



M Ű E G Y E T E M 1 7 8 2
BUDAPESTI MŰSZAKI ÉS GAZDASÁGTUDOMÁNYI EGYETEM
VEGYÉSZMÉRNÖKI ÉS BIOMÉRNÖKI KAR
OLÁH GYÖRGY DOKTORI ISKOLA

**Complex evaluation methodology for energy-integrated
distillation columns**

azaz,

**Összetett vizsgálati módszer energiaintegrált desztilláció
tanulmányozására**

című

Ph.D. értekezés tézisei

Készítette:

Kencse Hajnalka
Okl. vegyészmérnök

Témavezető:

Dr. Mizsey Péter
MTA doktora
Tanszékvezető, egyetemi tanár

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem
Kémiai és Környezeti Folyamatmérnöki Tanszék
Budapest, 2009

Konferencia kiadványok

1. **Hajnalka Kencse**, Máté Gábor, Péter Mizsey: Energiaintegrált desztillációs rendszerek modellezése, *Műszaki Kémiai Napok '05*, **2005**, pp 188, ISBN 9639495719, Veszprém, Magyarország.
2. Máté Gábor, **Hajnalka Kencse**, Péter Mizsey.: Energiaintegrált desztilláló rendszerek vizsgálata, *Műszaki Kémiai Napok '06*, **2006**, pp 268 Veszprém, Magyarország.
3. **Hajnalka Kencse**, Máté Gábor, Péter Mizsey: Comprehensive Investigation of Energy-Integrated Distillation, *17th International Congress of Chemical and Process Engineering*, **2006**, pp 346, ISBN 8086059456, Prága, Csehország.
4. **Hajnalka Kencse**, Péter Mizsey: Comprehensive Process Investigation Methodology for Energy-Integrated Distillation, *17th European Symposium on Computer Aided Process Engineering*, **2007**, pp 883, ISBN 9780444531575, Bucharest, Romania.
5. **Hajnalka Kencse**, Péter Mizsey: The Impact of Energy-Integration on carbon dioxide emissions, *Permea 2007, Membrane Science and Technology Conference of Visegrad Countries*, **2007**, pp 265, ISBN 9789639319691, Siófok, Magyarország.
6. **Hajnalka Kencse**, Péter Mizsey: Investigation of Exergy Loss and CO₂e Emission for Energy-Integrated Distillation Systems, *35th International Conference of SSCHE*, **2008**, pp 49, ISBN 9788022729031, Matlárháza, Szlovákia.
7. **Hajnalka Kencse**, Péter Mizsey: Investigation of CO₂e Emission for Energy-Integrated Distillation Systems, *INTERFACES '08 Sustainable development in petroleum refining and petrochemistry*, **2008**, pp 81, 9789639319868, Sopron, Magyarország.

1 BEVEZETÉS

A desztilláció az egyik legelterjedtebb művelet a vegyiparban, folyadékkelegyek elválasztására. Számos előnye mellett, a desztilláció legfőbb hátránya jelentős energiaigényében rejlik. Ezen műveletek energiaigényének csökkentésére használják az energiaintegrált desztillációt. Az évek során a vegyipari folyamatok tervezése a kor elvárásainak megfelelően fejlődött. A folyamattervezés célja megtalálni a megvalósítható elválasztási struktúrákat és kiválasztani a legmegfelelőbbet az adott elválasztási feladatra. Az utóbbi évtizedekben a folyamattervezést számítógépek segítik, így lehetővé vált, hogy összetett vizsgálatokat készítsünk már a tervezés korai szakaszában. A tervezés során számításokkal kizárhatóak azok a desztilláló rendszer alternatívák, amelyek a működtetési, gazdaságossági vagy biztonsági határokon kívül esnek. A tervezés elején végzett összetett vizsgálat további előnye, hogy elkerülhetőek a későbbi berendezés módosítások, amelyek nagy költséggel járnak. A régi tervezési metodológiákat újra kell gondolni és fejleszteni a kor elvárásai alapján. Korábban a tervezés korai szakasza a mérnöki tervezést és gazdaságossági elemzést tartalmazta, melyek kiegészítésre szorulnak. A magas energiaárak és a magas környezeti követelmények miatt egyaránt figyelembe kell venni az energiahatékonyságot és az emissziókat.

