

RADMILA ŠE EROV SOKOLOVI¹, DRAGAN GOVEDARICA¹,
DUNJA SOKOLOVI², SLOBODAN SOKOLOVI²

Originalni nau ni rad
UDC:620.168.3:621.899

Separacija dispergovanog ulja primenom koalescera sa vlaknastim slojem

Iako se koalesceri sa vlaknastim slojem koriste u industriji duže od pola veka njihovo projektovanje još uvek zahteva eksperimentalni rad. Kod njih je vrlo teško do i do nekih postojanih me uzavisnosti i relacija. Strujanje dvofaznog sistema (disperzija te no/te no) kroz porozni sloj je složeno i prili no neistraženo. Sloj vlakana je sloj visoke poroznosti, ak i do 98 %, neure ene structure, on se u potpunosti razlikuje od sloja granulisanog materijala koji je još uvek u fokusu modelovanja istraživa a. Polimerna vlakna su elasti na i sloj je kompresibilan te je mogu e njegovim sabijanjem obezbediti sloj razli itih osobina. Kada se želi vršiti separacija kapi razli itih ulja ispitivanjem efikasnosti razli itih polimera može se konstatovati da je neki od njih izuzetno efikasan na jednom ulju, a krajnje neefikasan na drugom. U ovom radu bi e prikazani neki rezultati separacije razli itih ulja koriš enjem vlakana razli itih polimera. Eksperimenti su realizovani na laboratorijskom ure aju pri horizontalnoj orijentaciji toka fluida, koja se u našim istraživanjima pokazala kao najefikasnija. Model emulzija je pripremana u vodi za pi e sobne temperature dispergovanjem 500 mg/l mineralnih ulja uz permanentno mešanje tako da je prose na veli ina kapi u opsegu od 10 μ m.

Ključne reči: zauljena voda, koalescer, separacija.

UVOD

Speilmen, najzna ajniji istraživa koji je pokrenuo ispitivanja fenomena u vlaknastom sloju za sluj dve nemešljive te nosti, je ukazao da se prilikom proticanja nestabilne emulzije kroz porozni sloj dispergovana faza formira u tri oblika: kapilarno-provodna faza, uve ane globule formirane u sloju i male kapi ulja koje nisu uspele da koalesciraju. Navedeni autorsa svojim saradnicima, smatra da pad pritiska pri proticanju ovog dvofaznog sistema zavisi samo od kapilarno-provodne uljne faze koja se proteže od ulaza u sloj do njegovog izlaza. Taj deo ulja naziva zasi enje. Koalescencija kapi u poroznom sloju dominantno se odvija u površinu/zapreminu toga ulja. Isto tako od od te uljne faze se otkidaju ve e kapi ili globule. Koli ina zasi enog ulja u porama sloja dominantno je uslovljena brzinom fluida [1-6]. Spielman smatra da maksimalna koli ina kapilarno-provodnog ulja može da bude 30 % od zapremine pora, a da koalescencija po inje ve pri zasi enju od 10%.

Tokom više od dve decenije izu avanja fenomena koalescentne filtracije Še erov Sokolovi i saradnici su objavili niz radova u kojima su prikazali segmente svojih istraživanja. Najduže se bave utvrivanjem metodologije odabiranja adekvatnog filteraskog materijala za separaciju nekog ulja [7, 8]

Adrese autora: ¹Tehnološki fakultet, Univerzitet u Novom Sadu, Bul. cara Lazara 1, ²Fakultet tehni kih nauka, Univerzitet u Novom Sadu, D. Obradovi a 6.

Primljeno za publikovanje: 11. 07. 2013.

Prihvajeno za publikovanje: 13. 10. 2013.

kao i uticajem prirode ulja na efikasnost njihove separacije [9, 10]. U svojim istraživanjima su utvrdili da postoji velika razlika u efikasnosti separacije razli itih polimernih vlakana iako su to svi materijali niske energije. U ovim istraživanjima zanemarna je kako priroda vlakana tako i priroda uljne faze. U okviru svakog istraživanja ispituju uticaj radnih uslova na efikasnost, od kojih smatraju najvažnijim brzinu fluida i geometriju sloja. O zna aju radnih uslova objavili su nekoliko radova [11-14]. Bavili su se optimizacijom orijentacije toka fluida s obzirom da se u literaturi objavljuju radovi pri razli itoj orijentaciji toka fluida i dobijeni rezultati se porede me usobno. Navedeni autori su neosporno dokazali da je za separaciju sistema te no-te no optimalna orijentacija toka fluida horizontalna [15, 16]. Od tada se njihova istraživanja realizuju samo pri toj orijentaciji toka fluida. Uveli su novu veli inu, kriti na permeabilnost, koja se javlja pri niskim vrednosotima permeabilnosti kao nepovoljna oblast za rad, naro ito kod vertikalne orijentacije toka fluida, zbog drasti nog pove anja mesne brzine fluida. Pri tim uslovima koli ina zasi enog ulja u porama sloja je izrazito mala te i nedovoljna da obezbedi koalescenciju sloja, tako e je malo i vreme kontakta me u kapima da bi se realizovala koalescencija izme u kapi ulja [13].

