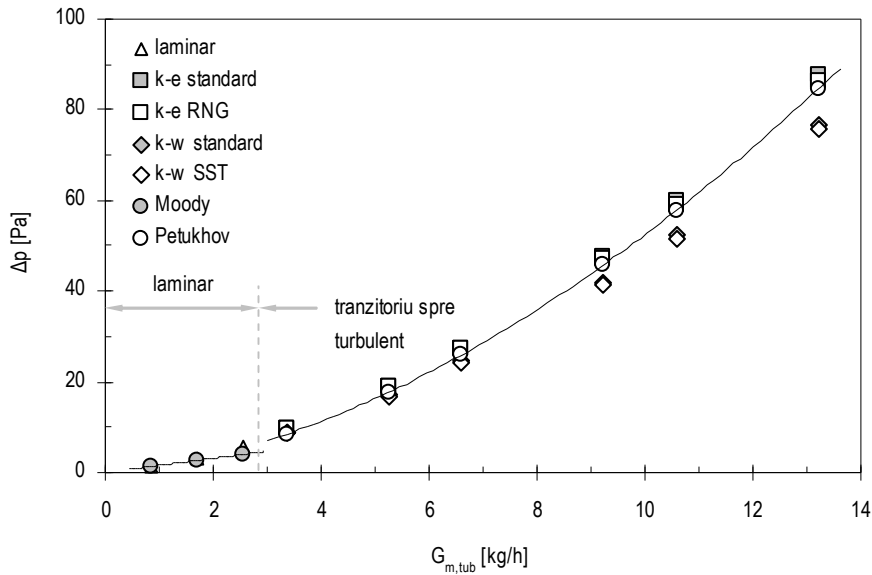


Figura 6.16. Compararea pierderilor de presiune Δp numeric cu cel teoretic pentru domeniul de curgere a gazelor de ardere *laminar-tranzitoriu-turbulent* prin tub simplu

Se observă că diferența medie între rezultatele numerice și cele teoretice sunt de $\sim 9.2\%$ (*laminar*), $\sim 32.7\%$ (*k-e*) și $\sim 5.7\%$ (*k-w*) pentru coeficientul de convecție, și de $\sim 16.5\%$ (*laminar*) și $\sim 6.0\%$ (*k-e*, *k-w*) pentru căderea de presiune în tub. Deși, diferența, destul de mare, dintre rezultatele modelului *k-e* și rezultatele teoretice pentru coeficientul de convecție, se poate observa că coeficientul de convecție numeric are aproape același unghi de creștere cu a teoretic, ceea ce nu se observă la modelul *k-w*. O examinare mai atentă a rezultatelor din Figura 6.16 arată că modelul *k-e* este cel mai aproape de valoarea teoretică. Trebuie totuși menționat că, datele experimentale nu neapărat coincid cu cele teoretice. Valabilitatea relațiilor de calcul poate fi între $\pm 15\%$ până la $\pm 25\%$. De aici, se poate concluziona că, toate cele trei modele numerice sunt, mai mult sau mai puțin precise și pot fi aplicate.

6.2.2. Simularea numerică a procesului de curgere și schimb de căldură în spațiul tubular cu și fără generatori de turbulență

Simularea numerică a procesului de schimb de căldură și de curgere a gazelor prin țeavă simplă, țeavă cu benzi răsucite și prin spațiul tubular întreg, fără generatori de turbulență, a schimbătorului de căldură sunt prezentate în continuare. Rezultatele numerice se vor prezenta sub forma de (i) coeficientul de convecție termică a pentru interpretarea și descrierea procesului termic, și (ii) căderea de presiune Δp pentru descrierea procesului de curgere.

Rezultatele numerice pentru cazurile cu benzi răsucite au fost validate și comparate cu relațiile lui Manglik și Bergles [M2-M4]. Compararea coeficientului de convecție termică obținut numeric cu cel teoretic a arătat o diferență de $\pm 10\%$. Pierderea de presiune rezultată numeric variază între -5 și $+5\%$ față de pierderea de presiune calculată teoretic. Această eroare este în limitele acceptabile.

Coeficientul de convecție pentru gazele de ardere ce curg prin tub simplu și tuburi cu generatori de turbulență tip bandă răsucită este dat în Figura 6.17. Se observă că, a se mărește cu mărirea debitului masic al gazelor de ardere. Procesul de schimb de căldură este îmbunătățit cu ajutorul benzilor răsucite introduse în canalul de curgere a gazelor. Astfel, pentru modelul numeric B1 ($y = 3$) coeficientul de convecție termică crește cu $125-179\%$ față de coeficientul de convecție realizat în țeava simplă, pentru B2 ($y = 4$) cu $112-154\%$, pentru B3 ($y = 5$) cu $110-145\%$ și pentru B4 ($y = 6$) cu $103-127\%$. Valoarea maximă a coeficientului de convecție, la curgerea gazelor de ardere cu debitul de $G_m = 4.7$ kg/h (debit per tub), pentru tuburi cu benzi de $y = 3, 4, 5$ și 6 este de, aproape $60, 55, 53$ și, respectiv, 50 W/m² K. Această mărire a coeficientului de convecție, în comparație cu coeficientul de convecție pentru țeavă netedă, se poate explica prin faptul că, creșterea vitezei (tangențiale) de curgere și micșorarea secțiunii transversale (prin introducerea benzii răsucite), duce la turbionarea curentului mai intensă.

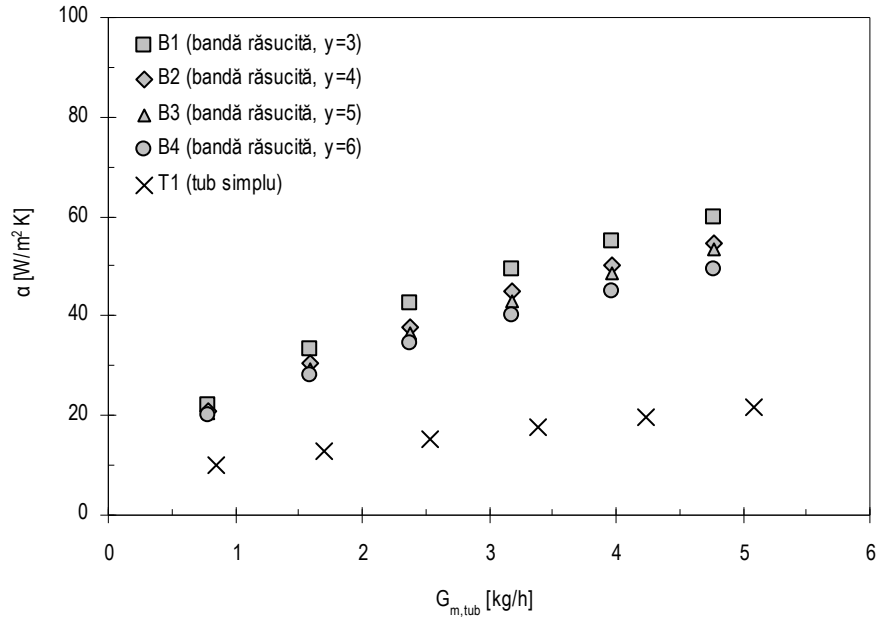


Figura 6.17. Coeficientul de convecție termică a funcție de debitul gazelor $G_{m,tub}$ prin tub simplu și tuburi cu benzi răsucite

Pierderile de presiune prin țevi cu benzi răsucite cresc, considerabil, cu 266-431%, în comparație cu căderea de presiune în țeavă simplă, Figura 6.18. După cum a fost de așteptat, Δp crește cu micșorarea factorului geometric al benzii y . Pentru tubul cu geometria benzii $y = 3$ ($h_b = 60$ mm), pierderile de presiune se măresc cu 373-431%, pentru $y = 4$ cu 305-345%, pentru $y = 5$ cu 281-309% și pentru cazul cu cel mai mare pas al benzii ($h_b = 120$ mm), $y = 6$, pierderile de presiune au crescut cu 266-284% funcție de debitul gazelor de ardere.

În Figura 6.19 sunt redate performanțele termice obținute pentru țevi cu benzi răsucite de diferite geometrii $y = 3, 4, 5$ și 6 . Aici, coeficienții de convecție termică, pentru curgere prin bandă răsucită a și pentru țeavă simplă a_o , sunt raportați ambii la suprafața interioară a țevii și se referă la același debit masic al gazelor de ardere. Coeficientul de convecție în curgere turbionară a crește odată cu micșorarea lui y . Astfel încât, pentru domeniul de curgere analizat ($580 < Re < 3460$), a crește de 2.03-2.27 ori pentru cazul B4 ($y = 6$), 2.10-2.45 pentru B3 ($y = 5$), 2.12-2.54 pentru B2 ($y = 4$) și 2.25-2.79 pentru B1 ($y = 3$). De asemenea, se poate de notat o diferență de $\sim 20\%$ dintre cazul B1 și B4.

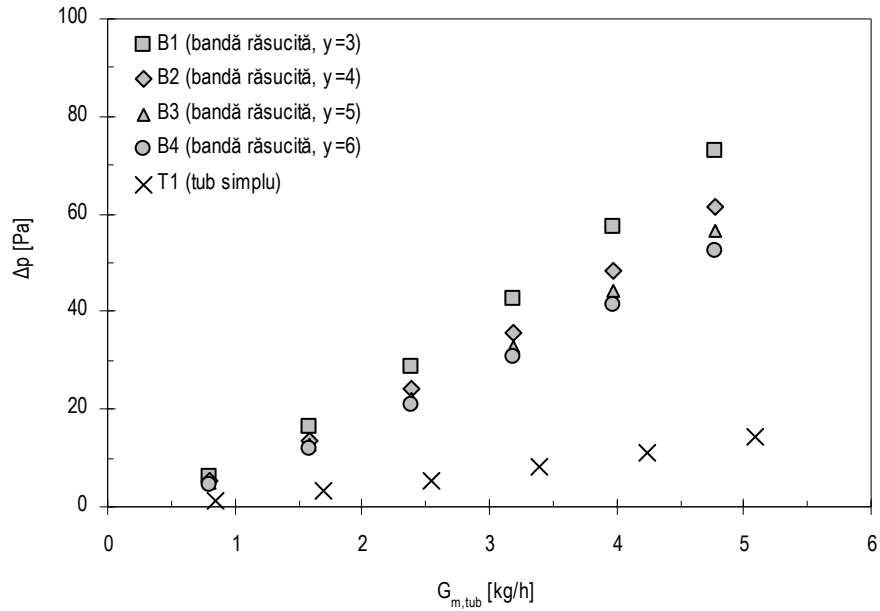


Figura 6.18. Pierdere de presiune Δp funcție de debitul gazelor $G_{m,tub}$ prin tub simplu și tuburi cu benzi răsucite

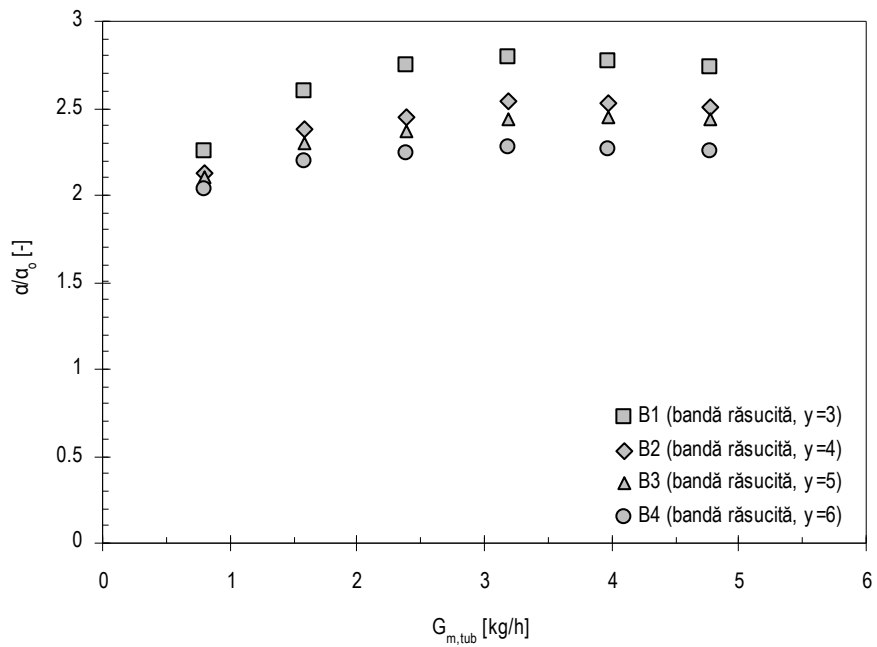


Figura 6.19. Variația raportului a/a_0 funcție de debitul gazelor $G_{m,tub}$ prin tuburi cu benzi răsucite

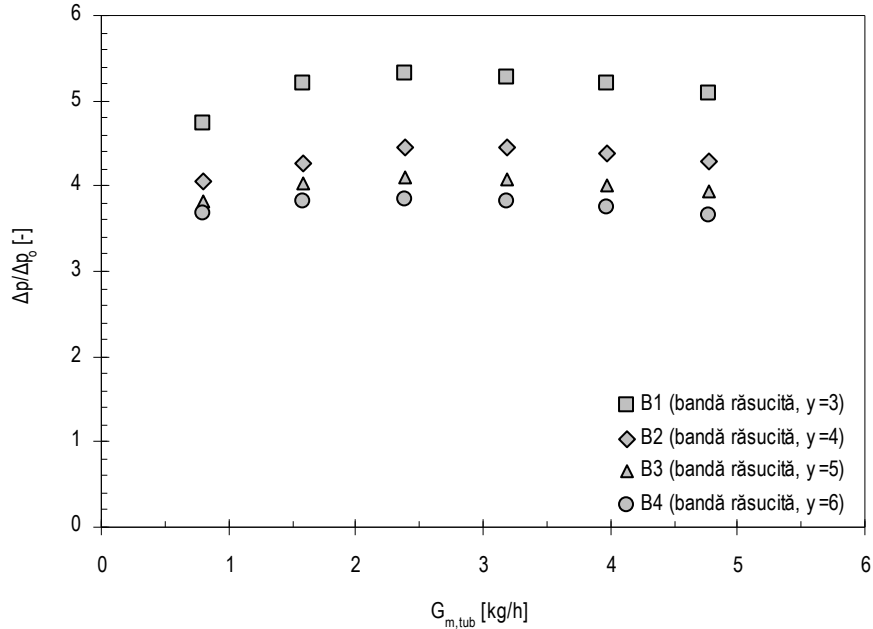


Figura 6.20. Variația raportului $\Delta p/\Delta p_0$ funcție de debitul gazelor $G_{m,tub}$ prin tuburi cu benzi răsucite

După cum se observă din Figura 6.20, curgerea gazelor prin țevi cu benzi răsucite duce la creșterea pierderilor de presiune, de aproape 5.1 ori pentru tubul cu geometria benzii $\gamma = 3$, 4.3 ori pentru $\gamma = 4$, 4.0 ori pentru $\gamma = 5$ și de 3.8 ori pentru $\gamma = 6$ față de pierderile printr-o țevă simplă. Valoarea maximă a raportului $\Delta p/\Delta p_0$ este înregistrată pentru țeava cu bandă răsucită cu cel mai mic factor geometric ($\gamma = 3$) și scade simțitor cu mărirea pasului h_b . Tendința crescătoare a raportului $\Delta p/\Delta p_0$ se observă pentru debite mici și descrescătoare cu creșterea debitului masic al gazelor de ardere ($G_{m,tub} > 3$ kg/h). Examinând cele patru cazuri și comparându-le rezultă că, Δp pentru cazul B1 sunt cu $\sim 37\%$ mai mari decât B4, $\sim 28.5\%$ mai mari decât B3 și $\sim 19\%$ mai mari decât B2.

Câmpul de temperatură la curgerea gazelor de ardere prin tuburi cu benzi răsucite la distanțe diferite de la intrare ($0.25l_t$, $0.5l_t$ și $0.75l_t$) este redat în Figura 6.21. Compararea celor patru cazuri, pentru același debit ($G_{m,tub} = 3.2$ kg/h), arată că temperatura gazelor la ieșire din țeava cu banda de $\gamma = 3$ este cea mai mică, ceea ce indică un mai bun transfer de căldură. De asemenea, se poate observa că temperatura scade cu micșorarea pasului h_b .

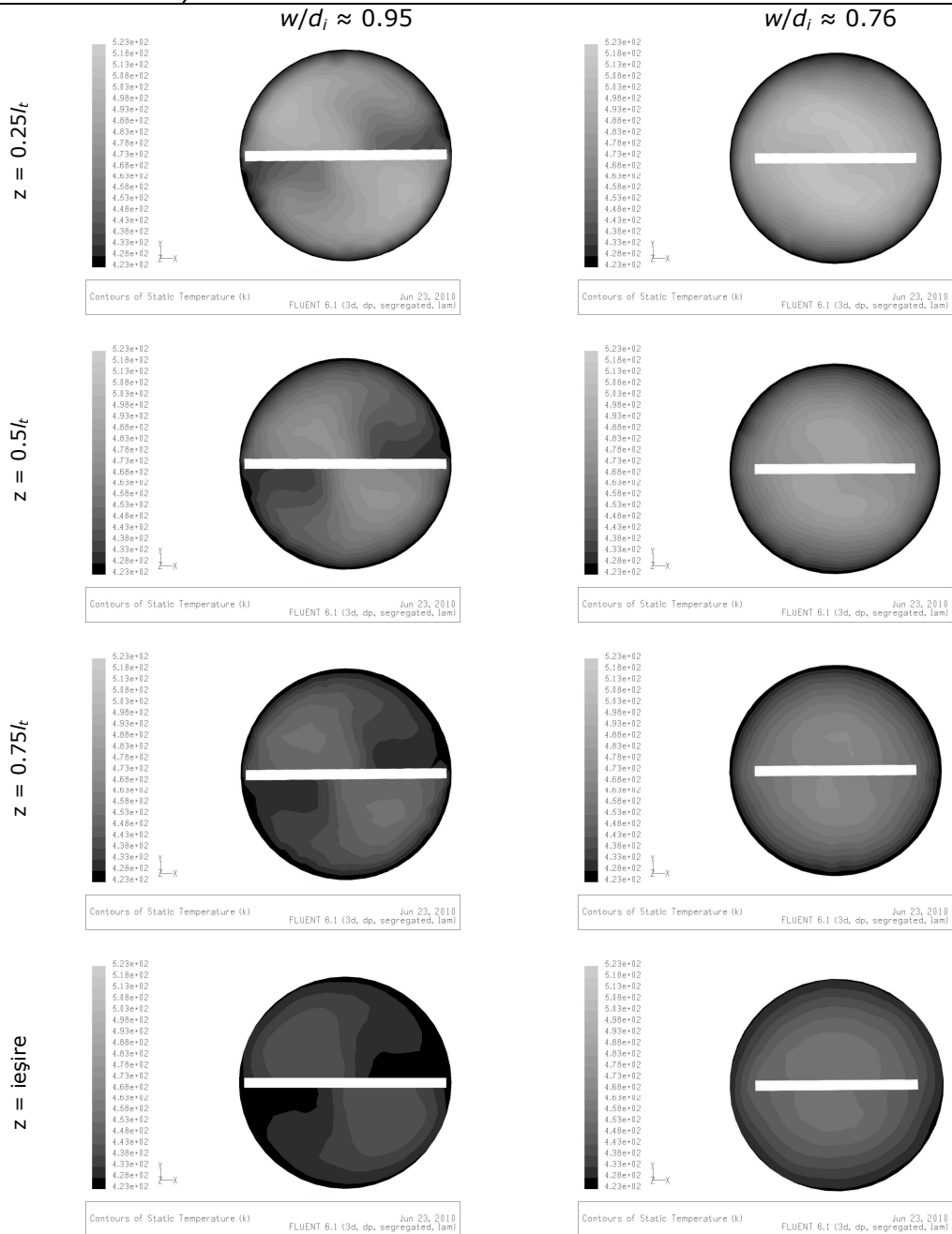
Banda rășucită: $y = 3$ 

Figura 6.21. Câmpul de temperaturi la curgerea gazelor de ardere ($G_{m,tub} = 3.2$ kg/h) prin tuburi cu benzi rășucite pentru pasul relativ $y = 3$

În Figura 6.22 este dată distribuția temperaturii la ieșire din spațiul tubular cu generatori de turbulență pentru cazurile $w/d_i \approx 0.95$ și 0.76 , și $y = 3, 4, 5$ și 6 .

Secțiunea de ieșire

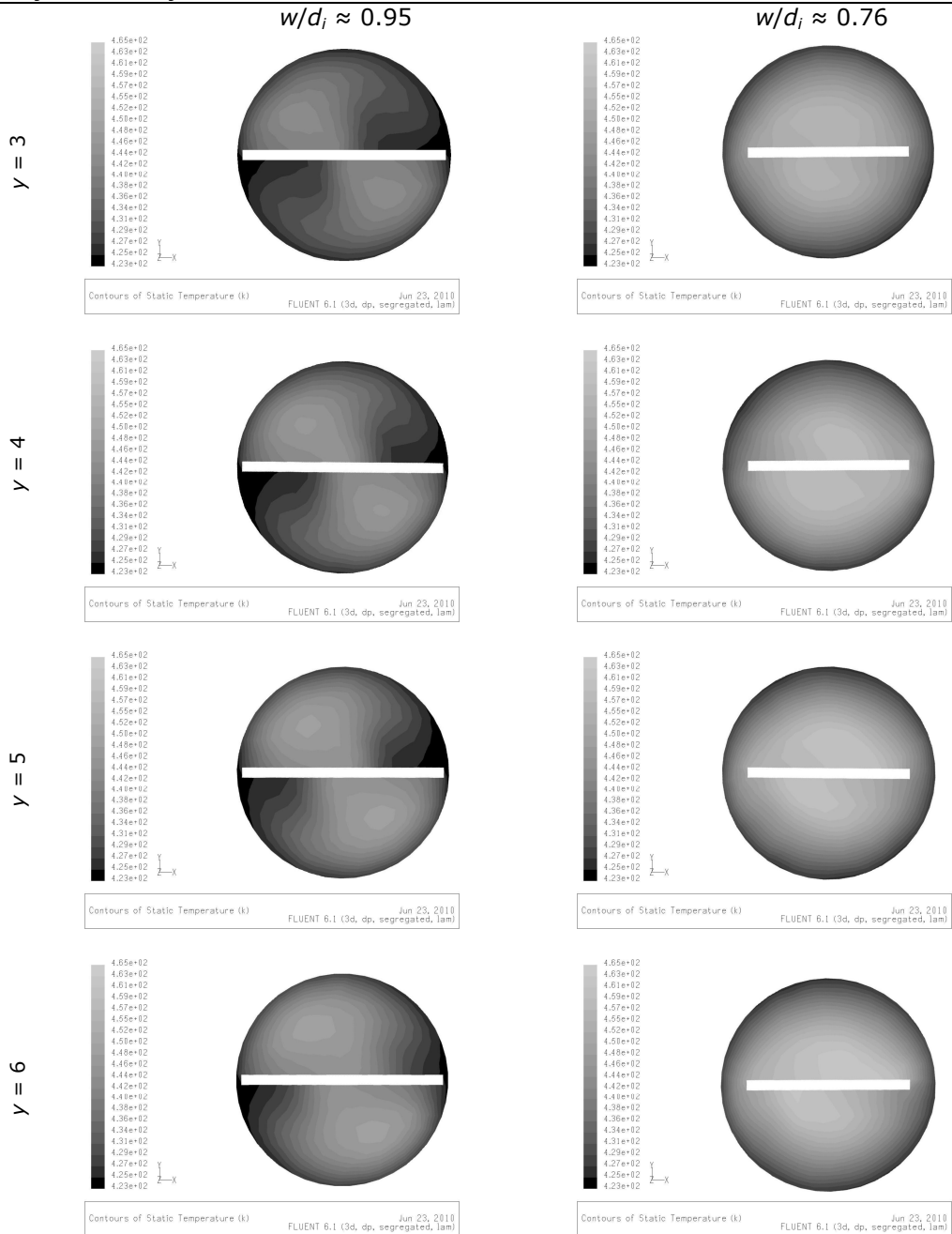


Figura 6.22. Câmpul de temperaturi la ieșirea gazelor de ardere ($G_{m,tub} = 3.2$ kg/h) din tuburi cu benzi răsucite pentru $y = 3, 4, 5$ și 6

Câmpul de temperatură la curgerea gazelor prin tuburi cu benzi răscucite ($w/d_i \approx 0.95$ și 0.76 și $\gamma = 4, 5$ și 6) la distanțe diferite de la intrare ($0.25l_t$, $0.5l_t$ și $0.75l_t$) este redat în Anexa A.