A disszertációm elsődleges célja, hogy kidolgozzak egy összetett vizsgálati módszert, amely exergia, gazdaságossági és környezeti szempontok alapján értékeli a desztillációs rendszereket. A módszer célja meghatározni, hogy miként kell az említett kritériumokat alkalmazni, hogy a desztillációs rendszer alternatívákat értékelje. A javasolt módszert a teljes tervezési eljárásba kell beleilleszteni, az előzetes piacértékelés, a szükséges adatgyűjtés és a mérnöki tervezés mellett.

Az ipari hőintegrált desztillációs rendszer áttervezése esettanulmányként van bemutatva, amely dimetilformamid – víz elegyet választ el. Az áttervezés

feladata: megnövelni a három desztillációs oszlopból álló rendszer kapacitását 42.8%-al. A meglévő és a javasolt desztillációs rendszerek teljesítményét precíz folyamatmodellezéssel tanulmányoztam.

A disszertációm második célkitűzése, hogy vizsgáljam a desztilláló rendszerek szabályozhatóságát és kidolgozzak egy könnyen alkalmazható vizsgálati módszert ezen rendszerek összehasonlítására, amely alapján kiválasztható a legkönnyebben szabályozható struktúra.

A disszertációmban javasolt különböző vizsgálatok alapján a tervező kiválaszthatja azt a desztilláló rendszert az adott elválasztási feladatra, amely megfelel a támasztott követelményeknek.

2 IRODALMI HÁTTER

A disszertáció a hőintegrált és termikusan csatolt desztillációs rendszerek csoportjának egy-egy képviselőjét tanulmányozza. Ezeket a desztilláló rendszereket gyakran tanulmányozza a szakirodalom, vizsgálva azok energiamegtakarító tulajdonságát¹ vagy tervezési metodológiát javasolva egy adott típusú rendszerre. Sobocan et al² a termikusan csatolt desztilláló oszlopokra fejlesztett ki egy módszeres szintézist. Ez a módszer segít lecsökkenteni a külső energiabevitelt, azáltal hogy minimalizálja a működtetési költségeket és maximalizálja a hőcserét az energiaintegrált kolonnák között. A szerző által javasolt tervezési módszer csak energetikai szempontból vizsgálja a desztilláló rendszereket.

A desztilláló rendszerek magas energiaigénye szükségessé teszi a folyamatok vizsgálatát és az energia veszteségek helyének azonosítását.

A desztilláció alacsony termodinamikai hatásfokát nem az elválasztási folyamat okozza, hanem a munka, amely a hő beviteléhez és elvételéhez szükséges. A

¹ Annakou, O.; Mizsey, P., Rigorous comparative study of energy-integrated distillation schemes. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 1996, 35, (6), 1877-1885.

² Sobocan, G.; Glavic, P., A simple method for systematic synthesis of thermally integrated distillation sequences. *Chemical Engineering Journal* 2002, 89, (1-3), 155-172.

7 PUBLIKÁCIÓK LISTÁJA

Tudományos folyóiratokban megjelent cikkek:

1. **Hajnalka Kencse**, József Manczinger, Zsolt Szitkai, Péter Mizsey: Retrofit Design of an Energy Integrated Distillation System, *Periodica Polytechnica, Chemical Engineering*; 51/1, **2007**, 11-16.
2. **Hajnalka Kencse**, Péter Mizsey: Comparative Study of Energy-Integrated Distillation Systems Based on Exergy Analysis and Greenhouse Gas Emissions, *Revista de Chimie*; 60, no. 10 / **2009**, IF=0.389.
3. **Hajnalka Kencse**, Peter Mizsey: Methodology for the Design and Evaluation of Distillation Systems: Exergy Analysis, Economic Features and GHG Emissions, *AIChE Journal*, **2009**, IF=1.883

A dolgozat témájához szervesen nem kapcsolódó közlemény

4. Levente L. Simon, **Hajnalka Kencse**, Konrad Hungerbuhler: Optimal rectification column, reboiler vessel, connection pipe selection and optimal control of batch distillation considering hydraulic limitations, *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 48/4, **2009**, IF=1.518.

