### Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University 35:3 (2020) 1333-1352



Mühendislik Mimarlık Fakültesi Dergisi Journal of The Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University

Elektronik / Online ISSN: 1304 - 4915 Basılı / Printed ISSN: 1300 - 1884

# Liquid and gas phase mass transfer coefficients and interfacial area in a column equipped with structured packing

Gizem Genç Çelikçi\*<sup>®</sup>, Duygu Uysal Zıraman<sup>®</sup>, Bekir Zühtü Uysal<sup>®</sup> Department of Chemical Engineering, Gazi University, Ankara, 06570, Turkey

#### Highlights:

### **Graphical/Tabular Abstract**

Structured packing column design and manufacturing
Hydrodynamic characterization of

characterization of structured packing column

 Mass transfer characterization of structured packing column

### **Keywords:**

- Structured packing characterization
- Pressure drop
- Mass transfer coefficients
- Enhancement factor
- Effective interfacial area

### Article Info:

Research Article Received: 31.10.2019 Accepted: 31.01.2020

### DOI:

10.17341/gazimmfd.640984

### **Correspondence:**

Author: Gizem Genç Çelikçi e-mail: gizemmgenc@gmail.com phone: +90 312 582 3552 This study involves characterization studies of a new structured packed column, designed and manufactured by our own facilities, including hydrodynamics and mass transfer coefficients. Firstly, the maximum and minimum limits of the gas and liquid velocities that can be employed in the column were determined by specifying the loading and flooding points through pressure drop measurements. The individual volumetric physical mass transfer coefficients of the liquid and gas side were obtained experimentally in these ranges. Overall physical volumetric mass transfer coefficients were estimated for CO<sub>2</sub>-water system according to the two-resistance theory. The experiments were also performed for chemical absorption of CO<sub>2</sub> into NaOH solution system. Overall chemical volumetric mass transfer coefficients, Hatta number, enhancement factor and the reaction regime were determined. Finally, the effective interfacial area values were also determined at different gas and liquid velocities.



Figure A. Geometry of structured packings and gas side chemical overall volumetric mass transfer coefficients at different gas and liquid velocities

**Purpose:** The primary aim was to provide effective carbon dioxide removal from gas streams. A new structured packed column was designed and manufactured with our own capabilities for this purpose and its basic characteristics for hydrodynamics and mass transfer were investigated.

### **Theory and Methods:**

Hydrodynamic studies included the dry and wet pressure drop experiments.  $O_2$  desorption from water and  $SO_2$  absorption into NaOH solution methods were used for determining the liquid and gas side individual physical volumetric mass transfer coefficient experiments, respectively. Chemical absorption of  $CO_2$  into NaOH solution was studied for determining the overall chemical volumetric mass transfer coefficients, reaction regimes and effective interfacial area at different gas and liquid velocities.

### **Results:**

Operable ranges for liquid and gas velocities were identified as 0.002-0.0047 [m/s] and 0.07-0.68 [m/s], respectively. Individual and overall mass transfer coefficients and effective interfacial area values were obtained experimentally. Absorption of CO<sub>2</sub> into NaOH solution resulted in the fast pseudo first-order regime which was verified by checking the criteria of E $\cong$ Ha and Ha>2. Also, the infinite enhancement factor was calculated using both the film and the penetration mass transfer theories. An effective area as high as 225 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> was achieved.

### **Conclusion:**

Hydrodynamic and mass transfer characterization of a new genuine structured packing were made successfully. It was concluded that an absorption column with such a packing can be used effectively for carbon dioxide capturing at the source of emission.

### Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University 35:3 (2020) 1333-1352 Mühendislik Mimarlık Fakültesi Dergisi Elektronik / Online ISSN: 1304 - 4915 Basılı / Printed ISSN: 1300 - 1884 Journal of The Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University

### Yapılı dolgulu kolonda sıvı ve gaz fazı kütle transfer katsayıları ve ara yüzey alanı

Gizem Genç Çelikçi\*<sup>(D)</sup>, Duygu Uysal Zıraman<sup>(D)</sup>, Bekir Zühtü Uysal<sup>(D)</sup> Gazi Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Ankara, 06570, Türkiye

### ÖNEÇIKANLAR

- Yapılı dolgulu kolon tasarımı ve üretimi
- Yapılı dolgulu kolonun hidrodinamik karakterizasyonu
- Yapılı dolgulu kolonun kütle transferi karakterizasyonu

Makale Bilgileri	ÖZET
Araştırma Makalesi	Son yıllarda karbondioksitin (CO <sub>2</sub> ) giderimi ve yapılı dolgulu kolonlarla ilgili çalışmalar ön plana
Geliş: 31.10.2019	çıkmaktadır. Bu doğrultuda yapılan bu çalışmada, kendi imkanlarımızla tasarlanarak imal edilen yeni özgün
Kabul: 31.01.2020	bir yapılı dolgulu kolonunun hidrodinamik ve kütle transfer katsayılarının karakterizasyonu yer almaktadır.
	İlk olarak basınç düşüşü ölçümleri ile kolonun yükleme ve taşma noktaları tespit edilmiş ve kolona
DOI:	beslenecek sıvı ve gaz akış hızlarının limitleri saptanmıştır. Sıvı ve gaz akış hızları için bu aralıklar sırasıyla
10.17341/gazimmfd.640984	0,002-0,0047 [m/s] ve 0,07-0,68 [m/s] olarak belirlenmiştir. Belirlenen gaz ve sıvı akış hızlarında, sıvı faz ve
Anahtar Kelimeler:	gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları $(k_L^0 a ve k_c^0 a)$ deneysel olarak elde edilmiştir. Daha sonra iki direnc teorisi ile CO <sub>2</sub> -su sistemi icin gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer katsayısı
Yapılı dolgu	(K <sup>0</sup> a) hesaplanmistir Avrica belirlenen oz ve svu akis hizi aralıklarında CO <sub>2</sub> ve sodyum hidroksit cözeltisi
karakterizasyonu, basınç	sistemi ile denevler vanlarak gaz faz hacim bazlı kimvasal toplu kütle transfer katsavıları (K.a). Hatta
düşüşü,	savilari (Ha) ve artis faktörleri (E) hesanlanmistir. Bu kimvasal sistem icin elde edilen denevsel bulgular.
kütle transfer katsayıları,	hızlı sözde birinci dereceden reaksiyon reiiminin kabul edilebilir olduğunu göstermiştir. Son olarak farklı
artış faktörü,	gaz ve sıvı akıs hızlarında dolguların etkin ara yüzey alanı (a.,) değerleri de belirlenmistir.
etkin ara yüzey alanı	c , c , etkin c ,

### Liquid and gas phase mass transfer coefficients and interfacial area in a column equipped with structured packing

HIGHLIGHTS

DOI:

- Design and manufacturing of a column with structured packing
- Hydrodynamic characterization of structured packing column
- Mass transfer characterization of structured packing column

Article Info ABSTRACT Research Article Studies on CO2 removal and structured packed columns have been prominent in recent years. This study, as Received: 31.10.2019 the first stage on this subject, involves characterization studies including hydrodynamics and mass transfer Accepted: 31.01.2020 coefficients of a new genuine structured packed column designed and manufactured by our own facilities, which can be used for this purpose. Firstly, the maximum and minimum limits of the gas and liquid velocities that can be employed in the column were determined by specifying the loading and flooding points through pressure drop measurements. Accordingly, the superficial velocity ranges for liquid and gas were identified 10.17341/gazimmfd.640984 as 0.002-0.0047 [m/s] and 0.07-0.68 [m/s], respectively. The individual volumetric physical mass transfer Keywords: coefficients of the liquid side  $(k_L^0 a)$  and gas side  $(k_c^0 a)$  were obtained experimentally in these ranges. Overall Structured packing volumetric physical mass transfer coefficients (K<sub>c</sub><sup>0</sup>a) were calculated for CO<sub>2</sub>-water system according to the characterization two-resistance theory. The experiments were also performed with CO2-NaOH system, and overall volumetric pressure drop chemical mass transfer coefficients (Kca), Hatta number (Ha) and enhancement factor (E) were determined. mass transfer coefficients The experimental findings indicated that the fast pseudo-first order reaction regime was acceptable for this enhancement factor chemical absorption. Finally, the effective interfacial area (a<sub>eff</sub>) values were also determined at different gas effective interfacial area and liquid velocities.

<sup>\*</sup>Sorumlu Yazar/Corresponding Author: gizemmgenc@gmail.com, duysal@gazi.edu.tr, bzuysal@gazi.edu.tr / Tel: +90 312 582 3552 1334

### 1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Elektrik, ulaşım ve sanayileşme gibi modern yaşam ihtiyaçları sebebiyle fosil yakıtların tüketimi kaçınılmaz olarak devam etmektedir [1, 2]. Bu faaliyetler sonucunda küresel ısınmaya sebep olan sera gazları çevreye salınmaktadır. Bu emisyonlar arasında CO2 önemli bir etkiye ve paya sahiptir [3-5]. Hükümetler Arası İklim Değişikliği Paneli (IPCC) Özel Raporu'na göre, küresel ısınmayı 2°C'nin hemen altına sınırlamak için CO<sub>2</sub> emisyonunun 2030 yılına kadar %25 ve 2070 yılına kadar %100 azaltılması gerektiği belirtilmiştir [4]. CO2 hem noktasal kaynaklardan hem de atmosferden uzaklaştırılmalıdır. Bu amaç doğrultusunda emisyonların etkilerini sınırlandırmak için karbon yakalama-depolama ve kullanımı ile ilgili çeşitli teknolojiler geliştirilmiştir [6-8]. Bu teknolojilerle CO2'in ardından yöntemlerle yakalanmasının çeşitli yararlanılmasını çalışmalar henüz içeren gelişme aşamasındadır [9]. CO2'in tutulması konusunda bir çözücüye absorpsiyonu en elverişli yöntemlerden biri olarak görünmektedir. Ancak üstesinden gelinmesi gereken bazı iyileştirmeler gerekmektedir [6, 7, 9-12]. Bu iyileştirmeler ekipmanındaki tasarımlar veya temas geometrik modifikasyonlarla veya çözelti seçimleri ile yapılabilmektedir. En sık tercih edilen gaz-sıvı temas ekipmanlarından biri dolgulu kolonlardır [6, 13]. Absorpsiyon prosesinde, performansı arttırmak ve yüksek kütle transfer hızlarına ulaşabilmek için mümkün olan en yüksek miktarda sıvı-gaz ara yüzey alanının sağlanması istenir. Ayrıca işletme maliyetlerini azaltmak için düşük basınç düşüşünün olması da tercih edilir [14]. Bu nedenle, birim dolgu hacminde en yüksek temas alanını sağlayan dolgu malzemesinin şeklinin iyileştirilmesi ve düşük basınç düşüşü, absorpsiyon kolonlarındaki verimliliği artırmak için devam eden araştırma konularıdır. Son zamanlarda düşük basınç düşüşleri ve yüksek ara yüzey alanı özellikleri nedeniyle yapılı dolgular büyük ilgi görmektedir [15-20]. Genel olarak, yapılı dolgular metal, plastik veya seramik, delikli ya da deliksiz, kıvrımlı tabakaların ardışık olarak dizilimini içeren malzemelerdir. Absorpsiyon, distilasyon,

dehidrasyon ve ekstraksiyon gibi birçok uygulamada kullanılmaktadır [21-25]. Günümüzde hidrolik sınırlamaları ortadan kaldırmak ve verimli kütle transfer hızları elde etmek için çeşitli geometrik modifikasyonlara ve tiplere sahip (örneğin levha, tel örgü, ızgara tipi) birçok ticari ürün mevcuttur [21-25]. Bunlara örnek olarak Mellapak (Sulzer Brothers), Flexipac (KochGlitsch Engineering Co.), Gempak (Glitsch Inc.), Montz Pak (Julius Montz), Munters (Munters Corp.), Rombopak (Kuhni Ltd.) verilebilir.

Yapılan bu çalışmadaki temel amaç, literatürdeki çekiciliğinin günden güne artması nedeniyle bir yapılı dolgulu kolona beslenen gaz akımından karbondioksitin etkin olarak giderilmesidir. Bu kapsamda ilk aşamada yeni bir yapılı dolgulu kolon tasarımı ve imalatı yapılarak, kolonun hidrodinamik ve kütle transferi ile ilgili temel özellikleri araştırılmıştır.

### 2. YAPILI DOLGU GEOMETRİSİ (structured packing geometry)

Yapılı dolgu elemanları, oluklu levhaların paralel düzlemde birbiri ardına sıralanmasıyla oluşturulur [10, 13, 21]. Bu düzen sayesinde bitişik tabakaların kıvrımları zıt yönlerde eğimlidir. Şekil 1a'da görüldüğü gibi yapılı dolguların kıvrımları, yatay düzleme göre belirli bir açıda ( $\alpha$ ) yönlendirilir. Kıvrım açısının artması, gaz ve sıvı ara yüzeyindeki türbülansı dolayısıyla gaz-sıvı etkileşimini azaltabildiği için genel olarak 30 - 60° aralığında olması istenir [17]. Wang vd.'nin [26] yaptığı çalışmaya göre kıvrım açısı arttıkça, sıvı tarafı ve gaz tarafı kütle transfer katsayıları azalmıştır.

Diğer geometrik parametreler, levha kıvrımları arasındaki oluk açısı ( $\beta$ ), kıvrım yüksekliği (h) ve oluğu oluşturan üçgenin kenar uzunluklarıdır (a, b, c) (Şekil 1b). Oluk açısı boyunca, zıt yönlerde eğimlenen sıvı ve gazın aktığı açık kanallar oluşur. Bu tür sistemli bir düzen ayrıca sıvının ince tabakalar veya küçük derecikler halinde, dolgu tabakalarının yüzeyi üzerinde yanal olarak yayılmasına olanak



Şekil 1. Yapılı dolguların geometrik özellikleri a) levhaların yatay düzlemle oluşturduğu açı b) oluk açısı ve uzunlukları c) dolguların dikey dizilimi (Geometry properties of structured packings a) angle of the plates with the horizontal plane b) corrugation angle and lengths c) vertical arrangement of packings )

sağlamaktadır [20]. Böylece nispeten düşük bir basınç düşüşü ile etkin bir gaz-sıvı etkileşimi oluşur.