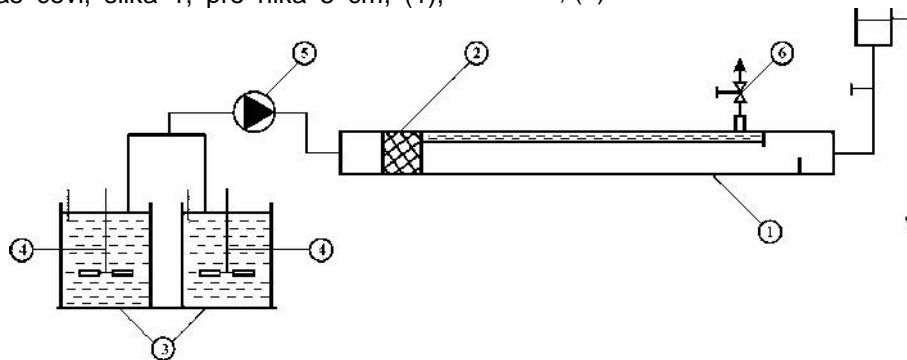
Istraživanja su uklju ila i sepraciju realnih sistema i to na mestu nastanka kako bi sva iskustva dobijena u laboratoriji bila povezana sa praksom [17-19]. Še erov Sokolovi i saradnici su do sada objavili i dve publikacije koje opisuju nau ne aspekte i globalne fenomene dvofaznih sistema i njihove separacije uz pomo poroznog sloja visoke efikasnosti kao što su slojevi vlaknastih polimera [20, 21].

Cilj ovog rada bio je da se ispita efikasnost separacije vlakana poliuretana i polietilena za separaciju četiri ulja različite prirode pri velikim radnim brzinama te nosti do granice probijanja ulja kroz sloj. Kako radna brzina uslovljava dimenzije uređaja naš cilj je minimiziranje dimenzija uređaja. Taj zahtev je izuzetno važan na brodovima i naftnim platformama.

EKSPERIMENTALNI DEO

Aparatura

Eksperimentalni uređaj se sastoji od horizontalne pleksiglas cevi, slika 1, prenika 5 cm, (1),



Slika 1 - Šematski prikaz eksperimentalnog uređaja.

Uslovi eksperimenta

Ogled je realizovan pri konstantnoj permeabilnosti sloja K_0 , kroz određeni filterski materijal pri više brzina, opseg brzina bio je od 30 do 60 m/h. Odabrana brzina držana je konstantnom jedan sat. Uzorkovanje je vršeno na izlazu iz uređaja posle 45 minuta od uspostavljanja brzine, kao petnaestominutni kompozit od po 250 ml na svakih 5 minuta. Koncentracija ulja u vodi na izlazu proučena je iz ugljentetrahloridnog ekstrakta na FTIR spektrofotometru. Koncentracija dispergovanog ulja na ulazu u uređaj u svim eksperimentima bila je konstantna i iznosila je 500 mg/l. Debljina sloja je takođe bila konstantna, 5 cm. Eksperimenti su realizovani na temperaturi od 20 °C.

REZULTATI I DISKUSIJA

U ovom radu je ispitivana efikasnost separacije ulja različite prirode primenom vlakana poliuretana, PU, i vlakana polietilenteraftalata, PE. Osnovne osobine korišćenih polimernih materijala prikazane su u tabeli 1.

Tabela 1 - Osobine korišćenih polimernih vlakana

Materijal	Poliuretan, PU	Polietilenteraftalat, PE
Gustina kg/m ³	1200	1400
Temperatura topljenja °C	310,80	250,68
Dielektrična konstanta	3,4	4,55
Prečnik vlakana d_v , μm	50	60

dužine 1,2 m, na kojoj je ulaznoj strani smešten sloj polimernog materijala, (2). Zauljena voda pripremljena je korišćenjem vode za piće u dva rezervoara od 80 l, (4). Ulje je dispergovano kontinualnim mešanjem propelerskim mešalicama u rezervoaru brzinom od 650 o/min, u trajanju od 45 min pre početka ogleda i kontinualno tokom ogleda. Na taj način se održava prosečna veličina kapi od 10 μm. Transport fluida kroz uređaj obezbeđen je membranskom dozir pumpom, (5). Posle prolaska kroz sloj, uljane kapi ulja se talože, ulje se prikuplja u gornjem delu cevi i ispušta diskontinualno pomoću ventila, (6).

Kako su vlakna polimera elastična na sloj formiran od njih je kompresibilan. Prema našim istraživanjima veličina koja adekvatno odražava koliko je sloj sabijen jeste permeabilnost. Eksperimenti su realizovani pri pet različitih permeabilnosti u intervalu od 5,389 do 0,180 10^{-9} m² za svaki polimer. Tako se poroznost sloja koja je uslovljena njegovom sabijenosti u kretala od 0,97 do 0,85.