6 EREDMÉNYEK GYAKORLATI ALKALMAZHATÓSÁGA

A javasolt összetett vizsgálati módszer alkalmazható energiaintegrált desztillációs rendszerek tervezésénél. A módszer segít kiválasztani a tervezési alternatívák közül, az adott elválasztási feladatra, a legmegfelelőbb struktúrát.

Az ipari desztilláló rendszer áttervezésének eredménye megvalósítható szenáriót mutat be a hőintegrált desztilláló rendszerek kapacitás növeléséhez. Az áttervezett hőintegrált desztilláló rendszer fajlagosan kevesebb energiát igényel, mint az iparban létező elválasztó rendszer.

A kidolgozott szabályozhatósági vizsgálati módszer segítségével könnyen kiválasztható a legkönnyebben szabályozható desztilláló rendszer. A módszer alkalmazását megkönnyíti, hogy a desztilláló rendszerek modelljét frekvencia tartományban kell vizsgálni. A rendszerek átviteli függvényéből, szinguláris értékek szerinti felbontás alapján, szabályozhatósági mutatók számolhatóak. A mutató számokat D-függvény alapján összesítjük, így meghatározható a legkönnyebben szabályozható desztilláló struktúra.

folyamat exergiát vagy elválasztási munkát igényel. A desztillációs folyamat exergiáját a bevitt és elvett anyagáramok, valamint hőáramok hőmérsékletkülönbsége adja. A hőmennyiség bevétele a visszaforralóba magas hőmérsékleten, valamint elvétele alacsony hőmérsékleten a kondenzátorban történik. A desztilláló oszlopok hatékonysága nagyon alacsony, mert a tulajdonképpeni elválasztáshoz szükséges exergia mennyisége nagyobb, mint a reverzibilis szeparációhoz szükséges exergia.

Energetikailag hatékony desztilláció használata üvegházhatású gázok (ÜHG) emissziójának szempontjából is előnyös, hisz a legtöbb országban az ÜHG kibocsájtása korlátozva van. A desztilláló rendszerek emissziós leltára tartalmazhat légszennyezőket valamint visszamaradt anyagokat. A légszennyező anyagok a fűtéshez szükséges hőmennyiség előállításában keletkeznek és mivel a desztilláló rendszereknek magas a hőigénye, az általa okozott légszennyezés jelentős. A visszamaradt anyagok mennyisége az adott, elválasztandó elegy tulajdonságaitól függ. A fűtési rendszer által kibocsájtott légszennyező anyagok tartalmazhatnak: szén, nitrogén, kén, halogén tartalmú vegyületeket, ezen szennyező anyagok mennyisége és minősége a tüzelőanyagtól függ. Fosszilis tüzelőanyagok esetében a kibocsájtás nagy részét a CO₂ képezi.

A vegyipari folyamatok többféle kritériumnak kell megfeleljenek, mint például a termelési specifikációknak, működtetési határoknak. Az elvárások teljesítéséhez szabályozási rendszerek szükségesek, amelyek folyamatosan felügyelik a folyamatok működését. A szabályozó rendszerek feladata, hogy lecsökkentsék a folyamatokat érő külső zavarások hatását és optimalizálják a működésüket. A szakirodalomban található szabályozhatósági vizsgálatok nem összesítik a különböző szabályozhatósági mutatókat, ezeket külön-külön veszik figyelembe, annak ellenére, hogy néha ellentétes eredményeket mutatnak³. A szabályozhatósági vizsgálatok eredményeit nehéz értékelné, ha a különböző

³ Skogestad, S.; Lundstrom, P.; Jacobsen, E. W., Selecting the Best Distillation Control Configuration. Aiche Journal 1990, 36, (5), 753-764.

mutatók eredményeit egyszerre akarjuk értelmezni, egy adott folyamatra (pl. a CN értéke közel van a nominális értékhez, de az RGA erős kölcsönhatást jelez). Disszertációmban a különböző szabályozhatósági mutatók összesítésére javasolom a D-függvény használatát.

