

FINAL REPORT

Within the framework of the project we reached the following results in the tasks given in the working plan:

1. “Feasibility studies for batch heteroazeotropic distillation with variable decanter hold-up”.

At the end of our former project we developed a general model for batch heteroazeotropic distillation with variable decanter hold-up. We suggested three new operational policies and made rigorous simulation calculations for these policies. Our results were published in the journal Separation and Purification Technology having high impact factor.

This model was extended for batch heteroextractive distillation, where continuous entrainer feeding is applied. We determined the possible directions of still path and studied the practical applicability of the different operational policies. The still path directions were validated by rigorous simulation for the dehydration of ethanol with n-butanol entrainer. The results were published at the inland conference MKN2014, and later in the journal Industrial & Engineering Chemistry Research having high impact factor.

2. Study of the issues of the off-cut recycling for the traditional batch rectification of multicomponent azeotropic mixtures, determination of optimal recycling strategy. Elaboration of optimal recycling strategy for the batch extractive distillation (BED)

We studied the batch distillation (BD) regeneration of a pharmaceutical waste solvent mixture (main components: methanol, water; main impurities: THF, toluene; trace impurities: acetone, ethanol). One batch consists of 4 steps (Figure 1). The respective cuts are:

1st fore-cut (incinerated), 2nd fore-cut, main-cut (high purity methanol), after-cut. The 2nd fore-cut and the after-cut are recycled to the next batch.

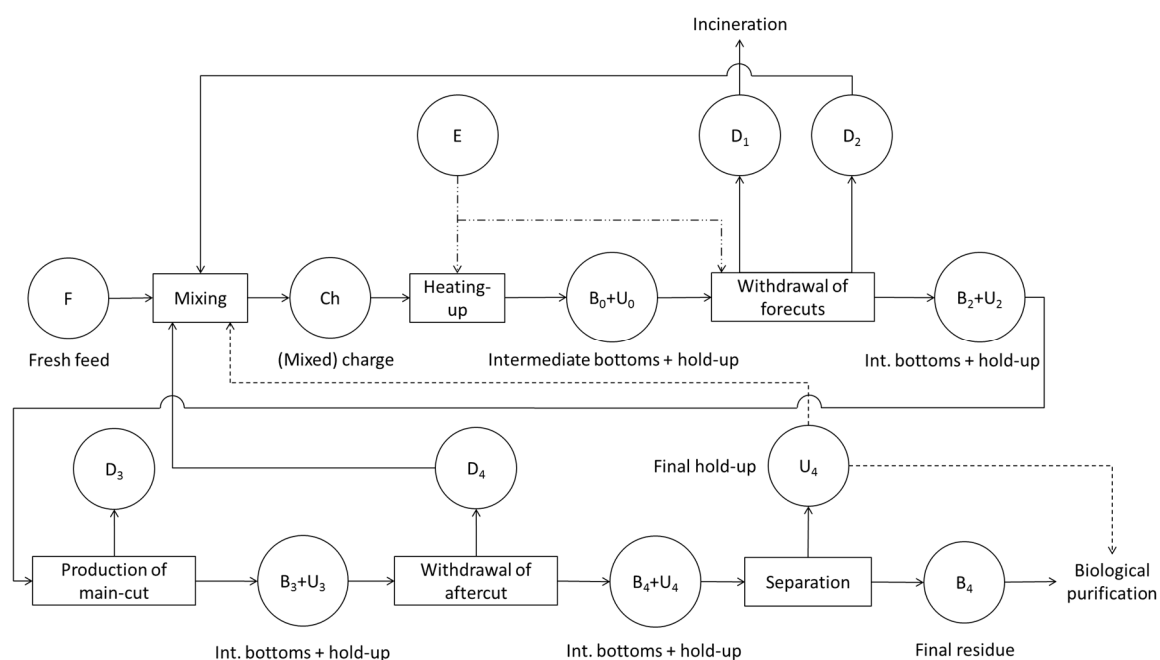


Figure 1. The state-task network of waste solvent mixture regeneration.

In 2013 we studied the effect of off-cut recycle on the process consisting of six consecutive batches using rigorous simulation. The investigation was extended to the batch extractive distillation (BED) separation of the mixture, as well. The composition of the charges to be regenerated, which also contain the recycled cuts besides the fresh feed, changes in the case of both BD and BED due to the recycling: the methanol concentration increases, that of water decreases. By BD toluene accumulates in the charges. By BED, this phenomenon was not observed. The results were presented at the international conference PRES-13 (6-page article in the journal Chemical Engineering Transactions).

In 2014 we optimized one batch both for BD and BED (3rd point of the work plan). In 2015 we extended the optimization to the whole, 6-batch process.

We optimized the operational parameters (reflux ratios, termination criteria of 1st and 2nd fore-cuts, flow rate of water, duration of water feeding) of the individual batches by using a genetic algorithm (GA) coupled to the flow-sheet simulator CHEMCAD. The optimization was performed consecutively, by determining the optimal values of the parameters for each batch. The objective function was the sum of the profits of the batches. Recycle changed the composition of the charges for both processes, therefore the optimal values of the parameters for the individual batches were also different (Figure 2). By BED, water feeding had to be always stopped shortly before the end of taking the 1st fore-cut (later incinerated). An increase of 65% in the profit was obtained by BED due to higher profit and lower incineration cost. The results were presented at the international conference PRES-15 (6-page paper in the journal Chemical Engineering Transactions).