Figura 6.23 compară coeficientul de convecție mediu rezultat în urma curgerii fluidului prin tub simplu cu cel obținut din tuburi cu benzi $w/d_i \approx 0.95$ și 0.76 pentru același debit de curgere. În primul caz cu banda $w/d_i \approx 0.95$ coeficientul de convecție mediu crește 150% față de cel realizat în tub simplu, iar în cazul utilizării benzii cu joc $w/d_i \approx 0.76$ coeficientul de convecție mediu crește numai cu 84%.

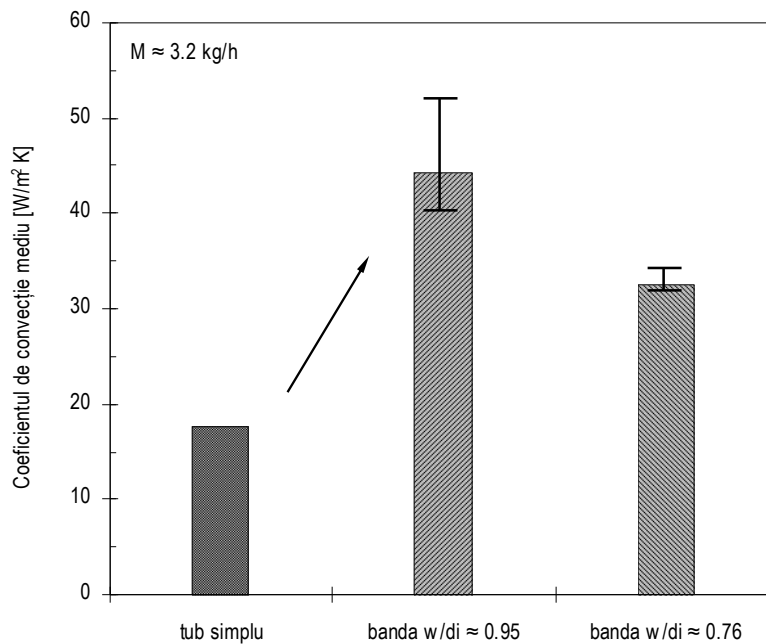


Figura 6.23. Compararea dintre coeficientul de convecție mediu obținut prin tub simplu cu cel din tuburi cu benzi răscucite $w/d_i \approx 0.95$ și 0.76

Figura 6.24 compară pierderile de presiune prin tub simplu cu cele din tuburi cu benzi $w/d_i \approx 0.95$ și 0.76 pentru același debit de curgere. Pierderile de presiune au crescut semnificativ cu 340% și 327% pentru $w/d_i \approx 0.95$ și, respectiv, 0.76 față de cele prin tub fără generatori de turbulență.

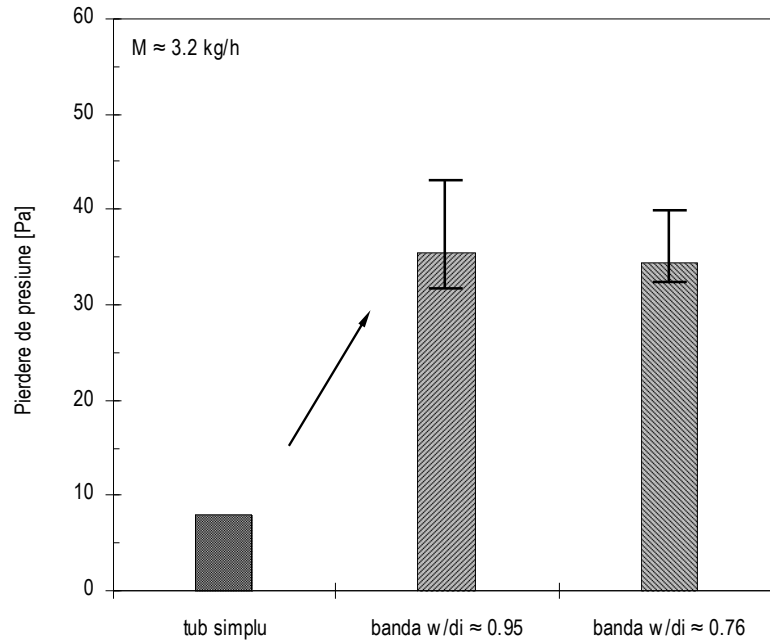


Figura 6.24. Compararea dintre valoarea medie a pierderilor de presiune prin tub simplu cu rezultatele din tuburi cu benzi răsucite $w/d_i \approx 0.95$ și 0.76

Rezultatele numerice a procesului termic și de curgere a gazelor prin spațiul tubular, întreg, fără generatori de turbulență, sunt prezentate în Figura 6.25 și 6.26. Câmpul de temperaturi este arătat în Figura 6.27.

Coeficientul de convecție mediu pentru spațiul tubular întreg este puțin mai mare decât coeficientul de convecție rezultat din calculele pentru tub neted. Această diferență se datorează faptului că în formulele de calcul temperatura medie la ieșire din aparat diferă, mai mult sau mai puțin, de cea pentru un tub simplu.

Pierderea de presiune totală prin spațiul tubular este de <60 Pa funcție de debit, Figura 6.26. Creșterea lui Δp este evidentă deoarece fluxul de gaze trece printr-o serie de etape prin spațiul tubular, și anume lărgire bruscă, intrarea în fascicolul de țevi, curgerea prin el și ieșirea din fascicol, întoarcere la 90° și îngustare bruscă la ieșire din schimbător. După cum rezultă din Figura 6.18, căderea de presiune prin tub simplu este de până la 20 Pa, funcție de debit. De aici se poate concluziona că aproape 70% din căderea de presiune totală este căderea de presiune la curgerea gazelor de ardere prin racordul de intrare și capac, și fund și racordul de ieșire.

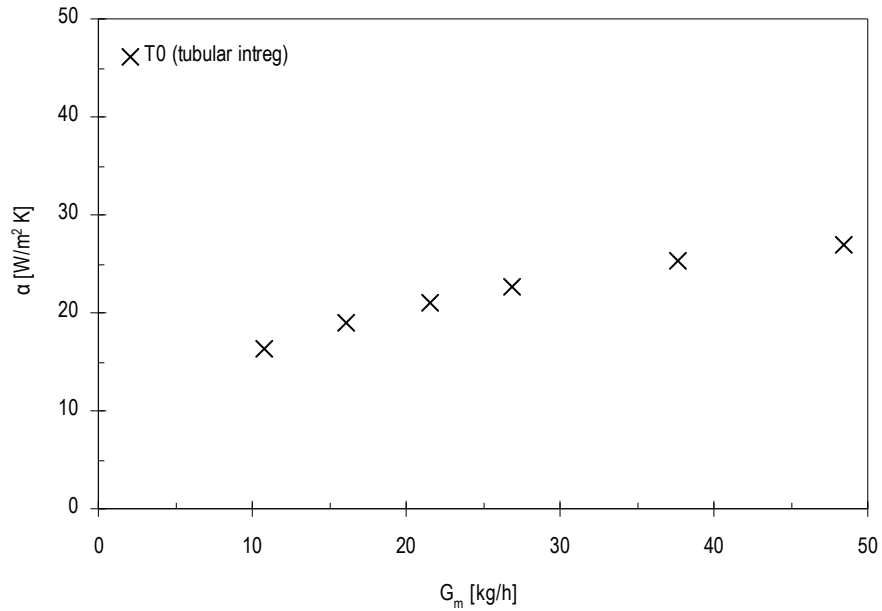


Figura 6.25. Coeficientul de convecție termică α funcție de debitul gazelor G_m prin spațiul tubular fără generatori de turbulență

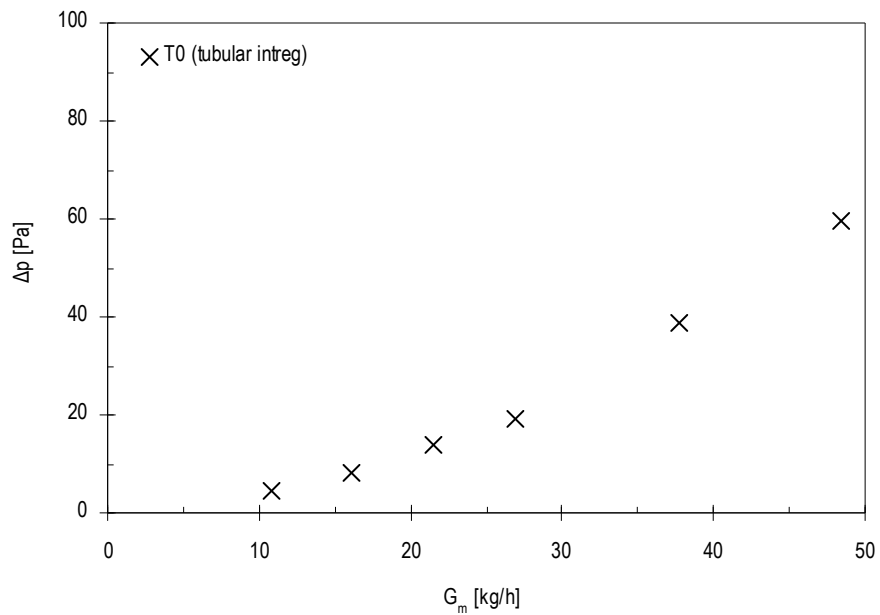


Figura 6.26. Pierdere de presiune totală Δp funcție de debitul gazelor G_m prin spațiul tubular fără generatori de turbulență

Conturul de temperatură la curgerea gazelor prin spațiul tubular, întreg, de la intrare până la ieșire, pentru două debite diferite de 10.8 și 48.5 kg/h, este redat în Figura 6.27.

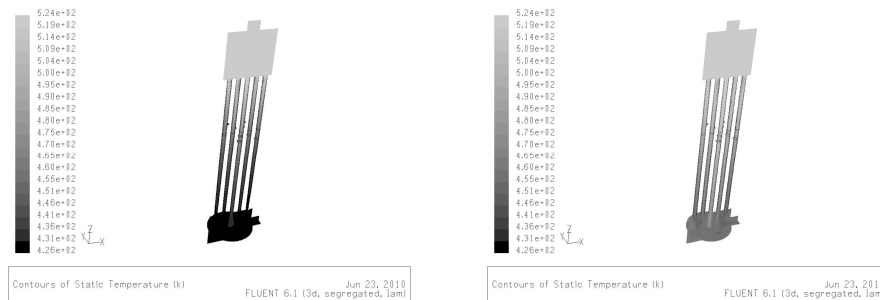


Figura 6.27. Câmpul de temperaturi la curgerea gazelor de ardere prin spațiul tubular (în stânga) pentru debitul de 10.8 kg/h și (în dreapta) pentru 48.5 kg/h

Din imagini se observă că temperatura gazelor nu este uniformă prin țevi. Temperatura prin țeava centrală este mai mare decât prin țevile periferice, deoarece debitul gazelor de ardere este mai mare și, prin urmare, viteza este mai mare. Pentru ca debitul să fie uniform la intrare în fascicul și pentru uniformizarea temperaturii, este nevoie ca în capacul schimbătorului de căldură să fie montat un corp, de exemplu de formă conică, care ar devia curentul de gaze de la centru.

6.2.3. Simularea numerică a procesului de curgere și schimb de căldură în spațiul extratubular cu și fără șicane

Intensificarea transferului de căldură în spațiul extratubular se face prin instalarea unor șicane, care pot fi de mai multe tipuri: segment de cerc, disc și inel, elicoidale continuu și discontinuu. De asemenea, transferul de căldură poate fi îmbunătățit și prin blocarea spațiului format între șicană și manta, prin amplasarea benzilor de ocolire, dacă distanța dintre țevile periferice din fascicul și manta este mare, sau prin alegerea unghiului de atac al fluidului față de țevi.

Spațiul extratubular fără șicane și cu șicane, cu dimensiunea și amplasare racordurilor de intrare/ieșire diferită au fost modelate numeric și analizate. Au fost create șase geometrii a spațiului extratubular (E1.1, E1.2, E2.1, E2.2, E3.1 și E3.2), detaliile și caracteristicile geometrice ale cărora sunt date în Tabelul 4.1 și, respectiv, Tabelul 4.2 din Capitolul 4.

Șicanele tip segment, clasice, au fost alese pentru acest studiu ($S = 25\%$, $n_s = 8$). Scurgerile de fluid prin spațiul dintre șicană și manta, și șicană și țevi au fost considerate nule ($D_s = 207$ mm, $d_s = 25$ mm). Diametrul racordurilor de intrare/ieșire a fost de 9 mm, reprezentând cazul real, și 21 mm. Această lărgire va duce la reducerea pierderilor de presiune prin spațiul extratubular. De asemenea, s-a investigat efectul curgerii fluidului peste un fascicul de țevi, așezat 60° și 30° , asupra procesului de schimb de căldură.

După cum a fost menționat, prin spațiul extratubular circulă un absorbant bogat în CO_2 care este încălzit până la temperaturi de $\sim 95^\circ\text{C}$, temperatură necesară pentru desorbție și regenerarea absorbantului. Când acesta nu este trecut prin aparat, răcirea gazelor de ardere se face cu apă.

Proprietățile termofizice ale absorbantului bogat în CO_2 variază mult funcție de concentrația solventului, concentrația lui CO_2 în amestec după absorbție, prezența altor compuși, de temperatură, etc. Pentru a simplifica procesul de calcul, apa este considerată ca agentul termic care circulă prin spațiul extratubular.

Metoda lui Gaddis și Gnielinski [G1, G2], descrisă mai devreme, pentru calculul coeficientului de convecție termică α și pierderilor de presiune prin spațiul extratubular Δp , este selectată pentru a compara rezultatele numerice cu cele teoretice.

Distribuția și curgerea fluidului, în interiorul mantalei, perpendicular peste un fascicul de țevi așezat 60° și 30° față de direcția curgerii este arătat în Figura 6.28. Simularea 2D a avut ca prim scop vizualizarea curgerii și influența modului de așezare a țevilor în mantaua schimbătorului asupra fluxului de fluid. În Figura 6.28 din stânga se observă clar formarea unor canale preferențiale de mișcare a fluidului printre țevi. Iar în Figura 6.28 din dreapta, fasciculul de țevi este mai bine spălat de fluid ceea ce va duce, imediat, la creșterea schimbului de căldură.

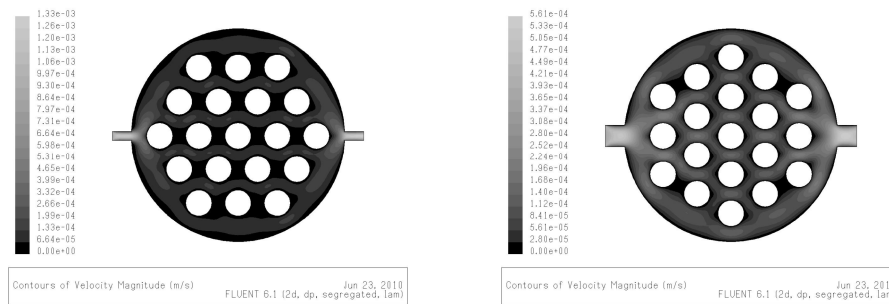


Figura 6.28. Curgerea fluidului peste un fascicul de țevi așezat (în stânga) 60° , $d_{ir} = 9$ mm și (în dreapta) 30° , $d_{ir} = 21$ mm

Intensificarea procesului termic prin spațiul extratubular, pentru geometriile E1.1 și E1.2, este arătat în Figura 6.29, iar căderea de presiune în Figura 6.30. Pentru modelul geometric E1.2, coeficientul de convecție α crește cu ~ 50 - 90% față de modelul fără șicane E1.1. Creșterea lui α devine mai accentuată cu creșterea debitului masic al apei L_m . Comparând rezultatele numerice cu cele teoretice, se observă o diferență foarte mare între coeficientul de convecție calculat numeric pentru spațiul extratubular cu șicane și cel calculat teoretic. Aceasta reprezintă o diferență medie de aproximativ 40% . Aceeași diferență, între numeric și teoretic, se observă și pentru pierdere de presiune. Căderea de presiune pentru cele două modele este aproape aceeași.

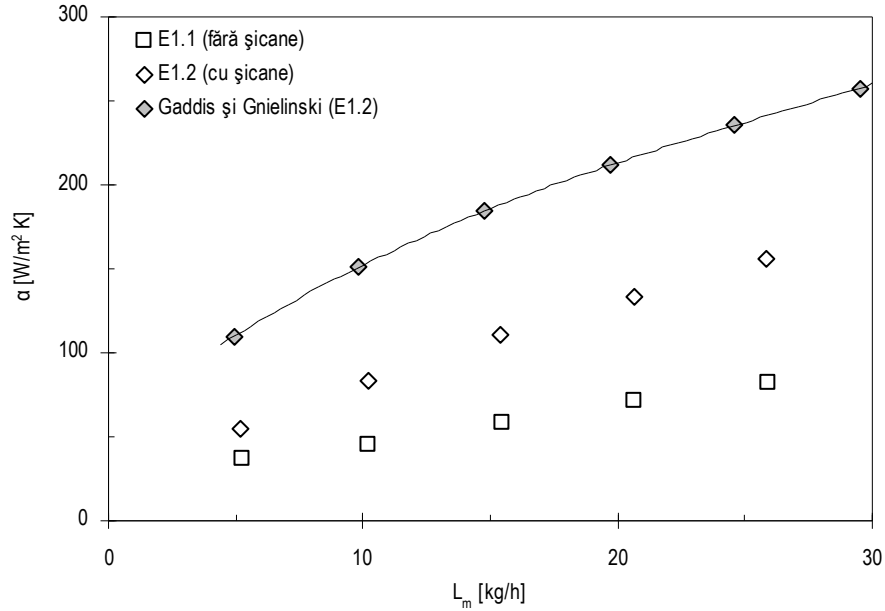


Figura 6.29. Coeficientul de convecție α calculat numeric și teoretic funcție de debitul lichidului L_m prin spațiul extratubular cu și fără șicane (E1.1, E1.2)

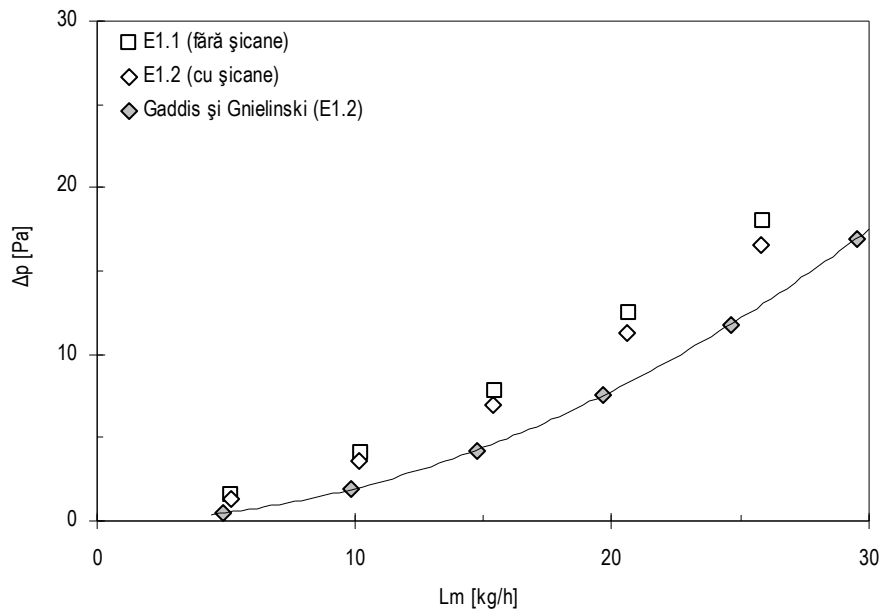


Figura 6.30. Pierdere de presiune Δp calculat numeric și teoretic funcție de debitul lichidului L_m prin spațiul extratubular cu și fără șicane (E1.1, E1.2)

În Figura 6.31 și 6.32 se prezintă coeficientul de convecție și, respectiv, pierdere de presiune prin spațiul extratubular al modelelor E2.1, E2.2, E3.1 și E3.2. De asemenea, sunt prezentate și rezultatele calculelor teoretice. Coeficientul de convecție prin spațiul extratubular cu șicane E3.2 este cel mai mare dintre modelele prezentate. Se poate nota o creștere de ~15% față de modelul E2.2 și o creștere de până la 140% față de modelele E2.1 și E3.1. Valorile lui a pentru spațiul extratubular fără șicane E2.1 și E3.1 sunt aproape aceleași, care cresc până la ~73 W/m² K pentru E2.1 și ~74 W/m² K pentru E3.1. Diferența dintre rezultatele numerice și cele teoretice pentru coeficientul de convecție, pentru modelul E3.2, este de aproape 20% față de teorie, iar pentru Δp este de 40%. Din Figura 6.32 se observă o ușoară scădere a pierderilor de presiune a modelului E3.1 față de E2.1 și E3.2 față de E2.2. Această micșorare este de ~2%. Din punct de vedere termic și al pierderilor de presiune, modelul numeric E3.2 este cel mai bun, coeficientul de convecție este cel mai mare iar pierderile de presiune sunt cele mai mici față de modelele cu șicane. Prin urmare, acesta va fi propus spre modificarea schimbătorului de căldură real care include opt șicane tip segment, mărirea racordurilor de intrare și ieșire, și schimbarea poziției lor cu 30° față de așezarea actuală.