3 SZÁMÍTÁSI MÓDSZEREK

A tanulmányozott desztilláló rendszerek szimulációs modelljeit ASPEN Plus folyamatszimulátorban vizsgáltam. Az alkalmazott vizsgálatok, mint: exergia analízis, gazdaságossági vizsgálat szükségessé tették, hogy a folyamatszimulátort MS-Excel-el kapcsoljam össze és segítségével számoljam az exergia egyenleteit vagy a költségfüggvényeket. A környezeti hatások becsléséhez a SimaPro szoftvert használtam. A szoftver eredményeit a szakirodalomban használt egyenletekkel ellenőriztem. A szabályozhatósági vizsgálatokat az Aspen Dynamics folyamatszimulátor, valamint bővítménye: az ún. Control Design Interface segítségével végeztem. A frekvenciafüggő szabályozhatósági mutatókat Matlab segítségével számoltam. A desztilláló rendszerek méretezését, mint: oszlop átmérő, tányérszerkezet, hőcserélők méretezését, folyamatszimulátor segítségével végeztem.

4 EREDMÉNYEK

4.1 A desztillációs rendszerek tanulmányozására javasolt összetett vizsgálati módszer

A disszertációm desztilláló rendszerek vizsgálatára javasol egy összetett vizsgálati módszert, amely exergia, gazdaságossági és kibocsájtási kritériumok szerint értékeli a desztilláló rendszereket. A metodológiát követve, az első szint tartalmazza a feladat definiálását és ennek a szintnek a lépései biztosítják, hogy a különböző rendszerek összehasonlíthatóak legyenek. A második szint, ami az egész módszer lényegét képezi, egy multikritérium elemzést tartalmaz. A módszer

3. Tézis

Megállapítottam, hogy az apoláris terner elegyekre kidolgozott energiaintegrációs elvek, poláris biner elegyekre is alkalmazhatóak. Mérnöki fejlesztést eszközöltem egy visszacsatolt hőintegrált desztilláló rendszer esetében, amely dimetilformamid-víz elválasztást végez, ipari méretben. Az áttervezésem alapján a szükséges kapacitásnövelés úgy érhető el, hogy a meglévő rendszerhez egy harmadik desztilláló oszlopot csatolunk, valamint új rendezett töltetet használunk az oszlopokban, így a kapacitás 42.8 %-al növelhető. Az energiaintegráció nélküli desztilláló stuktúra energiafelhasználásának 35%-a szükséges az energiaintegrált struktúra üzemeltetéséhez.

4. Tézis

Szabályozhatósági vizsgálati módszert dolgoztam ki, amely alapján egyszerűen lehet kiválasztani a legkönnyebben szabályozható desztilláló rendszert. A vizsgálat a desztilláló struktúrák állapot-tér modelljén alapul. Az átviteli mátrixból szinguláris értékek szerinti felbontás (SVD) módszerének segítségével frekvenciafüggő mutatókat számoltam, amelyeket a D-függvénnyel összesítettem.

A javasolt szabályozhatósági vizsgálatot energiaintegrált desztilláló rendszereken teszteltem és az eredményeket időtartománybeli vizsgálatokkal ellenőriztem. A két különböző vizsgálat eredményei egyeznek, tehát a javasolt frekvenciatartománybeli szabályozhatósági vizsgálat használható, a hosszadalmas időtartománybeli vizsgálat helyett. A szabályozhatósági vizsgálat alkalmazása alátámasztja, hogy a módszer egyszerű és gyors, így a tervezés korai szakaszában is használható.

