

Notat 2:

Vurdering av forsøksutstyr for måling av høytrykk massetransport

1. Bakgrunn

Masseovergang mellom væske og gass som ikke er i termodynamisk likevekt er av stor betydning for en rekke prosesser i olje- og gassindustrien. Matematiske modeller for massetransport mellom væske og gass ved lave trykk er i dag forholdsvis godt utviklet. Modellering av massetransport ved lavt trykk er langt enklere enn ved høye trykk. Dette skyldes blant annet at turbulensbilde, transport- og volumetriske egenskaper er matematisk modellert og eksperimentelt verifisert for lavtrykk systemer.

Beregning av turbulent masseovergang mellom væske og gass ved høye trykk vil være svært usikre. Viktige medvirkende faktorer til denne unøyaktigheten er:

1. Det er ikke utviklet noen verifisert matematisk modell for diffusjonskoeffisienter i gasser ved høye trykk. Svært lite måledata er tilgjengelig for høytrykk diffusjon i gasser.
2. Turbulensens innvirkning på massetransporten er dårlig forstått, og nøyaktige måledata er vanskelig å oppnå. Det er utført svært få eksperimentelle målinger av høytrykk turbulent masseovergang (ingen over 70 bara i følge Kerst, 1998), og måledata fra slike systemer er derfor mangelfulle.

En gjennomgang av metoder for måling av diffusjon i gasser ved høye trykk vil bli presentert i et eget notat.

Dette notatet er et resultat av et litteraturstudie som er utført innen eksperimentell måling av turbulent massetransport. I denne rapporten presenteres noe av det laboratorieutstyret som tidligere er benyttet for måling av masseovergang. Det viste seg svært vanskelig å finne eksperimentelle målinger som var utført ved høye trykk. Alle forsøkene som blir presentert i dette notatet er tidligere kun utført ved relativt lave trykk.

For å kunne verifisere og utvikle modeller for masseovergang i turbulent strømming vil man være helt avhengig av et kjent turbulensbilde og en enkel modellerbar gass-væske interfase. Dette kravet medfører at det ikke vil være hensiktsmessig å utføre forsøk i virkelig prosessutstyr (f. eks absorpsjonstårn eller varmevekslere). Her vil en rekke fysiske parametre, som man i utgangspunktet ikke er interessert i å studere, være med å påvirke massetransporten.

Hvordan et eksperimentelt oppsett for måling av høy trykk masseovergang mellom væske og gass kan utformes, er diskutert og foreslått i dette notatet.

Nøyaktige eksperimentelle målinger av turbulent masse transport er meget vanskelig å utføre. Ofte viser det seg problematisk å isolere effektene av de parametre som man ønsker å studere. Dette kommer klart frem i de tilfeller hvor man ønsker å måle innvirkningen av turbulente krefter (høye Reynolds tall) på masseovergangen, samtidig ønsker man enkle grensebetingelser (glatt interfase). Turbulent strømming med en klar definert interfase viser seg ofte som forsøksbetingelser som er umulig å oppfylle.

Andre vurderinger man må gjøre ved design av forsøksutstyr for måling av massetransport vil være:

- Evnen utstyret har til å operere under høye trykk.
- Mulighet for å benytte både binære og multikomponent gasser og væsker (ved vurdering av multikomponent effekter). Slike effekter av reversert diffusjon er betydningsfulle ved ulike former for gass rensing. For gasser vil multikomponent- effekter øke med stigende trykk.
- Kostnader knyttet til bygging og drift av utstyret.

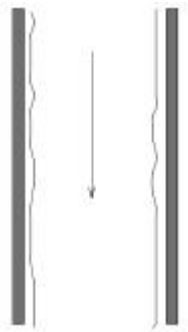
- Og viktigst av alt; nøyaktighet, nytteverdi og anvendbarhet av de eksperimentale data som man oppnår med forsøksutstyret.

2. Klassifisering av forsøksutstyr

Målsetningen for eksperimentell måling av massetransport er å forstå de fysiske mekanismene som er gjeldene ved termodynamiske ikke- likevekts prosesser (for eksempel gassrensing). For å oppnå denne kunnskapen er det avgjørende å velge riktig type eksperimentelt utstyr.