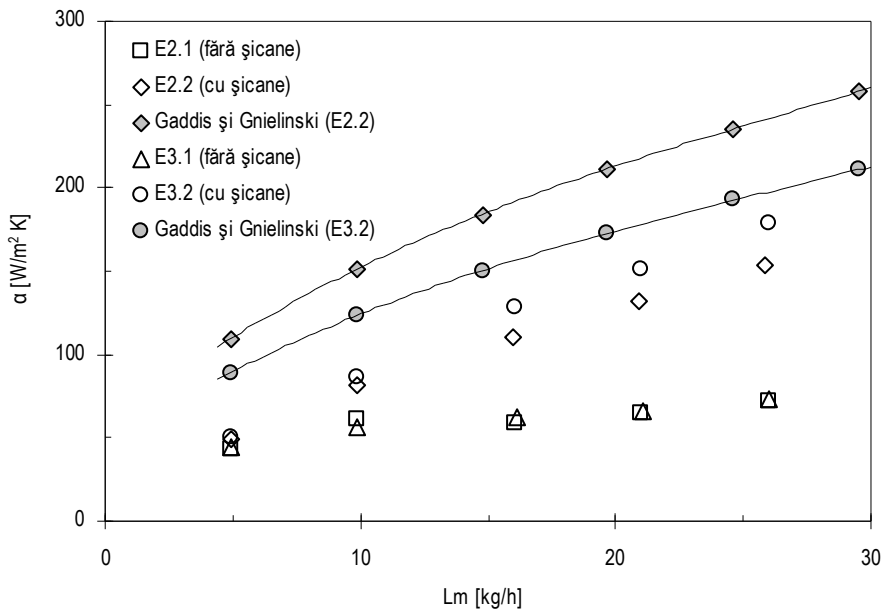


Figura 6.31. Coeficientul de convecție a calculat numeric și teoretic funcție de debitul lichidului L_m prin spațiul extratubular cu și fără șicane (E2.1, E2.2, E3.1, E3.2)

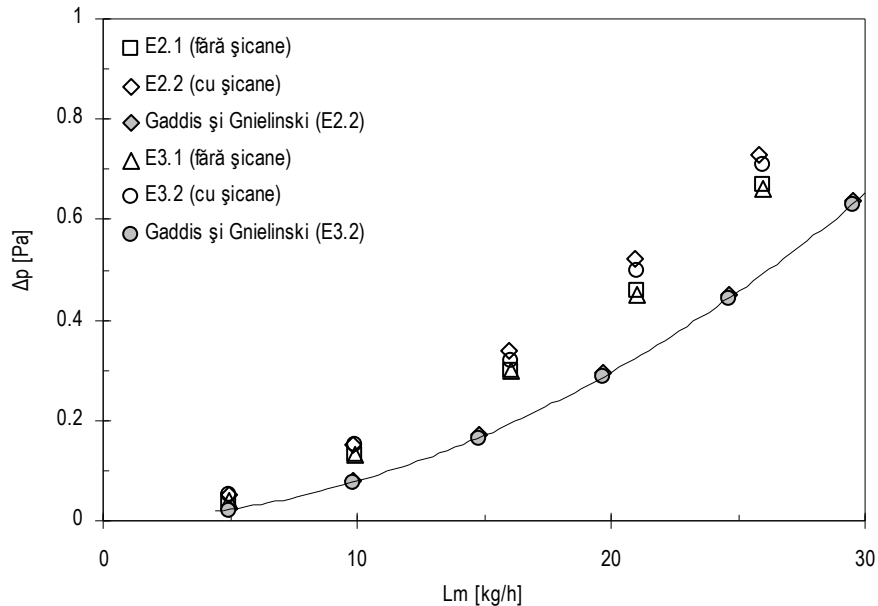


Figura 6.32. Pierdere de presiune Δp calculat numeric și teoretic funcție de debitul lichidului L_m prin spațiul extratubular cu și fără șicane (E2.1, E2.2, E3.1, E3.2)

Distribuția temperaturii prin spațiul extratubular fără șicane și cu șicane pentru modelele E2.1 și E2.2 este prezentată în Figura 6.33 pentru același debit al fluidului. Din aceste imagini rezultă clar că temperatura agentului de răcire crește mai repede în modelul E2.2. În modelul fără șicane se observă că temperatura nu este uniformă în interiorul schimbătorului. În exteriorul fasciculului de țevi temperatura fluidului este cea mai scăzută. Diferența de temperatură la ieșire din aparat, dintre cele două modele, este de 6 K. Pentru modelul numeric E2.1 temperatura apei la ieșire din spațiul extratubular este de ~ 362 K iar pentru cazul E2.2 temperatura a crescut până la ~ 368 K.

Pentru modelele E3.1 și E3.2 câmpul de temperaturi este prezentat în Figura 6.34. Fasciculul de țevi în aceste cazuri este așezat 30° față de curgerea fluidului. După cum se vede temperatura crește mai repede în spațiul extratubular cu șicane. Aceeași diferență se observă, de aproape 6 K, și pentru aceste modele.

Distribuția temperaturii prin spațiul extratubular fără șicane E1.1 și cu șicane E1.2 este prezentată în Anexa B.

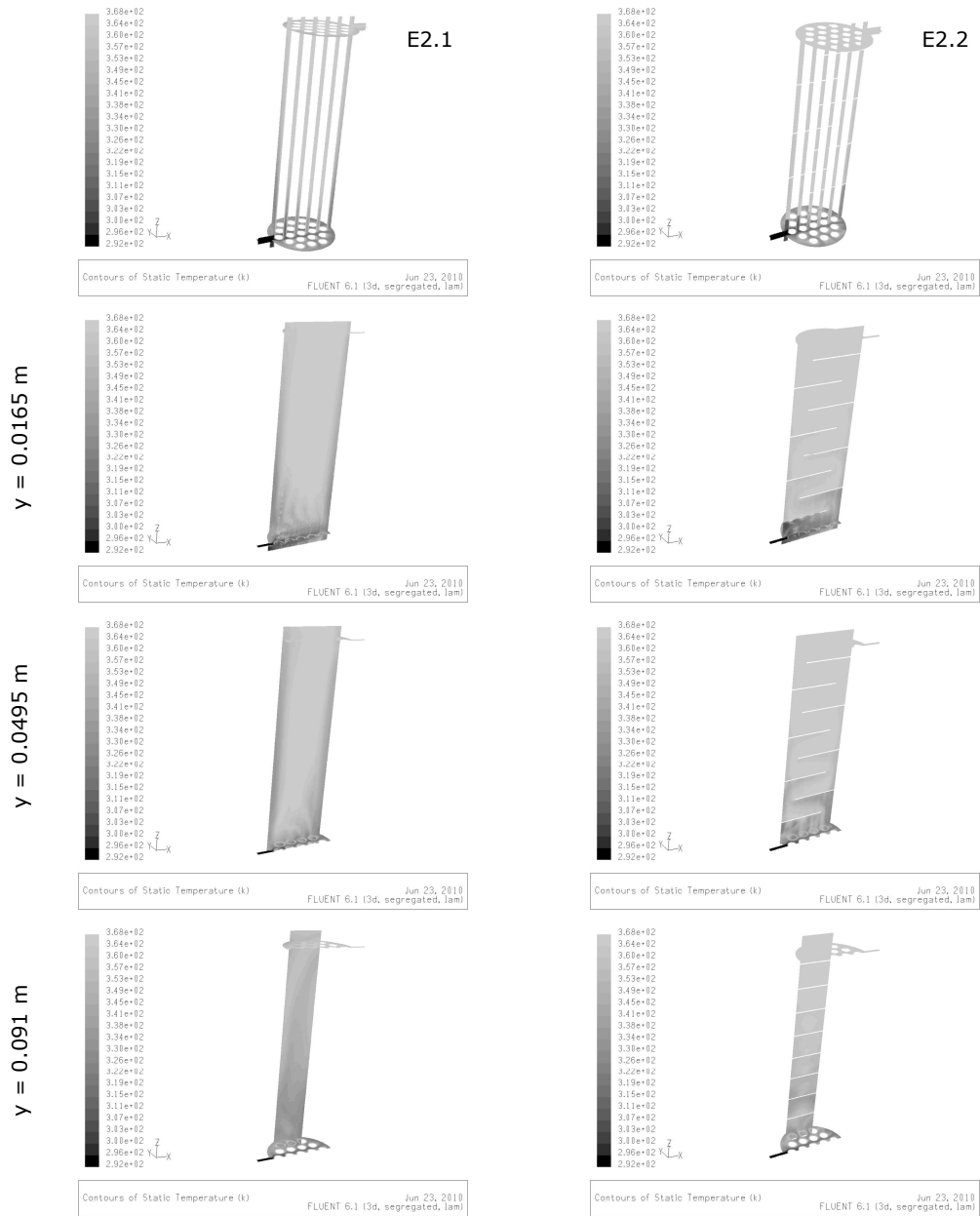


Figura 6.33. Câmpul de temperaturi, de-a lungul axei z și secțiuni diferite pe axa y , la curgerea lichidului cu debitul de $L_m \approx 26$ kg/h prin spațiul extratubular: (în stânga) fără șicane E2.1, $T_{ies} = 361.6$ K; (în dreapta) cu șicane E2.2, $T_{ies} = 367.6$ K

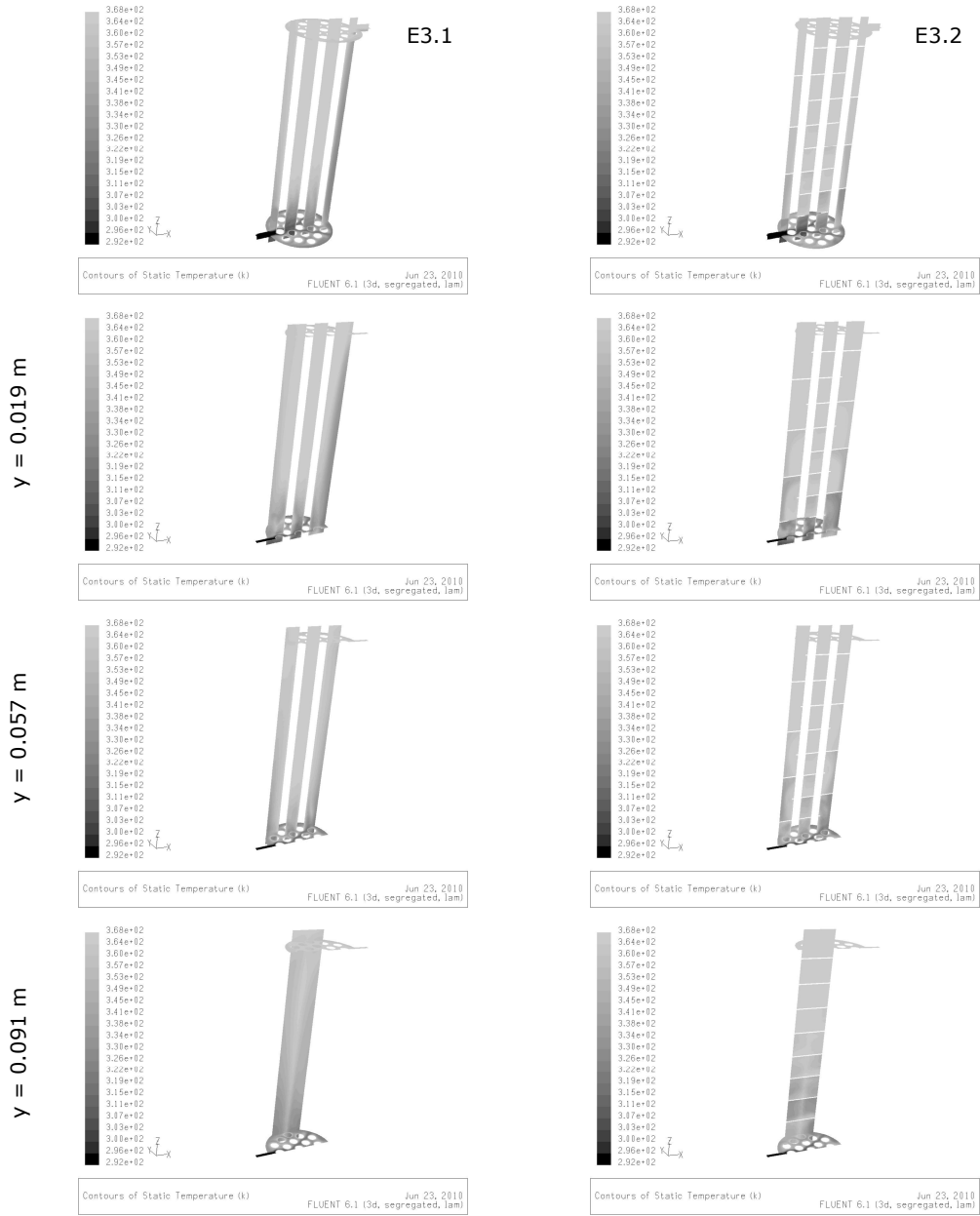


Figura 6.34. Câmpul de temperaturi, de-a lungul axei z și secțiuni diferite pe axa y, la curgerea lichidului cu debitul de $L_m \approx 26\text{ kg/h}$ prin spațiul extratubular: (în stânga) fără șicane E3.1, $T_{ies} = 361.8\text{ K}$; (în dreapta) cu șicane E3.2, $T_{ies} = 367.8\text{ K}$

7. CONCLUZII

7.1. Concluzii privind cercetările experimentale

Scopul principal al tezei a fost studierea și investigarea experimentală a procesului de separare CO₂ din gazele de ardere, generate în urma arderii cărbunelui și biomasei în strat fluidizat, cu ajutorul soluției apoase de monoetanolamină. De asemenea, cercetările experimentale s-au concentrat asupra reținerii și diminuării emisiilor poluante din gazele de ardere înaintea procesului de absorbție CO₂, precum și, investigarea factorilor ce duc la scăderea eficienței de captare CO₂.

Cercetările experimentale privind reținerea CO₂ din gazele de ardere sunt:

- Arderea lignitului în strat fluidizat a generat gaze de ardere cu conținut de CO₂ variind între 12 și 15% (volum). În timpul testelor pe arderea simultană a rumegușului cu lignit concentrația dioxidului de carbon în gazele de ardere a variat între 11 și 13%;
- Spălarea gazelor cu soluție apoasă de monoetanolamină, cu concentrația masică de 30%, a condus la micșorarea concentrației de CO₂ în gazele evacuate de la 12.8% până la 3.1%. Eficiența medie de reținere CO₂ din gazele de ardere, înregistrată, a fost de aproximativ 76%, Figura 7.1;

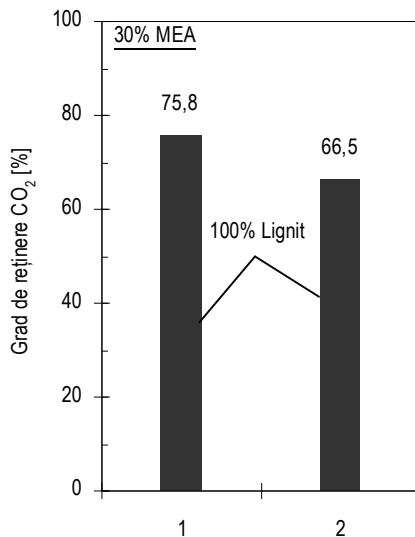


Figura 7.1. Valoarea medie a eficienței de absorbție CO₂ cu MEA 30% (masă) în urma arderii cărbunelui

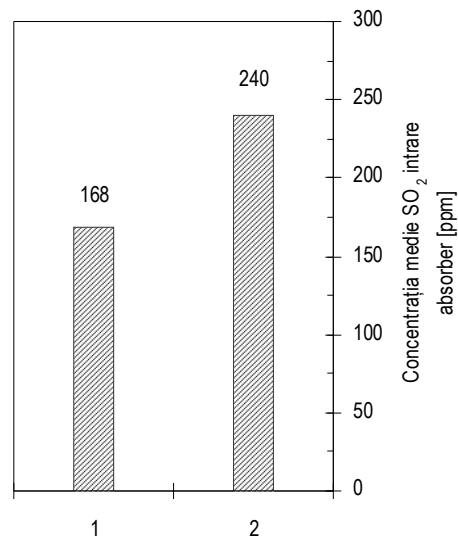


Figura 7.2. Concentrația medie de SO₂ în gazele de ardere înaintea procesului de absorbție CO₂ (testele pe cărbune)

- Eficiența absorbției CO₂ cu monoetanolamină s-a redus semnificativ în timpul experimentelor unde s-au înregistrat variații mari ale concentrației de CO₂ în gazele de ardere înainte de absorber, precum și nivelul ridicat al emisiilor de SO₂. După procesul de absorbție conținutul de CO₂ în gazele de ardere s-a micșorat de la 15.2% până la 5.2%, reprezentând eficiența medie de absorbție CO₂ de ~67%, Figura 7.1;
- Eficiența de absorbție CO₂ în soluție MEA 30% (masă) s-a micșorat în mediu cu aproximativ 9% odată cu creșterea concentrației de dioxid de sulf în gazele de ardere înainte de absorber. Concentrația emisiilor de SO₂, înainte a procesului de absorbție CO₂, a crescut de la o valoare medie de 168 ppm până la 240 ppm, Figura 7.2. Concentrația dioxidului de carbon înainte de absorbție a variat în limitele 13-19%;
- Utilizarea soluției MEA 30% (masă) pentru reținerea dioxidului de carbon din gazele de ardere, produse în urma arderii rumegușului împreună cu lignit, a rezultat în micșorarea concentrației de CO₂ de la 11.5% până la 1.9%. Ceea ce a reprezentat o eficiență medie de absorbție de 83.8%, Figura 7.3;
- Gradul de reținere CO₂ scade nesemnificativ odată cu creșterea concentrației de CO₂ și SO₂ în fluxul de gaze la intrare în absorber. Concentrația de CO₂ medie în gazele de ardere înregistrată înainte și după absorbție cu monoetanolamină a fost de 13.5% și, respectiv, 2.3%. Eficiența medie de absorbție CO₂ în acest test a fost de 82.8%, Figura 7.3;

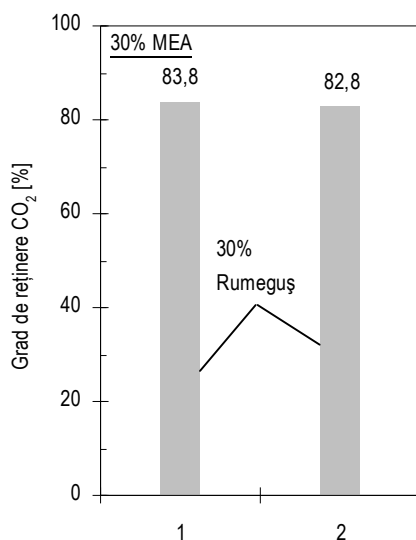


Figura 7.3. Valoarea medie a eficienței de absorbție CO₂ cu MEA 30% (masă) în urma arderii simultane a biomasei cu cărbune

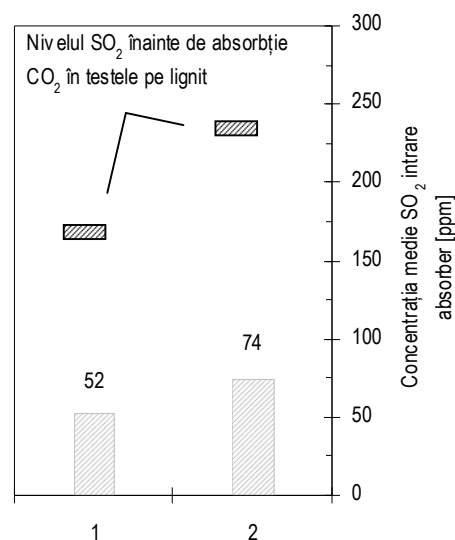


Figura 7.4. Concentrația medie de SO₂ în gazele de ardere înainte a procesului de absorbție CO₂ (testele pe biomasă/cărbune)

- Creșterea concentrației de SO_2 , în gazele de ardere, înainte de absorber de la aproape 52 ppm până la 74 ppm a fost un factor important care a dus la scăderea eficienței de absorbție CO_2 , Figura 7.3 și 7.4.

Rezultatele cercetărilor experimentale privind reducerea concentrației emisiilor de SO_2 înaintea procesului de absorbție CO_2 au arătat:

- Concentrația dioxidului de sulf în gazele de ardere se reduce semnificativ prin utilizarea în procesul de ardere a biomasei. Arderea simultană în strat fluidizat a amestecului 30% (masă) rumeguș și 70% lignit a redus concentrația medie a emisiilor de SO_2 cu aproape ~48% (valoare medie);
- Micșorarea conținutului de SO_2 în gaze, ca rezultat al co-arderii rumegușului, înainte de procesul de desulfurare are un efect pozitiv asupra eficienței de reținere;
- Desulfurarea gazelor cu soluție apoasă de hidroxid de sodiu, cu concentrația masică de 1.5 și 2.5%, a rezultat în micșorarea SO_2 de la ~545 ppm până la ~72 ppm și, respectiv, 54 ppm. Eficiența medie de desulfurare în aceste cazuri a fost de 87-90%, Figura 7.5;
- Gradul de reținere SO_2 scade cu creșterea concentrației dioxidului de sulf la intrare în scrubber. Eficiența de reținere SO_2 în soluție de NaOH (1.5 și 2.5%) s-a micșorat în medie cu 8 puncte;

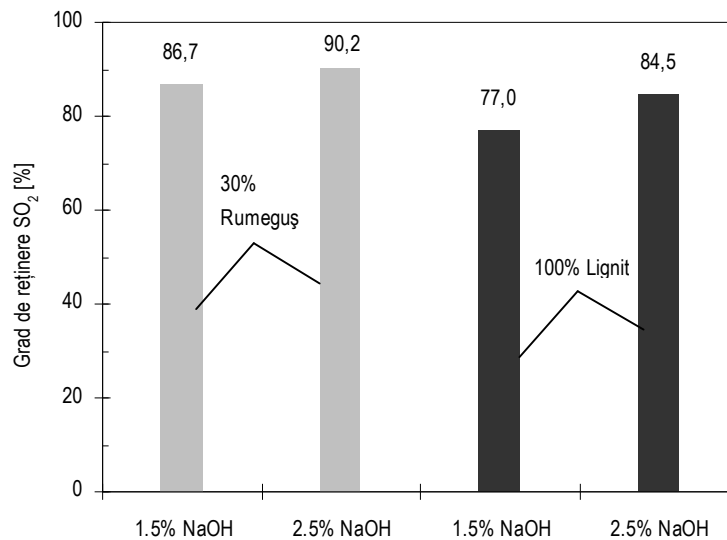


Figura 7.5. Valoarea medie a eficienței de reținere SO_2 din gazele de ardere cu NaOH de 1.5 și 2.5% (masă) în testele pe arderea cărbunului și biomasei

- În timpul experimentelor nu s-a observat influența (pozitivă sau negativă) soluției de hidroxid de sodiu asupra comportării emisiilor de CO_2 în fluxul de gaze după scruber. Aceasta poate fi explicată prin faptul că soluția de NaOH , utilizată în special pentru reținerea SO_2 , a avut o concentrație foarte mică;
- Prezența altor emisii (gazoase, solide) înainte de procesul de absorbție CO_2 afectează întreg proces de "captare CO_2 /regenerare MEA". Din acest motiv eficiența procesului poate fi ridicată prin diminuarea acestor poluanți.

7.2. Concluzii privind cercetările numerice

Obiectivul investigațiilor numerice a fost studierea și identificarea soluțiilor "cost-efective" pentru îmbunătățirea caracteristicilor termice a unui schimbător de căldură, utilizat pentru regenerarea monoetanolaminei din absorbantul bogat în CO_2 . Rezultatele cercetărilor numerice privind transferul de căldură și de curgere prin spațiul tubular cu generatori de turbulență tip bandă răsucită au indicat:

- Coeficientul de convecție mediu realizat în modelele numerice cu generatori de turbulență tip bandă răsucită crește în mediu cu aproximativ 150% (pentru cazurile $w/d_i \approx 0.95$) față de coeficientul de convecție obținut în tub fără generatori, Figura 7.6;

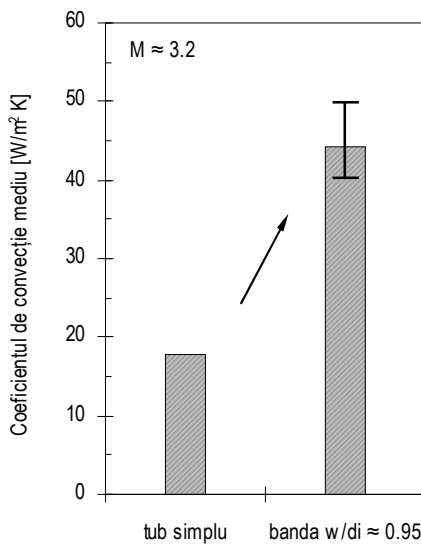


Figura 7.6. Compararea dintre coeficientul de convecție mediu obținut în tub simplu, fără generatori de turbulență, cu cel din tub cu bandă răsucită ($w/d_i \approx 0.95$ și $y = 3, 4, 5, 6$)

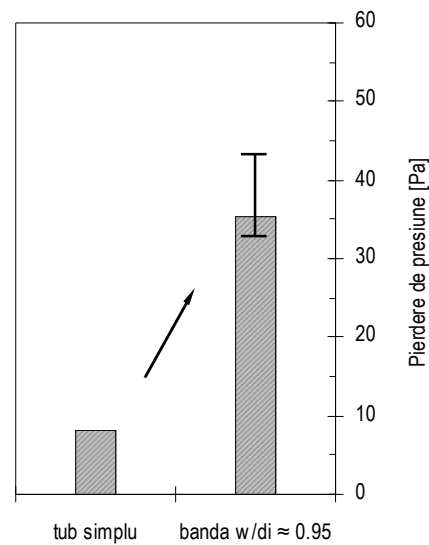


Figura 7.7. Compararea dintre valoarea medie a pierderilor de presiune prin tub simplu, fără generatori de turbulență, cu cele din tub cu bandă răsucită ($w/d_i \approx 0.95$ și $y = 3, 4, 5, 6$)

- Transferul de căldură este negativ influențat prin utilizarea benzii răsucite cu joc ($w/d_i \approx 0.76$). Coeficientul de convecție mediu, în acest caz, scade cu aproape 27% față de modelele cu raportul $w/d_i \approx 0.95$, pentru același debit al gazelor de ardere 3.2 kg/h;
- Micșorarea pasului relativ al benzii (raportul dintre lungimea benzii pentru o răsucire de 180° și lățimea sa) are un efect pozitiv asupra transferului de căldură;
- Amplasarea generatorilor de turbulență în spațiul tubular duce la creșteri semnificative ale pierderilor de presiune. Pentru modelele $w/d_i \approx 0.95$ pierderile de presiune cresc în mediu cu $\sim 340\%$ față de pierderile de presiune prin tub simplu, Figura 7.7;
- În cazul modelelor cu raportul $w/d_i \approx 0.76$ pierderile de presiune scad cu numai 3-7% față de pierderile de presiune înregistrată pentru modelele geometrice $w/d_i \approx 0.95$;
- Două modelele geometrice vor fi considerate pentru îmbunătățirea performanțelor termice în spațiul tubular a schimbătorului de căldură real, și anume modelele geometrice cu generatorul de turbulență de tip bandă răsucită cu pasul relativ cel mai mic ($\gamma = 3$);
- Deși transferul de căldură este negativ afectat prin utilizarea benzilor răsucite cu spațiul mai mare dintre bandă și peretele țevii, modelul geometric cu $w/d_i \approx 0.76$ și $\gamma = 3$ va fi considerat în cazul în care gazele de ardere vor conține cantități mare de cenușă la intrare în spațiului tubular.