Ayrıca yapılı dolgu elemanlarının üst üste diziliminin etkin ara yüzey performansı üzerine etkisi ile ilgili çalışmalar da yapılmıştır [10, 17, 20]. Aynı gaz ve sıvı akış hızlarında ve 90° dönüş düzeninde (Şekil 1c) üst üste dizilen dolgu elemanları ile elde edilen etkin kütle transfer alanının, 0° dönüş düzeniyle (eş yönlü üst üste dizilim) elde edilenden %30 daha yüksek olduğu sonucuna varılmıştır [10]. Dolgular 90° dönüş düzenindeyken sıvının oluklar boyunca yalnızca yan yana değil, aynı zamanda kolonun içinde önden arkaya da yayılmasına olanak sağlanmıştır. Böylece ıslanan dolgu yüzey alanı da artmıştır [20]. Aroonwilas vd. [20], dolguların dönüş düzeninin kütle transfer verimi üzerindeki etkisini ölçmek amacıyla farklı dönüş düzeni ile CO2'in yapılı dolgulu kolondaki absorplanma verimini incelemiştir. En iyi performans 90° dönüş düzeninde, en kötü performans ise 0° dönüş düzeninde elde edilmiştir. Bu çalışmada da 90° dönüş düzeni dikkate alınmış olup, tasarlanan ve imal edilen yapılı dolguların özellikleri Tablo 1'de yer almaktadır.

**Tablo 1.** Yapılı dolguların özellikleri (Properties of stuctured packings)

Parametre	Değer
Yatay düzlemle oluşturulan kıvrım	600
açısı (α)	00
Oluk açısı (β)	90°
Oluk yüksekliği (h), [m]	0,00714
Dolgu yüksekliği (H), [m]	0,15
Dolgu genişliği, [m]	0,08
Oluğu oluşturan üçgenin kenar	0,0093; 0,0123;
uzunlukları (a, b, c), [m]	0,0154
Dolgu spesifik yüzey alanı (a <sub>p</sub> )	272 805
$[m^2/m^3]$	572,895
Levha kalınlığı, [m]	0,0003
Boşluk kesri (ε), [-]	0,94
Eşdeğer çap, d <sub>e</sub> [m]	0,010

Tablo 1'de yer alan eşdeğer çap, literatürde sıklıkla kullanılan iki farklı yöntemle hesaplanmıştır. İlk yöntem Eş. 1'deki gibi ifade edilebilir:

$$d_e = \frac{4\varepsilon}{a_p} \tag{1}$$

Ayrıca literatürde yer alan bir diğer hesaplama yöntemi Eş. 2'de yer almaktadır.

$$d_e = \frac{2 \cdot h \cdot c}{(a+b)}$$
(2)

Her iki yöntem de eşdeğer çap olarak 0,01 [m] vermiştir.

Dolguların spesifik yüzey alanı, SolidWorks programı kullanılarak hesaplanmıştır. Şekil 2'de yapılı dolguların SolidWorks programı kullanılarak tasarlanan üç boyutlu çizimi ve imal edilen halinin fotoğrafları yer almaktadır.

### **3. YAPILI DOLGULU KOLONUN KARAKTERİZASYONU** (CHARACTERIZATION OF STRUCTURED PACKED COLUMN)

Yapılı dolgulu kolonun karakterizasyonu iki bölüm altında gruplandırılmıştır. İlk grup, kolondaki dolgular boyunca meydana gelen kuru ve ıslak basınç düşüşü deneylerini içeren hidrodinamik çalışmalar, ikinci grup ise kütle transferi çalışmalarıdır. Kütle transfer çalışmaları kapsamında, farklı gaz ve sıvı akış hızlarında oksijene doyurulmuş sudan havaya oksijen desorpsiyonu metodu ve kükürt dioksitin (SO<sub>2</sub>) sodyum hidroksit (NaOH) çözeltisine absorpsiyonu metodu ile sırasıyla sıvı ve gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları deneysel olarak belirlenmiştir. Daha sonra, CO<sub>2</sub>-su sistemi için iki direnç teorisine göre toplu hacimsel fiziksel kütle transfer katsayıları hesaplanmıştır. Bu sonuçlar, CO<sub>2</sub>-(NaOH)<sub>suda</sub> sistemi için deneysel olarak elde edilen toplu hacimsel kimyasal kütle transfer katsayıları ile karşılaştırılmıştır. Artış



**Şekil 2.** Yapılı dolguların SolidWorks programı kullanılarak tasarlanan üç boyutlu çizimi ve imal edilen halinin fotoğrafları (Images of the structured packings in three-dimensional drawing using the SolidWorks program and manufactured photograph)

faktörü (E) ve Hatta sayısının (Ha) değerlendirilmesiyle kimyasal absorpsiyon için reaksiyon rejimi belirlenmiştir. Ayrıca farklı gaz ve sıvı hızlarında kolondaki etkin ara yüzey alanı (a<sub>etkin</sub>) hesaplanmıştır.

### 3.1. Hidrodinamik Çalışmalar (Hydrodynamic Studies)

Gaz ve sıvının dağılımları sebebiyle dolgulu kolondaki dolgu yüksekliği boyunca meydana gelen basınç düşüşü, doğrudan kolon verimini etkileyen parametrelerden biridir [27, 28]. Basınç düşüşü aynı zamanda mekanik enerji kaybının bir ölçüsüdür [29, 30]. Olujić vd. [31], ıslak kolonlardaki basınç düşüşünün temel sebebinin dolgu yüzeyini kaplayan sıvı film üzerindeki gaz ve sıvı etkileşimleri ile gaz geçişleri esnasında gaz yönündeki hızlı değişimler olduğunu vurgulamıştır [29, 31]. Sıvı faz, dolgu elemanlarının yüzeyinde filmler veya damlacıklar olarak aşağıya doğru akarken, dolgu yüzeyinde tutulur ve daha fazla yer kaplar. Sıvı tutulması, gaz fazında daha yüksek sürtünme kayıplarına yol açar [32]. Bu nedenle kuru basınç düşüşü ıslak basınç düşüşünden daha düşüktür. Kütle transfer çalışmaları öncesi kolondaki basınç düşüşünün belirlenmesi oldukça önemlidir. Ayrıca hidrodinamik çalışmalar sayesinde kolonun aşırı sıvı yüklemesi ve taşma olmadan çalışması için sıvı ve gaz akış hızı aralıkları belirlenebilir. Basınç düşüşü deneylerinde, farklı gaz ve sıvı akış hızlarında kolonda meydana gelen basınç değişimleri bir manometre vasıtasıyla ölçülmüştür.

### 3.2. Kütle Transferi Çalışmaları (Mass Transfer Studies)

# 3.2.1. Sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı

(Liquid side based physical volumetric individual mass transfer coefficient)

Desorpsiyon işlemi, sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısının ( $k_L^0$ a) belirlenmesi için literatürde en çok tercih edilen yöntemlerdendir. Bu amac doğrultusunda hava/oksijen-su, hava/CO2-su veya hava/toluen-su gibi çeşitli sistemler tercih edilebilir [15, 16, 18, 33]. Burada, sıvı tarafındaki çözünmüş olan gazların düşük çözünürlüğü sebebiyle kütle transfer direnci yalnızca sıvı tarafından kontrol edilir. Bu çalışmadaki deneylerde doyurulmuş sudan havaya oksijene oksijen  $(O_2)$ desorpsiyonu metodundan yararlanılmıştır. Deneysel prosedüre göre oksijene doyurulan distile su kolonun üst tarafından sıvı faz olarak beslenirken, kolonun altından gaz fazı olarak hava beslenmiştir. Deneyler esnasında bir oksijen metre (YSI model 50B Dissolved Oxygen Meter) ile kolona giren ve çıkan suyun oksijen konsantrasyonu ölçülmüştür. Yapılan deneylerden elde edilen verilerden yararlanılarak sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları Eş. 3'e göre hesaplanabilir.

$$\left(k_{L}^{0}a\right)_{O_{2}} = \frac{u_{L}}{H} \ln\left(\frac{x_{O_{2},1} - x_{O_{2},i}}{x_{O_{2},2} - x_{O_{2},i}}\right)$$
(3)

Burada  $(k_L^0 a)_{O_2}$  [1/s], oksijen için sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı, u<sub>L</sub> [m/s] yüzeysel

sıvı akış hızı, H [m] dolgu yüksekliği,  $x_{O_2,1}$  ve  $x_{O_2,2}$  [-] sırasıyla kolonun girişinde ve çıkışında sıvı fazdaki oksijenin mol kesirleri,  $x_{O_2,i}$  gaz tarafi ile dengede olan sıvı tarafındaki oksijenin ara yüzey bileşimidir. Bu değer, deneyin yapıldığı sıcaklık için sabittir ve toplam basınca göre düzeltilmesi gerekir [23, 34]. Ayrıca O<sub>2</sub> için deneysel olarak elde edilen sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı, CO<sub>2</sub> için hem penetrasyon teorisi hem de yüzey yenileme teorisine dayanan Eş. 4'ten yararlanılarak hesaplanabilir [27].

$$\left(k_{L}^{0}a\right)_{CO_{2}} = \left(k_{L}^{0}a\right)_{O_{2}} \sqrt{\left(\frac{D_{CO_{2}}-H_{2}O}}{D_{O_{2}}-H_{2}O}\right)}$$
(4)

Eş. 4'te yer alan karbon dioksitin su içerisindeki difüzyon katsayısı, Versteeg, ve van Swaaij'in geliştirdiği korelasyon ile Eş. 5'teki gibi hesaplanabilir [35]. Burada sıcaklık [K] birimindedir.

$$D_{\rm CO_2-H_2O} = 2,35 \times 10^{-6} e^{-2119/T}$$
(5)

Çalışma sıcaklığı (285 K) için difüzyon katsayısı ( $D_{CO_2-H_2O}$ ) değeri 1,387×10<sup>-9</sup> [m<sup>2</sup>/s] olarak hesaplanmıştır.

Eş. 4'te yer alan oksijenin su içerisindeki difüzyon katsayısının hesabı için Eş. 6'da yer alan Wilke Chang denklemi kullanılmıştır [27].

$$D_{A-B} = 1.17 \times 10^{-13} \frac{\sqrt{\Psi_B M_B T}}{\mu V_A^{0.6}}$$
(6)

M<sub>B</sub> : Çözücünün molekül ağırlığı, (su için geçerli olan 18,015 [kg/kmol])

T : sıcaklık [285 K]

- V<sub>A</sub> : Çözünen maddenin normal kaynama sıcaklığındaki molar hacmi (O<sub>2</sub> için 0,0148 [m<sup>3</sup>/kmol])
- $\mu$ : Çözücünün viskozitesi, (Dortmund Data Bank (DDB)'ta sunulan Vogel denklemine göre hesaplanmıştır (1,230 [cp]).

 $\Psi_{\rm B}$  : Çözücü B için birleşme parametresi (2,6)

Yukarıdaki parametrelerin Eş. 6'da yerine konması ile oksijenin su içerisindeki difüzyon katsayısı değeri  $(D_{O_2-H_2O})$ , 2,323×10<sup>-9</sup> [m<sup>2</sup>/s] olarak elde edilmiştir.

### 3.2.2. Gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı

(Gas side based physical volumetric individual mass transfer coefficient)

Literatürde gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısının ( $k_c^0 a$ ) belirlenmesi için sıkça kullanılan birkaç sistem vardır. Bunlara örnek olarak, kükürt dioksit (SO<sub>2</sub>)/hava-(NaOH)<sub>suda</sub> veya amonyak (NH<sub>3</sub>)/hava-(NaOH)<sub>suda</sub> gibi absorpsiyon sistemleri verilebilir [18, 33, 36, 37]. Sıvı fazdaki anlık reaksiyon sebebiyle gaz fazından sıvı fazına aktarılan bileşenin ara yüzeydeki mol kesri ihmal

edilebilir [18, 36, 37]. Bu nedenle kütle transfer hızı, gaz tarafı kütle transfer direnci tarafından kontrol edilir [19, 38, 39]. Bu çalışmada gaz fazı olarak SO<sub>2</sub>/hava karışımı, sıvı faz olarak ise NaOH çözeltisi (ortalama pH değeri 12,6) kullanılmıştır. Gaz karışımındaki SO<sub>2</sub> konsantrasyonu bir baca gazı analiz cihazı (Madur GA-21plus portatif gaz analiz cihazı) kullanılarak analiz edilmiştir. Yapılan deneylerden elde edilen verilerden yararlanılarak gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları Eş. 7'ye göre hesaplanabilir.

$$\left(k_{c}^{0}a\right)_{SO_{2}} = \frac{u_{G}}{H} \ln\left(\frac{y_{SO_{2},2}}{y_{SO_{2},1}}\right)$$
(7)

Burada  $(k_c^0 a)_{SO_2}$  [1/s], SO<sub>2</sub> için gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı, u<sub>G</sub> [m/s], yüzeysel gaz akış hızı, H [m] dolgu yüksekliği, y<sub>SO<sub>2</sub>,2</sub> ve y<sub>SO<sub>2</sub>,1 [-] sırasıyla kolon girişinde ve çıkışında gaz fazındaki SO<sub>2</sub>'nin mol kesirleridir. Eş. 4'e benzer şekilde, CO<sub>2</sub> için gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı Eş. 8 ile hesaplanabilir.</sub>

$$(k_{c}^{0}a)_{CO_{2}} = (k_{c}^{0}a)_{SO_{2}} \sqrt{\left(\frac{D_{CO_{2}-gaz}}{D_{SO_{2}-gaz}}\right)}$$
 (8)

Eş. 8'de yer alan kükürt dioksitin 285 K sıcaklık ve 0,9 atm basıncındaki hava içerisindeki difüzyon katsayısı, gazların kinetik teorisine dayanan ve Eş. 9'da yer alan Chapman-Enskog eşitliğinden yararlanılarak hesaplanmıştır [27]. Ayrıca Eş. 9'da yer alan boyutsuz çarpışma integrali ( $\Omega_{D,AB}$ ), sıcaklığın bir fonksiyonu olup enerji parametrelerine ( $\varepsilon/\kappa$ ) dayanılarak hesaplanabilir [27].

$$D_{SO_2-hava} = 1,8583 \times 10^{-27} \frac{\sqrt{T^3 \left(\frac{1}{M_SO_2} + \frac{1}{M_{hava}}\right)}}{P_T \sigma_{SO_2-hava}^2 \Omega_{D,SO_2-hava}}$$
(9)

 $\begin{array}{ll} (\epsilon/\kappa)_{SO_2} &= 335,4 \, [\mathrm{K}] \\ \sigma_{SO_2} &= 4,112 \times 10^{-10} \, [\mathrm{m}] \\ (\epsilon/\kappa)_{hava} &= 78,6 \, [\mathrm{K}] \\ \sigma_{hava} &= 3,711 \times 10^{-10} \, [\mathrm{m}] \\ (\epsilon/\kappa)_{SO_2-hava} &= 162,365 \\ (\kappa T/\epsilon)_{SO_2-hava} &= 1,75 \\ \Omega_{\mathrm{D},\mathrm{SO}_2-hava} &= 1,128 \end{array}$ 

Yukarıda yer alan parametrelerin, Eş. 9'da yerine yazılmasıyla SO<sub>2</sub>'nin hava içerisindeki difüzyon katsayısı  $(D_{SO_2-hava})$  1,289×10<sup>-5</sup> [m<sup>2</sup>/s] olarak hesaplanmıştır.