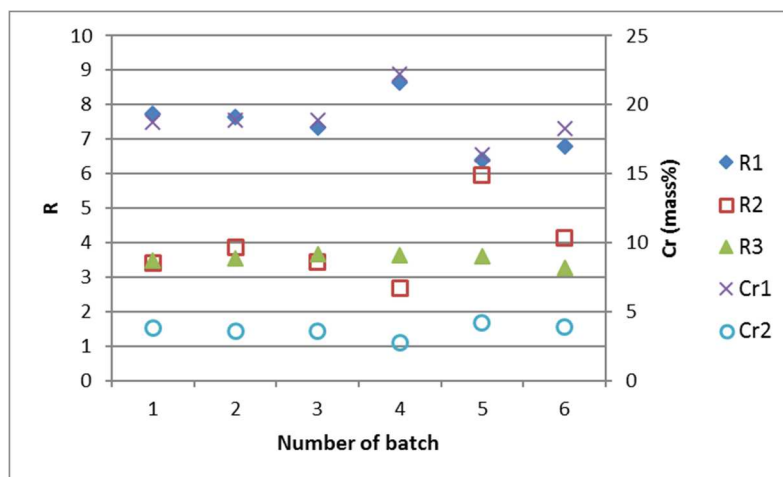


Figure 2. The variation of the optimal values of the operational parameters (BED; R: reflux ratio, Cr: termination criteria of the fore-cuts, THF concentration in the distillate).

Based on our presentation at PRES-15, we were invited to publish our results in the Journal of Cleaner Production (IF=4.96), as well. Beyond presenting the results obtained previously in more details, we also studied the environmental effects of the non-optimized BD (applied in the plant), and optimized BD and BED processes. By BD, the (direct and indirect) specific CO₂ emission and wastewater production was slightly decreased due to the optimization. By BED the CO₂ emission was by 20% lower than that of BD, although the amount of wastewater increased.

In 2016, we also investigated the effect of the variation of the composition of fresh feed on the optimization results. We compared two cases for both processes. In the first one, the composition of the fresh feed was constant in each of the 6 consecutive batches. (The composition of the charge varies even in this case.) In the second case, the composition of the fresh feed was varied from batch to batch: the concentration of one of the organic components took its maximal or minimal value, while that of the others – except water – remained at their average value. The variation of toluene concentration had the most important influence. The profit of the BED process was always higher (in the case of varying composition by 28% for the whole process). We found that the application of BED is particularly advantageous for unfavourable feed compositions. (E.g.: for the maximal toluene concentration the profit was by 111% higher.) The results were presented at the international conference ESCAPE-26. It is important to note that the program developed can also be used to optimize the regeneration of other mixtures.

3. Investigation of new operational policies of BED for cases when the component to be extracted by the solvent which is not a pollutant but the main component to be recovered.

We performed laboratory experiments by traditional BD and BED in order to increase the efficiency of methanol recovery from the already mentioned 7-component pharmaceutical waste solvent mixture. We proposed a new operation policy (BED1), where water feeding is only applied during the start-up of the column. Although water feeding can be continued during taking the fore-cut (BED2), as well, but this leads to the dilution of the methanol-water mixture to be separated later. The results of the laboratory experiments (by traditional BD, BED1, BED2) showed that the highest methanol recovery can be achieved by the new batch extractive distillation policy (BED1), while traditional BD gave the lowest one. We also performed the posterior simulation of the experiments. In industrial-size pilot productions we obtained a significant increase in recovery by BED1 compared to BD. We presented the results at the international conference PRES-13 (6-page paper in the in Chemical Engineering Transactions).

We performed the optimization of the BED process using a GA. The modified variables were the reflux ratios of the steps, location, duration and flow rate of water feeding. The optimal BED policy is between BED1 and BED2; water feeding is continued in one part of withdrawal of the first fore-cut. The results were presented at the international conference ESCAPE-24.

Afterwards besides the operational parameters (reflux ratios of the steps, location, duration and flow rate of water feeding) investigated earlier, we also optimised the termination criteria of the first and second fore-cuts for both BD and BED. The results were presented at the world congress Distillation & Absorption 2014 (D&A 2014). Moreover, we investigated the effect of the change of the charge composition (concentration of the main component, and that of organic impurities) on the optimal values of the operational parameters and on the profit. The results of the calculations performed in 2013 were presented at the international conference PSE2015/ESCAPE-25.

We continued the optimization of BED by extending it to multiple consecutive batches, and taking off-cut recycle into account, as well. These results have been summarized under the 2nd point of the report.

4. Study of the post-combustion capture of carbon-dioxide by reactive absorption with simulation (in collaboration with the Department of Energy Engineering of BME).

For reducing the CO₂ content of flue gases of power plants an absorption-desorption process with monoethanolamine (MEA) as absorbent was studied by rigorous simulation with the flow-sheet simulator CHEMCAD. Two flow-sheet modifications (“rich split” and “split flow”) for saving energy were optimised by GA. The design and operation parameters resulting in minimal heat demand were determined. Our results were published at the ISCAME international conference.

5. “Simulation of the operations studied, for experiments with packed columns, with the application of the rate based model instead of the theoretical tray model; comparison of the results.”