Cercetările numerice privind îmbunătățirea schimbului de căldură la curgerea fluidului prin spațiul extratubular au arătat:

- Caracteristicile termice a schimbătorului de căldură sunt, în principal, îmbunătățite datorită amplasării șicanelor tip segment în spațiul extratubular. De asemenea, schimbul de căldură este pozitiv influențat și de așezarea fasciculului de țevi 30° față de curgerea fluidului;
- Coeficientul de convecție mediu obținut în schimbătorul de căldură cu șicane crește în mediu cu aproximativ 114% față de coeficientul de convecție mediu obținut în schimbătorul de căldură fără șicane, Figura 7.8;
- Așezarea țevilor 60° față de curgerea fluidului a condus la micșorarea coeficientului de convecție cu aproape 13-14% față de modelele cu fasciculul de țevi așezat 30° față de curgerea fluidului;
- Mărirea racordurilor de intrare/ieșire a spațiului extratubular de la 9 mm până la 21 mm a rezultat în diminuarea pierderilor de presiune cu 95%, Figura 7.9;

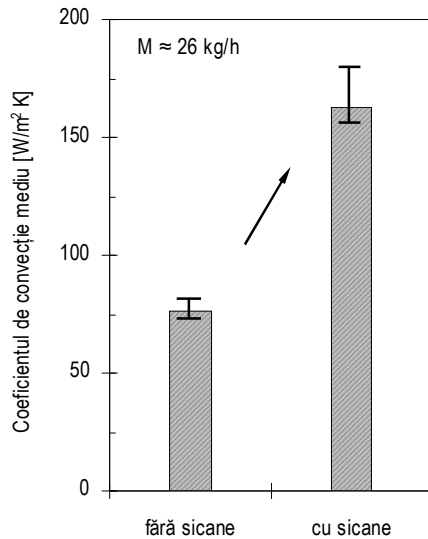


Figura 7.8. Compararea dintre coeficientul de convecție mediu obținut în spațiul extratubular fără șicane cu cel din spațiul extratubular cu șicane

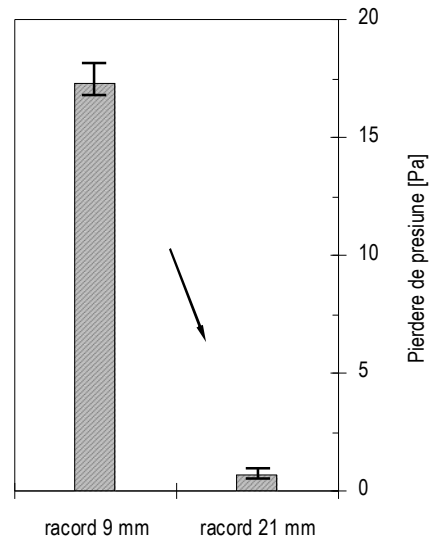


Figura 7.9. Compararea dintre valoarea medie a pierderilor de presiune din spațiul extratubular cu racordul de intrare/ieșire existent (9 mm) cu cel propus (21 mm)

- Pierderile de presiune, la curgerea fluidului prin spațiul extratubular, sunt foarte puțin influențate de modul de așezare a țevilor în manta, pentru regimul de curgere investigat;
- Modelul geometric al spațiului extratubular cu așezarea fasciculului de țevi 30° față de curgerea fluidului, opt șicane tip segment de cerc cu partea decupată a ferestrei de 25% și diametrul racordurilor de intrare/ieșire de 21 mm va fi considerat la modificarea constructivă a spațiului extratubular a schimbătorului de căldură existent;
- Deși performanțele termice și cele de curgere a schimbătoarelor de căldură cu șicane tip elicoidal (continuu și discontinuu) sunt superioare celor de tip segment de cerc, cu aproape 10-15% (în regim turbulent), acestea nu vor fi propuse pentru campania de reconfigurarea a spațiului extratubular a schimbătorului de căldură existent. Din motive că (i) acest tip de șicane sunt costisitoare în construcției, iar (ii) procedura de amplasare/aranjare în spațiul extratubular va fi îngreunată prin formele lor, necesitând mai mult timp.

7.3. Contribuții personale

Contribuțiile principale întreprinse de autor pentru realizarea tezei de doctorat sunt următoarele:

- Aplicarea procesului de captare CO₂ din fluxul de gaze reale generate în urma arderii combustibilului solid (cărbune, biomasă) și aplicarea procedeeului de desprăfuire și desulfurare a gazelor înaintea absorbției CO₂;
- Propunerea utilizării gazelor de ardere ca agent termic de încălzire a absorbantului bogat în CO₂ pentru regenerarea MEA și reutilizarea lui. De asemenea, propunerea metodei de purificare a absorbantului regenerat;
- Adaptarea instalației experimentale scopului cercetării, și anume: (i) reproiectarea sistemului de alimentare cu combustibil solid; (ii) modificarea focarului și instalarea unei ferestre pentru vizualizarea procesului de ardere în strat fluidizat; (iii) reproiectarea sistemului de răcire a instalației; (iv) îmbunătățirea sistemului de distribuție lichid în coloanele de desulfurare și de absorbție; (v) montarea talerilor perforate mobili în scrubber și absorber; (vi) crearea a peste 15 puncte de măsură, atât pe traseul gazelor cât și pe cel al lichidelor, lucru ce a permis monitorizarea, înregistrarea și controlul a mai multor parametri de lucru;
- Investigarea teoretică a proceselor: (i) arderea combustibilului solid în strat fluidizat; (ii) transferul de căldură și de curgere în schimbătoarele de căldură tubulare; (iii) intensificarea schimbului de substanță pentru reținerea eficientă a SO₂ și CO₂;
- Crearea programelor de calcul privind: (i) procesul de ardere în strat fluidizat a combustibililor solizi și determinarea emisiilor gazoase; (ii) procesul de absorbție CO₂ în soluții apoase de amină; (iii) transferul de căldură într-un echipament termic utilizat pentru regenerarea absorbantului bogat în CO₂;
- Prelucrarea și analiza rezultatelor experimentale obținute în urma testelor pe instalația de ardere în strat fluidizat a cărbunelui și/sau biomasei;
- Crearea și investigarea a peste 20 de modele geometrice pentru identificarea soluțiilor optime de optimizare și îmbunătățire transferului termic;
- Analiza și interpretarea rezultatelor numerice obținute în urma efectuării a peste 100 de simulări, pentru diferite modele numerice și condiții de lucru;
- Validarea rezultatelor obținute prin simularea numerică cu rezultatele calculului teoretic, și compararea cu valorile experimentale;
- Implicarea în activitatea de cercetare a catedrei în diferite proiecte naționale și internaționale în domeniul producerii de energie „curată”.

BIBLIOGRAFIE

- A1 Abu-Khader, M., M. *Further understanding of twisted tape effects as tube insert for heat transfer enhancement.* Heat and Mass Transfer, 43, 123-134, (2006)
- A2 Abu-Zahra, M., R., M., Niederer, J., P., M., Feron, P., H., M., Versteeg, G., F. *CO₂ capture from power plants. Plant II. A parametric study of the economical performance based on monoethanolamine.* International Journal of Greenhouse Gas Control, 1, 135-142, (2007)
- A3 Abu-Zahra, M., R., M., Schneiders, L., H., J., Niederer, J., P., M., Feron, P., H., M., Versteeg, G., F. *CO₂ capture from power plants. Plant I. A parametric study of the technical performance based on monoethanolamine.* International Journal of Greenhouse Gas Control, 1, 37-46, (2007)
- B1 Bailey, D., W., Feron P., H., M. *Post-combustion decarbonisation processes.* Oil and Gas Science and Technology - Rev. IFP, 60, 461-474, (2005)
- B2 Barchas, R., Davis, E. *The Kerr-McGee/ABB Lummus crest technology for the recovery of CO₂ from stack gases.* Energy Conversion and Management, 33, 333-340, (1992)
- B3 Basu, P. *Combustion and Gasification in Fluidized Beds.* CRC Press, (2006)
- B4 Bedell, S., A. *Oxidative degradation mechanisms for amines in flue gas capture.* Energy Procedia, 1, 771-778, (2009)
- C1 **Cebucean, D.** *CO₂ capture methods used in gas turbine power plants.* Scientific Bulletin of the Politehnica University of Timisoara, 51 (65), 113-118, (2006)
- C2 **Cebucean, D.** *CO₂ capture and removal technologies.* The Annals of Dunarea de Jos University of Galati, IV, 127-131, (2007)

- C3 **Cebucean, D.,**
Cebucean, V. *Numerical study of a shell-and-tube heat exchanger for heating rich monoethanolamine using hot flue gases. Part I: Shell-side.* Proceedings of the 3rd International Conference on Thermal Engines and Environmental Engineering, 143-147, (2009)
- C4 **Cebucean, D.,**
Cebucean, V. *Numerical study of a shell-and-tube heat exchanger for heating rich monoethanolamine using hot flue gases. Part II: Tube-side heat transfer enhancement.* Scientific Bulletin of the Politehnical Institute of Iasi, LVI (LX), 151-160, (2010)
- C5 **Cebucean, D.,**
Cebucean, V.,
Jenchea, A.,
Trif-Tordai, G.,
Ionel, I. *Sawdust-lignite co-firing in a 40 kWth bubbling fluidized bed combustor with flue gas desulfurization and denitrification.* Proceedings of the 4th International Conference on Biomass for Energy, Paper O18, (2008)
- C6 **Cebucean, D.,**
Gruescu, V.,
Trif-Tordai, G.,
Cebucean, V.,
Ionel, I. *Sawdust co-firing with lignite in a lab scale bubbling fluidized bed combustor.* Proceedings of the 17th European Biomass Conference and Exhibition – from Research to Industry and Markets, Paper VP2.4.3, 1238-1243, (2009)
- C7 **Cebucean, D.,**
Ionel, I.,
Panait, T. *Novel technology of coal-biomass co-combustion with CO₂ capture.* Journal of Environmental Protection and Ecology, 11, 284-293, (2010)
- C8 **Cebucean, D.,**
Ionel, I.,
Savu, A.,
Ungureanu, C.,
Dungan, L.I. *Carbon dioxide separation from co-combustion process of fossil fuels with biomass.* Scientific Bulletin of the Politehnica University of Bucharest, 69, 441-448, (2007)
- C9 Cebucean, V.,
Ionel, I.,
Cebucean, D. *Sulfur dioxide removal from flue gas by aqueous sodium hydroxide – An experimental study.* Scientific Bulletin of the Politehnical Institute of Iasi, LIV (LVIII), 205-210, (2008)
- C10 Cebucean, V.,
Ionel, I.,
Cebucean, D. *Post-combustion CO₂ capture from coal-fired power plants.* Scientific Bulletin of the Politehnical Institute of Iasi, LVI (LX), 181-190, (2010)

- C11 Chiu, Y., W.,
Jang, J., Y. *3D numerical and experimental analysis for thermal-hydraulic characteristics of air flow inside a circular tube with different tube inserts.* Applied Thermal Engineering, 29, 250-258, (2009)
- D1 Date, A., W. *Prediction of fully-developed flow in a tube containing a twisted tape.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 17, 845-859, (1974)
- D2 Date, A., W.,
Saha, S., K. *Numerical prediction of laminar flow and heat transfer characteristics in a tube fitted with regularly spaced twisted-tape elements.* International Journal of Heat and Fluid Flow, 11, 346-354, (1990)
- D3 Date, A., W.,
Singham, J., R. *Numerical prediction of friction and heat transfer characteristics of fully developed laminar flow in tubes containing twisted tapes.* Journal of Heat Transfer, 72-HT-17, (1972)
- D4 Davis, J.,
Rochelle, G. *Thermal degradation of monoethanolamine at stripper conditions.* Energy Procedia, 1, 327-333, (2009)
- D5 Davison, J. *Performance and costs of power plants with capture and storage of CO₂.* Energy, 32, 1163-1176, (2007)
- D6 Donohue, D., A. *Heat transfer and pressure drop in heat exchangers.* Industrial and Engineering Chemistry, 41, 2499-2511, (1949)
- E1 Eiamsa-ard, S.,
Promvong, P. *Enhancement of heat transfer in a tube with regularly-spaced helical tape swirl generators.* Solar Energy, 78, 483-494, (2005)
- E2 Eiamsa-ard, S.,
Wongcharee, K.,
Eiamsa-ard, P.,
Thianpong, C. *Heat transfer enhancement in a tube using delta-winglet twisted tape inserts.* Applied Thermal Engineering, (doi: 10.1016/j.applthermaleng.2009.09.006), (2009)
- E3 Eiamsa-ard, S.,
Wongcharee, K.,
Sripattanapipat, S. *3-D Numerical simulation of swirling flow and convective heat transfer in a circular tube induced by means of loose-fit twisted tape.* International Communications in Heat and Mass Transfer, 36, 947-955, (2009)

- E4 Eryener, D. *Thermoeconomic optimization of baffle spacing for shell and tube heat exchangers*. Energy Conservation and Management, 47, 1478-1489, (2006)
- F1 Fair, J., R.,
Steinmeyer, D., E.,
Penney, W., R.,
Crocker, B., B. *Gas absorption and gas-liquid system design*. In: Perry's Chemical Engineers' Handbook. 7th Edition. R. H. Perry et al. (eds.), McGraw-Hill, (1997)
- F2 Figueroa, J., D.,
Fout, T.,
Plasynski, S.,
McIlvried, H.,
Srivastava, R., D. *Advances in CO₂ capture technology – The U.S. Department of Energy's Carbon Sequestration Program*. International Journal of Greenhouse Gas Control, 2, 9-20, (2008)
- F3 Floarea, O.,
Jinescu, G.,
Balaban, C.,
Vasilescu, P.,
Dima, R. *Operații și Utilaje în Industria Chimică. Probleme*. Editura Didactică și Pedagogică, (1980)
- F4 FLUENT6.1 User's Guide. FLUENT Inc., (2003)
- G1 Gaddis, E., S.,
Gnielinski, V. *Shell-side heat transfer in baffled shell-and-tube heat exchangers*. In: VDI Heat Atlas, Section Gg, Association of German Engineers/VDI Society for Chemical and Process Engineering, (1993)
- G2 Gaddis, E., S.,
Gnielinski, V. *Pressure drop on the shell side of shell-and-tube heat exchangers with segmental baffles*. Chemical Engineering and Processing, 36, 149-159, (1997)
- G3 Gnielinski, V. *Heat transfer in pipe flow*. In: VDI Heat Atlas, Section Gb, Association of German Engineers/VDI Society for Chemical and Process Engineering, (1993)
- I1 Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) *IPCC special report on carbon dioxide capture and storage*. Prepared by Working Group III of the IPCC, B. Metz et al. (eds.), Cambridge University Press, (2005)
- I2 Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) *Climate change 2007. Contribution of Working Group I, II and III to the Fourth Assessment Report of the IPCC*, B. Metz et al. (eds.), Cambridge University Press, (2007)
- I3 International Energy Agency (IEA) *Reducing greenhouse gas emissions. The potential of coal*. OECD/IEA, (2005)

- | | | |
|-----|---|---|
| I4 | International Energy Agency (IEA) | <i>Key world energy statistics 2007, 2008, 2009.</i> OECD/IEA, (2007, 2008, 2009) |
| I5 | International Energy Agency (IEA) | <i>CO₂ emissions from fuel combustion. 2007, 2008, 2009 Edition.</i> OECD/IEA, (2007, 2008, 2009) |
| I6 | International Energy Agency (IEA) | <i>Coal information 2007.</i> OECD/IEA, (2007) |
| I7 | International Energy Agency (IEA) | <i>Fossil fuel-fired power generation. Case studies of recently constructed coal- and gas-fired power plants.</i> OECD/IEA, (2007) |
| I8 | International Energy Agency (IEA) | <i>World energy outlook 2008.</i> OECD/IEA, (2008) |
| I9 | International Energy Agency (IEA) | <i>CO₂ capture and storage. A key carbon abatement option.</i> OECD/IEA, (2008) |
| I10 | International Energy Agency Greenhouse Gas Research and Development Programme (IEA GHG) | <i>CO₂ capture ready plants.</i> IEA GHG R&D Programme, Technical Study, Report 2007/4, (2007) |
| I11 | Ionel, I.,
Cebucean, D. ,
Popescu, F.,
Cebucean, V.,
Trif-Tordai, G.,
Dungan, L.I.,
Padurean, I. | <i>Post-combustion removal of carbon dioxide from flue gases.</i> Journal of Metalurgia International, XIV, 40-46, (2009) |
| I12 | Ionel, I.,
Ungureanu, C.,
Bisorca, D. | Termoenergetica și Mediul. Editura Politehnica, (2006) |
| K1 | Kakac, S.,
Liu, H. | Heat Exchangers. Selection, Rating and Thermal Design. 2 nd Edition. CRC Press, (2002) |
| K2 | Kazuhisa, Y.,
Hidetoshi, H.,
Saburo, T.,
Chikahiro, S. | <i>Numerical simulation on heat transfer enhancement in twisted-tape-inserted tubes.</i> Journal of Enhanced Heat Transfer, 11, 379-390, (2004) |
| K3 | Kern, D.Q. | Process Heat Transfer. McGraw-Hill, (1965) |

- K4 Khan, A., A., de Jong, W., Jansens, P., J., Spliethoff, H. *Biomass combustion in fluidized bed boilers: Potential problems and remedies.* Fuel Processing Technology, 90, 21-50, (2009)
- K5 Kim, M., I., Lee, Y., Kim, B., W., Lee, D., H., Song, W., S. *CFD modeling of shell-and-tube heat exchanger header for uniform distribution among tubes.* Korean Journal of Chemical Engineering, 26, 359-363, (2009)
- K6 Knudsen, J., G., Hottel, H., C., Sarofim, A., F., Wankat, P., C., Knaebel, K., S. *Heat and mass transfer.* In: Perry's Chemical Engineers' Handbook. 7th Edition. R.H. Perry et al. (eds.), McGraw-Hill, (1997)
- K7 Kohl, A.L., Nielson, R. Gas Purification. 5th Edition. Gulf Professional Publishing, (1997)
- K8 Kolev, N. Packed Bed Columns. For Absorption, Desorption, Rectification and Direct Heat Transfer. Elsevier, (2006)
- K9 Koornneef, J., Junginger, M., Faaij, A. *Development of fluidized bed combustion – An overview of trends, performance and cost.* Progress in Energy and Combustion Science, 33, 19-55, (2007)
- K10 Kraus, A.D. *Heat exchangers.* In: Heat Transfer Handbook, A. Bejan and A.D. Kraus (eds.), John Wiley & Sons, (2003)
- L1 Lei, Y., G., He, Y., L., Chu, P., Li, R. *Design and optimization of heat exchangers with helical baffles.* Chemical Engineering Science, 63, 4386-4395, (2008)
- L2 Lei, Y., G., He, Y., L., Li, R., Gao, Y.F. *Effects of baffle inclination angle on flow and heat transfer of a heat exchanger with helical baffles.* Chemical Engineering and Processing, 47, 2336-2345, (2008)
- L3 Li, H., Kottke, V. *Effect of the leakage on pressure drop and local heat transfer in shell-and-tube heat exchangers for staggered tube arrangement.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 41, 425-433, (1998)

- L4 Li, H.,
Kottke, V. *Analysis of local shell-side heat and mass transfer in the shell-and-tube heat exchanger with disc-and-doughnut baffles.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 42, 3509-3521, (1999)
- L5 Lin, W.,
Dam-Johansen, K.,
Frandsen, F. *Agglomeration in bio-fuel fired fluidized bed combustors.* Chemical Engineering Journal, 96, 171-185, (2003)
- L6 Loo von Loo, S.,
Koppejan, J. *The Handbook of Biomass Combustion and Co-firing.* Earthscan, (2008)
- L7 Lutcha, J.,
Nemcansky, J. *Performance improvement of tubular heat exchangers by helical baffles.* Chemical Engineering Research and Design, 68, 263-270, (1990)
- M1 Manglik, R., M. *Heat transfer enhancement.* In: Heat Transfer Handbook, A. Bejan and A.D. Kraus (eds.), John Wiley & Sons, (2003)
- M2 Manglik, R., M.,
Bergles, A., E. *Heat transfer and pressure drop correlations for twisted-tape inserts in isothermal tubes: Part I – Laminar flows.* ASME Journal of Heat Transfer, 115, 881-889, (1993)
- M3 Manglik, R., M.,
Bergles, A., E. *Heat transfer and pressure drop correlations for twisted-tape inserts in isothermal tubes: Part II – Transition and turbulent flows.* ASME Journal of Heat Transfer, 115, 890-896, (1993)
- M4 Manglik, R., M.,
Bergles, A., E. *Swirl flow heat transfer and pressure drop with twisted-tape inserts.* Advances in Heat Transfer, 36, 183-266, (2003)
- M5 Massachusetts Institute
of Technology (MIT) *The future of coal.* MIT, (2007)
- M6 Miheev, M., A.,
Miheeva, I., M. *Bazele Transferului de Căldură.* Ediția a 2-a. Editura Energhia, (1977) [în rusă]
- M7 Mukherjee, R. *Effectively design shell-and-tube heat exchangers.* Chemical Engineering Progress, 94, 21-37, (1998)
- O1 Oka, N., S. *Fluidized Bed Combustion.* Marcel Dekker Inc., (2004)