Yukarıdaki hesaplamaya benzer şekilde Eş. 9'da verilen Chapman-Enskog denklemi ve aşağıdaki parametreler kullanılarak CO<sub>2</sub>'in 285 K sıcaklık ve 0,9 atm basınçta havadaki difüzyon katsayısı ( $D_{CO_2-hava}$ ) 1,582×10<sup>-5</sup> [m<sup>2</sup>/s] olarak hesaplanmıştır [27].

$(\varepsilon/\kappa)_{CO_2}$	= 195,2 [K]
$\sigma_{CO_2}$	=3,941×10 <sup>-10</sup> [m]
$(\varepsilon/\kappa)_{hava}$	=78,6 [K]
$\sigma_{hava}$	$=3,711\times10^{-10}$ [m]
$(\varepsilon/\kappa)_{CO_2-hava}$	=123,866
$(\kappa T/\epsilon)_{CO_2-hava}$	=2,30
$\Omega_{\mathrm{D},CO_2-hava}$	=1,026

Hesaplanan difüzyon katsayısı değerlerinin Eş. 8'de yerine yazılmasıyla kütle transfer katsayıları elde edilmiştir.

3.2.3. Gaz faz hacim bazlı toplu kütle transfer katsayısı (Gas side based volumetric\_overall mass transfer coefficient)

3.2.3.1. Gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer katsayısı

(Gas side based physical volumetric overall mass transfer coefficient)

Lewis ve Whitman'ın iki direnç teorisinden yararlanılarak gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer katsayıları Eş. 10'dan yararlanılarak hesaplanabilir [27, 40].

$$\frac{1}{(K_{c}^{0}a)} = \frac{1}{(k_{c}^{0}a)} + \frac{m}{(k_{L}^{0}a)}$$
(10)

Burada,  $\frac{1}{(K_c^{0}a)}$  [s],  $\frac{1}{(k_c^{0}a)}$  [s],  $\frac{m}{(k_L^{0}a)}$  [s], sırasıyla toplam kütle transfer direncini, bireysel gaz tarafi direncini, bireysel sıvı tarafi direncini gösterir. m [-] ise Henry Yasası sabitinden yararlanılarak hesaplanabilen boyutsuz çözünürlüktür. Bu çalışmada Eş. 10'dan yararlanılarak farklı gaz ve sıvı hızlarındaki (K<sub>c</sub><sup>0</sup>a) değerleri CO<sub>2</sub>-su sistemi için hesaplanmıştır.

# 3.2.3.2. Gaz faz hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayısı

(Gas side based chemical volumetric overall mass transfer coefficient)

Bu çalışmada CO<sub>2</sub>'in NaOH çözeltisine (ortalama pH değeri 12,6) absorpsiyonu metodundan yararlanılmıştır. Bu metot, etkin ara yüzey alanın belirlenmesinde temel teşkil eden reaksiyon rejiminin belirlenmesine de olanak sağlamaktadır [10, 18, 19, 26, 33, 37, 39, 41]. Gaz faz hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayılarının (K<sub>c</sub>a) hesaplanmasında Eş. 11'den yararlanılmıştır. Deneysel prosedür, gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayılarının ( $k_c^0$ a) hesaplanmasına benzer şekilde yapılmıştır.

$$(K_{c}a)_{CO_{2}} = \frac{u_{G}}{H} ln \left( \frac{y_{CO_{2},2}}{y_{CO_{2},1}} \right)$$
(11)

Burada  $(K_ca)_{CO_2}$  [1/s], CO<sub>2</sub>'in gaz fazı hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayısı, u<sub>G</sub> [m/s] yüzeysel gaz akış hızı, H [m] dolgu yüksekliği, y<sub>CO<sub>2</sub>,2</sub> ve y<sub>CO<sub>2</sub>,1</sub> [-] sırasıyla kolonun girişinde ve çıkışında gaz fazındaki CO<sub>2</sub>'in mol kesirleridir.

CO<sub>2</sub>-(NaOH)<sub>suda</sub> sisteminin temel reaksiyonları R1-R3'de gösterilmektedir [18, 41, 42].

Çelikçi ve ark. / Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University 35:3 (2020) 1333-1352

$$\text{CO}_2 + \text{OH}^- \xleftarrow{k_{\text{OH}^-}} \text{HCO}_3^-$$
 (R1)

$$HCO_3^+OH^-\leftrightarrow CO_3^{2^-}+H_2O$$
 (R2)

Bu reaksiyonlar göz önünde bulundurularak, genel reaksiyon R3 ile ifade edilebilir.

$$CO_2 + 2OH^- \leftrightarrow CO_3^2 + H_2O$$
 (R3)

Burada hız sınırlayıcı basamak, reaksiyon hız sabiti k<sub>OH</sub><sup>-</sup> [m<sup>3</sup>/kmol-s] ile gösterilen, reaksiyon R1'in ileri reaksiyonudur [18, 42].

İyonik kuvvetin reaksiyon hız sabiti  $(k_{OH})$  üzerindeki etkisinden yola çıkılarak, reaksiyon R1 için Eş. 12'de gösterilen eşitlik geliştirilmiştir [43-45].

$$k_{\rm OH} = k_{\rm OH} \,^{\infty} \exp\left(\beta_{\rm CO_2} I\right) \tag{12}$$

Burada  $k_{OH^-}$ ,  $[m^3/kmol-s]$  biriminden ikinci dereceden reaksiyon hız sabiti,  $k_{OH^-}^{\infty}$ ,  $[m^3/kmol-s]$  biriminden ikinci dereceden sonsuz seyreltik reaksiyon hız sabiti,  $\beta_{CO_2}$ , [-] katkı faktörü, I;  $[kmol/m^3]$  biriminden iyonik şiddettir [43]. Bir çözeltinin iyonik şiddeti (I), bu çözeltideki iyon konsantrasyonunun bir ölçüsüdür. Eş. 13'te yer alan C<sub>i</sub>, iyon konsantrasyonu  $[kmol/m^3]$ ,  $Z_i$ , [-] ise her bir iyonun değerliğidir.

$$I = \frac{1}{2} \sum C_i Z_i^2 \tag{13}$$

İyonik şiddete karşı reaksiyon hız sabitinin grafiğe aktarılması ile izotermal çizgiler elde edilir. İlgili sıcaklıkta bu izotermal çizginin sıfır iyon gücüne ekstrapolasyonu sonsuz seyreltik reaksiyon hız sabitini  $(k_{OH}^{\infty})$  verir [43]. CO<sub>2</sub> ve sodyum hidroksit reaksiyonu için sonsuz seyreltik reaksiyon hız sabiti  $(k_{OH}^{\infty})$  Eş. 14'e göre 2759,098 [m<sup>3</sup>/kmol-s] olarak hesaplanmıştır [43].

$$k_{OH}^{\infty} = 3,27869 \cdot 10^{13} \exp\left(-\frac{54971}{RT}\right)$$
 (14)

Aynı sistem için geliştirilen katkı faktörü ( $\beta_{CO_2}$ ) ise Eş. 15'te verilmektedir [43].

$$\beta_{\rm CO_2} = 2,8300 \cdot 10^{-4} {\rm T}^2 - 1,7367 \cdot 10^{-1} {\rm T} + 26,809 \tag{15}$$

Elektrolit sistemlerinin ideal olmayan davranışları sıcaklıktan etkilendiği için,  $\beta_{CO_2}$  sıcaklığın bir fonksiyonudur ve 285 [K] için bu değer 0,2997 olarak hesaplanmıştır.

Tüm bu değerlerin Eş. 12'de yerine yazılmasıyla R1 ile gösterilen reaksiyonun hız sabiti ( $k_{OH}$ ) 2794,602 [m<sup>3</sup>/kmol-s] olarak hesaplanmıştır.

Bu tür bir kimyasal absorpsiyon sisteminde, toplu kütle transfer katsayısı, artış faktörünün (E) bir fonksiyonu olarak Eş. 16'daki gibi ifade edilebilir [10, 18, 46, 47].

$$\frac{1}{(K_ca)} = \frac{1}{\left(k_c^{0}a\right)} + \frac{m}{E \cdot \left(k_L^{0}a\right)}$$
(16)

Burada E, kimyasal reaksiyonlu sistemlerde reaksiyonun etkilerini belirtmek amacıyla kullanılan artış faktörüdür [48, 49].

Çoğu endüstriyel uygulamalarda gaz tarafı direnci sıvı tarafı direnci yanında ihmal edilebilir. Bu durumda toplu kütle transferi, sıvı tarafı direnci ile kontrol edilir ve Eş. 17'deki gibi yazılabilir.

$$\frac{1}{(K_c a)} \cong \frac{m}{E \cdot \left(k_L^0 a\right)} \tag{17}$$

### 3.2.3.3. Artış faktörü (Enhancement factor)

Sıvı tarafı direnci ile kontrol edilen ve Eş. 18'deki gibi ifade edilen artış faktörü (E), kimyasal reaksiyon ile sıvıya absorplanan gaz miktarının, her hangi bir reaksiyon olmaksızın sıvıya absorplanan gaz miktarına oranıdır [48-50].

$$E \cong \frac{(k_{\rm L})_{\rm CO_2}}{(k_{\rm L}^0)_{\rm CO_2}} \cong \frac{(K_{\rm c} \, a)_{\rm CO_2}}{(K_{\rm c}^0 \, a)_{\rm CO_2}} \tag{18}$$

Artış faktörü (E) [-], Hatta sayısı (Ha) [-] ve sonsuz artış faktörünün ( $E_{\infty}$ ) [-] bir fonksiyonudur [48, 50, 51]. Hatta sayısı ve sonsuz artış faktörü, Eş. 19 ve Eş. 20'de verilen eşitliklerle teorik olarak hesaplanabilir [10, 18, 47, 52, 53].

$$Ha = \frac{\sqrt{k_{OH} \cdot D_{CO_2 - (NaOH)_{suda}} \cdot C_{OH}}}{k_L^0}$$
(19)

Bu eşitlikte Ha [-], Hatta sayısı,  $k_{OH}$  [m<sup>3</sup>/kmol-s], hesaplamaları Eş. 12-15'te verilen ve R1 ile gösterilen reaksiyonun hızı sabiti,  $D_{CO_2-(NaOH)_{suda}}$  [m<sup>2</sup>/s], CO<sub>2</sub>'in sodyum hidroksit çözeltisindeki difüzyon katsayısı, C<sub>OH</sub><sup>-</sup> [kmol/m<sup>3</sup>] hidroksil iyon konsantrasyonu ve  $k_L^0$  [m/s], sıvı tarafı bireysel fiziksel kütle transfer katsayısıdır.

Eş. 19'da yer alan karbon dioksitin sodyum hidroksit çözeltisindeki difüzyon katsayısı ( $D_{CO_2-(NaOH)_{suda}}$ ) Eş. 6'da yer alan Wilke Chang denklemi ve aşağıdaki parametreler kullanılarak 1,446×10<sup>-9</sup> [m<sup>2</sup>/s] olarak hesaplanmıştır [27].

M <sub>B</sub>	: 18,015 [kg/kmol]
Т	: 285 [K]
V <sub>A</sub>	: 0,034 [m <sup>3</sup> /kmol]
μ	:1,2 [cp]
Ψ <sub>B</sub>	: 2,6

Eş. 19'daki hidroksil iyon konsantrasyonu ( $C_{OH}$  [kmol/m<sup>3</sup>]) sistem girişindeki sodyum hidroksit çözeltisi pH değerlerinden (ortalama 12,6) yararlanılarak yaklaşık 0,043 [kmol-m<sup>-3</sup>] olarak hesaplanmıştır.

Sonsuz artış faktörü ise aşağıdaki eşitlikten hesaplanabilir [53].

$$E_{\infty} = 1 + \frac{C_{OH} - D_{OH} - (NaOH)_{suda}}{\nu C_{CO_2, i} D_{CO_2} - (NaOH)_{suda}} \cdot \left(\frac{D_{CO_2} - (NaOH)_{suda}}{D_{OH} - (NaOH)_{suda}}\right)^q$$
(20)

Eş. 20'de yer alan v [-], R1 ile gösterilen reaksiyonda karbondioksit için sitokiyometrik katsayı,  $C_{CO_2,i}$  [kmol/m<sup>3</sup>], ara yüzeydeki karbondioksit konsantrasyonu ve q [-] katsayı olup, film modeli için 0, penetrasyon modeli için 1/2 alınmaktadır [53]. Bu çalışmada her iki modele göre de hesaplama yapılmıştır.

Eş. 20'de yer alan  $C_{OH^-}$  ve  $D_{CO_2-(NaOH)_{suda}}$  parametrelerinin hesaplamalarına yukarıda değinilmiş olup, hidroksil iyonlarının sodyum hidroksit çözeltisindeki difüzyon katsayısı ( $D_{OH^-(NaOH)_{suda}}$ ), Zeebe [54] tarafından önerilen aşağıdaki metotla hesaplanabilmektedir [54, 55].

$$D_{OH^-(NaOH)_{suda}} = D_{0-(NaOH)_{suda}} \left(\frac{T}{T^a} - 1\right)^{\gamma}$$
(21)

Eş. 21'de,  $D_{0-(NaOH)_{suda}}$ , T<sup>a</sup> ve  $\gamma$  değerleri için sırasıyla Zeebe [54] tarafından bu denklem için önerilen 26,65 ×10<sup>-9</sup> [m<sup>2</sup>/s], 216,5 [K] ve 1,658 [-] değerleri kullanılmıştır [54, 55]. Bu doğrultuda, çalışma sıcaklığı 285 [K] için difüzyon katsayısı ( $D_{OH^-}$ .(NaOH)<sub>suda</sub>) 3,954×10<sup>-9</sup> [m<sup>2</sup>/s] olarak hesaplanmıştır.