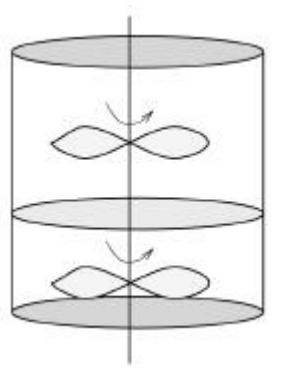
Flere typer laboratorieutstyr for måling massetransport har vært benyttet. Laboratorieutstyret som er blitt benyttet kan generelt deles i tre klasser:

1. Eksperimentelt utstyr der interfasareal er kjent og der verdien til masseovergangskoeffisienten kan estimeres på grunnlag av et kjent strømningsbilde. Et slikt utstyr er f.eks. masseovergang mellom en gass og en annular væskefilm i et vertikalt rør (filmkolonne). Her vil både interfasareal og strømningsbildet være mulig å estimere med rimelig god nøyaktighet.
2. Utstyr hvor interfasareal er kjent, men der strømningsbildet er slik at en masseovergangskoeffisient ikke kan estimeres matematisk. Et slikt forsøk kan f.eks. være masseovergang mellom væske og gass i en tank med omrøring (stirred vessel). Her vil interfasareal være gitt av diameter på tanken, mens strømningsbildet vil være komplisert og ukjent.
3. Eksperimentelt utstyr hvor hverken interfasareal eller masseovergangskoeffisient kan estimeres. Et eksempel på et slikt forsøk er måling av masseovergang i Petreco-hjulet (beskrevet litt senere). Her vil strømmingen av gass og væske være så kaotisk at hverken interfasareal eller masseovergangskoeffisient vil være mulig å estimere.



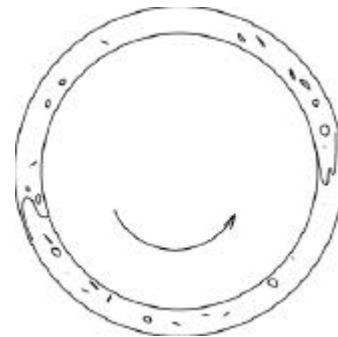
1. Annullar film

- Kjent interfasareal
- Kjent turbulensbilde



2. Tank med omrøring

- Kjent interfasareal
- Ukjent turbulensbilde



3. Hjulsimulator

- Ukjent interfasareal
- Ukjent turbulensbilde

Valg av type utstyr må baseres på en rekke betraktninger, men generelt er typer 1 å foretrekke fremfor type 2, mens type 2 foretrekkes fremfor type 3. Ulempen med forsøksutstyr av type 1 er ofte liten fleksibilitet for variasjon av interfasareal og turbulens bilde (Astarita et. al., 1983). Andre betraktninger ved valg type forsøksutstyr er: mulighet for å variere verdien på masseovergangskoeffisienten, mulighet for å variere størrelsen på interfasareal, væske/gass forholdet og oppholdstid/kontaktid for væske og gass. En mer utfyllende beskrivelse og sammenligning av fordeler og ulemper ved de tre nevnte typer forsøksutstyr er beskrevet i Astarita et. al. (1983).

3. Litteraturstudie

I denne rapporten beskrives fire ulike forsøksutstyr som er blitt benyttet for å måle turbulent masseovergang mellom væske og gass. Dette noe knappe utvalget er gjort siden mange forsøk som er utført ved lavt trykk ikke vil kunne utføres ved høyere trykk, men også på grunn av at mange av forsøkene ikke ble vurdert som gode.

Bare et av forsøkene som diskuteres kan utføres i laboratorieutstyr som finnes på forskningscenteret i dag (Petreco-hjulet). Petreco-hjulet blir vanligvis benyttet til andre typer forsøk (viskositet måling, hydrat forsøk), men man har også mulighet til å måle på masseovergang mellom væske og gass. Utstyret er et eksempel på forsøksoppsett hvor turbulens- og interfasebetingelser er vanskelig å modellere, noe som gir lite generelle resultater (bare gyldig for massetransport i Petreco-hjulet).

