

**XIX.**  
**Fiatal Műszakiak**  
**Tudományos Ülésszaka**

NEMZETKÖZI TUDOMÁNYOS KONFERENCIA  
INTERNATIONAL SCIENTIFIC CONFERENCE



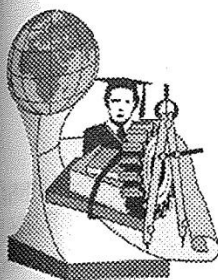
**Erdélyi Múzeum-Egyesület**  
Műszaki Tudományok Szakosztálya

Kolozsvár  
2014. március 20–21.

## B. SEKCIÓ II. SZAKASZ

**ELNÖKÖK:** **Gobesz Ferdinánd-Zsongor**  
**Kerekes László**  
**Végyvári Ferenc**

- 16:30 **Szösz Klaudia**  
FIZIOLÓGIAI ÉS PSZICHOLÓGIAI JÓLÉT MEGŐRZÉSE 60 ÉV FELETT AZ ÉPÍTETT ÉLETTEKREBEN
- 16:40 **Kisfaludi-Bak Zsombor**  
VÍZSZENNYEZÉSI VÉSZHELYZETEK KEZELÉSE, MEGOLDÁSI MÓDSZEREI
- 16:50 **Tóth András József, André Anita, Benkő Tamás, Mizsey Péter**  
IZOBUTANOL TARTALMÚ TECHNOLÓGIAI HULLADÉKVIZEK KEZELÉSE ORGANOFIL PERVAPORÁCIÓVAL
- 17:00 **Vekov Imre**  
DINAMIKUS JELLEMZŐK MÉRÉSE A KOLOZSVÁRI MŰSZAKI EGYETEM EGYIK ÉPÜLETÉN
- 17:10 **Vörös Erika**  
SZOCIÁLISAN ÉRZÉKENY ÉPÍTÉSZEZET
- 17:20 **Zoltán Erzsébet Szeréna**  
AZ INNOVATÍV MUNKAKÖRNYEZET KIALAKÍTÁSÁNAK SZÜKSÉGESSÉGE ÉS LEHETŐSÉGEI AZ 1960-AS ÉVEK TÍPUSIRODÁIBAN
- 17:30 **Fórián Sándor, Kocsis Dénes, Mezei Balázs**  
CSAPADÉKVÍZ HÁZKÖRÜLI HASZNOSÍTÁSÁNAK LEHETŐSÉGE
- 17:40 **Gergely Felicián, Osán János, Fábíán Margit, Török Szabina, Bart Baeyens, Rainer Dähn, Marie Marques**  
NAGYAKTIVITÁSÚ RADIOAKTÍV HULLADÉK VÉGLEGES ELHELYEZÉSE AGYAGOS KÖZETBEN
- 17:50 **Hévízi Márton, Bodnár Ildikó**  
A RÁCKEVEI (SOROKSÁRI)-DUNA-ÁG SÓTERHELÉSÉNEK VIZSGÁLATA
- 18:00 **Truzsi Alexandra, Fórián Sándor, Bodnár Ildikó**  
TEREPI VÍZMINŐSÉGI VIZSGÁLATAINK A HORTOBÁGY-BERETTYÓ FŐCSATORNÁN
- 18:10 **Lepsényi Ákos**  
VÍZIVILÁG BAJA - GAZDASÁGFEJLESZTÉS AZ ÉPÍTÉSZEZET ESZKÖZEIVEL
- 18:20 **Talpas János, Orbán György**  
A ZARÁNDOKLÁS ÉS A TURIZMUS KAPCSOLATA AZ ÉPÍTÉSZEZET TÜKRÉBEN A KOLOZS MEGYEI „MÁRIA ÚT” ESETÉBEN
- 18:40 – 19:00 **A szekció munkájának összefoglalása**
- 19:30 **Baráti vacsora – EGYETEMIEK HÁZA**



# FIATAL MŰSZAKIAK TUDOMÁNYOS ÜLÉSSZAKA XIX.

Kolozsvár, 2014. március 20–21.

## IZOBUTANOL TARTALMÚ TECHNOLÓGIAI HULLADÉKVIZEK KEZELÉSE ORGANOFIL PERVAPORÁCIÓVAL

## ISOBUTANOL REMOVAL FROM PROCESS WASTEWATER WITH ORGANOPHILIC PERVAPORATION

TÓTH András József<sup>(1)</sup>, ANDRÉ Anita<sup>(2)</sup>, BENKŐ Tamás<sup>(3)</sup>,  
MIZSEY Péter<sup>(4)</sup>

*Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Vegyészmérnöki és Biomérnöki Kar,  
Kémiai és Környezeti Folyamatmérnöki Tanszék, 1111, Magyarország, Budapest, Budafoki  
út 8.; Telefon: +36-1-463-2035,*