- P1 Pavlov, K., F.,
Romankov, P., G.,
Noskov, A., A. Exerciții și Probleme la Cursul de Procese și
Aparate în Tehnologia Chimică. Ediția a 10-a.
Editura Himia, (1987) [în rusă]
- P2 Peng, B.,
Wang, Q.,
Zhang, C.,
Xie, G., N.,
Luo, L., Q.,
Chen, Q., Y.,
Zeng, M. *An experimental study of shell-and-tube heat
exchangers with continuous helical baffles.*
ASME Journal of Heat Transfer, 129, 1425-
1431, (2007)
- P3 Plessis du Plessis, J., P. *Laminar flow and heat transfer in a smooth
tube with a twisted-tape insert.* PhD Thesis,
University of Stellubosch, (1982)
- P4 Plessis du Plessis, J., P.,
Kroger, D., G. *Friction factor prediction for fully developed
laminar twisted-tape flow.* International Journal
of Heat and Mass Transfer, 27, 2095-2100,
(1984)
- P5 Promvonge, P. *Thermal augmentation in circular tube with
twisted tape and wire coil turbulators.* Energy
Conservation and Management, 49, 2949-
2955, (2008)
- R1 Rahimi, M.,
Shabaniyan, S., R.,
Alsairafi, A., A. *Experimental and CFD studies on heat transfer
and friction factor characteristics of a tube
equipped with modified twisted tape inserts.*
Chemical Engineering and Processing: Process
Intensification, 48, 762-770, (2009)
- R2 Ramm, V., M. Absorbția Gazelor. Ediția a 2-a. Editura Himia,
(1976) [în rusă]
- R3 Robu, I., V. Procese și Aparate de Separare în Industria
Petrolului și Petrochimie. Editura Didactică și
Pedagogică, (1968)
- R4 Roetzel, W.,
Lee, D. *Experimental investigation of leakage in shell-
and-tube heat exchangers with segmental
baffles.* International Journal of Heat and Mass
Transfer, 36, 3765-3771, (1993)
- R5 Roetzel, W.,
Lee, D. *Effect of baffle/shell leakage flow on heat
transfer in shell-and-tube heat exchangers.*
Experimental Thermal and Fluid Science, 8, 10-
20, (1994)

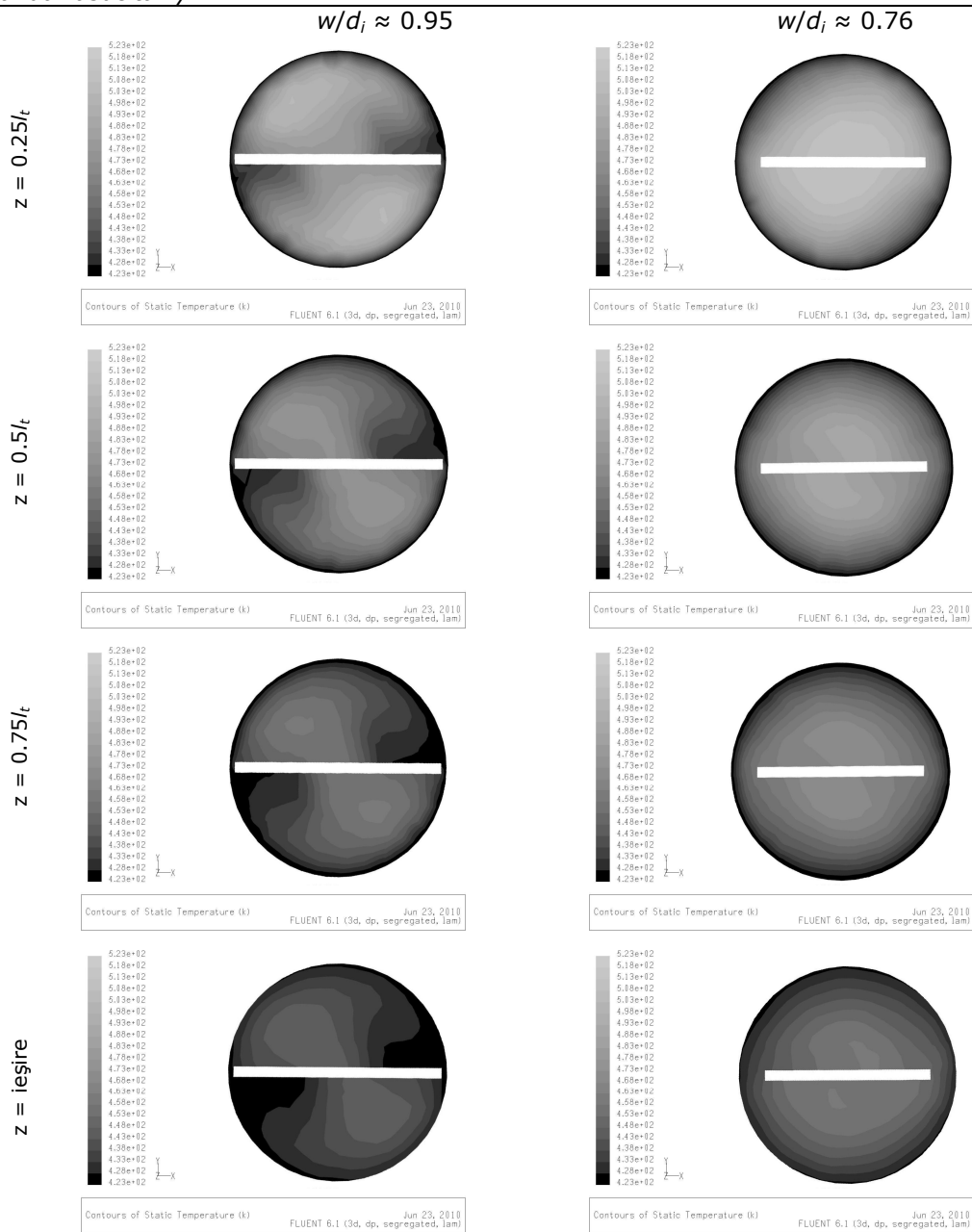
- S1 Saffar-Avval, M., Damangir, E. *A general correlation for determining optimum baffle spacing for all types of shell and tube exchangers.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 38, 2501-2506, (1995)
- S2 Sami, M., Annamalai, K., Wooldridge, M. *Co-firing of coal and biomass fuel blends.* Progress in Energy and Combustion Science, 27, 171-214, (2001)
- S3 Sander, M., T., Mariz, C., L. *The Flour Daniel Econamine FG Process – Past experience and present day focus.* Energy Conversion and Management, 33, 341-348, (1992)
- S4 Sarma, P., K., Subramanyam, T., Kishore, P., S., Dharma Rao, V., Kakac, S. *A new method to predict convective heat transfer in a tube with twisted tape inserts for turbulent flow.* International Journal of Thermal Sciences, 41, 955-960, (2002)
- S5 Sass, B., Monzyk, B., Ricci, S., Gupta, A., Hindin, B., Gupta, N. *Impact of SO_x and NO_x in flue gas on CO₂ separation, compression, and pipeline transmission.* In: Carbon Dioxide Capture for Storage in Deep Geological Formations, Volume 2, D.C. Thomas and S.M. Benson (eds.), Elsevier, (2005)
- S6 Serth, R.W. *Process Heat Transfer. Principles and Applications,* (2007)
- S7 Sexton, A., J., Rochelle, G., T. *Catalysts and inhibitors for oxidative degradation of monoethanolamine.* International Journal of Greenhouse Gas Control, 3, 704-711, (2009)
- S8 Spliethoff, H. *Power Generation from Solid Fuels.* Springer, (2010)
- S9 Straub, J. *Properties of water.* In: VDI Heat Atlas, Section Db, Association of German Engineers/VDI Society for Chemical and Process Engineering, (1993)
- S10 Suda, T., Fujii, M., Yoshida, K., Iijima, M., Seto, T., Mitsuoka, S. *Development of flue gas carbon dioxide recovery technology.* Energy Conversion and Management, 33, 317-324, (1992)

- S11 Supap, T.,
Idem, R.,
Tontiwachwuthikul, P.,
Saiwan, C. *Kinetics of sulfur dioxide- and oxygen-induced degradation of aqueous monoethanolamine solution during CO₂ absorption from power plant flue gas streams.* International Journal of Greenhouse Gas Control, 3, 133-142, (2009)
- T1 Taborek, J. *Shell-and-tube heat exchangers: Single-phase flow.* In: Heat Exchanger Design Handbook, Section 3.3, E.U. Schlunder et al. (eds.), Hemisphere, (1983)
- T2 Tans, P., Trends in Atmospheric Carbon Dioxide, NOAA/ESRL, www.esrl.noaa.gov (ultima accesare: 17.03.2010)
- T3 Tilton, J., N. *Fluid and particle dynamics.* In: Perry's Chemical Engineers' Handbook. 7th Edition. R. H. Perry et al. (eds.), McGraw-Hill, (1997)
- U1 Ungureanu, C. Generatoare de Abur pentru Instalații Energetice, Clasice și Nucleare. Editura Didactică și Pedagogică, (1977)
- W1 Wang, Q.,
Chen, Q.,
Chen, G.,
Zeng, M. *Numerical investigation on combined multiple shell-pass shell-and-tube heat exchanger with continuous helical baffles.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 52, 1214-1222, (2009)
- W2 Wang, Q.,
Xie, G.,
Peng, B.,
Zeng, M. *Experimental study and genetic-algorithm-based correlation on shell-side heat transfer and flow performance of three different types of shell-and-tube heat exchangers.* ASME Journal of Heat Transfer, 129, 1277-1285, (2007)
- W3 Wang, S.,
Wen, J.,
Li, Y., *An experimental investigation of heat transfer enhancement for a shell-and-tube heat exchanger.* Applied Thermal Engineering, 29, 2433-2438, (2009)
- W4 Webb, R.L.,
Kim, N.H. Principles of Enhanced Heat Transfer. 2nd Edition. Taylor & Francis Routledge, (2005)
- Y1 Yeh, A.C.,
Bai, H. *Comparison of ammonia and monoethanolamine solvents to reduce CO₂ greenhouse gas emissions.* The Science of the Total Environment, 228, 121-133, (1999)
- Z1 Zevenhoven, R.,
Kilpinen, P. Control of Pollutants in Flue Gases and Fuel Gases. 2nd Edition. TKK-ENY-4, (2002)

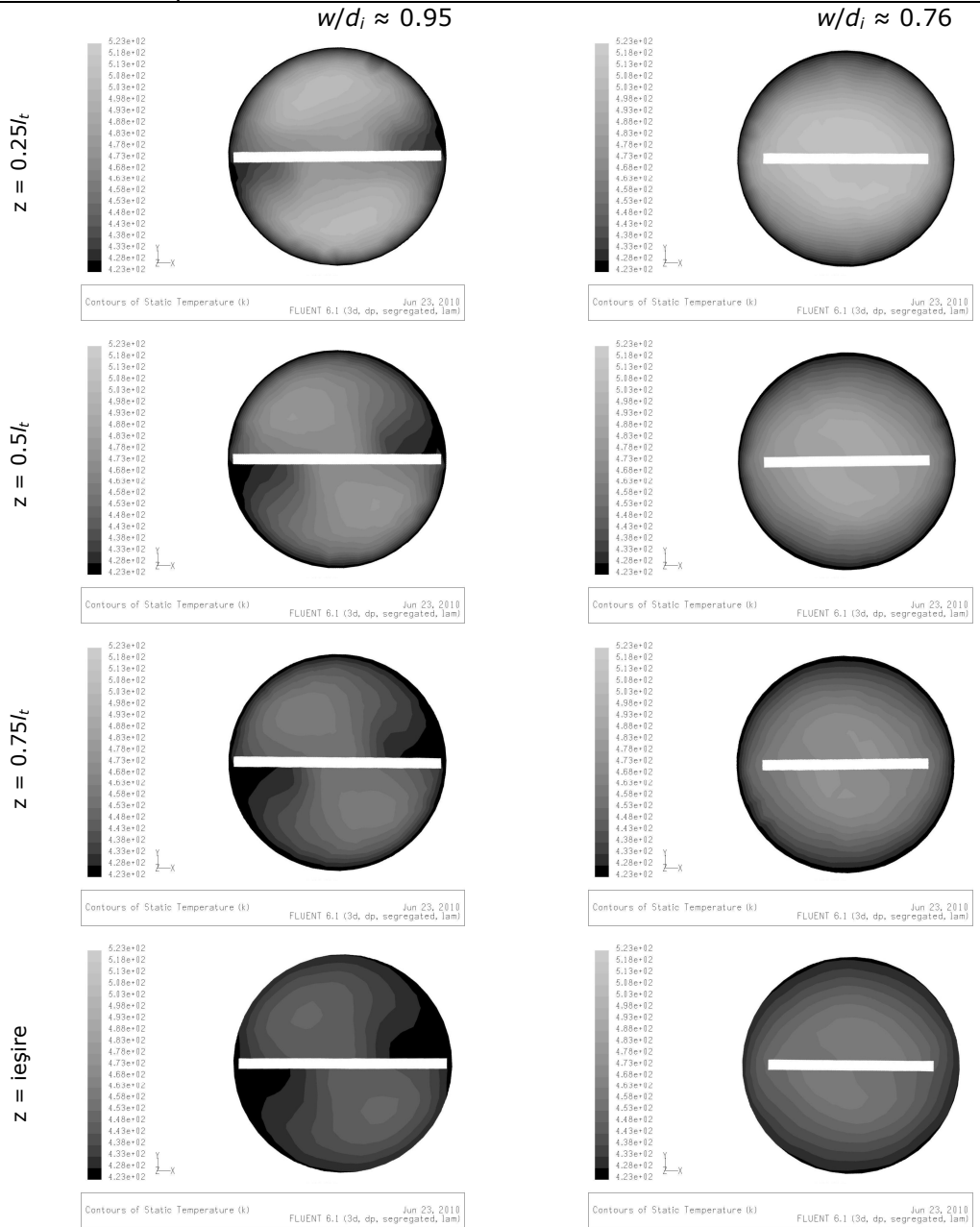
- Z2 Zhang, J., F.,
He, Y., L.,
Tao, W., Q. *3D numerical simulation on shell-and-tube heat exchangers with middle-overlapped helical baffles and continuous baffles – Part I: Numerical model and results of whole heat exchanger with middle-overlapped helical baffles.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 52, 5371-5380, (2009)
- Z3 Zhang, J., F.,
He, Y., L.,
Tao, W., Q. *3D numerical simulation on shell-and-tube heat exchangers with middle-overlapped helical baffles and continuous baffles – Part II: Simulation results of periodic model and comparison between continuous and noncontinuous helical baffles.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 52, 5381-5389, (2009)
- Z4 Zhang, J., F.,
Li, B.,
Huang, W., J.,
Lei, Y., G.,
He, Y., L.,
Tao, W., Q. *Experimental performance comparison of shell-side heat transfer for shell-and-tube heat exchangers with middle-overlapped helical baffles and segmental baffles.* Chemical Engineering Science, 64, 1643-1653, (2009)
- Z5 Zimparov, V. *Prediction of friction factors and heat transfer coefficients for turbulent flow in corrugated tubes combined with twisted tape inserts. Part 1: friction factors.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 47, 589-599, (2004)
- Z6 Zimparov, V. *Prediction of friction factors and heat transfer coefficients for turbulent flow in corrugated tubes combined with twisted tape inserts. Part 2: heat transfer coefficients.* International Journal of Heat and Mass Transfer, 47, 385-393, (2004)

ANEXA A: SIMULĂRI NUMERICE AFERENTE SPAȚIULUI TUBULAR

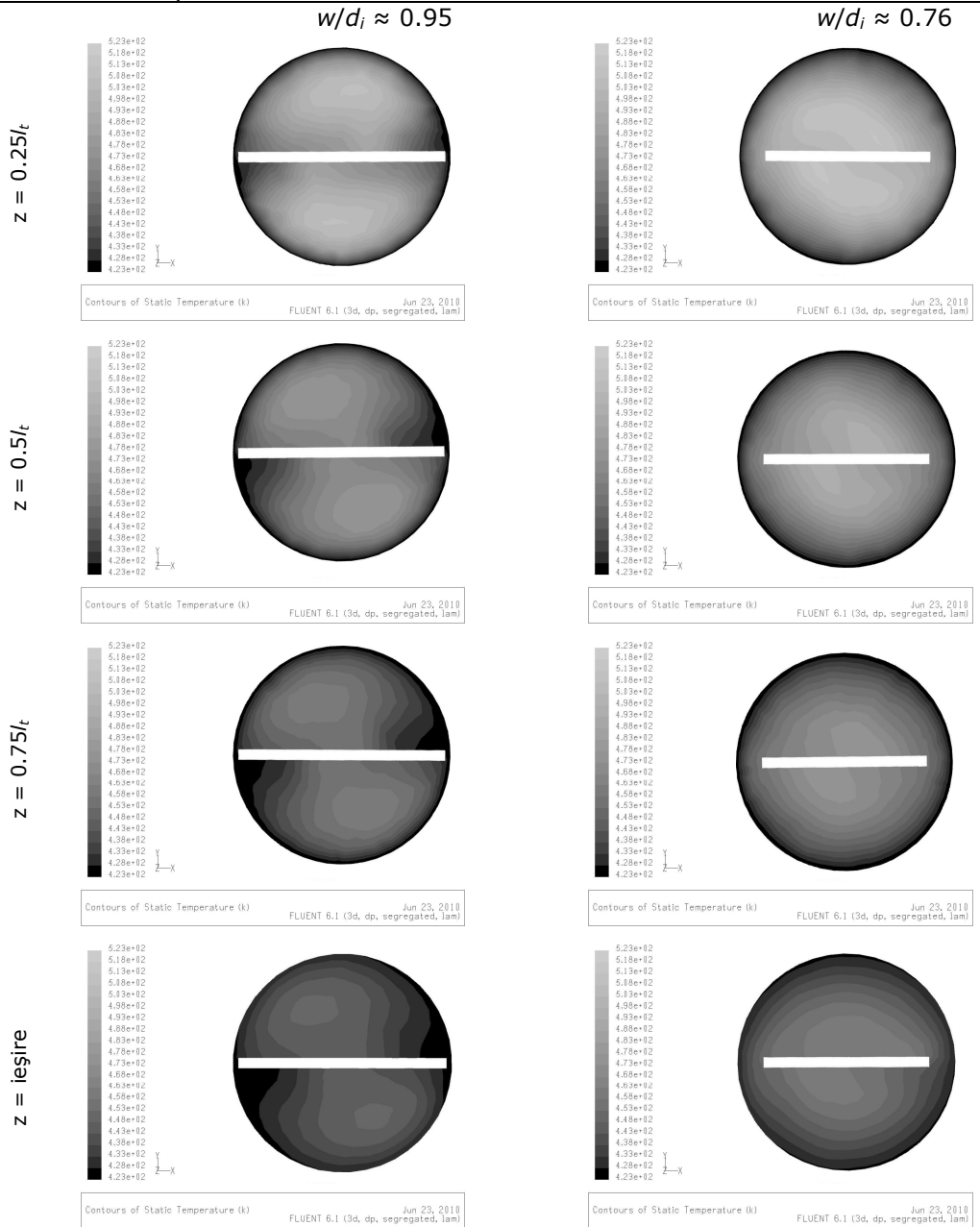
Banda răsucită: $y = 4$



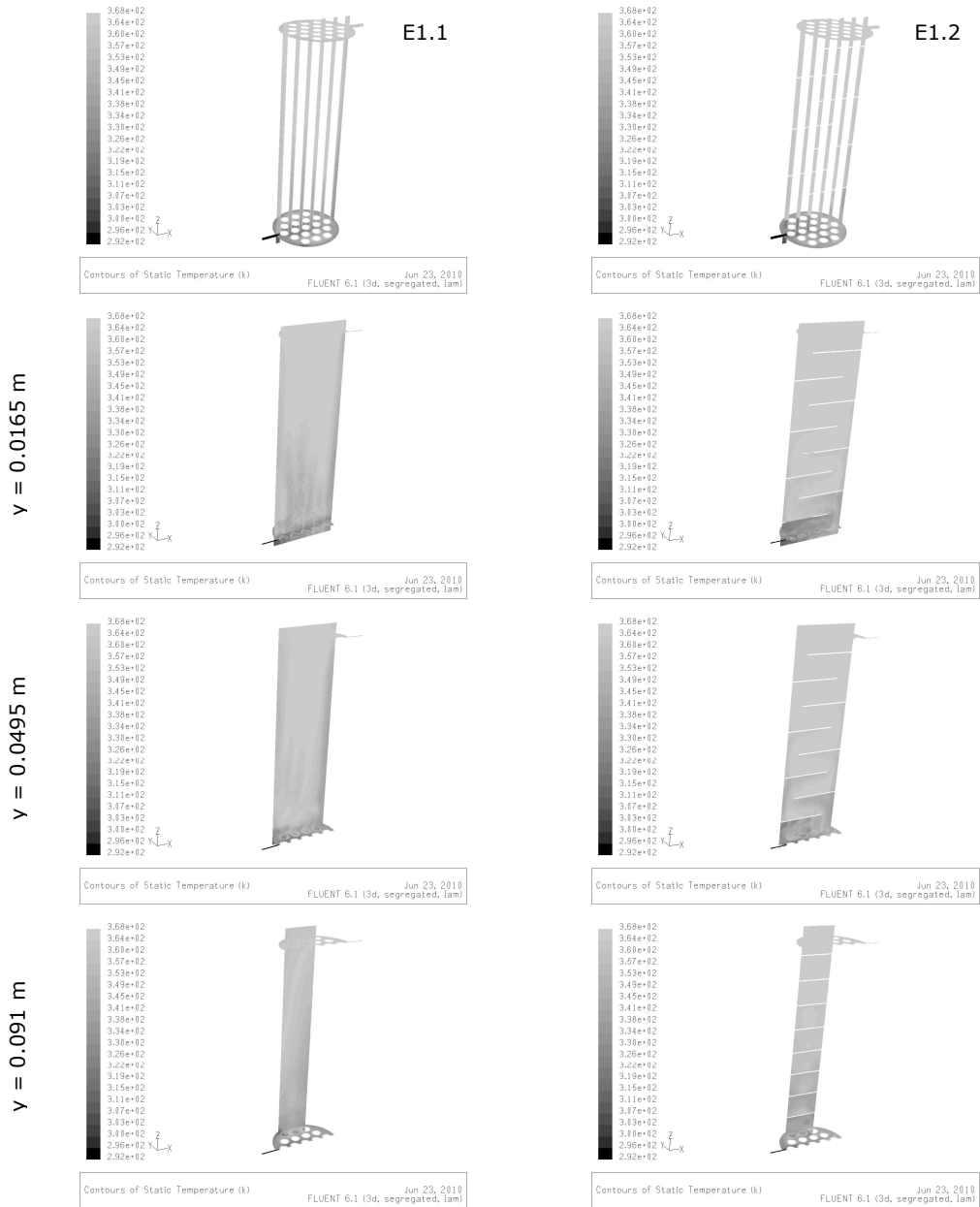
Banda răsucită: $\gamma = 5$



Banda răsucită: $\gamma = 6$



ANEXA B: SIMULĂRI NUMERICE AFERENTE SPAȚIULUL EXTRATUBULAR



SUMMARY OF DISSERTATION

Title

Research on capturing of CO₂ from combustion of fossil or
unconventional fuels

by

Eng. Dumitru Cebrucean

Scientific advisors:

Prof.dr.eng. habil Ioana Ionel
"Politehnica" University of Timisoara

Prof.dr.eng. Tanase Panait
"Dunare de Jos" University of Galati

(Timisoara, 9 July 2010)

Content	v
List of figures	vii
List of tables	x
Nomenclature	xi
1. Introduction	15
1.1. CO ₂ emissions	15
1.2. CO ₂ capture methods	16
1.3. Objectives of PhD study	18
2. Separation of CO₂ from gaseous streams	19
2.1. Absorption of CO ₂ into aqueous amine	19
2.2. Absorption of CO ₂ into potassium and sodium carbonate	22
2.3. Absorption of CO ₂ into hot potassium carbonate	25
2.4. Absorption of CO ₂ in water	30
2.5. Removal of CO ₂ through Giammarco-Vetrocok	31
2.6. Removal of CO ₂ through Catacarb	32
2.7. Problems concerning the use of aqueous alkanolamines	32
2.7.1. Degradation	32
2.7.2. Foaming	35
2.7.3. Corrosion	36
2.7.4. Construction materials	37
2.7.5. Lose of amines	38
3. Packed bed columns	40
3.1. Definition	40
3.2. Operation	41
3.3. Liquid distribution	41
3.4. Packed beds	42
3.5. Characteristics of packed beds	43
4. Heat transfer and flow in shell-and-tube heat exchangers	45
4.1. Shell-and-tube heat exchangers	45
4.2. Heat transfer enhancement	45
4.2.1. Tube-side	45
4.2.2. Shell-side	47
4.3. Heat transfer and pressure drop calculation	50
4.3.1. Geometrical characteristics	50
4.3.2. Heat transfer	52
4.3.3. Pressure drop	56
4.4. Numerical study of heat transfer and flow through shell-and-tube heat exchangers	63
4.4.1. Computational model	63
4.4.2. Governing equations and boundary conditions	67
4.4.3. Numerical method	67
5. Experimental facility	69
5.1. Experimental set up	69
5.2. Equipments	74
5.3. Apparatuses	75

Summary of dissertation	131
6. Results	77
6.1. Experimental results	77
6.1.1. Solid fuels	77
6.1.2. Volume of flue gas	79
6.1.3. Absorption of CO ₂ into MEA 30% (by mass)	80
6.1.4. Removal of SO ₂ with NaOH 1.5% și 2.5% (by mass)	84
6.1.5. Effect of NaOH on CO ₂ emissions	87
6.1.6. Effect of biomass co-firing	87
6.2. Numerical results	89
6.2.1. Numerical model validation	89
6.2.2. Tube-side	91
6.2.3. Shell-side	100
7. Conclusions	107
7.1. Conclusions concerning experimental study	107
7.2. Conclusions concerning numerical study	110
7.3. Contributions	113
Bibliography	114
Annex A: Simulation of tube-side	125
Annex B: Simulation of shell-side	128
Summary of dissertation	129

Introduction

CO₂ emissions

Today, it is widely known that the major greenhouse gas is carbon dioxide (about 77%). Many researchers and scientists consider that the release of the CO₂ emissions into the atmosphere has a significant impact on the global warming effect or so-called greenhouse effect. According to CO₂ data from Mauna Loa Observatory, in February 2010 the concentration of CO₂ in the atmosphere had reached approximately 390 ppm. This is about 39% higher than the CO₂ level of the pre-industrial era (~280 ppm).