Eş. 20'de yer alan bir diğer parametre de karbondioksitin ara yüzey konsantrasyonudur ( $C_{CO_2,i}$ ). Atmosferik basınç şartları ve hacimce %15 CO<sub>2</sub> ve hava içeren gaz karışımı göz önüne alındığında, karbon dioksitin kısmi basıncı ( $P_{CO_2}$ ) 13602,88 [Pa] olarak hesaplanmıştır. Bu durumda Eş. 22'ye göre karbondioksitin ara yüzey konsantrasyonu 0,0067 [kmol/m<sup>3</sup>] olarak hesaplanmıştır.

$$C_{CO_2,i} = \frac{P_{CO_2}}{H_{CO_2 \cdot (NaOH)_{suda}}}$$
(22)

Kimyasal reaksiyonlarda, reaksiyon hızına bağlı olarak farklı konsantrasyon profillerinden dolayı farklı reaksiyon rejimleri ortaya çıkar. Birçok yazar, CO<sub>2</sub>'in sulu sodyum hidroksit çözeltisine absorpsiyonu için hızlı sözde birinci derece reaksiyon rejiminin varlığını öne sürmektedir [10, 13, 18, 47, 50, 56].

Hızlı sözde birinci derece reaksiyon rejimi için Hatta sayısının ikiden büyük olması (Ha> 2) ve Hatta sayısı ile artış faktörünün Eş. 23'te gösterildiği gibi yaklaşık olarak eşit olması beklenir [10, 13, 18, 34, 47, 48, 50-52].

$$E = \frac{Ha}{tanh(Ha)} \cong Ha$$
(23)

Artış faktörü değerleri, Eş. 18'den yararlanılarak deneysel olarak hesaplandıktan sonra, Eş. 19 ve Eş. 20 aracılığıyla Hatta sayısı ve sonsuz artış faktörü değerleri hesaplanmıştır. Böylece bu sistemin reaksiyon rejimi analizi yapılmıştır.

### 3.2.3.4. Etkin ara yüzey alanı (Effective interfacial area)

Etkin ara yüzey alanı ( $a_{etkin}$ ), dolgulu kolonlarda CO<sub>2</sub> absorpsiyonunun modellenmesi, tasarlanması ve 1340 ölçeklendirilmesinde önemli bir parametredir. Bu parametre, dolgu yüzeyinin ıslanabilirliği ve kanallar boyunca akan gazın, dolgu yüzeyine yayılarak tutulan sıvıyla olan etkileşimleri ile ilgilidir. Dolguların sağladığı yüzey alanının etkinliğini bilmek ve bunun gaz ve sıvı fazların akış hızlarından nasıl etkilendiğini anlamak önemlidir.

CO<sub>2</sub>'in sodyum hidroksit çözeltisine absorpsiyonu, etkin ara yüzey alanının belirlenmesi için literatürde kanıtlanmış bir yöntemdir [10, 18, 19, 26, 33, 37, 39, 41]. Gaz tarafı direncinin ihmal edilmesi durumunda bu sistem için hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayısı Eş. 17'deki gibi yazılabilmektedir. Bu eşitliğin her iki tarafının a ile çarpılması sonucunda Eş. 24 elde edilir.

$$\frac{1}{(K_c)} \cong \frac{m_{CO_2}}{E \cdot (k_L^{0})}$$
(24)

 $CO_2$ 'in sodyum hidroksit çözeltisindeki hızlı sözde birinci dereceden reaksiyon varsayımı için, Eş 24 ile gösterilen teorik gaz tarafı kimyasal toplu kütle transfer katsayısı ((K<sub>c</sub>)<sub>CO<sub>2</sub></sub>, [m/s]) değeri, CO<sub>2</sub> için Eş. 25'ten yararlanılarak teorik olarak hesaplanabilir [10, 13, 18, 26, 47, 50, 52].

$$(\mathbf{K}_{c})_{CO_{2}} = \frac{\mathbf{E} \cdot \left(\mathbf{k}_{L}^{0}\right)}{m} \approx \frac{\sqrt{\mathbf{k}_{OH} \cdot \mathbf{D}_{CO_{2}} - (\mathrm{NaOH})_{\mathrm{suda}} \cdot \mathbf{C}_{OH}}}{m_{CO_{2}} - (\mathrm{NaOH})_{\mathrm{suda}}}$$
(25)

Eş. 25'te yer alan CO<sub>2</sub>'in sodyum hidroksit çözeltisi içerisindeki boyutsuz çözünürlüğünü ( $m_{CO_2-(NaOH)_{suda}}$ ) hesaplamak için Setschenow tarafından önerilen ve van Krevelen ve Hoftijzer [57] tarafından geliştirilen metot yardımı ile elektrolit çözeltiler için çözünürlük hesaplayabilmek mümkündür [48, 57]. Bu metotta, bir gazın çözelti içerisindeki Henry Yasası sabiti, su içerisindekine oranlanmıştır (Eş. 26) [10, 48, 57].

$$\log\left(\frac{H_{CO_{2}}-(NaOH)_{suda}}{H_{CO_{2}}-H_{2}O}\right) = I \cdot h_{i} = \frac{1}{2} \sum C_{i} Z_{i}^{2} \cdot (h_{+}+h_{-}+h_{g})$$
(26)

Eş. 26'da yer alan I [kmol/m<sup>3</sup>] iyonik kuvvet,  $Z_i$  [-] iyon değerliği,  $C_i$  molarite ve  $h_i$  [m<sup>3</sup>/kmol] pozitif, negatif iyonlar ve gazın spesifik parametreleridir [10, 48, 49]. Tablo 2'de farklı sıcaklıklar için pozitif, negatif iyonlar ve gazın spesifik parametreleri yer almaktadır [10].

**Tablo 2.** CO<sub>2</sub>-sodyum hidroksit sisteminde yer alan pozitif, negatif iyonlar ve gazın spesifik parametreleri (Specific parameters of positive, negative ions and gas for CO<sub>2</sub>-sodium hydroxide system) [10]

$h_+,$ $[m^3/kmol s]$	h_, [m <sup>3</sup> /kmol-s]	T, [ºC]	h <sub>gaz</sub> , [m <sup>3</sup> /kmol.s]
$Na^+ 0,091$	OH <sup>-</sup> 0,066	0,2	-0,007
	$CO_3^{2-}$ 0,066	15	-0,01
		25	-0,019
		40	-0,026
		50	-0,029
		60	-0,016

Ayrıca Eş. 26'da yer alan CO<sub>2</sub>'in su içerisindeki Henry Yasası sabiti ( $H_{CO_2-H_2O}$ ) Eş. 27'de yer alan denkleme göre hesaplanabilir [48, 58, 59]. Burada sıcaklık [K] birimindedir.

$$H_{CO_2-H_2O} = 100 \exp\left(-\frac{2625}{T} + 12,2\right)$$
(27)

Eş. 27'ye göre  $H_{CO_2-H_2O}$  değeri 1987,522 [m<sup>3</sup>-Pa/mol] olarak hesaplanmıştır. Bu hesaplamanın yanı sıra, CO<sub>2</sub>-su sisteminin kullanıldığı fiziksel absorpsiyon deneylerinin hesaplamalarında ihtiyaç duyulan karbon dioksitin su içerisindeki boyutsuz çözünürlük değeri (m<sub>CO2</sub>-H<sub>2</sub>O) de Henry yasası sabiti (H<sub>CO2</sub>-H<sub>2</sub>O), ideal gaz sabiti (R, [m<sup>3</sup>-Pa/mol-K]) ve çalışma sıcaklığı 285 [K] kullanılarak Eş. 28'e göre 1,192 olarak hesaplanmıştır.

$$m_{\rm CO_2-H_2O} = \frac{RT}{H_{\rm CO_2,H_2O}}$$
(28)

Eş. 26'ya göre Tablo 2'deki parametreler kullanılarak CO<sub>2</sub>'in sodyum hidroksit çözeltisi içerisindeki Henry Yasası sabiti ve boyutsuz çözünürlük değerleri sırasıyla 2020,71 [m<sup>3</sup>-Pa/mol] ve 1,173 [-] olarak hesaplanmıştır.

Yapılan parametre hesaplamaları ışığında, 285 K çalışma sıcaklığındaki teorik gaz tarafı kimyasal toplu kütle transfer katsayısı ( $(K_c)_{CO_2}$ ) Eş. 25'e göre 0,000354 [m/s] olarak hesaplanmıştır. Hesaplamada yer alan ilgili parametrelere ait değerler Tablo 3'te verilmektedir.

Etkin ara yüzey alanı ( $a_{etkin}$ , m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>]) değerleri, CO<sub>2</sub>'in sodyum hidroksit çözeltisi içine absorpsiyonu ile deneysel olarak elde edilen ((K<sub>c</sub>a)<sub>CO<sub>2</sub></sub>, [1/s]) ve Eş. 25'e göre teorik olarak hesaplanan (K<sub>c</sub>)<sub>CO<sub>2</sub></sub>, [m/s] değeri kullanılarak Eş. 29'da yer alan eşitlikle hesaplanabilir [10, 13, 18, 47, 50, 56, 60].

$$a_{\text{etkin}} = \frac{(K_{c}a)_{CO_{2}}}{(K_{c})_{CO_{2}}} = \frac{\frac{u_{G}}{H} \ln \left(\frac{y_{CO_{2},2}}{y_{CO_{2},1}}\right) m_{CO_{2}-(NaOH)_{\text{suda}}}}{\sqrt{k_{OH} \cdot D_{CO_{2}-(NaOH)_{\text{suda}} \cdot C_{OH}}}$$
(29)

### 4. DENEYSEL KURULUM VE ÖLÇÜMLER (experimental setup and measurements)

Çalışmada kullanılan deney düzeneğinin şematik kurulumu Şekil 3'te yer almaktadır. Kare bir kesit alanına sahip olan kolonun (3) iç kenar uzunluğu 0,084 [m]'dir. Kolonun içerisinde yer alan dolgulu yatak ve kolonun toplam yüksekliği sırasıyla 0,45 [m] ve 0,75 [m]'dir. Üç adet yapılı dolgu, kolonu ortalayacak şekilde yerleştirilmiştir. Gaz ve sıvı akışlarının kolon köşelerine yan geçişlerini (bypass) önlemek amacıyla yapılı dolguların oluklu kanallarını kapatmayacak şekilde, dolgu üstüne ve her birinin arasına pvc asetat malzemeden 12 mm kalınlığında conta konulmuştur. Sıvı tankındaki (1) sıvı faz, Heidolph Pumpdrive 5106 masterflex pompa (2) kullanılarak kolonun üst kısmından, gaz faz ise kolonun altından ters akışlı olarak kolona beslenmiştir. Hava kaynağı olarak EKO serisi kayışlı tahrikli vidalı hava kompresörü (EKO 18 Model)

**Tablo 3.** Eş. 25'te yer alan parametreler ve teorik gaz faz kimyasal toplu kütle transfer katsayısı (The parameters of Equation 25 and the theoretical gas side based chemical overall mass transfer coefficient)



Şekil 3. Deneysel kurulum: 1. sıvı tankı, 2. masterflex pompa, 3. yapılı dolgulu kolon, 4. gaz karışım odası, 5-6. rotametre, 7. kükürt dioksit tüpü, 8. hava kompresörü (Experimental setup: 1. liquid tank, 2. masterflex pump, 3. structured packed column, 4. gas mixing chamber, 5-6. rotameter, 7. gas cylinder 8. air compressor)

kullanılmıştır (8). Hava ve saf gazların (7) akış hızları rotametrelerle (5-6) ayarlanarak kolona beslenmeden önce bir karıştırma odasında (4) karıştırılmıştır. Kolonun tüm kesit alanı boyunca, homojen sıvı dağılımı sağlamak amacıyla 2 mm çapında 71 delikli bir sıvı dağıtıcısı kullanılmıştır. Tasarım ve imalat aşamalarında, sıvı dağıtıcısının üzerinde yer alan deliklerin her birinin, yapılı dolguların kanal delikleri ile üst üste çakışması dikkate alınmıştır. Hidrodinamik çalışmalarda kolondaki dolgular boyunca oluşan basınç düşüşleri bir manometre ile ölçülmüştür. Deneyler Ankara'da, atmosferik basınçta yapılmıştır. Çalışma sıcaklığı ortalama 285 [K]'dir. Sıvı hızları 0,002-0,0047 [m/s] aralığında, gaz hızları 0,07-0,68 aralığında değiştirilmiştir. [m/s]Hidrodinamik karakterizasyon deneylerinde gaz ve sıvı faz olarak hava ve damıtılmış su kullanılmıştır.

Oksijen desorpsiyonu deneyleri (hava/O<sub>2</sub>-su sistemi) yapılırken, sıvı tankındaki damıtılmış su oksijen tüpünden beslenen saf oksijen ile doygun hale getirilerek sıvı faz olarak kolona beslenmiştir. Gaz fazı olarak hava kullanılmıştır. Çözünmüş O<sub>2</sub> konsantrasyonu, YSI Model 50B çözünmüş oksijen ölçer ile sıvı içinde ölçülmüştür.

SO<sub>2</sub>/hava-(NaOH)<sub>suda</sub> sistemi ile yapılan deneylerde, sıvı faz olarak ortalama 12.6 pH değerinde sodvum hidroksit cözeltisi kullanılmıştır. Deney boyunca numuneler alınarak cözeltinin pH değerleri OAKION Ion 6 Acorn Series pH metre ile okunmustur. Sıvı tarafındaki direncin ihmal edilebilmesini sağlamak için pH 10'un üzerinde tutulmuştur (Danckwerts, 1970). SO<sub>2</sub> gaz konsantrasyonu hacimce %0,1'e avarlanmıştır. Kolona giren ve çıkan gaz fazındaki SO<sub>2</sub> konsantrasyonu, bir gaz kromatografi ile kalibre edilmis olan Madur GA-21Plus portatif gaz analiz cihazı ile ölçülmüştür. CO2/hava-(NaOH)suda sistemi ile yapılan deneylerde de sistemin pH değeri ortalama 12,6 değerindedir. CO2 gaz konsantrasyonu hacimce %15'tir. Kolona giren ve çıkan gaz fazındaki CO<sub>2</sub> konsantrasyonu SRI Instruments marka ve SRI 310C model 6'silika jel kolonlu gaz kromatografi cihazı ile analiz edilmiştir. Taşıyıcı gaz olarak argon kullanılmıştır.