(1) [andras86@kkfi.bme.hu](mailto:andras86@kkfi.bme.hu)

(2) [anitaandre21@gmail.com](mailto:anitaandre21@gmail.com)

(3) [thenko@kkfi.bme.hu](mailto:thenko@kkfi.bme.hu)

(4) [mizsey@mail.bme.hu](mailto:mizsey@mail.bme.hu)

### Abstract

The work presented by organophilic pervaporation treatment of low isobutanol content process wastewater from fine chemistry industry. The isobutanol-water system can be separated with more method. In the chemical industry, the separation is necessary that the most appropriate alternative must be implemented. The classic method of the separation of isobutanol-water is distillation. Because the mixture forms heteroazeotropic, therefore at the most azeotropic composition can be obtained with conventional distillation techniques. The azeotropic distillation gives solution, the membrane separation is an alternative method, and within that pervaporation. The experiments of isobutanol-water mixtures are achieved with PERVAP™ 4060 membrane respectively, which is commercially available organophilic composite membrane from Sulzer Chemtech GmbH. The experiments are carried out at different temperatures (50°C, 60°C and 70°C) and feed isobutanol (0.5–7 m/m%) concentrations. Based on the measurement results, parameters are fitted to Rautenbach pervaporation model and to novel, concentration dependence supplemented transport model. Both transport models can describe the process as well. The difference is small between measured and calculated data.

**Keywords:** organophilic pervaporation, process wastewater, model development

### Összefoglalás

A munka egy finomkémiai iparban keletkező alacsony izobutanol tartalmú technológiai hulladékvíz organofil pervaporációval történő kezelését mutatja be. Az izobutanol-víz rendszer elválasztására több lehetőség is kínálkozik. Az ipari méretekben végzett szétválasztásnál elengedhetetlen, hogy a legmegfelelőbb alternatíva kerüljön megvalósításra. Az izobutanol-víz elválasztás klasszikus módja a desztilláció. Mivel azonban az elegy heteroazeotrópot képez, hagyományos desztillációval legfeljebb azeotróp összetételt érhetünk el. Megoldást jelent az azeotróp desztilláció, ennek alternatívája a membrán-szeparáció, azon belül is a pervaporáció. Pervaporációs kísérleteket végeztünk 0,5–7 m/m% kiindulási összetétel-tartományban 50°C, 60°C és 70°C-on kereskedelmi forgalomban kapható Sulzer PERVAP™ 4060 típusú organofil membránnal. A mérési eredmények alapján paramétereket illesztettünk a pervaporáció folyamatát leíró Rautenbach-modell és a koncentráció-függő szorzótényezővel kiegészített modellhez. Az illesztett paraméterekkel a folyamatot mindkét modell jól leírja, a mért és számított értékek közötti különbség kicsi.

**Kulcsszavak:** organofil pervaporáció, technológiai hulladékvíz, modellfejlesztés

## 1. Bevezetés

A pervaporációs membrán szeparáció ipari alkalmazása egyre inkább terjed az utóbbi évtizedekben, köszönhetően a hagyományos elválasztási technikákhoz (desztilláció, abszorpció, stb.) mérten kisebb energiafelhasználásának, magas szelektivitás biztosítása mellett [1, 2]. A folyadékelegyek elválasztásán belül egyik legfőbb alkalmazási területe a különböző azeotropot képező vizes oldószerkelegyek vízmentesítése [4–6]. Az elválasztás extra komponens hozzáadása nélkül elvégezhető, a kinyert oldószer és víz újrahasznosítható, így elmondható hogy a pervaporáció környezetkímélő eljárás.

Az elválasztási folyamatok tervezéséhez és optimalizálásához elengedhetetlen eszköz a megfelelő számítógépes modellezés, melyhez a folyamatokat minél jobban leíró modellekre van szükség [7, 8].

## 2. A pervaporáció modellezése

Az irodalmakban fellelhető pervaporációs modellek közül munkánk során Rautenbach oldódás-diffúziós modelljét vettük alapul. A modell a pervaporáció folyamatát a következő lépésekben definiálja [2]:

- a célkomponens adszorpciója a membrán szelektív rétegében;
- a komponens diffúziója a membrán anyagán keresztül;
- a célkomponens deszorpciója a gőzoldalon.

A modell szerint a folyamat hajtóereje a kémiai potenciálkülönbség a membrán két oldala között, mely koncentráció-különbségre egyszerűsíthető a membránon belül állandó nyomásérték feltételezésével. A modell alkalmazható kétrétegű kompozit membránokra, ez esetben a porózus támasztórétgenben a nyomáskülönbség elhanyagolható.