Fossil fuels are the dominant source of the global primary energy demand, and will likely remain so for the next decades. Currently, fossil fuels supply over 80% of all primary energy. Since the Industrial Revolution, the emissions of CO₂ from fossil fuel combustion dramatically increased. In 2007, about 29 billion tonnes of CO₂ were from fossil fuel combustion (more than 47% as compared to 1990). Energy sector is responsible for about 41% of the global CO₂ emissions in 2007, followed by transport (~23%) and industry (~20%). Fossil fuels provided over 70% of the world electricity and heat generation, of which coal supplied 41% of the generation.

Romania emitted nearly 92 Mt of CO₂ in 2007 from fossil fuel combustion (with 51% less than in 1989). About 29% of these emissions came from the use of coal for electricity generation.

Emissions of CO₂ resulting from the use of fossil fuels can be reduced by means of several measures:

- to improve and increase the efficiency of power plants and production processes;
- to use low carbon content fuels and to increase the use of renewable energy sources;
- to apply CO₂ capture and storage.

The capture of CO₂ from fossil fuel-fired power plants offers the possibility to reduce the CO₂ emissions on a medium time scale. Carbon dioxide can be captured either from flue gases or from process streams before combustion. Among the types of fossil fuel used, coal has the highest carbon content, resulting in coal-fired power plants having the highest output rate of CO₂ per kilowatt-hour produced (e.g., 743 g CO₂/kWh for pulverized coal, 379 g CO₂/kWh for natural gas combined cycle). The CO₂ concentration in power station flue gas, for coal-fired boilers is about 15% by volume, while for natural gas combined cycle power plants is 4% and for natural gas-fired boilers is around 8%. The removal of CO₂ from the flue gas is best known as post-combustion capture. The concentration of CO₂ in flue gas can be increased by using pure oxygen instead of air for combustion, resulting in a flue gas that has a CO₂ concentration higher than 80%. This is known as oxy-combustion. Also, carbon dioxide can be removed from the power cycle before combustion applying pre-combustion CO₂ capture systems. The concentration of CO₂ in the CO₂/H₂ mixture will be 40-60% (by volume) for coal gasification, and around 20% for natural gas partial oxidation. The major advantage of a post-combustion CO₂ capture system over oxy- and pre-combustion is that it can be applied to existing power plants with minimal modification to the power station itself, or easily integrated into new ones.

CO₂ capture methods

As it was said earlier, there are three main technology options to capture CO₂ produced in large power plants:

- Post-combustion (CO₂ is separated from the flue gas after combustion of the fuel in air). Before discharging to the atmosphere, flue gases, which come from the combustion unit, are passed through equipment which separates most of the CO₂. The captured CO₂ is then compressed and further collected in a storage reservoir. Remaining compounds of flue gases, such as N₂, O₂ and vapors are discharged directly to the atmosphere. One of the major drawbacks of this method is that the CO₂ partial pressure is very low due to the low CO₂ concentration in flue gases and hence large and expensive equipment is needed to extract the CO₂. Taking this into account, there have been proposed a variety of techniques for removing CO₂ from flue gases (e.g. using chemical or physical absorption, adsorption and membrane separation). The study of them has shown that absorption processes based on chemical solvents are currently the most preferred option for post-combustion systems, offering high capture efficiency and selectivity. The most commonly used absorbent for CO₂ absorption from low pressure flue gas is monoethanolamine. This amine was developed over 60 years ago as a general non-selective solvent to remove acid gases, such as H₂S and CO₂, from natural gas streams. The process was modified to incorporate inhibitors to resist solvent degradation and equipment corrosion when applied to CO₂ capture from flue gas. Also, the solvent strength was kept relatively low, resulting in large equipment size and high regeneration energy requirements. The process consists of, prior to CO₂ removal, flue gas (usually at near atmospheric pressure and temperatures above 100°C) from power plant is cooled down to the temperature levels required for absorption, and treated for contaminants. After cooling, the flue gas is passed through an absorber, where it comes into contact with the chemical solvent, which absorbs much of the CO₂ by chemically reacting with it to form a loosely bound compound. Then, the CO₂-rich solvent from the bottom of the absorber is pumped to another column, stripper (or regeneration vessel), via a heat exchanger. In the stripper, the CO₂-rich solution is heated (to about 100-140°C) to release almost pure CO₂. Water vapors are condensed in the condenser and fed back to the stripper, whereas the net CO₂ gas leaves the unit with purity over 99%. The lean solvent, containing far less CO₂ is cooled down to 40-65°C, and recycled to the absorber. The CO₂ recovery rates of about 98% can be achieved using an amine based chemical absorption process;
- Oxy-fuel combustion (CO₂ is practically the only product after combustion in almost pure oxygen and recycled flue gas, instead of in air). In oxy-fuel combustion a part of the flue gas need to be recycled back into the combustion chamber in order to control the flame temperature. If a fuel is burnt in pure oxygen, the flame temperature may increase up to 3500°C which is excessively high for typical power plant materials, e.g. in a gas turbine combustor the combustion temperature is limited to about 1400°C and in an oxy-fuel coal-fired boiler is about 1900°C. In order to maintain thermal conditions in the combustion zone and prevent overheating of the furnace liner materials, the oxygen is mixed with some CO₂-rich flue gas. From the non-recycled flue gas, water vapor is removed by condensation,

after that the flue gas contains from about 80% to more than 90% CO₂, depending on the fuel type used. This concentrated CO₂ stream can be compressed, dried and further stored. The advantage of the oxy-fuel combustion method is that the net flue gas, after condenser, contains about 95% of the CO₂ gas, so only relatively simple CO₂ purification systems are required. Also, the oxygen and CO₂ recycled combustion process has a benefit in suppressing NO_x formation. The disadvantage of oxy-fuel combustion is that a large quantity of oxygen is needed, which is expensive, both in terms of capital costs and energy consumption (air separation unit may consume about 15% of the power plant's electrical output). However, using oxygen or a mixture of O₂/CO₂ instead of air opens up new possibilities for increased combustion efficiencies. For example previous studies and results have shown that if the energy consumption for producing and compression oxygen will be reduced, the total plant efficiency will be increased until 53%;

- Pre-combustion (CO₂ is removed from the fuel before combustion). In pre-combustion capture fossil fuel reacts with oxygen or air, and/or steam, to produce a gas composed mainly of carbon monoxide and hydrogen. Then, in a catalytic reactor, the resulting gas is shifted, which means that the carbon monoxide is oxidized by water, to produce CO₂ and more H₂. After that, the CO₂ is removed from the CO₂/H₂ mixture by means of physical absorption solvents (methanol or polyethylene glycol), or chemical solvents (ammonia or hot potassium carbonate) and the H₂-rich gas is used as fuel. Chemical solvent processes are used for removing the CO₂ from the shifted syngas by means of a chemical reaction and partial pressures below 1.5 MPa. While physical solvent processes are mostly applicable to gaseous streams which have a high CO₂ partial pressure. In principle, pre-combustion capture is the same when applying to natural gas, light hydrocarbons, oil or coal used as fuels (when coal or oil are used there are more stages of gas purification, to remove particles of ash, sulfur compounds and other impurities). Choice of the right process for hydrogen production actually depends on fuel used, e.g. when the primary fuel is natural gas or light hydrocarbons there will be used steam methane reforming processes or partial oxidation, or auto-thermal reforming processes, if the combustion product is coal or oil, the production of H₂ will be done by gasification of them. Removing CO₂ before combustion offers some advantages. First, CO₂ is not yet diluted by the combustion air. Second, the concentration of CO₂ in the input to the CO₂/H₂ separation unit is relatively high (15-60%) and the total pressure is typically 2-7 MPa.

Objectives of PhD study

The main objectives of this PhD study are:

- to remove CO₂ from the flue gas by means of an aqueous solution of monoethanolamine. Additionally, to study and analyze the effect of pollutants/impurities (e.g. SO₂) on CO₂ capture process. Mitigation of CO₂ by means of biomass co-firing is also experimentally investigated;
- to improve the thermal characteristics of an equipment in which the rich MEA is heated in order to regenerate the solvent, and to identify the most cost effective heat transfer enhancement technique used in such systems.

Experimental

Experimental facility

Figure E 1 presents a schematic drawing of the experimental facility.

Experiments have been carried out on a biomass-coal co-firing facility with a nominal thermal power of around 40 kW, Figure E 2. The facility is equipped with a flue gas cleaning system as well.

The combustor has a cylindrical shape, having an inside diameter of 200 mm (lower combustor) and 250 mm (upper combustor), and an overall height of 900 mm. Air distributor plate made of stainless steel bars is located at the bottom part of the column. The fuel mix was supplied to a height of 100 mm above the air distributor. As fuels, there have been used lignite from the Motru coal field (Romania) and sawdust with high calorific value of approximately 14.6 MJ/kg. The fuel mix is fed into the bed by a screw feeder. The rotation speed of the screw feeder is kept constant to provide 10 kg/h of fuel.

The facility is equipped with a combustion air pre-heater, which is used for faster pre-heating during the start-up. The primary air is pre-heated to about 400°C and the secondary air was introduced into the combustor through the viewing window at around 150 mm above the distributor plate.

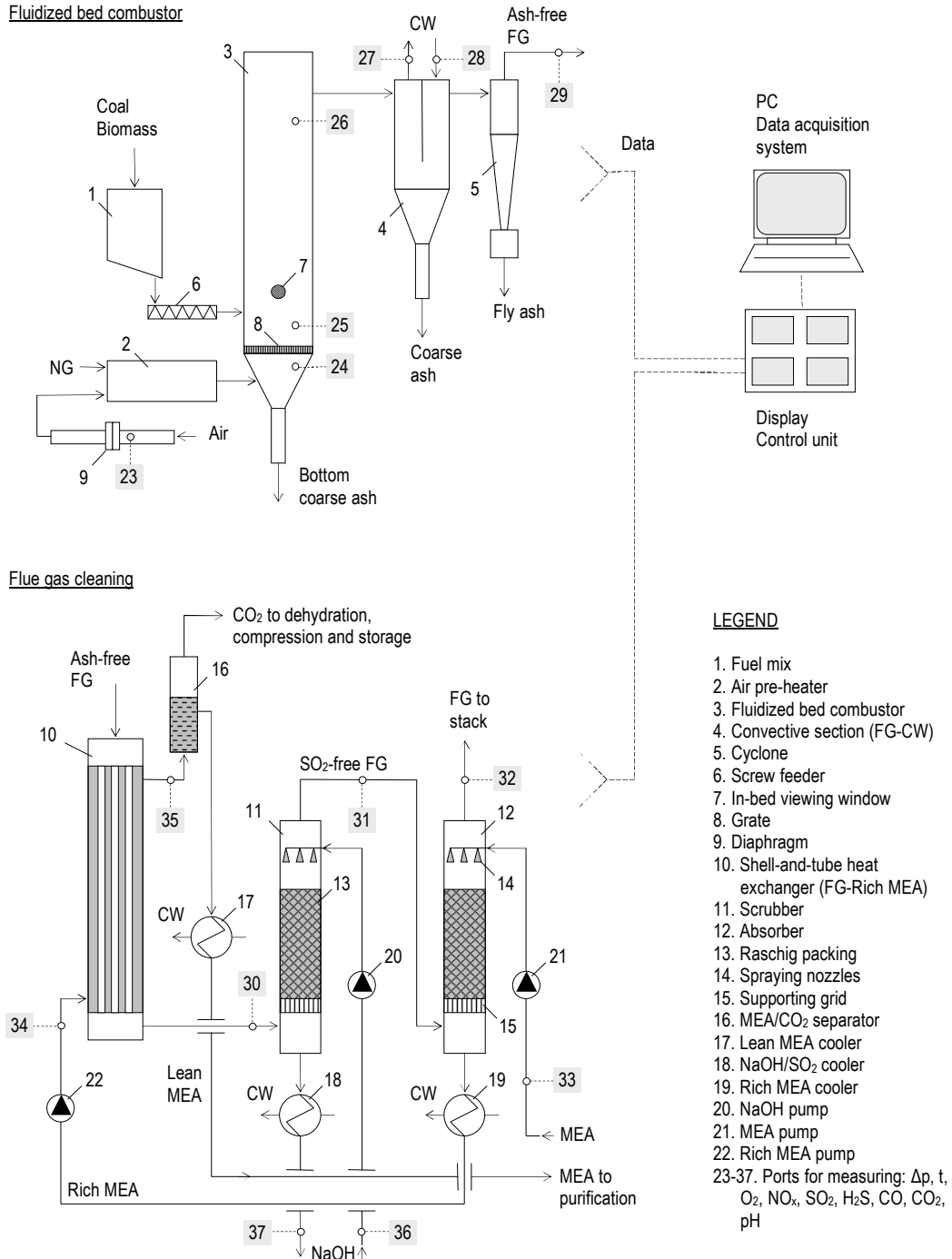


Figure E 1. Schematic diagram of a 40 kW_{th} bubbling fluidized bed combustor with ash removal systems and flue gas cleaning (units: SO₂ scrubber, CO₂ absorber, MEA regenerator, MEA/CO₂ separator)

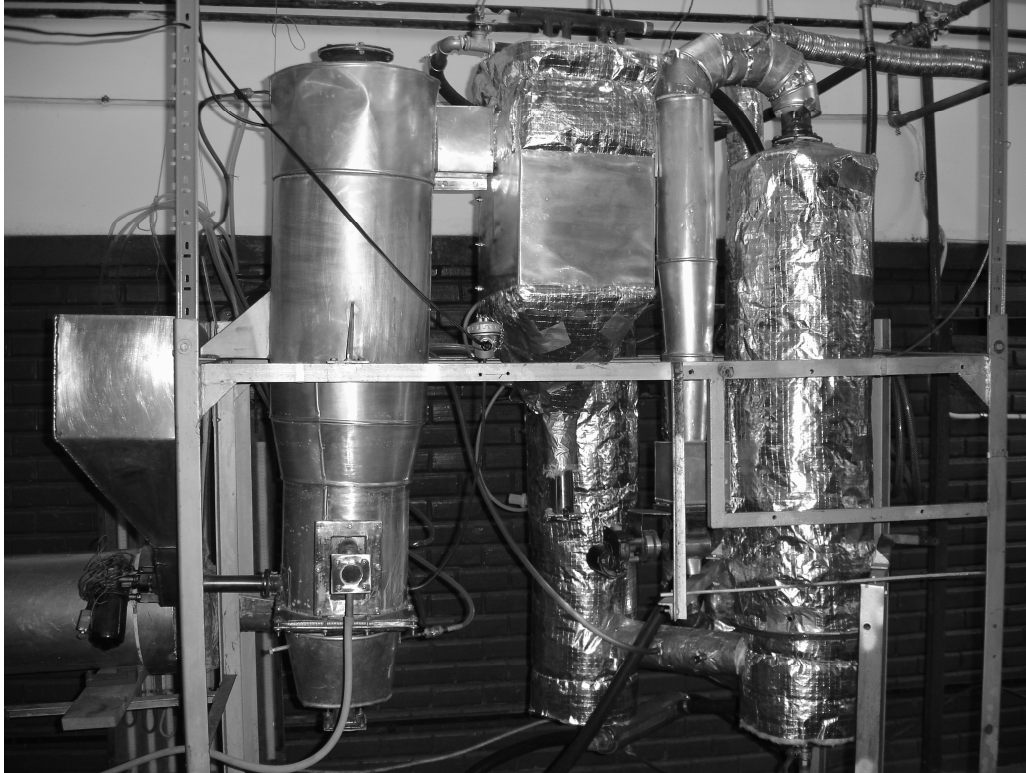


Figure E 2. Lab scale facility (front view, same as Figure 5.1)

The scrubber and absorber are stainless steel columns with an inner diameter of 200 mm and height of 700 mm and 800 mm, respectively, Figure E 3. The columns were randomly packed with ceramic Raschig rings (26×26×5 mm), with gas and liquid distributors located at the bottom and top of the column, respectively. Figure E 4 shows the absorption column before and after packing. The packing height is 150-200 mm above the supporting grid. Bed porosity of which was experimentally found to be ~ 0.7 . The characteristics of the packing are given in Table 5.1.

The shell-and-tube heat exchanger, used as the monoethanolamine regenerator, is a vertical stainless steel column having an inside diameter of 207 mm and overall height of 1050 mm. The tube bundle contains 19 straight tubes, of which 6 are blocked, with an effective heat exchange length of 690 mm. The tubes have an inner diameter of 21 mm and an outer diameter of 25 mm, and the tube pitch is 38 mm.



Figure E 3. SO_2/CO_2 removal system (left) view of the scrubber and absorber, and (right) top view of the columns (same as Figure 5.3)

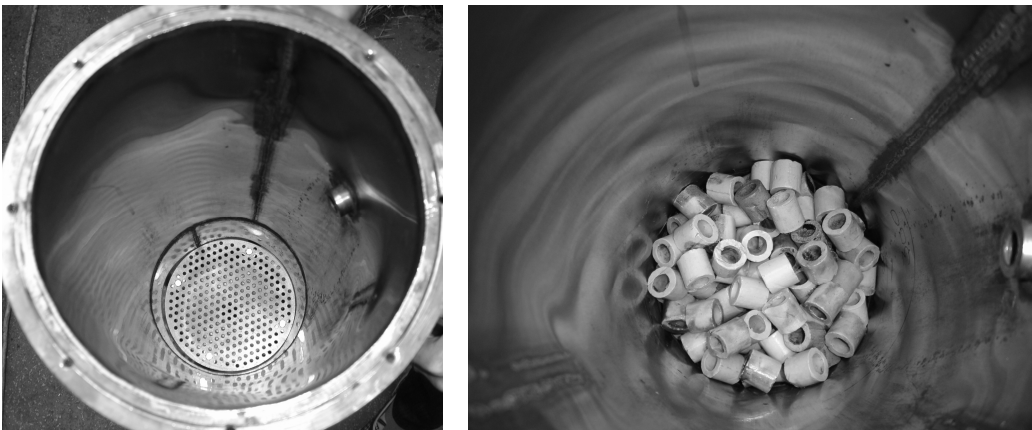


Figure E 4. CO_2 absorber (left) supporting grid and (right) Raschig packing (same as Figure 5.5)

Experimental procedure

Prior to experimental tests, lignite was crushed and minced to a particle size of 2 mm, and woody sawdust was passed through a sieve in order to retain pieces larger than 4 mm in size.

When the inlet-bed temperature in the combustor reaches almost 400°C, the fuel mix starts the ignition progression and burning. The combustion temperatures vary between 800°C and 950°C. Theoretically, at these temperatures no atmospheric nitrogen is converted to NO_x and only a small percentage of the fuel nitrogen is converted. The coarse ash is removed from the combustor by means of a screw, located at the bottom. After leaving the combustor, the flue gas cools down to approximately 250-300°C in the convection section before it enters the cyclone where fly ash is separated from the flue gas. The amount of fly ash depends mainly on the ash content of the fuel.

Between the convective section and the cyclone, aqueous ammonia is injected into the flue gas stream in order to reduce the emissions of NO_x. The concentration of ammonia is 25%.

Before entering the scrubber, flue gas with low ash content flows through a shell-and-tube heat exchanger. In this equipment the CO₂-rich liquid chemical absorbent is heated and sent to a column where the CO₂ evolves from the rich MEA. Regenerated MEA is CO₂-lean and recirculated to the absorber for reuse.

In order to prevent the aqueous solution (MEA+CO₂+H₂O) from boiling, the CO₂-rich MEA is only heated up to 96°C, since in the present heat exchanger, used as the regenerator, this is the highest temperature that can be safely maintained.

After cooling, the flue gas enters the bottom of the scrubber where it contacts aqueous sodium hydroxide flowing down through the packed bed. The reaction mechanism between sulfur dioxide and sodium hydroxide, which is a strongly alkaline solution, is quite complex. It depends on many factors such as pH of the solution, inlet flue gas SO₂ concentration, temperature, concentrations of other gases. It may be described as follows: SO₂ reacts with NaOH to form a compound of sodium sulfite and water. After that, sodium sulfite absorbs additionally sulfur dioxide resulting in a chemical compound of sodium hydrogen sulfite. Due to that the flue gas contains oxygen sodium sulfite is oxidized to sodium sulfate. It is important to note that the solution of sodium hydroxide also reacts with other acid gases.

After SO₂ removal, the flue gas enters the CO₂ absorption column and comes counter-currently into contact with CO₂-lean monoethanolamine. The CO₂ absorber was designed to operate at temperatures up to 70°C. The MEA concentration of 30% was selected to chemically absorb the CO₂ from the flue gas. This process involves capturing CO₂ using a reversible reaction between CO₂ and MEA. At low temperatures 50-60°C, the CO₂ is absorbed by the chemical solvent. To reverse the absorption chemistry and so, to regenerate the solvent, the CO₂-rich MEA is heated.

Instruments

The temperature of the flue gas was measured by means of chromel-alumel thermocouples (K-type) with a diameter of 5 mm. The inlet temperature and mass flow rate of air were measured with TESTO 425 thermal anemometer. Also, the air mass flow rate was calculated from the pressure drop data. U-type manometers

were used to measure the pressure drop in the combustor, SO₂ removal column and CO₂ absorber. The gases were sampled at four different locations (ports 29, 30, 31 and 32). The flue gas analyzers used in the experiments were TESTO 350 XXL. The following gases were recorded: O₂, NO_x, SO₂, CO, CO₂ and H₂S. Temperatures of the cooling water and of the CO₂-rich MEA were continuously measured by K-type thermocouples (temperature range 20-150°C). The inlet and outlet temperature and pH of the scrubbing solutions (i.e. MEA and NaOH) were recorded by HANNA HI991002 pH-meter (pH range between -2 and 16, $t \approx 0-105^\circ\text{C}$). All instruments were calibrated before and after each experiment.

All process variables are continuously recorded and processed by the control system.

Numerical study

Computational models

The computational models of the tube-side and shell-side of shell-and-tube heat exchanger are shown in Figure 4.2, and the geometry parameters are listed in Table 4.2. As can be seen the main geometrical characteristics of the heat exchanger are: shell inside diameter of 207 mm; tube inner/outer diameter of 21/25 mm; tube length of 690 mm, tube layout of 60° and 30° and total tube number of 19.