### **5. SONUÇLAR VE TARTIŞMALAR** (RESULTS AND DISCUSSIONS)

### 5.1. Hidrodinamik Çalışmalar (Hydrodynamic Studies)

Hidrodinamik çalışmalar kapsamında, deneylerden elde edilen kuru ve ıslak basınç düşüşü değerleri Şekil 4'te verilmiştir. Burada [mbar/m] biriminden basınç düşüşü değerleri F-faktörün [Pa<sup>0.5</sup>] bir fonksiyonu olarak çizilmiştir. Belirli bir gaz akış hızı için gaz akış faktörü, boş kolonun kesit alanını baz alan yüzeysel gaz hızı ve gaz yoğunluğunun karekökünün çarpımıdır,  $F = u_G (\rho_G / g_c)^{0.5}$ . Sıvı akışı ise genel olarak literatürde kolon kesit alanı başına sıvı akış hızı olan sıvı yükü (B, [m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>-h]) ile ifade edilmiştir.

Yapılan çalışmada basınç ve sıcaklık değerleri atmosferik şartlarda olduğu için burada gaz yükleme faktörü olan F-

faktör değerini esas etkileyen parametre, gaz yoğunluğunun karekökünden ziyade yüzeysel gaz hızının değişimidir. Bu durumda, tanımdan da anlaşılacağı gibi esas olarak Ffaktörün değişimi, yüzeysel gaz hızının değişimini ifade etmektedir. F-faktör, bir tanım olup gaz-sıvı yıkama sistemlerinde özellikle endüstriyel uygulamalarda tercih edilen bir parametredir.



Şekil 4. Farklı sıvı yüklerinde F-faktöre karşı kuru ve ıslak basınç düşüşü değerleri

(Dry and wet pressure drop profiles as function of F-factor at different liquid loads)

Şekil 4 incelendiğinde, sıvı yükü (B) değerleri 7,23 ile 17  $[m^3/m^2-h]$  aralığında değiştikçe, yükleme ve sonuç olarak taşma noktalarının sola doğru kaydığı gözlenmektedir. 17  $[m^3/m^2-h]$  sıvı hızında çalışılmaktayken taşma noktasına 0,30  $[Pa^{0.5}]$  F-faktörde ulaşılmıştır.

Farklı sıvı yükleri için elde edilen bu taşma noktaları, yapılı dolgulu kolonda kullanılabilecek gaz hızları için maksimum limitleri oluşturmaktadır. Düşük gaz hızlarındayken, sıvı akış hızının etkisi daha az belirgindir. Beklendiği gibi sıvı hızı arttıkça, sıvı tutulması da artar ve bu daha yüksek basınç düşüşüne neden olur. Ayrıca sürekli yön değiştiren kanallara sahip olan yapılı dolgulu kolonlarda, geleneksel dolgulu kolonlardan farklı olarak kuru basınç düşüşünün gaz akış hızına daha fazla bağlı olduğu söylenebilir. Literatürde de benzer sonuçlar mevcuttur [29].

Fourati vd. [61], Mellapak 250 X tipi yapılı dolgular kullanarak, yapılı dolgulu kolondaki basınç düşüşünü incelemiştir. Islak koşullardayken, F-faktörü değerlerine bağlı olarak iki ana rejim gözlenmiştir. Düşük F faktörü değerleri aralığındayken, basınç düşüşü değerlerinin sıvı yüküne karşı çok hassas olmadığı ve bu rejimdeyken  $\Delta P/H'a$ karşı F-faktörü eğrileri kuru koşullara benzer eğilim göstermiştir. Fakat yüksek F-faktör aralığındayken sıvı yükü arttıkça,  $\Delta P/H'a$  karşı F faktörü eğrilerinin eğiminin arttığını, buna bağlı olarak basınç düşüşünün sıvı yüküyle arttığını vurgulamıştır. Bu eğilim, bu çalışmada benzer şekilde görülmektedir. F faktörü değeri 0,2 [Pa<sup>0,5</sup>]'den büyük olduğunda, ΔP/H'a karşı F faktörü eğrilerinin eğimi, sıvı hızı arttıkça hızlı bir şekilde artar. Iliuta vd. [62] tarafından yapılan çalışmada da benzer eğilimler görülmektedir. Aynı F-faktörü değerlerinde, sıvı yükü arttıkça basınç düşüşünün arttığı gözlemlenmiştir.

Ayrıca, bu çalışmada F-faktörü 0,07'den 0,7 [Pa<sup>0,5</sup>]'ye doğru artarken, basınç düşüşü değerlerinin 0,07'den 2,8 [mbar/m]'ye değiştiği görülmektedir. Fakat literatürdeki bazı çalışmalarda daha yüksek F-faktörü değerlerindeyken benzer basınç düşüşü aralıkları elde edilmiştir. Örneğin, Fourati vd. [61], gaz F-faktör değeri 1-4 [Pa<sup>0,5</sup>] aralığındayken, 1-10 [mbar/m] basınç düşüşü değerlerine ulaşmış, Iliuta vd. [62], 0,7-3 [Pa<sup>0,5</sup>] gaz F-faktör aralığındayken 1-5 [mbar/m] basınç düşüşü değerlerini elde etmişler, Zakeri vd. [29] ise 1,5-5 [Pa<sup>0,5</sup>] gaz F-faktör aralığındayken, 0-7 [mbar/m] basınç düşüşü değerlerini elde etmislerdir. Benzer sonuçlar Olujic vd. [17]; Olujic vd. [25]; Rocha vd. [63] çalışmalarında da görülmektedir. Literatürde bildirilen bu büyük farklılıklar temel olarak kullanılan farklı tasarım parametreleri ve tasarım modellerinden kaynaklanmaktadır. Ayrıca, dolgu elemanlarının düzenli yapısına rağmen sıvının hidrodinamiğinin çok karmaşık kaçmamalıdır. olduğu gözden Çok düşük SIV1 vüklerindevken dolguların tüm yüzeyi etkin olarak kullanılamavabilir. Öte vandan, cok vüksek sıvı vüklerinde iken sıvı türbülanslı ve kaotik bir tarzda akar, kısmen dolgunun levhalarından ayrılarak kolon yüzeyinde kanallasmalara sebep olabilir [16]. Bu nedenle, Sekil 4'te gösterildiği gibi her dolgu için sıvı ve gaz akısı çalısma aralıklarının belirlenmesi önemlidir.

### 5.2. Kütle Transferi Çalışmaları (Mass Transfer Studies)

## 5.2.1. Sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları

(Liquid side individual physical volumetric mass transfer coefficients)

Farklı gaz ve sıvı hızlarında, oksijen desorpsiyonu metodu ile Eş. 3'ten yararlanılarak deneysel olarak elde edilen sıvı

faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı değerleri Şekil 5'te yer almaktadır. Yaklaşık olarak 0,4 [m/s] 'den daha yüksek gaz hızlarındayken, kolonda aşırı yükleme olmasından dolayı yaklaşık 0,0028 [m/s]'den yüksek sıvı hızları kullanılamamıştır.

Grafik değerlendirildiğinde, sabit gaz hızlarında, sıvı hızı arttıkça sıvı fazdaki türbülansın ve sıvı tutulumunun arttığı, dolayısıyla kütle transfer katsayısının da arttığı anlaşılmaktadır. Ayrıca, sıvı faz, yukarı akışlı gaz fazı nedeniyle dolgu yüzeyine daha da yayılır ve böylece daha fazla gaz-sıvı etkileşimi meydana gelir. Benzer şekilde sabit sıvı hızındayken gaz hızı arttıkça kütle transfer katsayısı da artmıştır. Elde edilen bu değerler için nonlineer regresyon yöntemi ile Eş. 30'da yer alan bir korelasyon geliştirilmiştir. Bu korelasyon için regresyon katsayısının karesi (R<sup>2</sup>) 0,978 olarak hesaplanmıştır.

$$(k_L^o a)_{O_2} = 0.167 u_G u_L^{0.41}$$
 (30)

Oksijen için elde edilen kütle transfer katsayıları Eş. 4'ten yararlanılarak CO<sub>2</sub> için düzenlenmiştir.

$$\frac{\left(k_{L}^{0}a\right)_{CO_{2}}}{\left(k_{L}^{0}a\right)_{O_{2}}} = \sqrt{\left(\frac{D_{CO_{2}}-H_{2}O}}{D_{O_{2}}-H_{2}O}\right)} = 0,77$$
(31)

Eş. 31'de hesaplanan düzeltme faktörü ve geliştirilen korelasyon (Eş. 30) kullanılarak, karbon dioksitin su içerisindeki bireysel fiziksel hacimsel kütle transfer katsayısını veren korelasyon (Eş. 32) elde edilmiştir.

$$(k_L^o a)_{CO_2} = 0,129 u_G u_L^{0,41}$$
 (32)

Literatürde oksijen desorpsiyonu metodu ile yapılan benzer çalışmalar mevcuttur. Laso vd. [16], Mellapak 250 Y ve 500 Y yapılı dolguları kullanarak deneyler yapmış ve  $k_L a \propto B^{\alpha}$ şeklinde korelasyonlar geliştirmişlerdir. Bu korelasyonda B ile ifade edilen [m/s] birimde sıvı hızıdır. Sıvı hızının üssü



u<sub>L</sub>, [m/s]

**Şekil 5**. Oksijen desorpsiyonu metodu ile farklı gaz ve sıvı hızlarında elde edilen sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları

(The liquid side based physical volumetric individual mass transfer coefficients at different gas and liquid velocities by using oxygen desorption method)

olarak  $\alpha$  değerleri iki dolgu tipi için sırasıyla 0,62 ve 0,71 olarak elde edilmiştir. Valenz vd. [19], benzer bir korelasyonla sıvı hızını [m/h] biriminden ifade ederek 250 Y, 350 Y, 452 Y ve 500 Y tipi yapılı dolgular için a değerlerini sırasıyla 0,668; 0,717; 0,735 ve 0,816 olarak elde etmişlerdir. Rejl vd. [64], benzer şekilde 250 Y, 350 Y ve 500 Y tipi yapılı dolgular kullanmış ve aynı sıvı hızı biriminde ([m/h]) bu değerleri sırasıyla 0,557; 0,720 ve 0,821 olarak elde etmiştir. Ayrıca, Rejl vd. [64], diğer literatür çalışmalarına benzer şekilde yalnızca 250 Y tipi yapılı dolgularla yaptığı çalışmalarda α değerlerinin 0,62 ile 0,9 arasında olduğunu bildirmiştir. Rejl vd. [64] çalışmasından elde edilen sıvı tarafı bireysel fiziksel hacimsel kütle transfer katsayısı değerleri, aynı sıvı yükü aralığında bu çalışmayla karşılaştırıldığında elde edilen sonuçların birbiriyle uyumlu olduğu anlaşılmaktadır. Literatür çalışmalarından da görüldüğü gibi, aynı ticari dolgu türleri için bile, farklı çalışmalardan farklı korelasyonlar geliştirilmiştir. Bu çalışmalarda sıvı hızının üssü, mevcut çalışmadan daha yüksek olarak 0,55-0,9 arasında değişmektedir. Öte yandan, Dong vd. [65], de Brito vd. [56] tarafından geliştirilen ampirik bir model rapor etmiş ve k<sub>L</sub> değerinin, sıvı hızının 0,302 üssü ile orantılı olduğunu belirtmiştir. Sıvı hızına bağlı olarak, sıvı tarafı bireysel fiziksel kütle transfer katsayısı için çok çeşitli bulgular mevcuttur.

Bu çalışmada geliştirilen korelasyon açıkça ( $k_L^o a$ ) değerlerinin hem gaz hem de sıvı hızına bağlı olduğunu göstermektedir. Gaz hızının kütle transfer katsayısına etkisi beklenen bir sonuçtur. Çünkü O<sub>2</sub> desorpsiyonunda, aynı sıvı hızında gaz hızı arttıkça, çözünen maddenin sıvı tarafında ara yüzey konsantrasyonu azalır, itici kuvvet artar ve böylece kütle transfer hızı artar. Bu durum, mevcut çalışmada düşük sıvı hızlarında açıkça gözlenmektedir. Fakat yukarıda belirtilen araştırmalarda kullanılan nispeten daha yüksek sıvı hızlarında, sıvı hızının etkisi baskın hale gelir ve gaz hızının etkisi geri planda kalır. De Brito vd. [56] yaptığı çalışmada k<sub>L</sub> değerinin, bu çalışmada olduğu gibi hem sıvı hem de gaz hızı ile arttığı bildirilmiştir. Ayrıca, Kunze vd. [18], deneysel olarak sudan havaya  $CO_2$  desorpsiyonu metodu ile sıvı tarafı bireysel fiziksel hacimsel kütle transfer katsayısını hesaplamıştır. Gaz F-faktör değeri sabitken (0,5 [Pa<sup>0,5</sup>]), sıvı yükü 5 ile 20 [m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>-h] aralığında değiştirilmiştir. Benzer çalışma koşullarında elde ettikleri değerler, bu çalışmada elde edilen değerlerden biraz daha küçük fakat karşılaştırılabilir sonuçlardır.

Şekil 6'da bu çalışma kapsamında elde edilen değerlerin literatürle uyumu incelenmiştir. Rejl vd. [64], bazı literatür verilerini çalışmalarında bir grafikte birleştirmiştir. Oluşturulan grafikte verilen hız aralıkları, interpolasyonla bu çalışmada kullanılan hız aralıklarına uyarlanmıştır. Eş. 32'deki korelasyondan yararlanılarak 10-20 [m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>-h] sıvı yükü aralığı ile 0,345 [m/s] gaz hızının seçildiği bu çalışma verileri de bu grafiğe eklenmiştir.

Bu çalışmada deneysel olarak elde edilen sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayılarının literatür değerlerinin alt aralığında olduğu şekildeki grafikten anlaşılmaktadır. Bu durum, benzer kolonların tasarımında daha muhafazakar bir yaklaşım sergileyeceğinden daha emniyetli bir durumdur.