We finished the review of the relevant literature and we made the first simulation calculations with the CHEMCAD professional flow-sheet simulator for evaluating our experimental results. A student wrote a paper and delivered a lecture from the results at the Scientific Workshop of Students (“TDK”). The results were unfavourable. The reason of this was probably that this method required the specification of several parameters about which there was not enough reliable information.

6. “Investigation of the facilities (e.g. heat integration, dividing wall column, vapour recompression) for reducing the energy consumption of distillation systems.”

The applications of the “vapour recompression” (VRC, working fluid: top vapour) and the “vapour compression” (VC, working fluid is independent from the mixture to be separated) were studied in order to decrease the energy demand of the batch distillation (BD) for the separation of a low relative volatility mixture (n-heptane – toluene). We performed detailed dynamic simulation and economy studies using the professional flow sheet simulator CHEMCAD. The effect of the compression ratio on the pay-back time of the compressor investment was determined. The VRC process was modified by the application of an external heat exchanger in order to decrease the pay-back time of the investment. The best results were obtained by this process and by the VC process (working fluid: n-pentane). Our results were presented at the inland conference *MKN 2013* and at the international conference *PRES’2013*, then they were published in the international journal of high impact factor *Energy*.

Then the applications of different working fluids (n-pentane, n-hexane, ethanol, isopropanol) were compared for the VC process. The basic criteria for the selection of the possible working fluids were determined. The working fluids were classified based on their behaviour during the compression. The effectiveness of different working fluids was compared by cost calculations. The results were published in two 6 page conference papers (and oral presentations) at the congresses *ESCAPE-24* and *D&A2014* and an article in the American journal *Ind. Eng. Chem. Res.*

Different energy saving possibilities (thermally coupled and dividing wall columns) were studied for the separation of minimum boiling point azeotropic mixtures by extractive distillation (by using an intermediate boiling entrainer). Our results were published in the journal *Energy*.

7. *“Introduction of the results of the research works and application of the computer programs and laboratory distillation devices purchased within the framework of the project for the development of the education.”*

The CHEMCAD professional flow-sheet simulator whose yearly maintenance fee is covered from the budget of the project is applied for educational purposes in several subjects. From among these subjects Simulation of Processes of Chemical and Food Industries and Modelling of Processes and Equipment were delivered for the first time in 2013. The laboratory distillation (e.g. heating basket) and other devices (pressure sensor and transmitter) were used in the students' laboratory distillation exercises and TDK works, as well.

Further results:

a. In addition to the tasks of our working plan we made the posterior dynamic simulation of the pilot plant experiment done earlier by the Double-Column System (DCS) serving for batch heteroazeotropic distillation. A proposal was made for the synchronization of the operation of the two columns in time, which results in the more energy efficient operation of the equipment. The above topic was presented at the international conference ESCAPE-24 in June 2014.

b. Laszlo HEGELY defended his PhD thesis (under common supervision) in November of 2013 at the Technical University of Toulouse (“INPT”) with a result of 100 %. He won the Leopold Escande prize of the French university. (His Hungarian supervisor was the leading researcher of this project.) His travel to the awards ceremony was covered from the budget of the project.

c. The senior researcher of the project Gabor MODLA submitted his DSc thesis in 2015, which was found suitable for public defence by all the 3 reviewers.

d. During the project the number of the citations of the leading and senior researchers considerably increased (up to 460 and 257).

e. By using the financial resources of the OTKA project Ferenc DENES and Laszlo HEGELY young researchers could personally participate at the prestigious international conferences PRES'2013 (in Rhodes, Greece) and ESCAPE-24 (in Budapest). Furthermore Laszlo HEGELY participated at the following conferences: D&A2014 in Friedrichshafen, ESCAPE-25 (in Copenhagen, in 2015) and ESCAPE-26 (in Portoroz, in 2016).

f. Other scientific activities of the participants of the project:

- Membership in scientific committees of conferences: Peter LANG: ESCAPE-24, D&A 2014

- Section chair at conferences: Peter LANG: PRES'13, ESCAPE-24, D&A 2014, PRES'15,

Gabor MODLA: MKN 2014

- Reviewing: the participants of the project reviewed circa 60 articles for international journals with high impact factor and in 2014 15 articles for conference proceedings.

g. Peter LANG won the right to organize the Fluid Separations Working Party of the European Federation of Chemical Engineering (EFCE) in 2015, which was held in Hungary for the first time. The two day meeting (1st day technical meeting (scientific lectures with the participation of Hungarian Oil Company "MOL", Department of Building Service and Process Engineering and Department of Chemical and Environmental Process Engineering at BME), 2nd day: Visit to the Dunafoldvar plant of Pannonia Ethanol) succeeded very well on the basis of the feedbacks and congratulations of the participants.

h. From the results of the project we published altogether 6 papers in international journals of high impact factor, 15 conference papers (3 (PRES'2013)+1 (MKN2013)+ 2 (MKN2014) +3 (ESCAPE-24) + 2 (D&A2014) + 1 (ESCAPE-25) + 1 (PRES'2015) + 1 (ISCAME) + 1 (ESCAPE-26)). Of the latter papers those, which were presented at PRES (4) and ESCAPE (5) conferences, were published in international journals (without IF).