Governing equations and boundary conditions

The governing equations for continuity, momentum and energy in the computational domain can be expressed as follows:

Table E 1. Equations for continuity, momentum and energy

<i>Continuity:</i>	$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i) = 0$
<i>Momentum:</i>	$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i u_j) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\mu \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{\partial p}{\partial x_j}$
<i>Energy:</i>	$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i T) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{k}{c_p} \frac{\partial T}{\partial x_i} \right)$

The following boundary conditions were set up: (i) inlet, $u_i = \text{constant}$ (uniform velocity inlet) and $T_i = \text{constant}$ (uniform temperature, 523 K for tube-side fluid and 293 K for shell-side fluid); (ii) temperature of the tube wall is kept constant, $T_w = \text{constant}$ (423 K and 363 K for tube- and shell-side, respectively); (iii) non-slip boundary condition is applied on the wall; (iv) fluid properties are function of temperature, the polynomial equations are given in Table 2; (v) the leakage between tube and baffle and that between baffle and the shell are neglected; (vi) the exterior wall of the shell-side is modeled as adiabatic.

Table E 2. Thermo-physical properties of flue gas and water function of temperature

Flue gas (~13% CO₂):

$$\rho = 3.2743 - 0.0109T + 1.594 \times 10^{-5}T^2 - 8.5869 \times 10^{-9}T^3$$

$$c_p = 962.4367 + 0.2981T - 3.2583 \times 10^{-5}T^2$$

$$\mu = 1.2266 \times 10^{-6} + 5.9153 \times 10^{-8}T - 2.1143 \times 10^{-11}T^2$$

$$\lambda = -0.0016 + 9.0641 \times 10^{-5}T - 5.7495 \times 10^{-9}T^2$$

Water (as CO₂ absorbent):

$$\rho = 300.2234 + 6.1598T - 0.0169T^2 + 1.3881 \times 10^{-5}T^3$$

$$c_p = 37876 - 398.12T + 1.764T^2 - 3.4785 \times 10^{-3}T^3 + 2.5791 \times 10^{-6}T^4$$

$$\mu = 0.3812 - 4.362 \times 10^{-3}T + 1.8829 \times 10^{-6}T^2 - 3.6252 \times 10^{-8}T^3 + 2.6235 \times 10^{-11}T^4$$

$$\lambda = -0.7545 + 7.4635 \times 10^{-3}T - 9.7089 \times 10^{-6}T^2$$

*in which temperature T is in K, density ρ in kg/m³, viscosity μ in kg/m·s and thermal conductivity λ in W/m·K

Polynomial equations from Table E 2 are valid for temperature range of: 0-300°C for flue gas; 0-96°C for CO₂ absorbent.

Solution procedure

The computational domain of the three-dimensional models has been meshed with the unstructured Tet/Hybrid grids, which are generated by GAMBIT2.2. The region adjacent to the tube wall, shell, baffle and tape is meshed much finer. In the present numerical investigation, a series of grid independence tests have been conducted to ensure that optimized computational mesh was obtained. Grid independence tests have been carried out for each mesh model.

In order to simulate the heat transfer and fluid flow in the computational model the commercial code FLUENT6 is adopted. Segregated solver is selected. This means that the segregated approach is used to solve a single variable field by considering all cells at the same time. Standard laminar model is employed and energy equation has been included. The SIMPLE algorithm with second order up winding for momentum and energy is used. Default under relaxation factors of the solver are employed, which are 0.3 for the pressure, 1.0 for the energy and 0.7 for the momentum. The convergence criterion is that the mass residual should be less than 10^{-4} for the flow field and the energy residual less than 10^{-6} for the energy equation.

Heat transfer and pressure drop calculation

Table E 3 explains how the heat transfer coefficient and pressure drop data in the tube-side and shell-side are calculated.

Table E 3. Calculation procedure of heat transfer coefficient and pressure drop in the tube-/shell-side of shell-and-tube heat exchanger

	Tube-side	Shell-side
<i>Heat transfer coefficient:</i>		$h = Q/A\Delta T$
	$Q = Mc_p(T_i - T_o)$	$Q = Mc_p(T_o - T_i)$
	$A = n_t n d_i l_t$	$A = n_t n d_e l_t$
	$\Delta T = \frac{T_i - T_o}{\ln \frac{T_i - T_w}{T_o - T_w}}$	$\Delta T = \frac{T_o - T_i}{\ln \frac{T_w - T_i}{T_w - T_o}}$
<i>Pressure drop:</i>		$\Delta p = p_i - p_o$

*in which h is in $W/m^2 \cdot K$ and Δp is in Pa

Experimental results

CO₂ absorption into MEA 30% (by mass)

The main objective of this study is to capture the CO₂ from flue gas by means of an aqueous solution of monoethanolamine. The flue gas is generated by coal and/or biomass combustion in fluidized bed.

The experimental results have shown that the CO₂ concentration in the flue gas can be reduced from 10-15% (by volume) to around 2-5% depending on the operating conditions and inlet concentration of other gaseous emissions pollutants and impurities.

Figure E 5 shows the CO₂ concentration in the flue gas before and after absorption into a 30% MEA solution for different tests. From this figure, it can be easily noted that the outlet CO₂ content increases as both inlet CO₂ and SO₂ increases. During the tests on sawdust co-firing, the concentration of carbon dioxide in the flue gas varied averagely between 11 and 13% (by volume). After the use of chemical absorbent the CO₂ concentration in the outlet flue gas decreased up to 1.9-2.3%. Higher decrease is achieved when the emissions of SO₂ had the lowest value of about 52 ppm.

The combustion of lignite produced a flue gas with a higher CO₂ content. In these tests the emissions of SO₂ increased because of the high sulfur content of the fuel. This had a negative impact on the CO₂ capture process. The CO₂ concentration in the flue gas before entering the absorber varied between 12 and 15%. The outlet flue gas CO₂ concentration is reduced up to 3.1% and 5.2% after washing with MEA. Poorer CO₂ capture process is observed in the latter case. One of the reasons could be a very high SO₂ concentration in the flue gas stream before the CO₂ absorption process. It should be noted that the SO₂ reacts with MEA and forms non-reversible product.

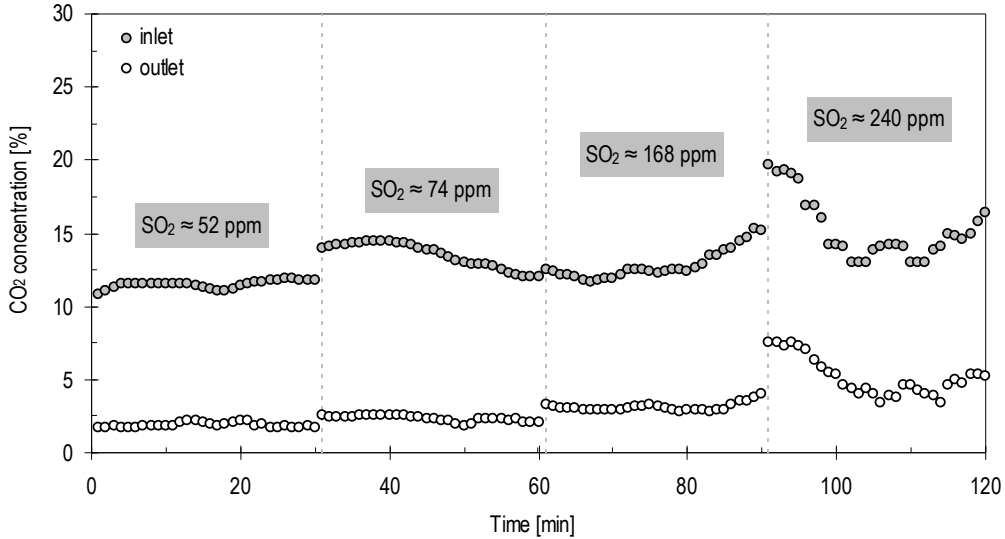


Figure E 5. CO₂ concentration in flue gas before and after absorption into MEA 30% for different test runs

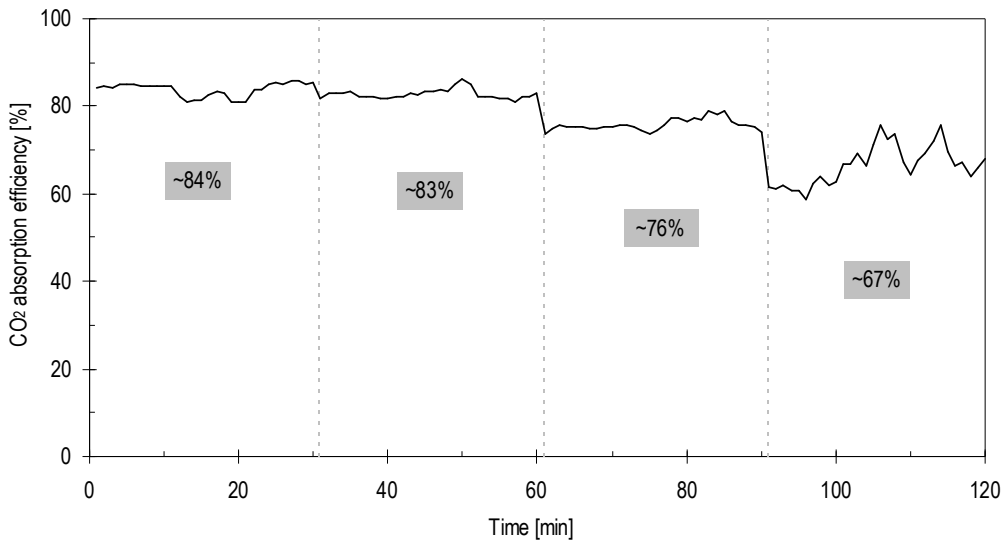


Figure E 6. Efficiency of CO₂ absorption into MEA 30% for different test runs

Figure E 6 presents the absorption efficiency of CO₂ into an aqueous MEA solution of 30% for various test runs. The efficiency of ~84% can be achieved when the concentration of CO₂ in the flue is about 10-12% (by volume) and relatively low SO₂ concentration before the absorber. The carbon capture efficiency decreased slightly as the CO₂ content in the flue gas increased to approximately 13.5%. As

mentioned above, the emissions of SO_2 were higher (~ 70 ppm) than in the previous test.

Burning lignite alone generated a flue gas with a CO_2 content of 12-15%. After using of a 30% MEA solution the outlet CO_2 content in the inlet flue gas was between 3 and 5%. The CO_2 absorption efficiency was approximately of 76% and 67%. During the coal combustion tests the negative effect of other pollutants on CO_2 capture was noted. Increase of the inlet flue gas SO_2 concentration from about 50 to 240 ppm, decreases the carbon capture efficiency.

Removal of SO_2 from flue gas with NaOH (1.5% and 2.5% by mass)

Figure E 7 shows the average concentration of SO_2 in the flue gas before and after desulphurization. Two concentrations of the aqueous solution of sodium hydroxide were employed during the test runs (1.5% and 2.5% by mass). These were sprayed into the flue gas stream with a SO_2 concentration of 500-550 ppm, as a result of biomass-coal co-firing, and 1000-1100 ppm during coal combustion.

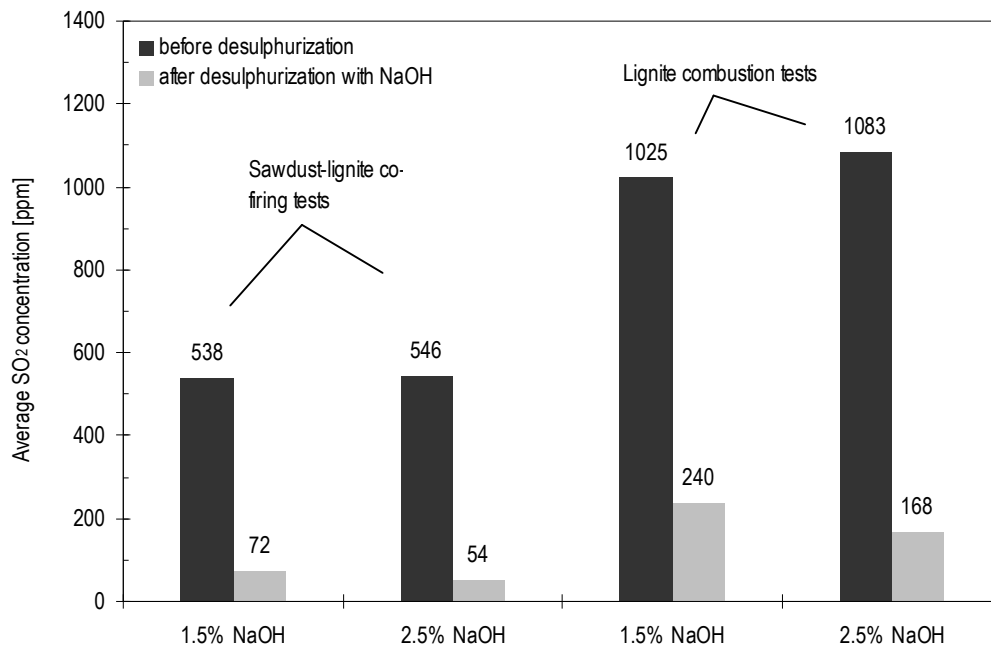


Figure E 7. SO_2 concentration in flue gas before and after desulphurization with NaOH (1.5% and 2.5% by mass) for different test runs

Scrubbing of SO_2 with NaOH is a good means to reduce the concentration of sulfur dioxide prior to CO_2 absorber. The use of a 1.5% NaOH solution reduces the SO_2 concentration of the flue gas from about 540 to 70 ppm, during sawdust co-firing tests, and from ~ 1020 to 240 ppm for coal combustion tests. Higher decrease of the SO_2 emissions is achieved by a stronger solution of NaOH of 2.5%.

From Figure E 7 it can also be noted that the production of sulfur dioxide emissions is positively affected by an increasing percentage of sawdust because of the low sulfur content of the added fuel. Co-firing of sawdust (30% by mass) with lignite (70%) resulted in a flue gas with lower SO_2 content in comparison with the tests based only on coal combustion. Additionally, SO_2 can be partly retained in the ash due to the alkaline content of the biomass ash. Experimental tests on sawdust co-firing have shown that the emissions of SO_2 decreased by approximately two times.

The removal efficiency of SO_2 is shown in Figure E 8. As expected the use of stronger solution yields higher desulphurization efficiency. The average flue gas desulphurization efficiency, during sawdust-lignite co-firing, is 87% after washing the flue gas with NaOH 1.5% and 90% with NaOH 2.5%. The efficiency decreases as the inlet flue gas SO_2 concentration increases. Coal combustion generated a flue gas with the concentration of SO_2 of about 1000-1100 ppm. Gas sampling after the scrubber has shown that the SO_2 decreased up to 240 ppm (NaOH 1.5%) and 167 ppm (NaOH 2.5%), which indicate a SO_2 removal efficiency of 77% and 86%, respectively.

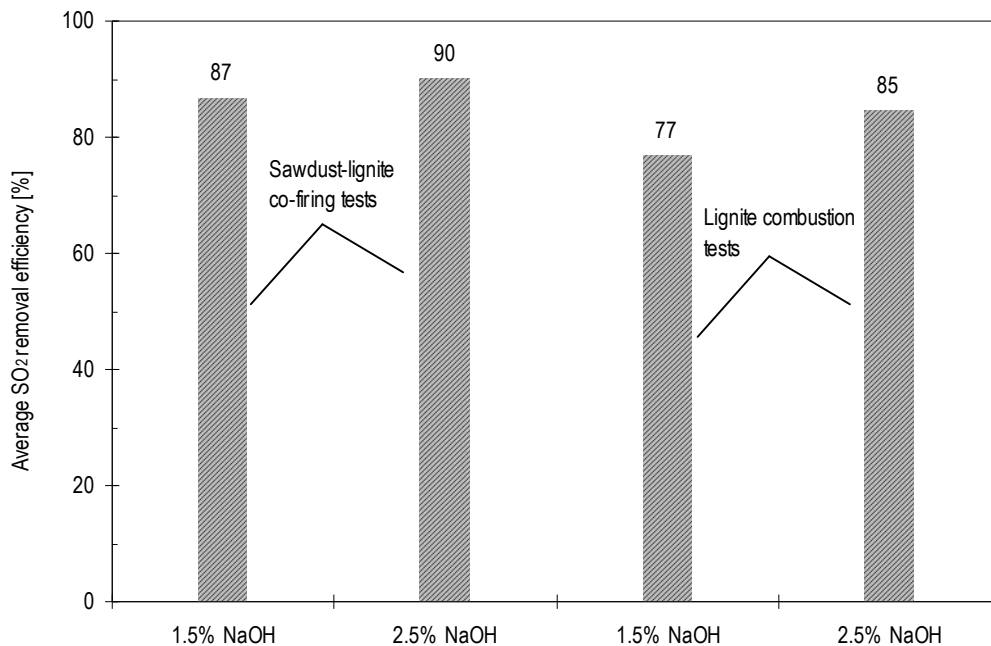


Figure E 8. SO_2 removal efficiency for different test runs

The effect of sodium hydroxide on the outlet flue gas CO_2 concentration from the scrubber is shown in Figure E 9. It is obvious from this figure that the use of NaOH (1.5% and 2.5% concentration) has no or very little effect on CO_2 capture.

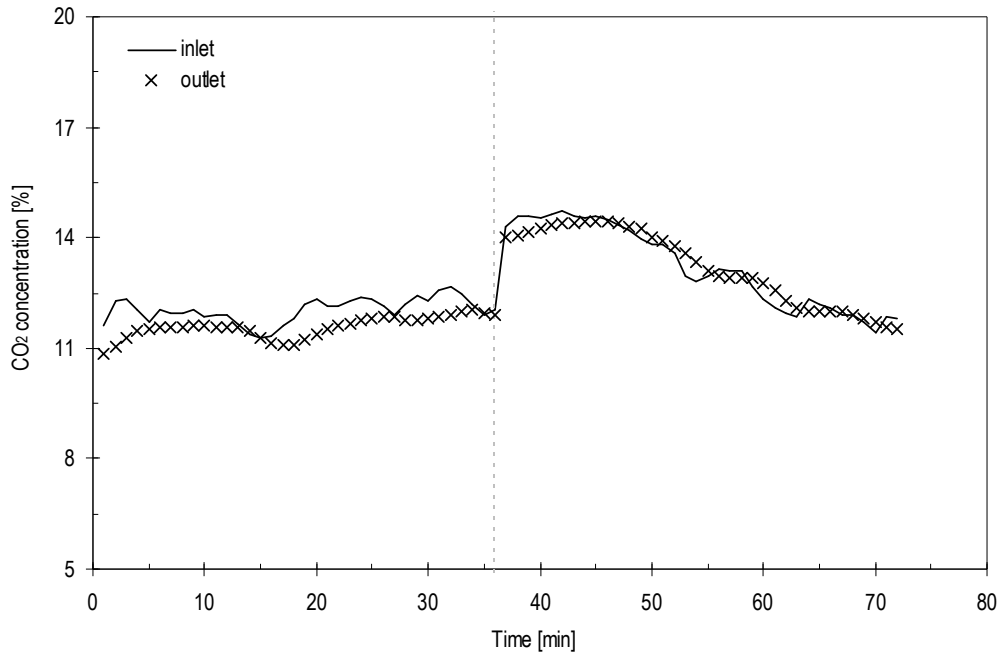


Figure E 9. CO₂ concentration in flue gas before and after the scrubber (same as Figure 6.11)

Effect of biomass co-firing

Figure E 10 shows the surface of the convective section after several hours of operation with sawdust-lignite co-firing. It can be observed that the wall in the first pass of convective section (left) is more affected by corrosion than the wall in the second pass.

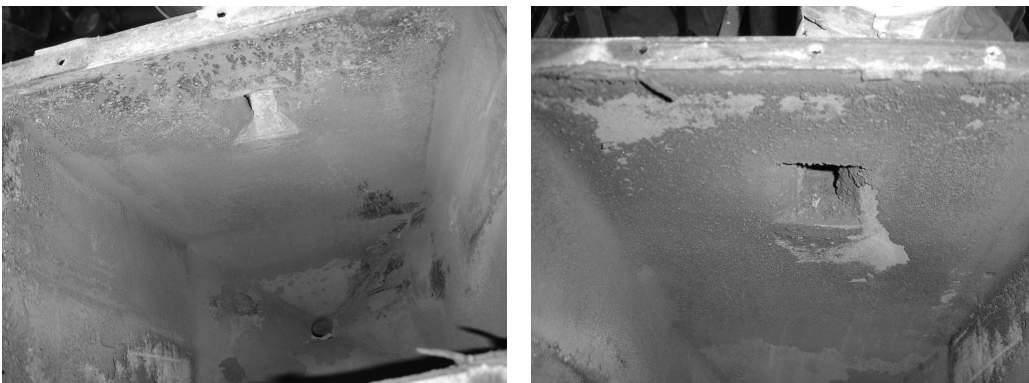


Figure E 10. Walls of the convective section (left) flue gas inlet from the combustor and (right) flue gas outlet

Corrosion, slagging and fouling of the exterior surface of tubes is shown in Figure E 11, after several operating hours on sawdust co-firing.



Figure E 11. Tube walls of the convective section (same as Figure 6.13)

Numerical results

Tube-side heat transfer and pressure drop

The variation of heat transfer coefficient with flue gas mass flow rate for four different twist ratios (3, 4, 5 and 6) and tape width to diameter ratio of 0.95 of the twisted tape is shown in Figure E 12.

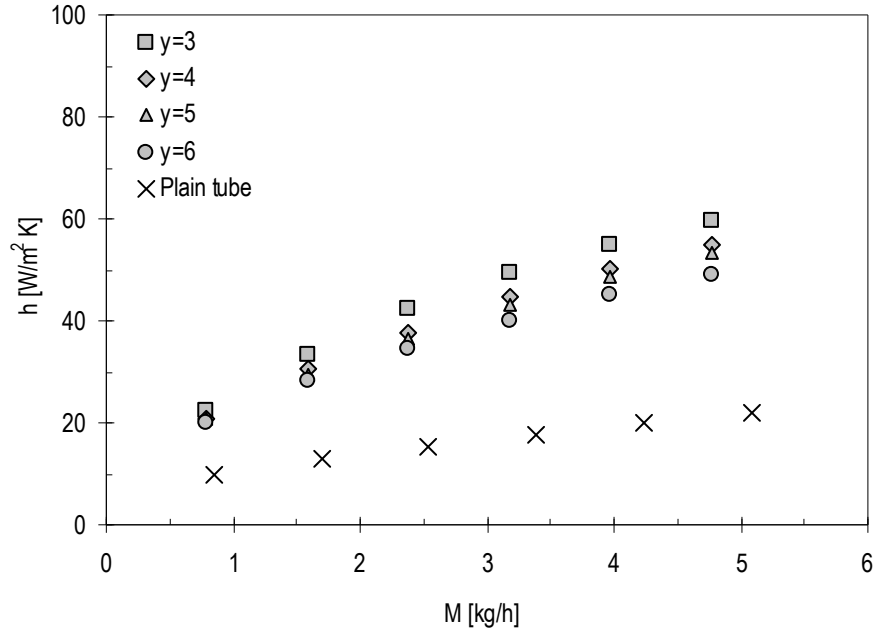


Figure E 12. Variation of heat transfer coefficient with flue gas mass flow rate for tube with twisted tape at different twist ratios (for case $w/d_i = 0.95$) (same as Figure 6.17)

It can be easily noted from Figure E 12 that the highest heat transfer is achieved for the twisted tape with the lowest twist ratio ($y = 3$). The heat transfer coefficient for the cases with $y = 4$, 5 and 6 is about 9.2%, 15.8% and 20.4%, respectively, lower than that of the tube with twisted tape ratio of 3. Compared to the plain tube, the heat transfer coefficient increases in the range 126-170%, 112-147%, 101-136% and 96-123% for twist ratios of $y = 3$, 4, 5, and 6, respectively, depending on the flow conditions. For all of these twisted tape cases, the h/h_o is averagely 2.1-2.6 times those of the plain tube.