De tre siste typene forsøksutstyr som blir diskutert i dette notatet er tidligere utført ved moderate trykk, og er beskrevet i ulike vitenskapelige artikler og bøker (se referanser). Disse eksperimentoppsettene er henholdsvis: (1) måling av masseovergang i tank med omrøring (stirred vessel), (2) massetransport i stratifisert horisontal gass/væske kanal strøm og (3) masseovergang i anulær vertikal gass/væske strøm (filmkolonne).

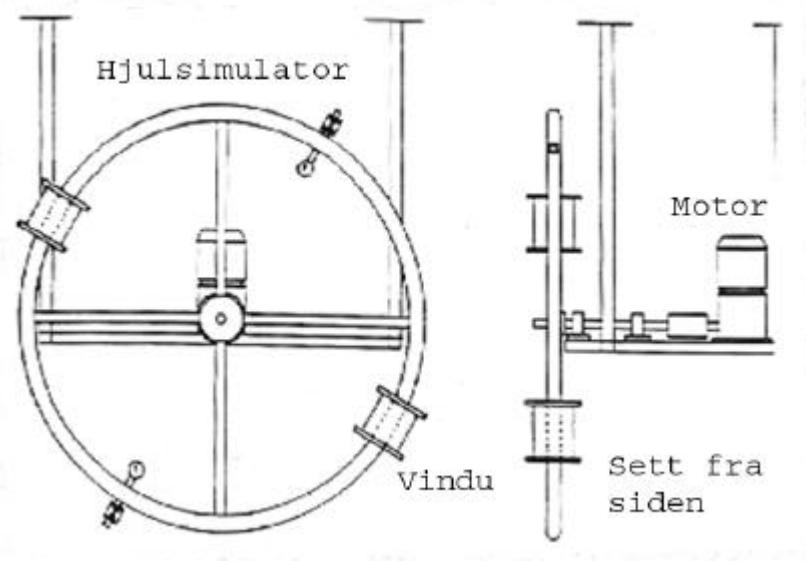
3.1 Fire ulike forsøk for måling av masseovergang mellom væske og gass

3.1.1 Måling av ikke- likevekt i Petreco-hjulet

Petreco hjulet er en flerfase strømningsimulator utviklet av Petreco på Stjørdal. Hjulet er tradisjonelt benyttet til forsøk knyttet til dannelse av hydrat og til viskositetsmåling for flerfase rørstrøm. Forsøk utført av ved Statoil F&U (Bylov, 1997) viser at det er mulig å studere ikke- likevekts fenomener ved hjelp av denne strømningssimulatoren.

Petreco-hjulet består av et 2" rør is rustfritt stål formet som et hjul med diameter på 2 meter. Hjulet er koblet til en aksling slik at det kan rotere. Strømningssimulatoren er utstyrt med moment-, trykk- og temperatursensorer. Hjulet er plassert i et temperaturregulert kammer hvor temperaturen kan styres ved hjelp av en kjøle og varmesløyfe. Petreco-hjulet er vist i figur 2.

Før oppstart av forsøkene blir hjulet fylt med en kjent mengde væske og gass (ofte gass/olje/ vann). Under gjennomføring av ikke-likevekt forsøks i Petreco-hjulet loggføres trykk og temperatur i hjulet kontinuerlig. Temperaturen i rommet senkes, og dette fører til at noe av gassen kondenserer. Motstand mot massetransport fører imidlertid til en noe forsinket kondensasjon, dette vil si at forholdet mellom mengde gass og olje vil bli noe forskjøvet fra likevekts tilstanden. Forskyvningen fra likevekt kan måles ved å sammenligne målt trykk i hjulet med et beregnet likevekts trykk. Den termodynamiske likevektsmodellen som benyttes må kalibreres mot målte data (Solbraa, 1997).



Figur 2. Flerfase strømningssimulatoren (Petrecohjulet)

For å se på innvirkning av temperatur, trykk eller turbulens på motstand mot masseovergang, har man mulighet til å utføre forsøk over ulike temperatur og trykk intervall og med ulike rotasjonshastigheter for hjulet.