### 5.2.2. Gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları

(Gas side individual physical volumetric mass transfer coefficients)

Sodyum hidroksit çözeltisine SO<sub>2</sub> absorpsiyonu metodundan ve Eş. 7'den yararlanılarak farklı gaz ve sıvı hızlarında elde edilen gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel transfer katsayılarına ait deney sonuçları Şekil 7'de verilmektedir.

Şekil 7'de yer alan grafik incelendiğinde, gaz fazı hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayılarının, sıvı tarafında olduğu gibi hem gaz hem de sıvı hızından etkilendiği anlaşılmaktadır. Yapılan deneysel çalışma sonucunda elde edilen değerler için nonlineer regresyon yöntemi ile Eş. 33'te yer alan korelasyon geliştirilmiş olup, bu korelasyon için R<sup>2</sup>=0,994'tür.



**Şekil 6.** Sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısının literatürdeki tahmin modelleri ile kıyaslanması (Comparison of the liquid side based physical volumetric individual mass transfer coefficient data with the prediction models in the literature)



**Şekil 7.** SO<sub>2</sub>'nin absorpsiyonu metodu ile farklı gaz ve sıvı hızlarında elde edilen gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları

(The gas side based physical volumetric individual mass transfer coefficients at different gas and liquid velocities by using  $SO_2$  absorption method)

$$(k_c^o a)_{SO_2} = 560 u_G u_L^{0,8626}$$
(33)

Eş. 33'te yer alan korelasyon değeri, Eş. 34'te yer alan düzeltme faktörü ile  $CO_2$  için düzenlenmiştir.

$$\frac{(k_c^0 a)_{CO_2}}{(k_c^0 a)_{SO_2}} = \sqrt{\left(\frac{D_{CO_2 \text{-gaz}}}{D_{SO_2 \text{-gaz}}}\right)} = 1,108$$
(34)

Eş. 34 ile hesaplanan düzeltme faktörü ve Eş. 33 ile geliştirilen korelasyon kullanılarak, karbon dioksit için gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısını veren korelasyon Eş. 35'teki gibi yazılabilir.

$$(k_c^0 a)_{CO_2} = 621 u_G u_L^{0,8626}$$
 (35)

Bu konu ile ilgili literatür değerlendirmesi yapıldığında, Haidl vd. [36], absorpsiyon sıvısı olarak NaOH çözeltisini ve gaz fazı olarak SO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>/He, SO<sub>2</sub>/SF<sub>6</sub> karışımlarını kullanmıştır. Yaptıkları çalışmalarda Mellapak 250 Y tipi yapılı dolgu için gaz hızının üssü 0,64-0,75 ve 250 X tipi yapılı dolgu için 0,53-0,66 arasında elde edilmiştir. Rejl vd., [37], SO<sub>2</sub>'in NaOH çözeltisine absorpsiyonu ile ilgili deneyler yapmıştır. Bu çalışmada olduğu gibi hem gaz hem de sıvı hızına bağlı olarak kca için bir korelasyon geliştirmişlerdir. 250 Y, 350 Y, 452 Y ve 500 Y tipi yapılı dolgular için, korelasyonda yer alan gaz hızının üssü sırasıyla 0,651; 0,643; 0,624 ve 0,746 sıvı hızlarının üssü ise 0,137; 0,164; 0,146 ve 0,278 olarak elde edilmiştir. Ayrıca, Rejl vd. [37], yaptıkları çalışmada diğer yazarlar tarafından deneysel olarak geliştirilen modellerin karşılaştırıldığı bir tablo hazırlamıştır. Gaz hızının üssü, Johnstone ve Pigford [70], Rocha vd. [68] ve Billet ve Schultes'in [71] çalışmalarına göre sırasıyla 0,77; 0,8 ve 0,75 olarak verilmiştir. Ancak, Hanley ve Chen [69] ile Nieuwoudt ve Crause [72] tarafından yapılan çalışmalarda kç°a değerlerinin, bu çalışmaya benzer şekilde gaz hızı ile birinci dereceden orantılı olduğu bildirilmiştir.

Kunze vd. [18] deneysel olarak 0,5 [M] H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> çözeltisi içerisine NH<sub>3</sub>'ın absorpsiyonu deneyleri ile elde ettikleri gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı değerlerini, farklı literatür çalışmalarından derledikleri sonuçlarla birlikte bir grafikte bir araya getirmiştir. Aynı grafiğin hız aralıkları, interpolasyonla bu çalışmadaki hızlar için uyarlanmıştır. Bu çalışmada en yüksek 17 [m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>-h] sıvı yükü ile yapılan deneylerden elde edilen sonuçların eklenmesi ile yeniden oluşturulan grafik Şekil 8'de yer almaktadır.

Bu çalışmada deneysel olarak elde edilen gaz fazı fiziksel bireysel kütle transfer katsayılarının literatür değerlerinin ortalarına düştüğü görülmektedir. Elde edilen eğim, Hanley ve Chen [69] yaptığı çalışma verileri ile oldukça iyi uyuşmaktadır. Bu durum, Eş. 35 ile verilen korelasyonun



Şekil 8. Gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayılarının literatürdeki tahmin modelleri ile kıyaslanması (Comparison of the gas side based physical volumetric individual mass transfer coefficient data with the prediction models in the literature)

istatistiksel olarak belirlenen gaz hızı üssünün uygun olduğunu belirtmektedir.

5.2.3. Gaz faz toplu kütle transfer katsayısı (Gas side based overall mass transfer coefficient)

### 5.2.3.1. Gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer katsayıları

(Gas side based physical volumetric overall mass transfer coefficients)

Farklı gaz ve sıvı hızlarında  $CO_2$ -su sistemi için gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer katsayıları ( $K_c^{0}a$ ) Eş. 10'da verilen iki direnç teorisinden yararlanılarak hesaplanmıştır (Şekil 9). Hesaplamalarda gaz ve sıvı faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları için geliştirilen korelasyonlar ve Eş. 28'de 1,192 olarak hesaplanan  $CO_2$ 'in sudaki boyutsuz çözünürlüğü verilerinden yararlanılmıştır.

Şekil 9 değerlendirildiğinde, gaz ve sıvı hızlarının artmasıyla  $(K_c^0 a)$  değerlerinin de arttığı anlaşılmaktadır.

Gaz ve sıvı tarafı dirençlerinin karşılaştırması yapılarak kütle transfer mekanizmasının hangi taraf kontrollü olduğu belirlenebilir. Eş. 10 ile belirtilen "1/( $k_c^0a$ ), [s]" terimi, gaz tarafı direncini ifade ederken "m/( $k_L^0a$ ), [s]" terimi ise sıvı tarafı direncini ifade etmektedir. Tablo 4'te gaz ve sıvı tarafı dirençlerinin karşılaştırması yer almaktadır.

Tablo 4 incelenirse, sıvı tarafı direnci yanında gaz tarafı direncinin çok küçük olduğu ve ihmal edilebileceği anlaşılmaktadır. Bu durumda kütle transferinin sıvı tarafı direnci ile kontrol edildiği anlaşılmaktadır. Sonuç olarak Eş. 10 yeniden düzenlenerek Eş. 36'daki gibi yazılabilir. Endüstriyel absorpsiyon proseslerinin pek çoğu için de esasında bu durumun geçerli olduğu bilinmektedir.

$$\frac{1}{(K_c a)} \cong \frac{m}{(k_L^0 a)}$$



u <sub>G</sub> , [m/s]	$u_L, [m/s]$	$1/\left(k_{c}^{0}a\right)_{CO_{2}}[s]$	$m/(k_L^0 a)_{CO_2} [s]$
	0,0020	2,17	750,19
0.157	0,0028	1,61	651,28
0,137	0,0038	1,26	578,82
	0,0047	1,04	528,22
	0,0020	1,45	499,56
0.226	0,0028	1,08	433,70
0,230	0,0038	0,84	385,44
	0,0047	0,69	351,75
	0,0020	1,09	374,63
0.215	0,0028	0,81	325,24
0,315	0,0038	0,63	289,05
	0,0047	0,52	263,78
	0,0020	0,87	299,70
0.202	0,0028	0,64	260,19
0,393	0,0038	0,50	231,24
	0,0047	0,42	211,02
	0,0020	0,72	249,75
0.472	0,0028	0,54	216,82
0,472	0,0038	0,42	192,70
	0,0047	0,35	175,85

### 5.2.3.2. Gaz faz hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayıları

(Gas side based chemical volumetric overall mass transfer coefficients)

Sodyum hidroksit çözeltisine CO<sub>2</sub> absorpsiyonu metodu ile farklı gaz ve sıvı hızlarında elde edilen gaz faz hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayılarına (K<sub>c</sub>a) ait deney sonuçları Şekil 10'da yer almaktadır.

Şekil 10 incelendiğinde kimyasal toplu kütle transferi ( $K_ca$ ) değerlerinin, fiziksel toplu kütle transferi ( $K_c^{o}a$ ) değerlerine benzer şekilde hem gaz hem de sıvı hızıyla arttığı görülmektedir. Ancak ( $K_ca$ ) değerlerinin ( $K_c^{o}a$ )



(36)

Şekil 9. İki direnç teorisine göre farklı gaz ve sıvı hızlarında elde edilen gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer katsayıları

(Gas side based physical volumetric overall mass transfer coefficients at different gas and liquid velocity according to two resistance theory)

değerlerinden yaklaşık 2-14 kat daha fazla olduğu dikkatten kaçmamalıdır.

Bu konuda yapılan literatür çalışmaları incelendiğinde, Kunze vd. [18], Mellapak 250 Y tipi yapılı dolgular ile 50 [mm] Pall halkalarını karşılaştırdığı çalışma özellikle dikkat çekmektedir. Bu çalışmada gaz faz olarak CO2 ve hava karışımı, sıvı faz olarak 1 [M] NaOH çözeltisi kullanılmıştır. Gaz hızı 0,5 [Pa<sup>0,5</sup>] F-faktör değerinde sabit tutulurken, sıvı yükü değerleri 5-60 [m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>-h] aralığında değiştirilmiştir. Yapılı dolgular kullanılarak elde edilen (K<sub>c</sub>a) değerlerini 0,45-0,5 [s<sup>-1</sup>] aralığında ve Pall halkası ile elde edilen değerlerden yaklaşık iki kat daha yüksek elde etmişlerdir. Ayrıca her iki dolgu tipinin kullanıldığı çalışmalardan elde edilen (Kca) değerlerinin sıvı yükünden çok fazla etkilenmediğini ortaya koymuşlardır. Karşılaştırma yapıldığında, Kunze vd.'nin [18] 250Y yapılı dolgular kullanarak, bu çalışma ile aynı gaz hızlarında elde ettiği değerlerin, bu çalışma ile elde edilen değerlerden yaklaşık 5 kat daha fazla olduğu anlaşılmıştır. Önceki başlıklarda da belirtildiği gibi, bu yazarlar tarafından bildirilen gaz ve sıvı tarafı bireysel fiziksel hacimsel kütle transfer katsayıları, yapılan bu çalışmanın bulgularına çok benzemektedir. Bu benzerliklere rağmen, kimyasal (K<sub>c</sub>a) değerleri arasındaki farkı açıklamak zordur. Şimdiki çalışmadan elde edilen sonuçlar makul değer aralıklarında olduğundan, endüstriyel sistemlerin tasarımında bir avantaj olabilir.

### 5.2.3.3. Artış faktörü (Enhancement factor)

Farklı gaz ve sıvı akış hızlarında CO<sub>2</sub>- NaOH çözeltisi deneylerinden elde edilen gaz faz hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayılarının (K<sub>c</sub>a), gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer katsayılarına (K<sub>c</sub>a) oranı ile Eş. 18'den yararlanılarak hesaplanan artış faktörü (E) değerleri Şekil 11'de yer almaktadır.

Elde edilen artış faktörü değerleri için nonlineer regresyon yöntemi ile Eş. 37'de yer alan korelasyon geliştirilmiştir. Bu korelasyon için  $R^2$ =0,951 olarak hesaplanmıştır.



**Şekil 10.** Hava-CO<sub>2</sub>/(NaOH)<sub>suda</sub> sistemi ile farklı gaz ve sıvı hızlarında elde edilen gaz faz hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayıları

(Gas side based chemical volumetric overall mass transfer coefficients at different gas and liquid velocities by experimental air-CO2/(NaOH)aq system)



Şekil 11. Farklı gaz ve sıvı hızlarında elde edilen artış faktörü değerleri (Enhancement factors at different gas and liquid velocities)

$$E=2632 u_{\rm G} u_{\rm L}^{0,836} \tag{37}$$

Daha önce de söylendiği gibi, artış faktörü (E) Hatta sayısına (Ha) bağlıdır. Ayrıca birçok yazar, CO<sub>2</sub>'in sodyum hidroksit çözeltisi içindeki kimyasal absorpsiyonunun hızlı sözde birinci dereceden bir rejim ile sonuçlandığını öne sürmektedir. Bu durum Ha > 2 olması halinde Eş. 23'te olduğu gibi  $E \cong Ha$  eşitliği bakımından kontrol edilerek doğrulanabilir. Artış faktörü ve Hatta sayılarının karşılaştırması Tablo 5'te verilmiştir.

 Tablo 5. Farklı gaz ve sıvı hızları için elde edilen artış

 faktörü ve Hatta sayısı değerleri

(Enhancement factor and Hatta number data at different gas and liquid velocities)

11 [m/s]	u [m/a]	Artış faktörü, (E)	Hatta sayısı,
$u_G, [III/S]$	$u_L, [III/S]$		(Ha)
0,157	0,0020	1,477	1,449
	0,0028	3,261	3,201
	0,0038	3,811	3,742
	0,0047	6,433	6,317
	0,0020	2,894	2,840
0.236	0,0028	4,628	4,543
0,230	0,0038	6,389	6,274
	0,0047	7,750	7,611
	0,0020	3,790	3,718
0.215	0,0028	5,554	5,452
0,515	0,0038	7,207	7,076
	0,0047	9,161	8,996
	0,0020	5,061	4,966
0 202	0,0028	8,036	7,888
0,393	0,0038	9,755	9,578
	0,0047	10,979	10,782
0,472	0,0020	7,673	7,529
	0,0028	10,692	10,495
	0,0038	11,668	11,457
	0,0047	13,961	13,711

Tablo 5'te yer alan sonuçlar incelendiğinde, Ha > 2 koşulunun yerine getirildiği ve deneysel olarak elde edilen artış faktörü değerleri ile Hatta sayısı verilerinin birbirleriyle oldukça yakın sonuçlar verdiği açıkça görülmektedir. Bu çalışmadan deneysel olarak elde edilen bu önemli sonuca göre, hava-CO<sub>2</sub>/ (NaOH)<sub>suda</sub> sistemindeki reaksiyon rejimi, literatürde belirtildiği gibi hızlı sözde birinci derece reaksiyon rejimi içerisinde yer almaktadır.