A fluxus a következőképp fejezhető ki a modell szerint:

$$J_i = \frac{1}{1 + \left( \frac{\bar{D}_i}{Q_0 \cdot p_{i0} \cdot \bar{\gamma}_i} \right) \bar{\gamma}_i} \frac{\bar{D}_i}{p_{i0}} \left( \frac{p_{i1} - p_{i3}}{p_{i0}} \right), \quad i=(1, \dots, k) \quad (1)$$

Ahol  $p_{i1}$  és  $p_{i3}$   $i$  komponens nyomása a betáplálási és a permeát oldalon (bar),  $p_{i0}$  a tiszta  $i$  komponens tenziója,  $Q_0$  a porózus támasztórétgre vonatkozó permeabilitási tényező ( $\text{kmol/m}^2\text{hbar}$ ),  $\bar{\gamma}_i$  közepes aktivitási koefficiens (-),  $\bar{D}_i$  pedig a transzportkoefficiens ( $\text{kmol/m}^2\text{h}$ ), melynek koncentrációfüggését Rautenbach elhanyagolhatónak feltételezte.

Ezt a modellt (Modell I) alkalmazva különböző alkoholok vízmentesítésére megfigyelhető, hogy bár alacsony betáplálási szerves anyag koncentrációknál a számított fluxusok jó egyezést mutatnak a kísérleti eredményekkel, magasabb kezdeti célkomponens tartalmak esetében jelentősen különböztek a mért és számított értékek [3]. Tekintetbe véve, hogy az iparban magasabb kiindulási koncentrációk is előfordulhatnak, a meglévő modell fejlesztése vált szükségessé.

Munkánk során Rautenbach modelljét kiegészítettük egy exponenciális faktorialis faktorral, mely tartalmazza az  $i$  komponens betáplálási koncentrációját (Modell II).

$$J_i = \frac{1}{1 + \left\{ \frac{[\bar{D}_i \cdot \exp(B \cdot x_{i1})]}{Q_0 \cdot p_{i0} \cdot \bar{\gamma}_i} \right\}} \cdot \frac{[\bar{D}_i \cdot \exp(B \cdot x_{i1})]}{\bar{\gamma}_i} \cdot \left( \frac{p_{i1} - p_{i3}}{p_{i0}} \right), \quad i=(1, \dots, k) \quad (2)$$

Mivel mind a két modell félempirikus, az adott elegyre és az adott membrán anyagára vonatkozó megbízható kísérleti eredmények szükségesek a különböző paraméterek

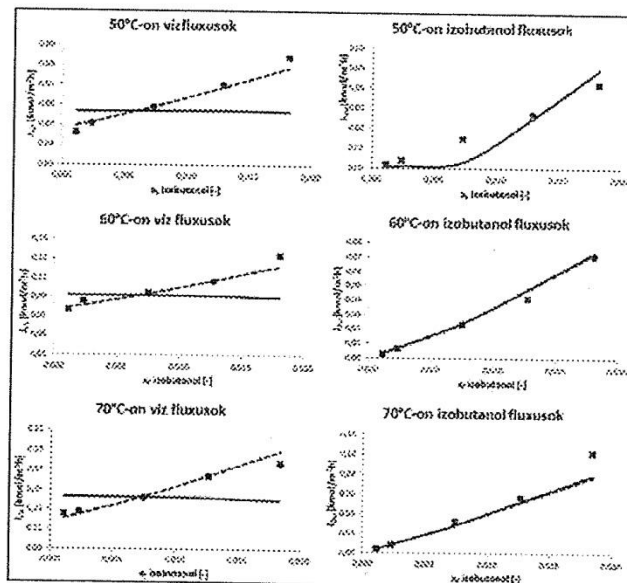
meghatározásához. A  $Q_0$ ,  $\bar{D}_i$ ,  $E_i$  és  $B$  paramétereket Statistica programmal végzett paraméterillesztéssel kaptuk meg [9, 10].

### 3. Kísérleti rész

A modellezéshez szükséges kísérleteket izobutanol-víz elegyen végeztük, a SULZER cég által gyártott PERVAP™ 4060-as kereskedelmi forgalomban kapható organofil kompozit lapmembránon. A méréseket CM Celfa Membrantechnik AG P-28 típusú membránszűrő berendezésen hajtottuk végre, melynek hasznos felülete  $28 \text{ cm}^2$ . A permeát oldalon az állandó 2 torr vákuumot VACUUMBRAND PC2003 VARIO típusú vákuumszivattyúval biztosítottuk. A méréseket izoterm körülmények között végeztük három különböző hőmérsékleten (50, 60, 70°C). Az 500 ml térfogatú betáplálási elegyek 0,5–7 m/m % metanolt tartalmaztak. A permeátumot folyékony nitrogén hűtésű csapdáknak gyűjtöttük, az összetételeket Shimadzu gázkromatográfal elemeztük [9].