Forsøk utført i Petreco-hjulet har flere ulemper knyttet til måling av masseovergang. De største svakhetene oppstår på grunn av det kaotiske strømningsbildet i hjulet. Man kan ikke forhåndsmodellere interfaseareal eller turbulensbilde i hjulet. Dermed vil forsøkene ikke kunne gi oss noe eksakt mål for masseovergangs talet. Dette vil si at den målte forskyvningen fra likevekt ikke vil kunne ha direkte overførbarhet ved modellering av andre typer ikke-likevekts situasjoner.

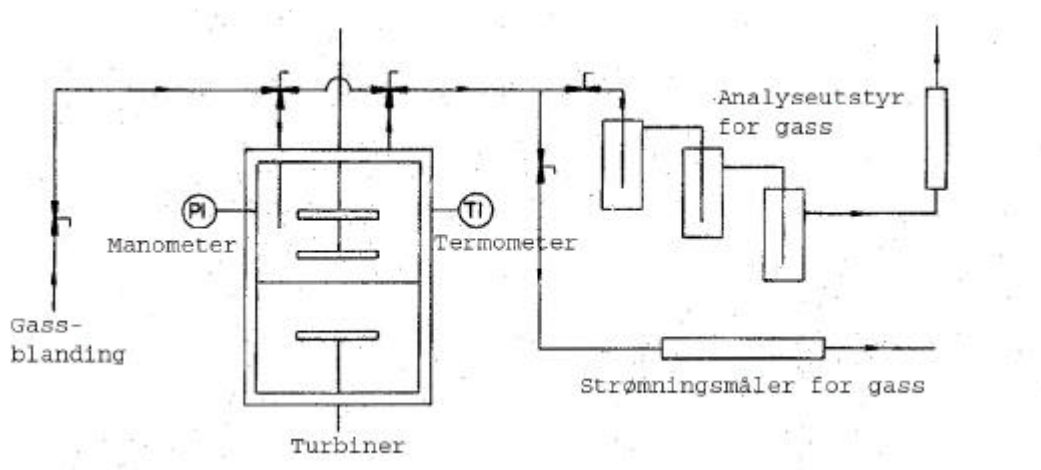
3.2. Måling av turbulent masseovergang i en tank med omrøring

Måling av masseovergang i en tank med omrøring er et vanlig forsøk for å se på masseovergang knyttet til absorpsjon- og desorpsjonprosesser. I denne tanken føres væske og gass i kontakt med hverandre slik at en masseovergang oppstår. Tre typer tanker er benyttet for absorpsjon/desorpsjons laboratorium forsøk. Det utstyret som oftest er benyttet plasseres en propell i væskefasen for å skape turbulens. Andre typer "omrøringsceller" benytter røring både i væske og gass. Den siste typen tanker har en perforert plate plassert på gass-væske interfasen. Ved hjelp av denne platen kan man regulere størrelsen på interfasearealet.

For disse forsøkene er interfasearealet mellom væske og gass gitt av den geometriske diameteren på tanken (ikke ved bruk av perforering på interfasen). Slike forsøk er kun benyttet ved lave trykk tidligere (<10 bar). Ved høyere trykk vil man ikke lenger få en jevn interfase mellom væske og gass (Versteeg, 1986).

Forsøkene utført ved hjelp av en tank med omrøring vil være inngå i gruppe 2 av de forsøktypene som er beskrevet tidligere. Her er interfaseareal kjent (lavt trykk) mens turbulensbildet er ukjent.

Forsøksutstyret som er vist i figuren under ble benyttet av G.F Versteeg (1986, 1987) for å studere diffusjonskoeffisientens betydning på masseovergangskoeffisienten i en gass. Dette ble gjort ved å benytte en glasstank med 88 mm indre diameter og et totalt volum på 1,22 liter. For å regulere turbulensen i gass og væskefasen benytter man to turbiner montert på en aksel gjennom sentrum av tanken. For å sørge for jevn gasstilførsel, ble gassen injisert gjennom et teflonrør med 25 hull. Produktgassen tas ut gjennom et teflonrør på toppen av tanken.