Ayrıca, daha önce de belirtildiği gibi, deneysel artış faktörü (E) değerlerinin, sonsuz artış faktörü ( $E_{\infty}$ ) ile de karşılaştırılması gerekmektedir. Eş. 20'den yararlanılarak sonsuz artış faktörü değerleri, hem film hem de penetrasyon kütle transferi modelleri için hesaplanmış ve sırasıyla 11,073 ve 18,309 olarak elde edilmiştir. Literatürde varılan ortak düşünce, Ha > 2 ve  $0,2 \cdot E_{\infty} < Ha < 5 \cdot E_{\infty}$  durumları için kimyasal absorpsiyonun hızlı rejimde olabileceği şeklindedir [51]. Bu kriter göz önünde bulundurulursa, Tablo 5'teki artış faktörü ve Hatta sayılarının dikkat çekici yakınlığı bu çalışmadaki deneysel koşulların esasında hızlı sözde birinci derece reaksiyon rejimine girdiğini ve hızlı reaksiyon rejim bölgesine yaklaştığını göz önüne sermektedir.

### 5.2.3.4. Etkin ara yüzey alanı (Effective interfacial area)

Farklı gaz ve sıvı hızlarındaki etkin ara yüzey alanı  $(a_{etkin})$  değerleri Eş. 29'dan yararlanılarak hesaplanmıştır (Şekil 12). Eşitlikteki ilgili parametrelerin hesaplamaları Bölüm 3'te verilmektedir.

Şekil 12, artan gaz ve sıvı hızlarının, etkin ara yüzey alanında artışa neden olduğunu göstermektedir. Bu davranış, artan gaz ve sıvı hızlarıyla kütle transfer katsayılarının gösterdiği davranışlarla uyum içerisindedir. Bu, dolgu yüzeyinin sıvı ile etkin bir şekilde kaplanması ve fazlar arasında daha iyi temas ile açıklanabilir. Etkin ara yüzey alanı ile ilgili literatür çalışmaları incelendiğinde, Kunze vd. [18], geometrik yüzey alanı 250 [m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>] olan Mellapak 250 Y tipi yapılı dolgular



**Şekil 12.** Farklı gaz ve sıvı hızlarındaki etkin ara yüzey alanı değerleri (The effective interfacial area values at different gas and liquid velocities)

kullanarak, 0,5 [Pa<sup>0,5</sup>] F-faktör sabit gaz hızı ve 5-60 [m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>h] aralığında değişen sıvı hızlarında deneyler yapmış ve etkin yüzey alanı değerlerini 180-197 [m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>] aralığında elde etmiştir. Ayrıca yazarlar, Barrett [71] tarafından önerilen ve etkin ara yüzey alanını değerlendirmek için geliştirilen korelasyonun deneysel koşullar için kullanılabileceğinden bahsetmiştir [18]. Bu yaklaşımla, Mellapak 250Y yapılı dolgu tipi kullanılarak, aynı sıvı yükü aralığında ve 0,5 [Pa<sup>0,5</sup>] F-faktör sabit gaz hızında, etkin ara yüzey alanı değerleri 175-200 [m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>] olarak hesaplanmıştır. Bu çalışmanın yanı sıra Rejl vd. [64], Mellapak 250Y, 350Y ve 500Y tipi yapılı dolgular kullanarak deneyler yapmıştır. Yaklaşık 10-20 [m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>-h] sıvı yükü aralığı için her bir dolgu tipinin etkin ara yüzey alanı değerlerini sırasıyla 175-190  $[m^2/m^3]$ , 240-250  $[m^2/m^3]$  ve 240-260  $[m^2/m^3]$  aralığında hesaplamışlardır. Sunulan bu çalışmada, benzer gaz ve sıvı hızı aralıkları için etkin ara yüzey alanı değerleri 87-224 [m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>] olarak elde edilmiştir. Buradaki yüksek hızlardaki sonuçların, benzer yüksek hızlarda çalışan Kunze vd. [18] ile Rejl vd. [64] elde ettiği değerlere yakın olduğu anlaşılmaktadır.

### 6. SİMGELER (SYMBOLS)

a	: Üçgen kenar uzunluğu [m]
a <sub>etkin</sub>	: Etkin ara yüzey alanı $[m^2/m^3]$
ap	: Dolgu yüzey alanı [m <sup>2</sup> /m <sup>3</sup> ]
b	: Üçgen kenar uzunluğu [m]
В	: Sıvı yükü [m <sup>3</sup> /m <sup>2</sup> -h]
c	: Üçgen taban uzunluğu [m]
С	: Konsantrasyon [kmol/m <sup>3</sup> ]
de	: Eşdeğer çap, [m]
D <sub>A-B</sub>	: A'nın B içerisindeki difüzyon katsayısı [m <sup>2</sup> /s]
E	: Artış faktörü [-]
$E_{\infty}$	: Sonsuz artış faktörü [-]
F-faktör	: $F = u_G (\rho_G / g_c)^{0.5} [Pa^{0.5}]$
g <sub>c</sub>	: Newton yasası orantı faktörü, [kg-m/N-s <sup>2</sup> ]
ĥ	: Oluk yüksekliği [m]
h <sub>i</sub>	: pozitif, negatif iyonlar ve gazın spesifik
	parametreleri [m <sup>3</sup> /kmol]
Н	: Dolgu yüksekliği [m]
H <sub>A-B</sub>	: A'nın B içerisindeki Henry Yasası sabiti [m <sup>3</sup> -
	Pa/mol]
На	: Hatta sayısı [-]
Ι	: İyonik kuvvet [kmol/m <sup>3</sup> ]
k	: Reaksiyon hız sabiti [m³/kmol-s]
$\mathbf{k}^{\infty}$	: Sonsuz seyreltik reaksiyon hız sabiti [m³/kmol-s]
$(k_c^0 a)$	: Gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer
	katsayısı [1/s]
$(K_c^0 a)$	: Gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer
	katsayısı [1/s]
(K <sub>a</sub> )	: Gaz faz hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer
	katsavısı [1/s]
(K.)	: Teorik gaz faz kimyasal toplu kütle transfer
	katsayısı [m/s]
$(k_{r}^{0}a)$	: Sıvı faz hacim bazlı fiziksel birevsel kütle transfer
<u>`</u> L"/	

k<sup>0</sup><sub>L</sub> : Sıvı faz fiziksel bireysel kütle transfer katsayısı [m/s]

- m<sub>A-B</sub> : A'nın B içerisindeki boyutsuz çözünürlüğü [-]
- *M* : Moleküler ağırlık [kg/kmol]
- P : Basınç [Pa]
- q : Eş. 20'de katsayı [-]
- R : İdeal gaz sabiti [m<sup>3</sup>-Pa/mol-K]
- T : Sıcaklık [K]
- u<sub>G</sub> : Yüzeysel gaz akış hızı [m/s]
- $u_L$  : Yüzeysel sıvı akış hızı [m/s]
- V<sub>A</sub> : Çözeltinin normal kaynama sıcaklığındaki molar hacmi [m<sup>3</sup>/ kmol]
- *v* : CO<sub>2</sub>'in stokiyometrik katsayısı
- x<sub>1</sub> : Sıvı tarafındaki giriş kompozisyonu [-]
- x<sub>2</sub> : Sıvı tarafındaki çıkış kompozisyonu [-]
- x<sub>i</sub> : Dengede sıvı tarafındaki ara yüzey kompozisyonu [-]
- y<sub>1</sub> : Gaz tarafındaki giriş kompozisyonu [-]
- y $_2$  : Gaz tarafındaki çıkış kompozisyonu [-]
- Z<sub>i</sub> : İyon değerliği [-]

### 6.1. Yunan Harfleri (Greek Letters)

α	: Yatay düzlemle oluşturulan kıvrım açısı [º]
β	: Oluk açısı [°]
$\beta_{CO_2}$	: Eş. 15'te CO <sub>2</sub> için katkı faktörü [-]
γ	: Eş. 21'de üst simge parametresi [-]
3	: Boşluk kesri [-]
ε/κ	: Enerji parametresi, [K]
μ	: Vogel denklemine göre hesaplanan çözücünün
	viskozitesi [cp]
$\rho_{G}$	: Gaz yoğunluğu [kg/m <sup>3</sup> ]
$\sigma_{\!AB}$	: Çarpışma çapı, [m]
$\Psi_{\rm B}$	: B çözücüsü için ayrışma parametresi [-]
$\Omega_{AB}^{-}$	: Çarpışma integrali, [-]
	$ \begin{array}{l} \alpha \\ \beta \\ \beta_{CO_2} \\ \gamma \\ \varepsilon \\ \varepsilon/\kappa \\ \mu \end{array} \\  \begin{array}{l} \rho_G \\ \sigma_{AB} \\ \Psi_B \\ \Omega_{AB} \end{array} $

### 7. SONUÇLAR (CONCLUSIONS)

Tasarımı ve imalatı tarafımızca yapılan bir yapılı dolgulu kolonun hidrodinamik ve kütle transferi karakterizasyonu ile ilgili deneysel çalışmalar yapılmıştır. Basınç düşüşü değerlerinin makul ve endüstriyel dolgulu kolonların normal çalışma aralığı ile karşılaştırılabilir olduğu bulunmuştur. Basınç düşüşü ölçümlerine göre her hangi bir yükleme veya taşma olmaksızın normal sıvı ve gaz hızı aralıkları sırasıyla 0,002-0,0047 [m/s] ve 0,07-0,68 [m/s] olarak belirlenmiştir. Hidrodinamik çalışmaların ardından bu gaz ve sıvı aralıklarında kütle transferi çalışmaları yapılmıştır.

İlk olarak, sıvı ve gaz faz hacim bazlı fiziksel bireysel kütle transfer katsayıları ( $k_L^o a$  Ve  $k_c^o a$ ) sırasıyla sudan havaya oksijen desorpsiyonu ve kükürt dioksitin sodyum hidroksit çözeltisine absorpsiyonu metotlarıyla deneysel olarak belirlenmiştir. ( $k_L^o a$ ) değerleri 0,001-0,009 [1/s] aralığında, ( $k_c^o a$ ) değerleri ise 0,2-1,9 [1/s] aralığında elde edilmiştir. Bu katsayılar hem sıvı hem de gaz hızlarına bağlı olarak elde edilmiş olup, her ikisi için de korelasyonlar geliştirilmiştir. Bireysel kütle transfer katsayılarından yararlanılarak iki direnç teorisine göre, CO<sub>2</sub>-su sistemi için gaz faz hacim bazlı fiziksel toplu kütle transfer katsayıları ( $K_c^o a$ ) hesaplanımıştır. Bu değerler farklı gaz ve sıvı hızlarında 0,001 ve 0,006 [1/s] aralığında elde edilmiştir.

Daha sonra gaz ve sıvı tarafı dirençleri karşılaştırılmış ve gaz tarafı direncinin sıvı tarafı direnci yanında ihmal edilebilir olduğu ve ( $K_c^{0}a$ )'nın sıvı tarafı direnciyle kontrol edildiği sonucuna varılmıştır. Fiziksel çalışmaların ardından, CO<sub>2</sub>-(NaOH)<sub>suda</sub> sistemi ile farklı gaz ve sıvı hızlarında deneyler yapılarak gaz faz hacim bazlı kimyasal toplu kütle transfer katsayıları ( $K_ca$ ) elde edilmiştir. Toplu kimyasal kütle transfer katsayılarının ( $K_ca$ ), toplu fiziksel kütle transfer katsayılarından ( $K_c^0a$ ) yaklaşık 2-14 kat daha fazla olduğu görülmüştür.

Farklı gaz ve sıvı hızlarındaki artış faktörleri (E) ve Hatta sayıları (Ha) hesaplanmıştır ve aynı sıvı ve gaz hızlarındaki değerler birbirlerine oldukça yakın bulunmuştur. Ayrıca Hatta sayıları 2'den büyük olarak hesaplanmıştır. Sonsuz artış faktörü ( $E_{\infty}$ ) değerleri, film ve penetrasyon kütle modellerine göre sırasıyla 11,073 ve 18,309 olarak hesaplanmıştır. Tüm bu veriler ışığında, tasarlanan kolon için kimyasal sistemin reaksiyon rejimi hızlı reaksiyon rejimine yaklaşan bölgede ve esas olarak hızlı sözde birinci dereceden rejim aralığı olarak belirlenmiştir. Buradan elde edilen sonuçlar, teorik gaz faz kimyasal toplu kütle transfer katsayısı ve etkin ara yüzey alanın belirlenmesine olanak sağlamıştır. Etkin ara yüzey alanı değerleri en düşük ve en yüksek gaz hızları için sırasıyla 5-35 [m²/m³] ve 87-224 [m²/m³] olarak belirlenmiştir.

Kısacası, bu çalışmada yeni tasarlanmış bir yapılı dolgulu kolonun karakterizasyon çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Hidrodinamik açıdan çalışma aralığı belirlenmiştir. Hem gaz hem de sıvı akış hızlarının kütle transfer katsayılarında ve etkin ara yüzey alanı değerlerinde etkili olduğu anlaşılmıştır. Bu durum, artan sıvı ve gaz akış hızları ile yapılı dolguların etkinliği ve performansının arttığı anlamına gelmektedir.

### **KAYNAKLAR** (REFERENCES)

- 1. Özdemir O. K., Analysis of kinetic properties for the hydrolysis reaction of NaBH4 and environmental effects in the hydrogen production of activated Co-Ti (II) -B alloy catalysts, Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University, 34 (3), 1585-1594, 2019.
- Daş M., Balpetek N., Kavak Akpınar, E., Akpınar S., Investigation of wind energy potential of different provinces found in Turkey and establishment of predictive model using support vector machine regression with the obtained results, Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University, 34 (4), 2203-2213, 2019.
- **3.** IEA (International Energy Agency), Global energy and CO<sub>2</sub> status report 2017, 3-4, March 2018.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) Special Report of Global warming of 1.5°C, 12, 16-39, 2018.
- 5. PBL Netherlands Environmental Assessment Agency, Trends in global CO<sub>2</sub> and total greenhouse gas

emissions-2017 report, The Hague, PBL publication number: 2674, 7-9, 2017.