List of publications

a. Articles in international journals with high IF

1. Hegely L, V. Gerbaud, P. Lang, Generalised model for heteroazeotropic batch distillation with variable decanter hold-up, *Separation and Purification Technology* 115 (2013) 9–19 IF=2.7
2. Modla G., P. Lang, Heat pump systems with mechanical compression for batch distillation, *Energy*, 62, 2013, Pages 403-417, IF=3.65
3. Modla G, Energy saving methods for the separation of a minimum boiling point azeotrope using an intermediate entrainer, *Energy* 50 (2013) 103-109, IF=3.65
4. Hegely L, V. Gerbaud, P. Lang, General model for studying the feasibility of heterogeneous extractive batch distillation" *Ind. Eng. Chem. Res* (2014), 53 (45) pp. 17782 – 17793, IF=2.5
5. Modla G , P. Lang, Vapour Compression for Batch Distillation: Comparison of Different Working Fluids, *Ind. Eng. Chem. Res.*, pp. 1081-1092 (2015), IF=2.57
6. Hegely L., P. Lang, Optimization of a Batch Extractive Distillation Process with Recycling Off-cuts, *Journal of Cleaner Production*, accepted, DOI: 10.1016/j.jclepro.2016.04.140 (2016), IF=4.96

b. Papers at international conferences

7. Hegely, L., Lang, P., Gerbaud, V., Off-cut recycle for batch and batch extractive distillation separation of a multicomponent azeotropic mixture, *PRES2013, Rhodes, 2013 Sept. 15-18, Chemical Engineering Transactions*, 35 pp. 967 – 972
8. Hegely, L., Lang, P., Kovacs, Gy, A new batch extractive distillation operational policy for methanol recovery, *Chemical Engineering Transactions*, Volume 35, 2013, Pages 949-954
9. Modla G., Peter Lang. Energy Saving for Batch Distillation with Mechanical Heat Pumps, *Chemical Engineering Transactions*, Volume 35, 2013, Pages 301-306

10. Denes F., Joulia X., Lang P., Validation of a new double-column system for heteroazeotropic batch distillation by dynamic simulation and experiments, *Computer-Aided Chemical Engineering*, 33, 157-162, ESCAPE-24. Budapest, 2014.06.15 -18
11. Hegely, L., Lang, P., Optimization of Entrainer Feeding in Batch Extractive Distillation, *Computer-Aided Chemical Engineering*, 33, 1177-1182 (2014)
12. Modla G., P. Lang, Batch Distillation with Vapour Compression Applying Different Working Fluids, *Computer-Aided Chemical Engineering*, 33, 1195-1200 (2014)
13. G. Modla, P. Lang, Batch distillation with heat pump applying different working fluids, *DISTILLATION & ABSORPTION 2014*, 14 – 17 September 2014, Friedrichshafen, Germany, 69-75
14. L. Hegely, P. Lang, Optimization of an industrial batch extractive distillation process, *DISTILLATION & ABSORPTION 2014*, 94-99
15. Hegely L., Lang P., Validation of a new double-column system for heteroazeotropic batch distillation by dynamic simulation and experiments, *Computer-Aided Chemical Engineering*, 34, 1409-14, ESCAPE-25. Copenhagen, 2015.05.31 -2015.06.04
16. Hegely L., Lang P., Optimisation of a Batch Extractive Distillation Process with Off-cut Recycle, *PRES2015, Kuching (Malaysia)*, 2015.08.22-27, *CHEMICAL ENGINEERING TRANSACTIONS* 45, pp. 1117-1122 (2015)
17. Laszlo Hegely, Peter Lang: Optimization of Batch Extractive Distillation with Off-cut Recycle and Varying Feed Composition, *COMP. AIDED CHEM ENG* 38: 1677-1682, 2016

c. Inland conference papers:

18. Modla Gábor, Láng Péter, Párakompressziós hőszivattyús rendszerek szakaszos desztillációra
Műszaki Kémiai Napok 2013, Veszprém, Magyarország, 2013.04.23-2013.04.25., 27-38.
19. Modla G, Lang P, Hőszivattyú szakaszos desztillációhoz: Különböző munkaközlegek össze-hasonlítása, *MKN2014, Veszprém, Magyarország, 2014.05.14-16., 98-106*
20. Hegely L, V. Gerbaud, P. Lang, Általános modell a szakaszos heterogén extraktív desztilláció megvalósíthatóságának vizsgálatára, *MKN 2014, 57-63.*
21. Lang P., L. Hegely, D. Nagy, F. Denes, Simulation Study of Amine-based CO₂ Absorption, *Proceedings of the 3rd International Scientific Conference on Advances in Mechanical Engineering (ISCAME 2015), Debrecen, Hungary, 96-101.*

d. PhD thesis:

22. L. Hegely: Improvement Of Batch Distillation Separation Of Azeotropic Mixtures, *BME-INPT, 2013.*

e. Book chapter:

23. Gács Iván, Groniewsky Axel, Sándor Csaba, Láng Péter, Buzea Klaudia, Gebhardt Gábor, Hegyfalvi Csilla, Csaba Márton: Szén-dioxid leválasztás és eltárolás, Budapest: BME Energetika Tanszék, 134 p. (Fenntartható energetika), 2013

ZÁRÓJELENTÉS

A pályázat ideje alatt a munkaterv szerint haladva az alábbi eredményeket értük el:

1. Változó dekanter hold-upú szakaszos heteroazeotrop desztilláció vizsgálata

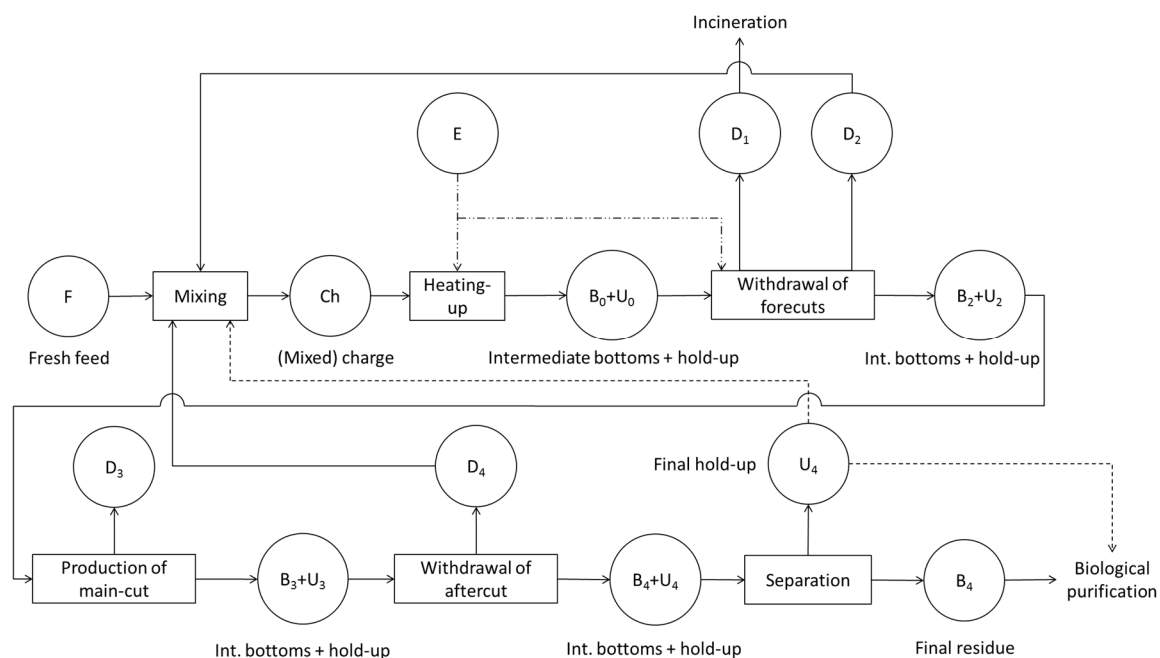
Előző projektünk végén kidolgoztuk a változó dekanter hold-upú szakaszos heteroazeotrop desztilláció általánosított modelljét. Három új üzemeltetési politikát is javasoltunk, melyekre részletes modellező számításokkal végeztünk. Az eredményeket a Separation and Purification Technology, magas impakt faktorú folyóiratban közzétettük.

A modellt továbbfejlesztettük a szakaszos heteroextraktív desztilláció leírására, melyben folyamatos hordozó adagolás is történik. Meghatároztuk az üst koncentrációváltozásának lehetséges irányait. Megvizsgáltuk a lehetséges üzemeltetési módok gyakorlati alkalmazhatóságát. Az üstnyomvonal irányokat a víz – etanol elegy n-butanol hordozóval történő vízmentesítésének számítógépes szimulációjával igazoltuk. Az eredményeket előbb konferencia-előadásban (Műszaki Kémiai Napok), majd az Industrial & Engineering Chemistry Research magas impakt faktorú, amerikai folyóiratban közzétettük.

2. A hagyományos szakaszos rektifikálás párlat-visszaforgatási kérdéseinek vizsgálata azeotropokat tartalmazó többkomponensű elegyre, optimális visszaforgatási stratégia kialakítása. Optimális párlat-visszaforgatási stratégia kidolgozása szakaszos extraktív desztillációra.

Egy gyógyszergyári hulladék-oldószerkelet (fő komponensek: metanol, víz; főbb szennyezők: THF, toluol; nyomnyi szennyezők: acetone, n-hexán, etanol) szakaszos desztillációs (SZD) regenerálását vizsgáltuk. Egy gyártás 4 lépésből áll (1. ábra). Az egyes párlatok:

1. előpárlat (elégetik), 2. előpárlat, főpárlat (nagy tisztaságú metanol), utópárlat. A 2. előpárlatot és az utópárlatot visszaforgatják a következő gyártásba.

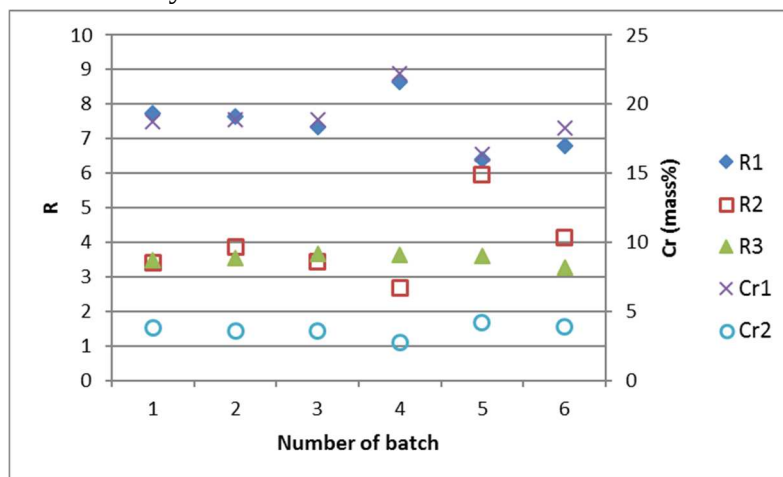


1. ábra. Az oldószerkelet regenerálásának állapot-tevékenység hálózata (state-task network)