### 4. Eredmények

Az 1. ábrán láthatóak a mért és a kétféle modellel számolt parciális fluxusok összehasonlítása a vizsgált hőmérsékleteken. A Modell II. jobban leírja a víz fluxusát, mint a Modell I. A Modell II az izobutanol fluxusát 60°C-on írja le a legjobban.



1. ábra. A mért (•) és modellezett (Modell I: - - -, Modell II: —) MeOH, illetve víz parciális fluxusok a betáplálási izobutanol-tartalom (moltört) függvényében

Az 1. táblázatban az összes hőmérsékleten mért és számított parciális fluxusok relatív különbségének négyzetösszege (célfüggvény: CF) szerepel. A vízfluxusok esetében a Modell II-nél kisebbek az értékek, tehát ez a modell illeszkedik jobban a kísérleti eredményekre. Az ábrán és a táblázatban is az látható, hogy az izobutanol fluxus leírásánál nincs különbség a két modell között.

1. táblázat. Célfüggvények

	Modell I. – CF	Modell II. – CF
Izobutanol	2,14	2,14
Víz	0,47	0,03

A kiegészített modell jobb illeszkedésének oka valószínűsíthetően a transzport koefficiens koncentrációfüggésében rejlik. A Fick-féle diffúziós koefficiensről köztudott, hogy erősen koncentrációfüggő, számos irodalomban található exponenciális összefüggés a diffúziós koefficiens és a kiindulási koncentráció között [11]. Rautenbach szerint a transzport koefficiens ezzel szemben elhanyagolható mértékben függ a kezdeti koncentrációtól.

## 5. Összefoglalás

Munkánk során a Rautenbach-féle oldódás-diffúziós pervaporációs modell fejlesztését és laboratóriumi mérési eredményeken alapuló ellenőrzését végeztük el. Az általunk továbbfejlesztett modell jól illeszkedik a mért fluxus értékekre. Ezt a transzportkoefficiens Rautenbach által elhanyagolhatónak vélt koncentrációfüggésének felülvizsgálatával, egy exponenciális függés feltételezésével értük el. Folyamat-szimulációs szoftverek segítségével a korrigált modell alkalmas a pervaporáció folyamatának megbízható tervezésére és optimalizálására. Köszönjük a KMR - 12-1-2012-0066 pályázat támogatását.

## Irodalom

- [1] Baker R. W. (ed.): *Membrane Technology and Applications*, Second ed., John Wiley & Sons, Chichester, 2004.
- [2] Rautenbach R., Herion C. és Meyer-Blumentoth U.: *Pervaporation membrane separation processes*, In: Membrane Science and Technology Series. vol. 1. (Ed.: Huang, R.Y.M.) Elsevier, Michigan, 1990, 181–191.
- [3] Cséfalvay E., Szitkai Z., Mizsey P. és Fonyó Z.: *Experimental data based modelling and simulation of isopropanol dehydration by pervaporation*, Desalination, 2008, 229., 94–108.
- [4] Tóth A. J., Gergely F. és Mizsey P.: *Physicochemical treatment of pharmaceutical wastewater: distillation and membrane processes*, Per. Pol. Chem. Eng., 2011, 55(2), 59–67.
- [5] Mizsey P., Tóth A. J.: *Ipari ökológiai elvek alkalmazása technológiai hulladékvizek fizikokémiai módszerekkel történő kezelésénél*, Ipari Ökológia, 2012, 1(1), 101–125.
- [6] Van Baelen D., Van der Bruggen B., Van den Dungen K., Degreve J. és Vandecasteele C.: *Pervaporation of water-alcohol mixtures and acetic acid-water mixtures*, Chem. Eng. Sci., 2005, 60., 1583–1590.
- [7] Marriott J., Sorensen E.: *A general approach to modeling membrane modules*, Chem. Eng. Sci., 2003, 58., 4975–4990.
- [8] Valentinyi N., Cséfalvay E. és Mizsey P.: *Modelling of pervaporation: parameter estimation and model development*, Chem. Eng. Res. Des., 2013, 91(1), 174–183.
- [9] Tóth A. J., Mizsey P.: *Metanol tartalmú gyógyszergyári hulladékvíz kezelése*, Gazdálkodás és Menedzsment Tudományos Konferencia, Kecskemét, 2013., pp. 381–385.
- [10] Tóth A. J., Mizsey P.: *Metanol tartalmú technológiai hulladékvizek kezelése*, Nyugat-magyarországi Egyetem, Erdőmérnöki Kar, Kari Tudományos Konferencia, Sopron, 2013.
- [11] Shelden R.A., Thompson E.V.: *Dependence of diffusive permeation rates and selectivities on upstream and downstream pressures: IV Computer simulation of nonideal systems*, J. Membr. Sci., 1984, 19., 39–49.