- 6. Kohl A. L., Nielsen R. Gas Purification, 5th ed., Vol. viii.Gulf Publishing, Houston, TX, 7-39,40-151, 1997.
- Anwar M.N., Fayyaz A., Sohail N.F., Khokhar M.F., Baqar M., Khan W.D., Rasool K., Rehan M., Nizami A.S., CO<sub>2</sub> capture and storage: a way forward for sustainable environment, J. Environ. Manage. 226,131– 144, 2018.
- **8.** Koytsoumpa E.I., Bergins C., Kakaras E., The CO<sub>2</sub> economy: review of CO<sub>2</sub> capture and reuse technologies, J. Supercrit. Fluids, 132, 3–16, 2018.
- **9.** Cuellar-Franca R.M., Azapagic A., Carbon capture, storage and utilisation technologies: a critical analysis and comparison of their life cycle environmental impacts, J. CO<sub>2</sub> Util. 9, 82–102, 2015.
- Yang W., Yu X., Mi J., Wang W., Chen J., Mass transfer performance of structured packings in a CO<sub>2</sub> absorption tower, Chin. J. Chem. Eng., 23, 42–49, 2015.
- Raza A., Gholami R., Rezaee R., Rasouli V., Rabiei M., Petroleum, 2018. https://doi.org/10.1016/j.petlm.2018.12.007.
- Leung D.Y., Caramanna G., Maroto-Valer M.M., An overview of current status of carbon dioxide capture and storage technologies, Renew. Sustain. Energy. Rev., 39, 426–443, 2014.
- **13.** Aroonwilas A., Tontiwachwuthikul P., Mechanistic model for prediction of structured packing mass transfer performance in CO<sub>2</sub> absorption with chemical reactions, Chem. Eng. Sci, 3651-3663, 2000.
- Alix P., Raynal L., Abbe F., Meyer M., Prevost M., Rouzineau D., Mass transfer and hydrodynamic characteristics of new carbon packing: application to CO<sub>2</sub> post-combustion capture, Chem. Eng. Res. Des., 89, 1658–1668, 2011.
- **15.** Brunazzi E., Paglianti A., Liquid-film mass-transfer coefficient in a column equipped with structured packings, Ind. Eng. Chem. Res., 36, 3792-3799, 1997.
- **16.** Laso M., Brito H.M., Bomio P., von Stockar U., Liquidside mass transfer characteristics of a structured packing, Chem. Eng. J., 58, 251-258, 1995.
- Olujić Z., Kamerbeek A.B., de Graauw j., A corrugation geometry based model for efficiency of structured distillation packing, Chem. Eng. Process., 38, 683–695, 1999.
- Kunze A.K., Lutze P., Kopatschek M., Mackowiak J.F., Mackowiak J., Grünewald M., Górak A., Mass transfer measurements in absorption and desorption: determination of mass transfer parameters, Chem. Eng. Res. Des., 104, 440–452, 2015.
- Valenz L., Rejl F.J. Síma J. Linek V., Absorption masstransfer characteristics of mellapak packings series, Ind. Eng. Chem. Res., 50, 12134–12142, 2011.
- **20.** Aroonwilas A., Tontiwachwuthikul P., Chakma A., Effects of operating and design parameters on  $CO_2$  absorption in columns with structured packings, Sep. Purif. Technol. 24, 403–411, 2001.
- **21.** Gorak A., Olujić Z., Distillation: Equipment and Processes. Chapter-4: Structured Packings, Academic Press is an imprint of Elsevier, 2014.

- Rousseau R.W., Handbook of Separation Process Technology, 1<sup>st</sup> Edition, John Wiley & Sons, Inc., USA, 1987.
- Perry R.H., Green D. W., Perry's Chemical Engineers' Handbook, 7<sup>th</sup> Edition, Section 14, McGraw-Hill Professional, 5-59, 5-60, 1997.
- Smith R., Chemical Process Design and Integration, 2<sup>nd</sup> Edition, Part 8, Wiley, 149-150 2016.
- 25. Olujić Z., Seibert A.F., Fair J.R., Influence of corrugation geometry on the performance of structured packings: an experimental study, Chem. Eng. Process. Process Intensif., 39, 335-342, 2000.
- Wang C., Perry M., Seibert F., Rochelle G.T., Characterization of novel structured packings for CO<sub>2</sub> capture, Energy Procedia, 37, 2145–2153, 2013.
- 27. Uysal B.Z., Kütle Transferi Uygulama ve Esasları. 3. Baskı, Gazi Kitabevi, Ankara, 14, 21, 134-139, 2019.
- 28. Kister H.Z., Distillation Design, McGraw-Hill, New York, 448-458, 586-587,1992.
- **29.** Zakeri A., Einbu A., Svendsen H. F., Experimental investigation of pressure drop in structured packings, Chem. Eng. Sci., 73, 285–298, 2012.
- Mackowiak J., Fluid dynamics of packed columns, principles of the fluid dynamic design of columns for gas/liquid and liquid/liquid systems, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2010.
- **31.** Olujić Z., Jansen H., Kaibel B., Rietfort T., Zich E., Stretching the capacity of structured packings, Ind. Eng. Chem. Res. 40, 6172–6180, 2001.
- 32. Minnie U.L., Effect of liquid and gas physical properties on the hydrodynamics of packed columns, Master of Thesis, Stellenbosch University, Faculty of Engineering, Chemical Engineering Department, 2017.
- **33.** Hoffmann A., Mackowiak J.F., Gorak A., Haase M., Loning J.M., Runiwski T., Hallenberger K., Standardization of mass transfer measurements a basis for the description of absorption processes, Chem. Eng. Res. 85, 40, 2007.
- 34. Uysal Zıraman D., Doğan Ö.M., Uysal B.Z., Mass transfer enhancement factor for chemical absorption of carbon dioxide into sodium metaborate solution, Korean J. Chem. Eng., 35 (9), 1800-1806, 2018.
- **35.** Versteeg G.F., van Swaaij W.P.M., Solubility and diffusivity of acid gases (CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O) in aqueous alkanolamine solutions, J. Chem. Eng. Data, 33, 29-34, 1988.
- 36. Haidl J., Rejl F.J., Valenz L., Moucha T., Petrícek R., General mass-transfer model for gas phase in structured packings, Chem. Eng. Res. Des., 126, 45–53, 2017.
- **37.** Rejl F.J., Valenz L., Haidl J., Kordac M., Moucha T., On the modeling of gas-phase mass-transfer in metal sheet structured packings, Chem. Eng. Res. Des., 93, 194-202, 2015.
- **38.** Wang C., Perry M., Rochelle G.T., Seibert A.F., Packing characterization: mass transfer properties, Energy Procedia 23, 23–32, 2012.
- **39.** Tsai R.E., Seibert A.F., Eldridge R.B., Rochelle G.T., Influence of viscosity and surface tension on the

effective mass transfer area of structured packing, Energy Procedia 1, 1197-1204, 2009.

- **40.** Whitman W.G., The two-film theory of gas absorption, Int. J. Heat Mass Tran., 5, 5, 429-433, 1962.
- **41.** Duss M., Meierhofer H., Nutter D.E., Effective interfacial area and liquid holdup of nutter rings at high liquid loads, Chem. Eng. Technol. 24 (7), 716–723, 2001.
- **42.** Pinsent B., Pearson L., Roughton F., The kinetics of combination of carbon dioxide with hydroxide ions, Trans.Faraday Soc., 52, 1512–1520, 1956.
- **43.** Kucka L., Kenig E.Y., Gorak A., Kinetics of the gasliquid reaction between carbon dioxide and hydroxide ions, Ind. Eng. Chem. Res, 41, 5952-5957, 2002.
- 44. Nijsing R.A.T.O., Hendriksz R.H.; Kramers H. Absorption of CO<sub>2</sub> in jets and falling films of electrolyte solutions with and without chemical reaction, Chem. Eng. Sci. 10, 88, 1959.
- **45.** Astarita G., Savage D. W., Bisio A. Gas Treating with Chemical Solvents, John Wiley & Sons, New York, 10,11, 1983.
- 46. Aroonwilas A., Tontiwachwuthikul P., Mass transfer coefficients and correlation for CO<sub>2</sub> absorption into 2-Amino-2-methyl-1-propanol (AMP) using structured packing. Ind. Eng. Chem., Res, 37, 569-575, 1998.
- **47.** Di X., Chen S., Wang W., Huang Y., Experimental investigation of mass transfer performance in laboratory and pilot-scale structured-packing columns under roll motion, Chem. Eng. Sci., 177, 27–38, 2018.
- Uysal D., Kalsiyum asetat çözeltisi ile karbon dioksitin absorpsiyonu, Doktora Tezi, Gazi Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı, 2016.
- **49.** Danckwerts P.V., Gas-liquid reactions, McGraw-Hill Book Co., New York, 239, 1970.
- **50.** Kierzkowska-Pawlak H., Determination of kinetics in gas-liquid reaction systems an overview, Ecol Chem Eng. S. 19 (2):175-196, 2012.
- **51.** Last W., Stichlmair J., Determination of mass transfer parameters by means of chemical absorption, Chem. Eng. Technol. 25, 4, 2002.
- 52. Tsai R.E., Seibert A.F., Eldridge R.B., Rochelle G.T., A dimensionless model for predicting the mass-transfer area of structured packing, AIChE J., 57, 1173-1184, 2011.
- **53.** Kumar P.S., Hogendoorn J.A., Feron P.H.M., Versteeg G.F., Approximate solution to predict the enhancement factor for the reactive absorption of a gas in a liquid flowing through a microporous membrane hollow fiber, J. Membr. Sci., 213, 231–245, 2003.
- 54. Zeebe R.E., On the molecular diffusion coefficients of dissolved CO<sub>2</sub>, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> and CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> and their dependence on isotopic mass, Geochim. Cosmochim. Acta, 75, 2483–2498, 2011.
- 55. Krauß M., Rzehak R., Reactive absorption of CO<sub>2</sub> in NaOH: an euler-euler simulation study, Chem. Eng. Sci., 181, 199–214, 2018.
- 56. De Brito H., von Stockar U., Bangerter M., Bomio P., Laso M., Effective mass-transfer area in a pilot plant

column equipped with structured packings and with ceramic rings, Ind. Eng. Chem. Res, 33, 647-656, 1994.

- **57.** van Krevelen D. W. Hoftijzer P.J., Chimie et industrie: numero special edu XXIe. Congres International de Chimie Industrielle, Bruxxels, 1948. (cited by Danckwerts, 1970).
- 58. Licht S.E., Weiland R.H., Density and physical solubility of CO<sub>2</sub> in partially loaded solutions of MEA, DEA and MDEA, Presented at the AICHE National Meeting, Paper No. 57f, Houston, 1989.
- Dang H., Rochelle G.T., Carbon dioxide absorption rate and solubility in MEA/PZ/H<sub>2</sub>O, Sep. Sci. Technol., 38:2, 337, 2003.
- **60.** Chen E.,Carbon dioxide absorption into piperazine promoted potassium carbonate using structured packing, Doctor of Philosophy Thesis, Faculty of the Graduate School of The University of Texas, Austin, 2007.
- Fourati M., Roig V., Raynal L., Experimental study of liquid spreading in structured packings, Chem. Eng. Sci., 80, 1–15, 2012.
- **62.** Iliuta I., Petre C.F., Larachi F., Hydrodynamic continuum model for two-phase flow structured-packing-containing columns, Chem. Eng. Sci., 59, 879–888, 2004.
- **63.** Rocha J.A., Bravo J.L., Fair J.R., Distillation columns containing structured packings: a comprehensive model for their performance. 1. hydraulic models, Ind. Eng. Chem. Res., 32, 641-651, 1993.
- 64. Rejl F.J., Haidl J., Valenz L., Marchi A., Moucha T., Petrícek R., Brunazzi E., Liquid-phase mass-transfer coefficients of mellapak structured packings under desorption of oxygen from primary alcohols, Chem. Eng. Res. Des., 127, 1–9, 2017.
- **65.** Dong B., Yuan X.G., Yu K.T., Determination of liquid mass-transfer coefficients for the absorption of CO<sub>2</sub> in

alkaline aqueous solutions in structured packing using numerical simulation, Chem. Eng. Res. Des., 124, 238–251, 2017.

- 66. Olujić Z., Rietfort T., Jansen H., Kaibel B., Zich E., Frey G., Experimental characterization and modeling of high performance structured packings, Ind. Eng. Chem. Res., 51, 4414–4423, 2012.
- **67.** Wang C., Song D., Seibert F.A., Rochelle G.T., Dimensionless models for predicting the effective area,liquid-film, and gas-film mass-transfer coefficients of packing, Ind. Eng. Chem. Res. 55, 5373–5384, 2016.
- **68.** Rocha J.A., Bravo J.L., Fair J.R., Distillation columns containing structured packings: a comprehensive model for their performance. 2. mass-transfer model, Ind. Eng.Chem. Res. 35, 1660–1667, 1996.
- **69.** Hanley B., Chen C.-C., New mass-transfer correlations for packed towers. AIChE J. 58, 132–152, 2012.
- **70.** Johnstone H.F., Pigford R.L., Distillation in a wetted wall column. Trans. AIChE 38, 25–51, 1942.
- **71.** Billet R., Schultes M., Prediction of mass transfer columns with dumpled and arranged packings updated summary of the calculation method of billet and schultes, Chem. Eng. Res.Des. 77, 498–504, 1999.
- Nieuwoudt I., Crause J.C., Mass transfer in a short wetted-wall column 2. binary systems, Ind. Eng. Chem. Res.38, 4933–4937, 1999.
- 73. Olujic Z., Behrens M., Colli L., Paglianti A., Predicting the efficiency of corrugated sheet structured packings with large specific surface area, Chem. Biochem. Eng. Q. 18, 89–96, 2004.
- Barrett P.V.L., Gas absorption on a sieve plate, Ph.D. Thesis, University of Cambridge, Cambridge, United Kingdom, 1966.