Figur 3. Måling av masseovergang i en tank med omrøring

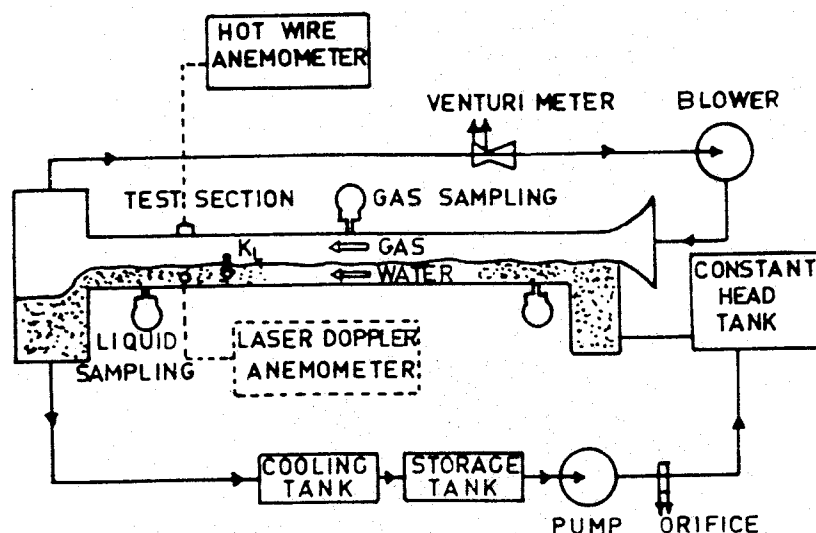
Ved oppstart av hvert eksperiment ble tanken fylt med hurtig reagerende alkoholamin. Etter å ha lukket tanken ble gassblandingen tilført ved ønsket trykk (<10 bar) og strømningsrate. Omrøringshastigheten ble satt til et ønsket nivå. Produktgassen ble splittet i to, en del gikk til et gassstrømningsmåler mens den andre delen gikk til et analyseapparat for gasssammensetning. Ved å sammenligne sammensetningen av gassen på innløp og utløp kunne masseovergangen beregnes. Versteeg konkluderer med at metoden vil være lite hensiktsmessig å benytte ved svært høye trykk. Under slike trykkforhold er det vanskelig å beholde en glatt interfase ved omrøring i gassfasen.

Nøyaktigheten og generaliserbarhet av målinger av masseovergang i en tank med omrøring er blitt kritisert av Bin (1988). Bin hevder at målinger av masseovergang i en tank med omrøring ikke kan benyttes til å teste generelle masseovergangskorrelasjoner. Dette skyldes i hovedsak det tredimensjonale og ukjente turbulensbildet i tanken.

3.3 Måling av turbulent massetransport i horisontal stratifisert gass-væske kanal strøm

Lagdelt strøm av væske og gass er en situasjon som oppstår i en rekke situasjoner i olje- og gassindustrien. Det vil derfor være ideelt hvis man kunne måle masseovergang eksperimentelt mellom væske og gass ved lagdelt strøm. Slike forsøk har blitt utført med varierende suksess. Et av de forsøkene som målte på masseovergang mellom væske og gass i horisontal lagdelt strømning, er utført av Baleix et. al, 1995.

Formålet med forsøkene ble utført var å se på absorpsjon av karbondioksid i vann ved lagdelt turbulent strømning. Forsøkene ble utført ved hjelp av forsøksutstyret vist i figur 4. Hovedkomponenten i utstyret var et 15 meter langt firkantør hvor væsken og gassen ble ført i kontakt med hverandre. Hvis fasene ikke var i likevekt ved innløpet av kanalen, ville en spontan masseovergang initieres. Ved å måle konsentrasjonen i gass og væske på ulike steder langs røret kunne man finne et mål på hvor mye gass som var absorbert i væsken.