5 TÉZISEK

1. Tézis

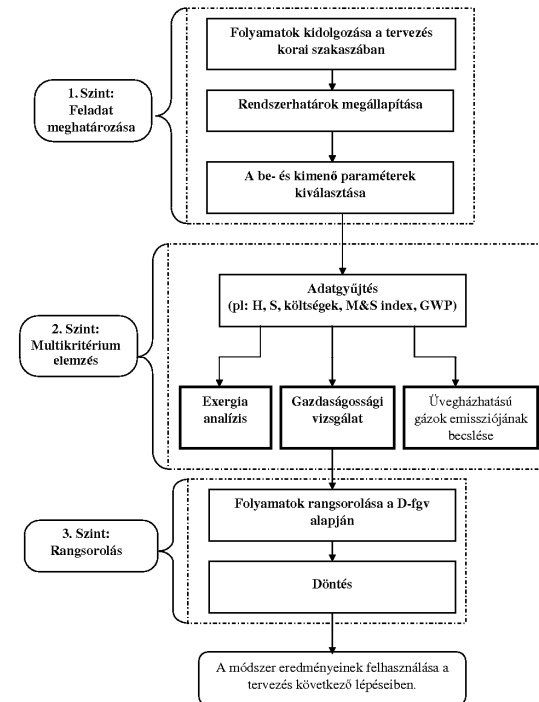
a.) Egy összetett vizsgálati módszert javasoltam desztilláló rendszerek vizsgálatára, amely segítséget nyújt a folyamattervezésben. A módszer három szintből áll, amelyek végigvezetik a tervezőt a feladat definiálásán, a multikritérium elemzésen és a desztilláló struktúrák rangsorolásán. A módszer exergia, gazdaságossági és környezeti kritériumokat vesz figyelembe, ahhoz hogy kiválasszuk a legmegfelelőbb desztilláló rendszert. A metodológiát energiaintegrált desztilláló rendszereken teszteltem, de elméletileg bármely más energiafelhasználó rendszerre lehet alkalmazni, ha azt exergia, gazdaságossági és környezeti szempontból akarjuk értékelni.

b.) Ebben a kutatási témában először alkalmaztam a D-függvényt, ahhoz hogy rangsoroljam a desztilláló rendszereket. E célból kidolgoztam egy összesítő mutatót, amely a D-függvényen alapszik. A mutató segít a legmegfelelőbb desztilláló rendszer kiválasztásában, adott elválasztási feladatra.

2. Tézis

Az összetett vizsgálati módszer segítségével meghatároztam, hogy a visszacsatolt hőintegrált desztilláló rendszer (DQB) több szempontból is a legmegfelelőbb energiaintegrált struktúra, ideális háromkomponensű elegyek elválasztására. Az összehasonlítás kedvéért, a visszacsatolt hőintegrált desztilláló rendszer mellett vizsgáltam a termikusan csatolt kolonnát (FTCDC) és az előreccsatolt előpárlásos desztilláló rendszert (SQF), mindezeket pedig a hagyományosan csatolt energiaintegráció nélküli desztilláló rendszerhez hasonlítottam. Exergia analízist, gazdaságossági vizsgálatot, üvegházhatású gázok emissziójának becslését és szabályozhatósági vizsgálatot alkalmaztam. Minden vizsgált szempont alapján a DQB bizonyult a legjobb energiaintegrált desztilláló struktúrának.

három különböző vizsgálatot javasol, így a desztilláló rendszereket exergiai, gazdaságossági és környezetre gyakorolt hatásuk alapján értékelhetőek. A módszer utolsó szintjén a három kritérium eredményei vannak összesítve, a D-függvény segítségével, így könnyen kiválasztható az elválasztási feladatra a legmegfelelőbb desztillációs rendszer.