2013-ban a 6 egymást követő gyártásból álló folyamatra megvizsgáltuk az elő- és utópárlatok visszaforgatásának hatását részletes számítógépi modellezéssel. A vizsgálatot kiterjesztettük az elegy szakaszos extraktív desztillációs (SZED) szétválasztására is. A feldolgozandó sarzsok, melyek a friss elegyen kívül a visszaforgatott párlatokat is tartalmazzák, összetétele mindkét művelet esetén megváltozik a visszaforgatás hatására, például megnő a metanol- és lecsökken a víztartalom. Megállapítottuk, hogy a SZD esetében az egyik szerves szennyező, a toluol a visszaforgatás hatására feldúsul a sarzsokban. SZED alkalmazása esetén ezt nem tapasztaltuk. Az eredményeket PRES-13 nemzetközi konferencián (6 oldalas cikk a Chemical Engineering Transactions folyóiratban) ismertettük.

2014-ben elvégeztük egy-egy gyártás optimalizálását mind a SZD, mind a SZED esetre (munkatervi 3. pont). 2015-ben az optimalizálást kiterjesztettük a teljes, hat gyártásból álló folyamatra.

Az egyes gyártások műveleti paramétereit (refluxarányok, első és második előpárlat leállási követelménye, vízáram, vízadagolás hossza) optimalizáltuk egy, a ChemCAD folyamatszimulátorral összekapcsolt genetikusan alkalmazásával. Az optimalizálást úgy végeztük, hogy egymás után meghatároztuk az egyes gyártások optimális paramétereit. A célfüggvény a gyártások profitjainak összege volt. A visszaforgatás mindkét művelet esetében megváltoztatja a feldolgozandó sarzsok összetételét, emiatt a műveleti paraméterek optimális értékei is különbözőek az egyes sarzsokra (2. ábra). A SZED esetében a vízadagolást mindig rövidebbel az első (később elégetendő) előpárlat szedésének befejezése előtt le kell állítani. Ugyan az elegy szétválasztása mind a SZD, mind a SZED alkalmazása esetén gazdaságos volt, de az extraktív művelettel számottevő (65%) profitnövekedés volt elérhető, a nagyobb kinyerés és a kisebb égetési költség miatt. Az eredményekről 2015 augusztusban a PRES'15, nemzetközi konferencián szóbeli előadást tartottunk. A hatoldalás konferenciacikk megjelent a Chemical Engineering Transactions folyóiratban.



2. ábra. A műveleti paraméterek optimális értékeinek változása (SZED; R: refluxarány, Cr: előpárlat leállási kritériuma, a desztillátum THF koncentrációja)

A PRES'15 előadás alapján meghívást kaptunk, hogy eredményeinket a Journal of Cleaner Production folyóiratban (IF=4,96) is közöljük. Az addig kapott eredmények részletesebb bemutatásán túl megvizsgáltuk a nem-optimalizált (az üzemben alkalmazott) SZD, valamint az optimalizált SZD és SZED folyamatok környezeti hatásait. Az optimalizálással a SZD termék egységre fajlagosított (közvetlen és közvetett) CO₂ kibocsátása és szennyvíztermelése

kismértékben csökkent. A SZED alkalmazásával a SZD-hoz képest a CO₂ kibocsátás 20%-kal csökkent, ugyanakkor a keletkező szennyvíz mennyisége nőtt.

2016 első felében megvizsgáltuk azt is, hogy milyen hatása van a szétválasztandó friss elegy összetétele változásának az optimalizálás eredményeire. Mindkét műveletre két-két esetet hasonlítottunk össze. Az elsőben a friss elegy összetétele állandó volt mind a 6 egymást követő gyártásban. (Mint említettük, a sarzs összetétele ilyenkor is változik.) A második esetben a friss elegy összetétele gyártásról gyártásra változott, úgy, hogy valamelyik szerves komponens koncentrációja a maximális vagy a minimális értéket vette fel, a többié pedig - a víz kivételével – az átlagos maradt. A legnagyobb hatása a toluol koncentráció változásának volt. A SZED művelet profitja ekkor is mindig nagyobb volt (változó összetétel esetén a teljes gyártásra nézve 28%-kal). Megállapítottuk, hogy a SZED alkalmazása különösen előnyös, ha az elegy összetétele kedvezőtlen: magas toluol-tartalom esetén például a profit 111%-kal volt magasabb. Az eredményeket az ESCAPE-26 nemzetközi konferencián mutattuk be.

Fontos még megjegyezni, hogy a kifejlesztett programmal más elegyek regenerálása is optimalizálható.

3. Új szakaszos extraktív desztillációs (SZED) üzemeltetési politikák vizsgálata olyan esetekre, amikor a szolvenssel kimosandó komponens nem szennyező, hanem nagy koncentrációban jelenlévő célkomponens.