Figur 4. Forsøksutstyr for måling av masseovergang i stratifisert væske- og gassstrømning

I prinsippet virker forsøksutstyret for måling av masseovergang i lagdelt strømning som et godt forsøk, men det viser seg å ha en rekke ulemper. Allerede ved lave gass og væske hastigheter i kanalen vil strømningsbildet i røret avvike vesentlig fra et ideelt lagdelt. Dermed blir turbulensbildet og også interfasearealet svært vanskelig å prediktere. Dermed får måleresultater som kun vil være anvendbare på et helt tilsvarende strømningsbilde som det som vil være i kanalen, noe som er en stor ulempe.

Ved økende trykk i systemet vil væske og gas interaskjonen øke, og tendensen til bølge- og slugdannelse vil øke. Det krever meget langsomme væske og gasshastigheter for å oppnå lagdelt strømning ved høye trykk (lagdelt området i et strømningsmønsterdiagram minsker ved økende trykk). Dette medfører at måling av høytrykk turbulent masseovergang i lagdelt strømning blir svært vanskelig. Forsøksutstyret vil også bli relativt kostbart, siden utstyret må være relativt stort (10-20 meter lang kanal) og fluidvolumene som må benyttes blir tilsvarende store.

3.1.4 Masseovergang i annular vertikal gass/væske strøm

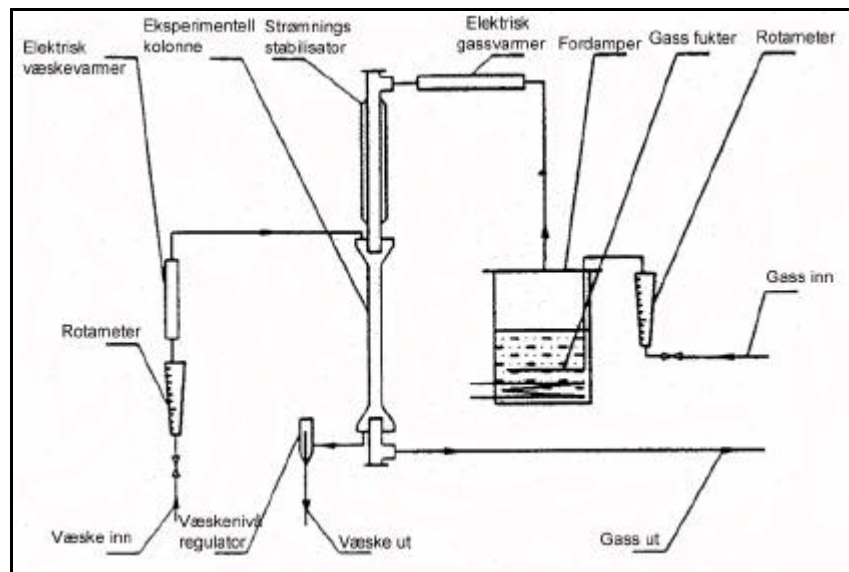
En rekke forsøk er utført der masseovergang mellom en gass og en væskefilm blir eksperimentelt målt. Vanligvis utføres forsøket ved at en tynn væskefilm strømmer vertikalt nedover en fast vegg mens gass strømmer medstrøms eller motstrøms over denne væskefilmen (filmkolonne). Denne typen forsøk har en stor fordel ved at både interfaseareal og strømningsforhold kan modelleres forholdsvis nøyaktig. På denne måten vil man kunne isolere den effekten ulike parametre har for masseovergangen. Dette er fordelaktig når man f.eks ønsker å studere trykkets innvirkning på masseovergangen.

Forsøksoppsettet er tidligere blitt benyttet ved flere typer forsøk, og har blant annet blitt benyttet ved eksperimentelle studier av masseovergang relatert til absorpsjonsprosesser (Astarita et al., 1983) og til test av ulike modeller for multikomponent turbulent massetransport (Krupicka et al., 1996). Målingene vil også kunne ha anvendelser på en rekke andre områder som f.eks tørking av væskedammer i rør, uttesting av modeller for turbulent masseovergang (varme-/massetransport analogier), studier av forholdet mellom masseovergangskoeffisienter i gass- og væskefase og man har også mulighet til å undersøke koblinger mellom varme og massetransport..