The effect of using twisted tape inserts on the pressure drop is presented in Figure E 13. It is seen that the use of the smallest twist ratio yields the highest pressure drop. The pressure drop for $y = 3$ is found to be ~18%, 32% and 39% higher than those of the cases with larger twist ratios, $y = 4$, 5 and 6, respectively. It can be also noted that the pressure drop for $y = 5$ and 6 has approximately the same value while the pressure drop for $y = 4$ is seen to be the mean value between those for $y = 3$ and 6. The increase in pressure drop of the twisted tape tube, caused mainly by the swirl flow, is higher than that of the plain tube and is also much larger than that in heat transfer coefficient. Thus, the pressure drop increases in the range of 416-484%, 342-390%, 307-337% and 290-312% over the plain tube for tapes with $y = 3$, 4, 5 and 6, respectively.

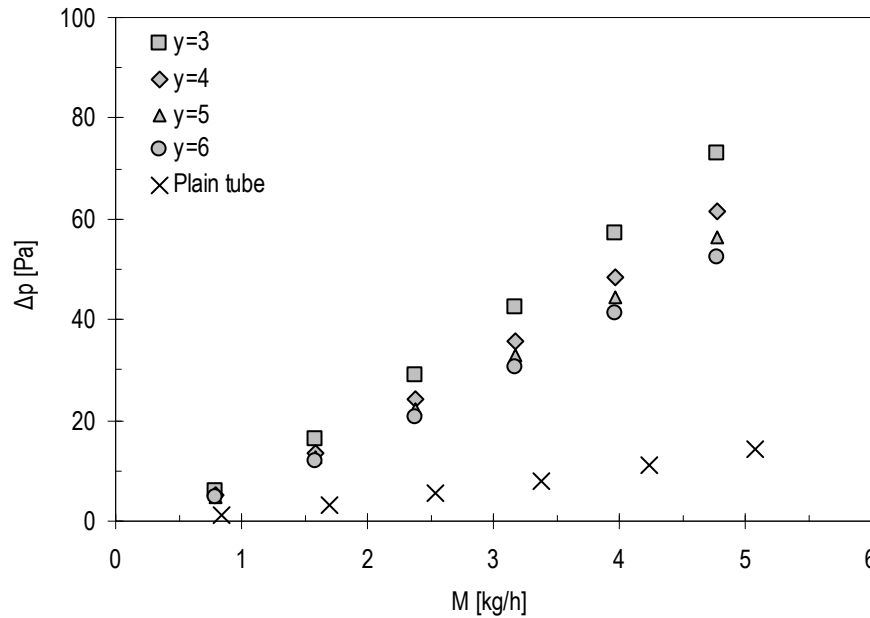


Figure E 13. Variation of pressure drop with flue gas mass flow rate for tube with twisted tape at different twist ratios (for case $w/d_i = 0.95$) (same as Figure 6.18)

The thermal performance factor, which is the ratio of the convective heat transfer coefficient of the tube with heat transfer enhancement device to the plain tube, is found to vary from 1.37 to 1.60, 1.35 to 1.53, 1.31 to 1.50 and 1.30 to 1.47 for $y = 3, 4, 5$ and 6 , respectively. It can be noted that the enhancement efficiency slightly increases with the reduction of twist ratio values.

Figure E 14 shows the contour plots of temperature fields, at the outlet section of the twisted tape tube for two different width to diameter ratios ($w/d_i \approx 0.95$ and 0.76) and four twist ratios ($y = 3, 4, 5$ and 6) for flue gas mass flow rate of 3.2 kg/h (uniform $u_i = 4 \text{ m/s}$). It is clearly seen that the use of the tight-fit twisted tapes, with the smallest clearance between the edge of tape and tube wall, provides better heat transfer than the twisted tapes with larger clearance. This is because the fluid mixes more efficiently inside the tube with the twisted tape $w/d_i \approx 0.95$.

The effect of twist ratio on temperature distribution can be also noted. Better temperature distribution is achieved as the swirl flow becomes stronger.

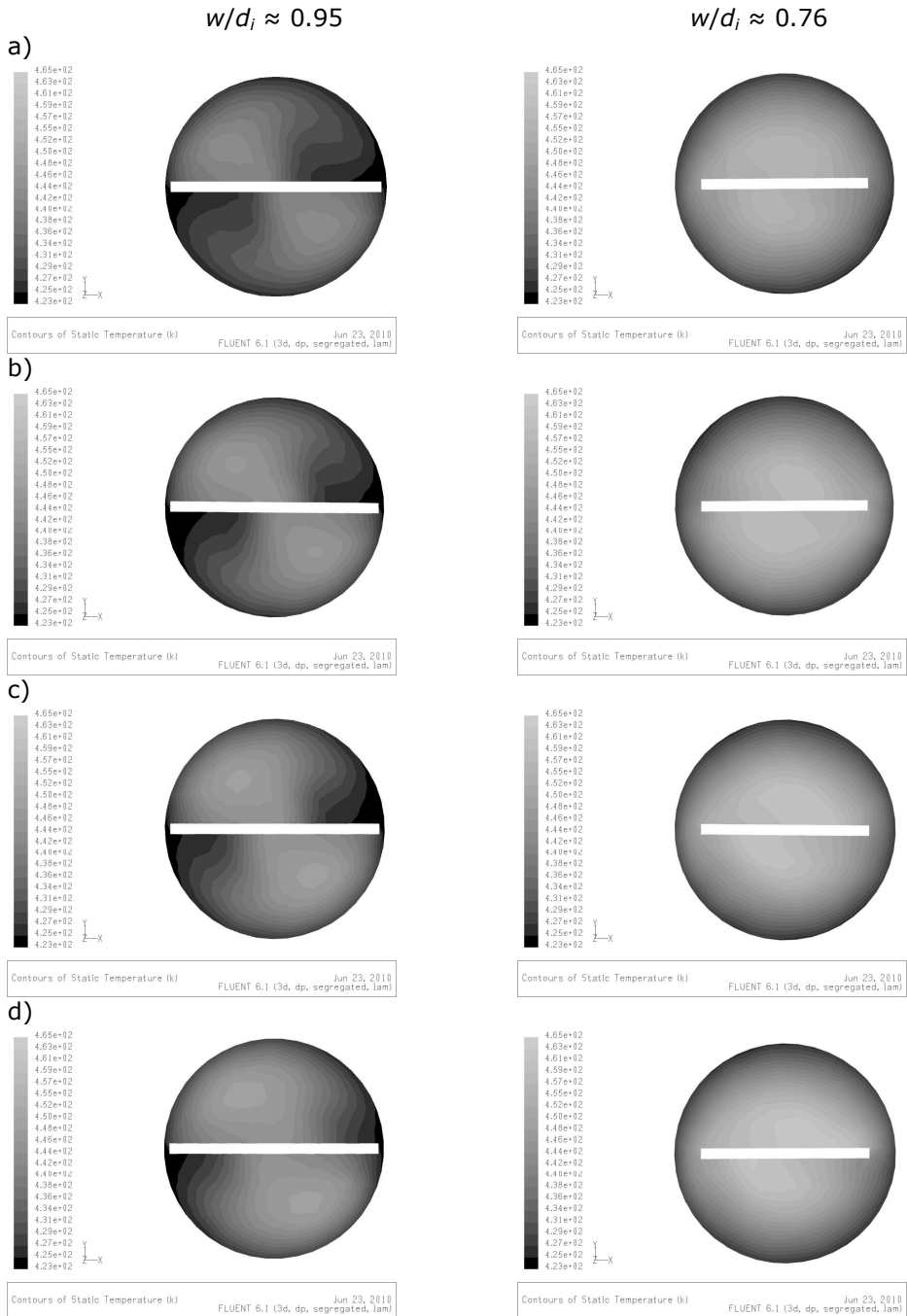


Figure E 14. Temperature contour at the outlet from the tube with twisted tape inserts at different width ratios (0.95 and 0.76) and twist ratios (3, 4, 5 and 6) for flue gas mass flow rate $M \approx 3.2$ kg/h: (a) $y = 3$; (b) $y = 4$; (c) $y = 5$; (d) $y = 6$ (same as Figure 6.22)

During the experimental work, the use of loose-fit twisted tapes would be more preferred in case of high level of impurities recorded in the flue gas before entering the tube-side of the heat exchanger.

Shell-side

The average shell-side heat transfer coefficients for different shell-side geometries (with/without the baffles, 60°/30° tube layout, 9/21 mm inner diameter of the shell inlet and outlet) are presented in Figure E 15 with the liquid mass flow rate as an independent variable. From this figure it can be found that, under the same mass flow rate, the shell-side heat transfer coefficients of the exchangers with segmental baffles are notably higher than those without the baffles. Among all the three geometrical models, which use baffles, the heat transfer coefficient of the case with 30° tube layout is the highest. The shell-side heat transfer coefficient of the last numerical model increases up to 143% in comparison with the same shell-side geometrical characteristics but without the baffles.

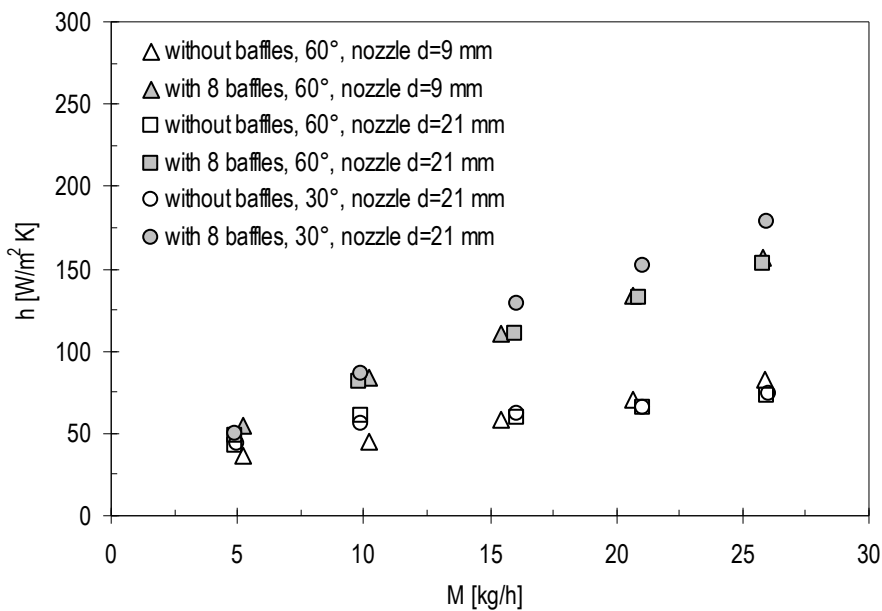


Figure E 15. Variation of heat transfer coefficient with mass flow rate of water in the shell-side (with/without baffles) of heat exchanger

In Figure E 16 the shell-side pressure drop data for six different geometrical models of the shell-side are presented. It can be clearly observed that the pressure drop of the last four models is remarkably lower than that of the real shell-side geometry. This is mainly attributed to larger shell inlet/outlet nozzles, which were twice those of the first ones. Theoretically, the pressure drop is proportional to the shell inlet/outlet diameter ($\Delta p \sim d^{-4}$) and thus increases rapidly with a decrease in diameter.

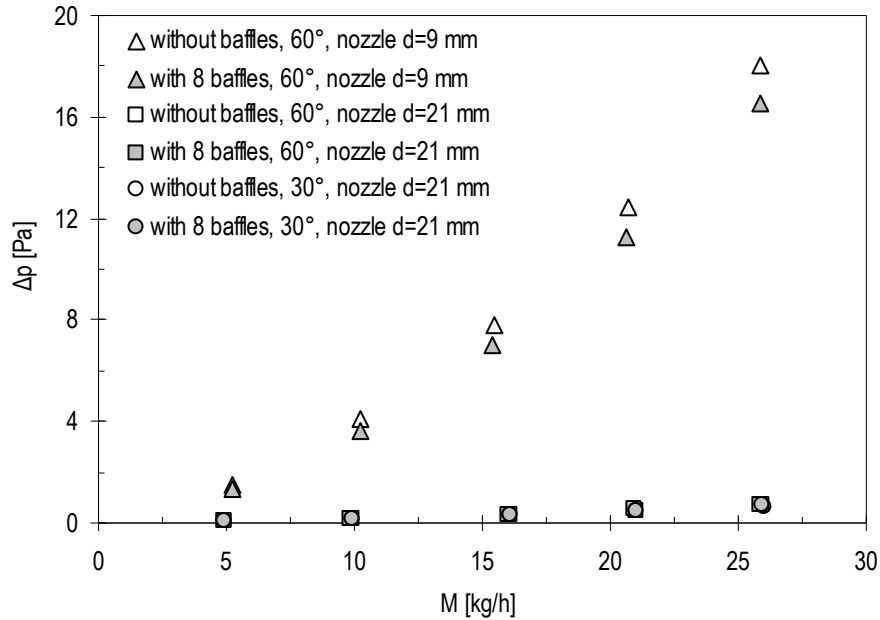


Figure E 16. Variation of pressure drop with mass flow rate of water in the shell-side (with/without baffles) of heat exchanger

It is obvious from the figure above that larger inlet/outlet shell-side nozzles, proposed in this investigation, lead to lower pressure loss than the numerical case of the real geometry of heat exchanger. For the shell-side with the inlet/outlet nozzles of 21 mm the pressure drop is almost the same. This size of nozzles will be considered when the heat exchanger will be modified in the next campaign to accomplish the proposed targets.

Comparison of the temperature distribution in the shell-side with/without the baffles (60° tube layout, nozzles of 21 mm) is shown in Figure E 17 for mass flow rate of ~ 26 kg/h. From Figure E 17, it can be observed that in the shell-side with segmental baffles, the temperature increases much faster than in the shell-side without the baffles. It can also be noted a big difference between the temperature fields near the shell wall of both exchangers. Better temperature distribution is achieved in the latter case, the working fluid of which had a 6 K temperature increase.

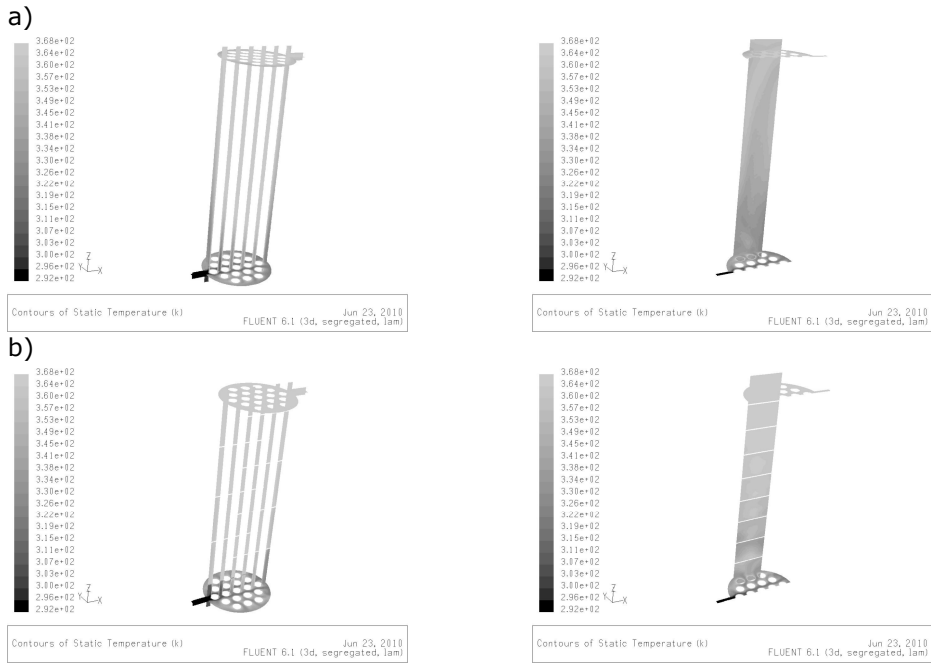


Figure E 17. Temperature contour along z-axis at different y-planes in the shell-side of heat exchanger (tube layout 60°) for water mass flow rate $M \approx 26$ kg/h: (a) without baffles, $T_o = 361.6$ K; (b) with 8 segmental baffles, $T_o = 367.6$ K

As expected, the same behavior is observed for the shell-side with a tube layout pattern of 30°, Figure E 18. Compared to the previous numerical case, the same temperature difference is noted between the models (6 K). However, the numerical results have shown that this type of shell is more efficiently (see Figure E 15).



Figure E 18. Temperature contour along z -axis at different y -planes in the shell-side of heat exchanger (tube layout 30°) for water mass flow rate $M \approx 26$ kg/h: (a) without baffles, $T_o = 361.8$ K; (b) with 8 segmental baffles, $T_o = 367.8$ K

Conclusions

Study conclusions

Separation of carbon dioxide from the flue gas, as a result of coal and/or biomass combustion in fluidized bed, by means of an aqueous solution of monoethanolamine was experimentally investigated. In addition, the experimental study was focused on the removal of other gaseous emission pollutants and impurities from the flue gas prior to CO_2 capture. The effect of these pollutants on the carbon capture efficiency was also analyzed. The experimental work included also the study of the co-firing process of sawdust with lignite in a bubbling fluidized bed combustor. The major conclusions related to experimental study are as follows:

- The experimental results have shown that after the CO_2 absorption process, the concentration of CO_2 in the flue gas were decreased from about 10-12% (by volume) to $\sim 2\%$, which represents an absorption efficiency of $\sim 84\%$, Figure E 19. The carbon capture efficiency decreased slightly as the CO_2 content in the flue gas increased to approximately 13.5%. It should also be noted that during this test the emissions of SO_2 were higher than in the previous test. Burning lignite alone generated a flue gas with a CO_2 content of 12-15%. After using of a 30% MEA solution the outlet CO_2 content in the inlet flue gas was between 3 and 5%. During the coal combustion tests the negative effect of other pollutants on CO_2 capture was noted;

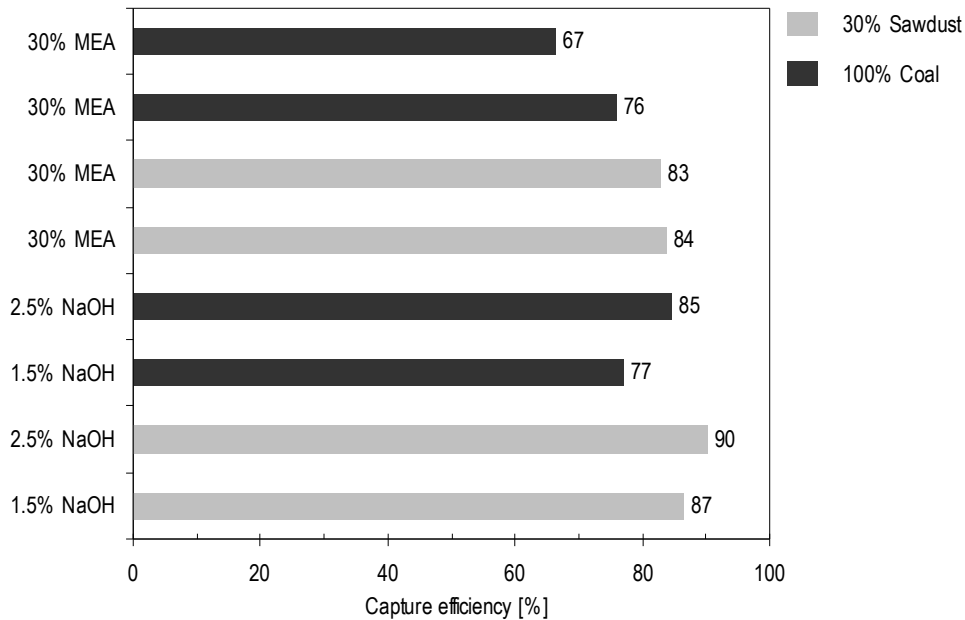


Figure E 19. The average efficiency of CO₂ absorption into aqueous solution of monoethanolamine and SO₂ removal by sodium hydroxide

- The removal efficiency of sulfur dioxide, during sawdust-lignite co-firing, was almost 87% after the use of a 1.5% NaOH solution and ~90% with 2.5% NaOH, Figure E 18. The efficiency decreases as the inlet flue gas SO₂ concentration increases. The combustion of lignite produced a flue gas with a SO₂ concentration of about 1100 ppm. Scrubbing the gas with 1.5% NaOH reduced the concentration of SO₂ in the outlet flue gas up to 240 ppm. Washing the flue gas with a more concentrated solution of NaOH of 2.5% reduced the SO₂ emission level up to 167 ppm. These data indicate a SO₂ removal efficiency of about 77% and 86%, respectively. It was also observed that the aqueous solution of sodium hydroxide has very little or no effect on CO₂ capture;
- Although lower emissions of SO₂ were achieved with the increase of the sawdust percentage in the fuel mix, the CO emissions increase with the increase in biomass ratio in the fuel mix;
- Sawdust-lignite co-firing in fluidized bed meets several problems during operation: slagging, fouling, corrosion and erosion of heat exchange surfaces.

Another objective of this work was to optimize and improve the thermal characteristics of a heat exchanger, which is used to regenerate MEA from the CO₂-rich absorbent. This part of study was mainly focused on the numerical investigation. Over 20 numerical cases were analyzed and discussed. This was done in order to identify the most effective heat transfer enhancement techniques used in

such systems. Increasing the overall efficiency of the CO₂ absorption/regeneration process is one of the targets in the CO₂ capture plant. The concluding results can be described as follows:

- Thermal characteristics of the tube-side have increased by means of twisted tape use. The efficiency varied from 1.37 to 1.60, 1.35 to 1.53, 1.31 to 1.50 and 1.30 to 1.47 for twist ratios of 3, 4, 5 and 6, respectively. The enhancement efficiency slightly increased with the reduction of twist ratio values;
- Pressure drop of the twisted tape tube, caused mainly by the swirl flow, increased averagely by 450%, 370%, 320% and 300% over the plain tube for tapes with $\gamma = 3, 4, 5$ and 6, respectively;
- Use of loose-fit twisted tapes would be more preferred in the case of high level of impurities in the flue gas before entering the tube-side of the heat exchanger;
- Shell-side heat transfer coefficients of the exchangers with segmental baffles are higher than those without the baffles. Among all the types of shell-side geometrical models, the heat transfer coefficient of the case with 30° tube layout pattern, 8 segmental baffles and larger shell inlet/outlet nozzles is the highest. The shell-side heat transfer coefficient increased up to 143% in comparison with the same shell-side geometrical characteristics but without the baffles;
- Numerical results have clearly shown that the shell-side pressure drop of the improved geometrical model is much lower than that of the real one.

General conclusions

In order to reduce the emissions of greenhouse gases and the dependence on fossil fuels, the European Union has approved and set the following ambitious targets for its Member States to be accomplished by 2020:

- 20% reduction of greenhouse gases compared with 1990 levels;
- 20% reduction in energy consumption through improved energy efficiency;
- 20% increase of renewable energy share.

These targets can only be achieved by means of: (i) to improve and increase the efficiency of power plants and production processes; (ii) to increase the use of low carbon content fuels and renewable energy sources; (iii) to apply capture of CO₂.

Through the use of biomass fuels can be accomplished the last two measures and can be achieved several other positive effects. First, there is no net increase in CO₂ as a result of biomass combustion. Biomass consumes the same amount of CO₂ from the atmosphere during growth as is released during combustion. Therefore, biomass co-firing with coal can reduce fossil-based CO₂ emissions. Second, most biomass fuels have very little or no sulfur and therefore net SO₂ emissions can also be reduced by co-firing coal and biomass. This attribute is particularly desirable when co-firing with high sulfur coals. The alkaline ash from biomass also captures some of the SO₂ produced during combustion. Third, woody biomass contains very little nitrogen on mass basis as compared to coal. Most of the fuel nitrogen in biomass is theoretically converted to NH radicals, mainly ammonia,

during combustion. The ammonia reduces nitric oxide to molecular nitrogen. Hence, biomass co-firing can also result in lower NO_x levels.

This PhD study has shown how the emissions of CO_2 , the major greenhouse gas, can be mitigated and removed from the energy production process. In addition, it presents how to optimize and improve the thermal characteristics of a heat exchanger, used as the MEA regenerator, by means of relatively simple techniques.