Laboratóriumi hagyományos és extraktív szakaszos desztillációs kísérleteket végeztünk a már említett hétkomponensű (metanol, tetrahidrofurán, víz, toluol,) gyógyszergyári hulladék-oldószerelegyből a metanol visszanyerés hatékonyságának növelésére. Új üzemeltetési politikát (SZED1) javasoltunk, amely során a vízadagolás kizárólag az oszlop felfűtése alatt történik. A vízadagolás ugyan folytatható az előpárlatvétele alatt is (SZED2), de ez a szétválasztandó metanol-víz elegy hígulásához vezet. Az elvégzett laboratóriumi kísérletek (hagyományos szakaszos desztilláció, SZED1 és SZED2) eredményei szerint a legnagyobb metanol-kinyerés az új szakaszos extraktív desztillációs politikával (SZED1) érhető el, a legkisebb pedig a hagyományos szakaszos desztillációval. Elvégeztük a kísérletek utólagos szimulációját is. Az ipari méretű kísérleti gyártások során (hagyományos szakaszos desztilláció és SZED1) számottevő kinyerés növekedést értünk el. Az eredményeket 2013 őszén a PRES-13 nemzetközi konferencián ismertettük.

Elvégeztük a SZED optimalizálását, genetikus algoritmus alkalmazásával. A módosított változók az egyes lépések refluxaránya, a vízbetáplálás helye, hossza és nagysága voltak. Az optimális SZED politika a SZED1 és SZED2 közötti, a vízadagolás részben az első előpárlat szedése alatt is folytatódik. A 2013-ban elvégzett számítások eredményeit az ESCAPE-24 rangos nemzetközi konferencián szóbeli előadásban mutattuk be.

A munka folytatásában az eddig vizsgált műveleti paramétereken túl (az egyes lépések refluxaránya, a vízbetáplálás helye, hossza és nagysága) optimalizáltuk még az első, és a második előpárlat leállási követelményét is, mind a SZD, mind a SZED esetén. Az eredményekből a Distillation & Absorption 2014 világkonferencián szóbeli előadást tartottunk. Megvizsgáltuk továbbá a sarzsösszetétel változásának hatását (célkomponens, illetve szerves szennyezők koncentrációja) a műveleti paraméterek optimális értékére és a profitra. A 2014-

ben elvégzett számítások eredményeit a PSE2015/ESCAPE-25 rangos nemzetközi konferencián szóbeli előadásban mutattuk be.

A SZED művelet optimalizálását több egymást követő gyártásra kiterjesztve, és a párlatvisszaforgatást is figyelembe véve folytattuk. Ezeket az eredményeket a 2. pont alatt foglaltuk össze.

4. A szén-dioxid égetés utáni reaktív abszorpcióval történő elnyeletésének („post-combustion capture”) vizsgálata szimulációval (együttműködésben a BME Energetikai Gépek és Rendszerek Tanszékkal).

A füstgázok CO₂-tartalmának megkötését vizes monoetanolamin (MEA) szolvenssel végző abszorpció-deszorpció eljárását vizsgáltuk a ChemCAD folyamatszimulátorral való modellezéssel. Két különböző konfiguráció-változat („split-flow és „rich split”) esetére is meghatároztuk a legkisebb hőigényt eredményező méretezési és üzemeltetési paramétereket. Ezen optimalizáláshoz genetikus algoritmust használtunk. Eredményeinket a 2015-ös debreceni ISCAME nemzetközi konferencián ismertettük. Ezután elkezdtük további szolvensek (DEA, MDEA) hatékonyságának vizsgálatát is.

5. A vizsgált műveletek szimulációja töltött oszlopos kísérletekre az elméleti tányér modell helyett az anyagátadási („rate based”) modell alkalmazásával, az eredmények összehasonlítása

Elvégeztük a szükséges irodalmazást, és az első szimulációs számításokat a ChemCad folyamatszimulátorral laboratóriumi kísérletek kiértékelésére. A végzett munkából TDK dolgozat született. A kapott eredmények nem voltak kedvezőek, elsősorban amiatt, hogy a módszer számos olyan paraméter megadását igényelte, melyekre nem állt rendelkezésre megbízható információ.

6. Desztilláló rendszerek energiafogyasztása csökkentési lehetőségeinek (pl. hőintegráció, osztott falú kolonna, pára kompresszió) vizsgálata.

A szakaszos desztilláció energiaigénye csökkentése céljából a „gőz rekompresziós” (a fejgőz a munkaközeg) és a „gőz kompressziós” (a munkaközeg a szétválasztó elegytől független) eljárások alkalmazását vizsgáltuk egy kis relatív illékonyságú (n-heptán-toluol) elegy szétválasztásának példáján. Részletes dinamikus szimulációs és gazdaságossági számításokat végeztünk a CHEMCAD professzionális folyamat-szimulátorral. Meghatároztuk a kompresszió viszony hatását a beruházás megtérülésére. A „gőz rekompresziós” eljárást egy külső hőcserélő alkalmazásával módosítottuk a kompresszor beruházási költsége megtérülési idejének csökkentése érdekében. A legjobb eredményeket ezzel és a „gőz kompressziós” eljárással (munkaközeg: n-pentán) kaptuk. Eredményeinket az MKN2013 hazai és a PRES’2013 nemzetközi konferenciákon mutattuk be, majd az Energy, magas impakt faktorú, nemzetközi folyóiratban publikáltuk.