Det forsøksoppsettet som blir beskrevet her, er benyttet av Krupicka et al for uttesting av matematiske modeller for multikomponent masseovergang. Utstyret er imidlertid forholdsvis identisk med det som

kan benyttes i andre typer masseovergang målinger (Astrita et.al., 1996). Ulike bruksområder forsøksresultatene fra et slikt eksperimentelt utstyr er beskrevet i kapittel 5 ??.

For å verifisere og teste ulike modeller for multikomponent massetransport benyttet Krupiczka utstyret vist i figur 6. Utstyret var designet slik at gass og væske strømmet medstrøms ned et vertikalt stilt rør (weted-wall column) ved lik eller ulik temperatur for væske- og gassfasen. Forsøksfluidet som ble benyttet var henholdsvis isopropanol-vann-luft og isopropanol-vann-helium. Initial sammensetning av væske og gass kunne varieres på en enkel måte. Målingene ble utført ved en laminær væskestrøm for væsken ($Re=150-600$) og en turbulent gass strømming ($Re=3000-10\ 000$). Innløps temperaturen på gassen og væsken kunne varieres mellom 25 til 60°C. Alle forsøkene ble utført ved nær atmosfærisk trykk.



Figur 6. Forsøksutstyret som ble benyttet av Krupicka et. al., 1996.

Forsøksutstyret er forholdsvis enkelt oppbygd. Gassen som ble benyttet kunne entes tas fra en kompressor (luft) eller fra en trykkflaske (helium). Gassen strømmet gjennom en kontrollventil via et rotameter til en gass fukter (væske bad). Fukttinnholdet i gassen kunne reguleres ved hjelp av temperaturen i væsken. Gassen som var mettet på vann kunne deretter strømme videre gjennom en elektrisk oppvarmer slik at temperaturen på gassen kunne reguleres. Gassen strømmer deretter inn i en vertikal strømningsstabilisator slik at et stabilt strømningsprofil ble oppnådd. Rett etter strømningsstabilisatoren kom gassen inn i den adiabatisk forsøkskolonnen (vertikalt rør). I denne kolonnen kommer gassen i kontakt med væsken som strømmet medstrøms. På grunn av varme og massetransport vil temperaturen og sammensetningen til begge faser forandres. I dette forsøksoppsettet ble gassen sent videre ut i fri luft.

Væsken som ble benyttet (isopropanol og vann) strømmet først gjennom et rotameter og deretter gjennom en elektrisk oppvarmer. Etter at ønsket temperatur er oppnådd i væsken sendes den inn i forsøkskolonnen gjennom en spesiell væskefordeler som gjør at væsken vil strømme som en tynn annular film nedover røret. På bunnen av kolonnen er det plassert en væskeoppsamler som igjen sender væsken videre til en væsketank.

Alle målinger ble gjort ved å ha temperaturfølere på ulike steder langs kolonnen og ved å ta ut væske og gassprøver i toppen og bunnen av kolonnen. Masseovergangen kunne dermed finnes ved å analysere sammensetningen i væske og gass fra de forskjellige uttaksstedene.

Ved hjelp av disse forsøkene kunne Krupiczka teste modeller for masseovergang på en enkel og forholdsvis nøyaktig måte. Siden strømningsprofil og interfasebetingelser er forholdsvis godt forstått i annular strømning, har man muligheten til å vurdere forholdsvis rigorøse matematiske modeller for masseovergang. Utstyret kunne også blitt benyttet til å se på andre typer masseovergang. Man kunne for eksempel benytte rene væsker slik at all kun masse transport i gassfasen måtte betraktes. Man kunne benytte en væske som reagerte med enkelte komponenter i gassfasen (f.eks aminer og H_2S/CO_2) slik at sammenhenger mellom massetransport og reaksjonshastighet ble studert.

Skal man benytte et tilsvarende uttrykk ved høye trykk vil utstyret måtte modifiseres noe. Et forslag til hvordan utstyret kan utformes for å kunne utføre høytrykks forsøk er beskrevet senere i dette notatet.