A dolgozat három különböző energiaintegrált desztilláló rendszert hasonlít össze egymással és az energiaintegráció nélküli hagyományos csatolással. Az exergia analízis során a desztilláló rendszerket a termodinamikai hatások alapján hasonlítom össze. A vizsgálat azt mutatja, hogy a hőintegrált stuktúrák (DQB, SQF) termodinamikai hatékonysága a legnagyobb. A desztilláló rendszerek

termodinamikai hatékonysága magasabb, ha az elegy elválasztási nehézsége szimmetrikus. A gazdaságossági vizsgálat alátámasztja az exergia analízis eredményeit és mutatja, hogy a hőintegrált stuktúrák gazdaságosabbak. Habár a termikusan csatolt oszlop (FTCDC) kevésbé gazdaságos, mint a többi vizsgált energiaiintegrált struktúra, a hagyományos energiaiintegráció nélküli csatoláshoz képest energiát takarít meg. A CO₂e kibocsájtás csökkentését tisztább tüzelőanyagok, valamint hőintegráció használatával valósítható meg. A DQB struktúra alkalmazásával 40%-os CO₂e kibocsájtás csökkenés érhető el, a hagyományos csatoláshoz képest. A CO₂e kibocsájtás becslés eredményei bemutatják, hogy míg a legtöbb esetben a DQB struktúrának van a legkisebb kibocsájtása, addig az SQF rendszer a legkevésbé érzékeny az elvárt terméktisztaságok változtatására. A D-függvény alkalmazása rávilágít arra, hogy a DQB a legmegfelelőbb struktúra a terner szénhidrogén elegyek elválasztására, mert ez a struktúra felelt meg a legtöbb kritériumnak.

4.2 Ipari hőintegrált desztillációs rendszer áttervezése

A disszeráció ezen része egy ipari három oszlopos hőintegrált desztilláló rendszer áttervezését mutatja be. Az esettanulmány lehetőséget adott arra, hogy a hőintegrációt ipari méretben tanulmányozhassam és vizsgáljam az energiaiintegrációs megoldásokat, poláris elegyek elválasztására. Így ez az esettanulmány az előző tanulmányok kiegészítésül szolgál.

A feladat: 42.8%-os kapacitásnövelés és energia megtakarítás elérése volt. Precíz folyamatmodellelés segítségével tanulmányoztam a létező energiaiintegrált folyamat és ezen folyamat nagy kapacitású alternatíváinak a teljesítményét.

A létező dimetilformamid-víz elválasztási rendszer módosítását javasoltam, ami lehetővé teszi az elvárt kapacitásnövelést és energia megtakarítást. A vizsgálataim eredményeit alapul véve hőintegrált desztillációs rendszert javasoltam. Az iparban létező 3 oszlopos desztilláló rendszerhez egy negyedik oszlop csatolását, valamint a rendezett töltet cseréjét javasoltam. Ezen módosításokkal elérhető a

kapacitásnövelés és tarthatóak a terméktisztaságok. Az 1 kg DMF elválasztásához szükséges energia mennyiséget számoltam a létező és a javasolt sturktúrákra.

Az ipari esettanulmány jó példa a disszertációban kidolgozott energiaiintegrációs elvek sikeres alkalmazására.

4.3 Energiaintegrált desztillációs rendszerek szabályozhatóságának vizsgálata

A disszertációmban egy szabályozhatósági vizsgálati módszert javasolok, amely desztilláló rendszerekre alkalmazható. A módszer a desztilláló rendszerek szabályozhatóságát vizsgálja frekvencia tartományban. A javasolt módszer segítségével a különböző desztilláló rendszereket egyszerűen lehet értékelni szabályozhatóságuk alapján és kiválasztható a legkönnyebben szabályozható struktúra. A vizsgálat a desztilláló struktúrák állapot-tér modelljén alapul. Az átviteli mátrixból szinguláris értékek szerinti felbontás (SVD) módszerének segítségével frekvenciafüggő mutatókat számoltam, amelyeket a D-függvénnyel összesítettem. A D-függvényen alapuló összesítés megkönnyíti a legjobb szabályozható struktúra kiválasztását.

A javasolt szabályozhatósági vizsgálatot zárt szabályozóköörökkel ellátott energiaiintegrált desztilláló rendszereken, időtartományban ellenőriztem. A szabályozhatósági vizsgálat alkalmazása alátámasztja, hogy a módszer egyszerű és gyors, így a tervezés korai szakaszában is használható.