Ezután a „gőz kompressziós” eljárásra különböző munkaközegek (n-pentán, n-hexán, etanol, izopropil-alkohol) alkalmazását hasonlítottunk össze. Meghatároztuk a munkaközeg kiválasztásának kritériumait. Javaslatot tettünk a munkaközegek osztályozására a kompresszió alatt történő viselkedésük alapján. Összehasonlítottuk a munkaközegek hatékonyságát

költségszámításokkal. Eredményeinket az ESCAPE-24 nemzetközi konferencián szóbeli előadásban (és 6 oldalas cikkben), majd az Ind. Eng. Chem. Res folyóiratban mutattuk be.

Minimális forráspontú azeotrop elegyek extraktív (közbenső illékonyságú ágenssel történő) desztillációval történő elválasztására különböző energia megtakarítási lehetőségeket (termikus csatolású és osztott falú kolonnák) vizsgáltunk. Eredményeinket az Energy folyóiratban publikáltuk.

7. A kutatómunka eredményeinek és a projekt keretében beszerzésre kerülő programok, laboratóriumi desztilláló eszközök felhasználása az oktatás fejlesztésére.

A ChemCad korszerű professzionális folyamatszimulátor programot, melynek licencdíját a projektből fedezzük, több tárgy oktatásában is használtuk (Vegyipari és élelmiszeripari műveletek szimulációja (BSc), Eljárások és berendezések modellezése (MSc), Önálló feladat, Szakdolgozat, Diplomamunka). Ezek közül 2013-ban először oktattuk a Vegyipari és élelmiszeripari műveletek szimulációja (BSc) és az Eljárások és berendezések modellezése (MSc) tárgyakat. A projekt terhére beszerzett laboratóriumi desztilláló eszközöket, (pl. fűtőkösarat), valamint nyomásérzékelőt és –távadót a desztillációs hallgatói mérési gyakorlatok és TDK-munkák stb. során is használtuk.

Egyéb eredmények:

- a. A munkaterven kívül elvégeztük a szakaszos heteroazeotrop desztillációs kétoszlopos rendszerrel korábban végzett félüzemi kísérlet utólagos dinamikus szimulációját. Javaslatot tettünk továbbá a két oszlop működtetésének időbeli összehangolására, amely a berendezés energiahatékonyabb működését eredményezi. A fenti téma az ESCAPE-24 nemzetközi konferencián került bemutatásra 2014 júniusában.
- b. Hégy László 2013 novemberében az INP Toulouse egyetemen 100%-os eredménnyel megvédte közös irányítású doktori disszertációját (témavezetője a vezető kutató). Munkájával elnyerte a francia egyetem Leopold Escande díját. A díjátadásra az útiköltségét az OTKA projekt forrásaiból fedeztük.
- c. Modla Gábor szenior kutató 2015-ben beadta MTA doktori értekezését, melyet mind a három bíráló nyilvános vitára alkalmasnak talált.
- d. A projekt ideje alatt a vezető kutató és a szenior kutató független hivatkozásainak száma jelentősen növekedett (460-ra ill. 257-re).
- e. 2013-ben Dénes Ferenc és Hégy László fiatal kutatók az OTKA forrásainak igénybevételeivel személyesen is részt tudtak venni a PRES'2013 rangos nemzetközi konferencián Rodoszbán, valamint az ESCAPE-24 konferencián. Hégy László részt vett még 2014-ben a D&A konferencián Friedrichshafenben, 2015-ben az ESCAPE-25-ön Koppenhágában, 2016-ban pedig az ESCAPE-26-on Portorozsban.
- f. A projekt résztvevőinek egyéb tudományos tevékenysége:
 - Konferenciák tudományos bizottsági tagsága: Láng Péter: ESCAPE-24, D&A 2014
 - Konferenciák szekcióelnöke: Láng Péter: PRES'2013, ESCAPE-24, D&A 2014, PRES'2015; Modla Gábor: MKN 2014
 - Bírálói tevékenység: A projekt kutatói évente kb. 20 nemzetközi impakt faktoros folyóiratcikket bíráltak; 2014-ben pedig 15 konferenciaticket is.

g. Láng Péter elnyerte a European Federation of Chemical Engineering (EFCE) Fluid Separations munkabizottságának 2015. évi ülésének rendezési jogát, amely először kapott helyet hazánkban. A kétnapos ülés (első nap: a BME-n „technical meeting” (tudományos előadások a MOL, BME KKFMT és ÉPGET részvételével) és „business meeting”; második nap: a Pannonia Ethanol dunaföldvári gyárának megtekintése) a résztvevők utólagos visszajelzései és gratulációi alapján kiválóan sikerült.

i. A projekt témájából összesen 6 folyóiratcikk (magas IF-es angolszász folyóiratokban), valamint összesen 15 konferenciacikk született (3 (PRES'2013)+1 (MKN2013)+ 2 (MKN2014) +3 (ESCAPE-24) + 2 (D&A2014) + 1 (ESCAPE-25) + 1 (PRES'2015) + 1 (ISCAME) + 1 (ESCAPE-26)). A konferenciacikkeink közül a PRES (4 db) és ESCAPE (5 db) konferenciákon közöltek IF-ral nem rendelkező folyóiratok közölték.