4. Sammenligning av ulike forsøksoppsett

Tabell 1. Sammenligning av de ulike forsøksoppsett

FORSØKSTYPE / VURDERING	Måling av ikke- likevekt i Petreco-hjulet.	Masseovergang i en tank med omrøring	Massetransport i stratifisert gass-væske kanal strøm	Masseovergang i annular vertikal gass/væske strøm.
Mulighet for nøyaktig modellering av turbulens- og interfasebetingelser ?	Nei	Nei, komplisert turbulens bilde	Nei, blir fort vesentlige bølge effekter / slug.	Ja
Kan forsøket utføres ved høye trykk ?	Ja	Ja	Ja, men slug strømning/bølger vil fort oppstå ved høye trykk.	Ja
Mulighet for å se på multikomponent- effekter ?	Nei, ikke mulig å få ut gass/væske prøver under forsøkskjøring	Ja	Ja	Ja
Kostnader knyttet til: Bygging - *) Drift	Ingen Middels	Middels ? Lave	Middels/høy ? Middels	Middels/høy ? Middels
Vurdering av nøyaktighet, nytteverdi og anvendbarhet for måle data	Dårlig	Middels/Lav	Middels	God

*) Vanskelig å anslå kostnader. Antatte kostnader kan bare sees på som forholds-størrelser mellom kostnader knyttet til eksperimentalutstyret.

Ut fra tabell 1 ser man at det vil være stor forskjell på nøyaktighet, nytteverdi og anvendbarhet for måleresultatene fra de ulike eksperimentene. Målinger av massetransport i Petreco-hjulet gir lite anvendbare resultater (bortsett fra for de tilfeller hvor vi har strømningsforhold ganske like de som vil være i hjulet), siden modelleringen av turbulens og grensebetingelser i hjulet er dårlige. De klart beste eksperimentelle resultatene vil man oppnå ved hjelp av måling av massetransport mellom en vertikalt strømmende annular væskefilm og en gass. Her vil vi få et klart definert strømnings bilde, der de turbulente kreftene både i væske og gass er godt kjent (slike forsøk finnes det mange av). Interfasebetingelsene vil også være forholdsvis enkle å modellere siden den anullære væskefilmen vil bli holdt tynn og kontinuerlig

5. Beskrivelse og skisser av forsøksutstyret

Foreløpig: se skisser i artikkel: "An experimental study of diffusional cross-effects in multicomponent mass transfer".

6. Kommentarer

Dette notatet er foreløpig ufullstendig. Men budskapet om anbefalingen av forsøksutstyret som måler masseovergang i annuller vertikal gass/væske strøm skulle komme klart frem.

7. Referanser

Bylov, M., *An Experimental study of the Nucleation and Growth of Gas Hydrates*, Ph.D thesis, 1997

Bin, A.K., *Comments on the effect on gas-liquid mass transfer in stirred vessels. Experiments at atmospheric and elevated pressures*, Chem. Eng Sci, Vol. 43, No. 11, 1988.

Solbraa, E., *Ikke likevekts termodynamikk i hydrokarbon systemer*, Diplom oppgave Klima og Kuldeteknikk, NTNU, 1997.

Versteeg, G.F, Blauwhoff, M.M, Van Swaaij, P .M, *The effect of diffusivity on gas-liquid mass transfer in stirred vessels. Experiments at atmospheric and elevated pressures*, Chem.Eng.Sci, Vol 42, No.5, 1987.

Versteeg, G.F, *Mass transfer and chemical reaction kinetics in acid gas treating process*, Ph:D Thesis Univerity of Twente, 1986.

Baleix, A., Caussade, B., George, J., *Study of molecular diffusivity influence on mass transfer rate at water-atmosphere interface*, 1995 ?.

Krupiczka, R., Rotgel, A., *An experimental study of diffusional crosseffects in multicomponent mass transfer*, Chem.Eng.Sci, Vol 52, No.6, 1997.

Astarita, G., Savage, D.W, Bisio, B., *Gas treating with chemical solvents*, Chap.13, 1983.

Kerst, A., *Fluiddynamik und flüssigkeitsseitiger Stofftransport bei hohen Drücken*, Ph.D Thesis Universität Karlsruhe, VDI Fortschritt Berichte, Reihe 3, 1998.