Odabrana ulja koja su korišćena u eksperimentalnom radu su jedna domaća nafta, A, njene dve frakcije, A1 i A4 i jedan blend poluproizvod P1. Neke osobine tih uljnih faza date su u tabeli 2.

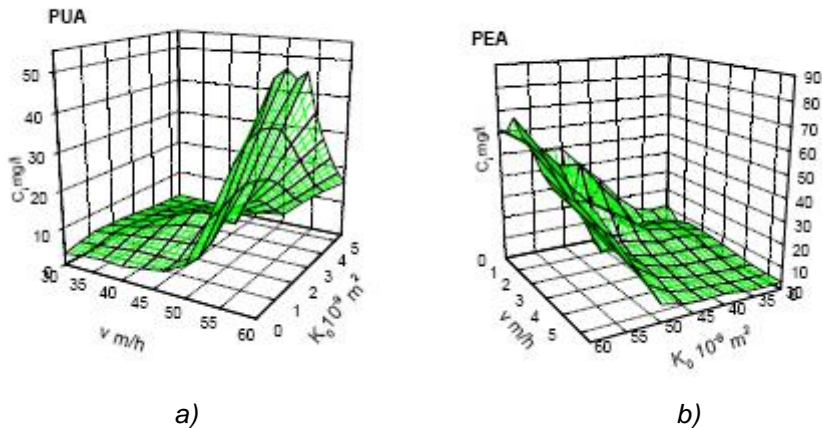
Tabela 2 - Osobine ispitivanih ulja

Osobina/uzorak	A	A1	A4	P1
Gustina 20°C kg/m ³	915,5	905,9	918,9	879,0
Viskoznost na 40°C, mPa s	43,350	9,183	168,904	10,316
Neutralizacioni broj, mg KOH/l	1,42	1,13	1,71	0,13
Temperatura tačke enja °C	-42	-56	-3	+3
Me upovršinski napon, mN/m	18,8	33,8	30,5	32,4
Molska masa kg/kmol	410	150	520	300

Kako je u eksperimentima varirana radna brzina fluida, v , i permeabilnost sloja, K_0 , analiza rezultata je proučena posmatranjem promene koncentracije ulja na izlazu iz uređaja, C_i , u zavisnosti

od promene te dve veličine. Korisni su 3D dijagrami koji daju mogućnost ne samo uoči promena u celom opsegu vrednosti dve promenljive, nego olakšavaju i međusobno poređenje efikasnosti dva korišćena filterna materijala. Na slici

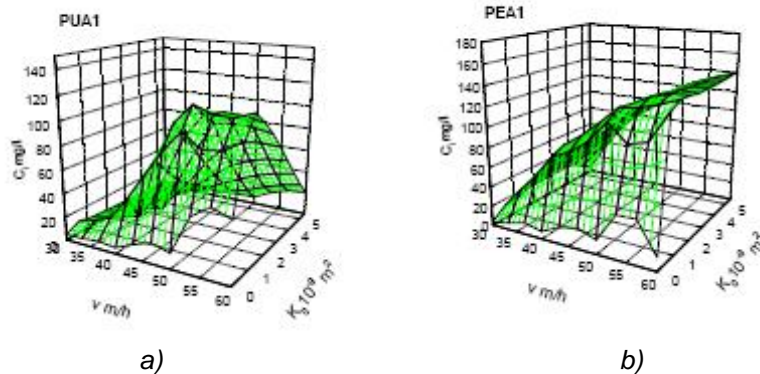
2 prikazani su 3D dijagrami zavisnosti promene izlazne koncentracije ulja od promene brzine fluida i permeabilnosti sloja i to za sloj poliuretana, PU, slika 2a, i za sloj polietileneraftalata, PE, slika 2b.



Slika 2 - Zavisnost izlanske koncentracije ulja A od promene brzine fluida i permeabilnosti sloja a) za sloj vlakana PU b) za sloj vlakana PE.

Kao što se sa dijagrama može konstatovati, oba filterna materijala pokazuju visoku efikasnost separacije ulja A u oblasti brzina do 45 m/h pri celom ispitivanom opsegu permeabilnosti sloja. Za ovu visoko efikasnu regiju za rad koalescera izlazna koncentracija je niža od 10 mg/l. Pri većim brzinama drastično raste izlazna koncentracija ulja pri svim permeabilnostima, ali najbrže pri srednjim

vrednostima permeabilnosti. Kada je reč o ulju A1 situacija je drastično drugačija kao što se jasno vidi na slici 3. Na slici 3., a), prikazana je zavisnost izlazne koncentracije ulja A1 od brzine fluida i permeabilnosti sloja poliuretana, dok je na slici 3. b) prikazana ista zavisnost ulja A1 ali za materijal polietileneraftalat.



Slika 3 - Zavisnost izlanske koncentracije ulja A1 od promene brzine fluida i permeabilnosti sloja a) za sloj vlakana PU b) za sloj vlakana PE.

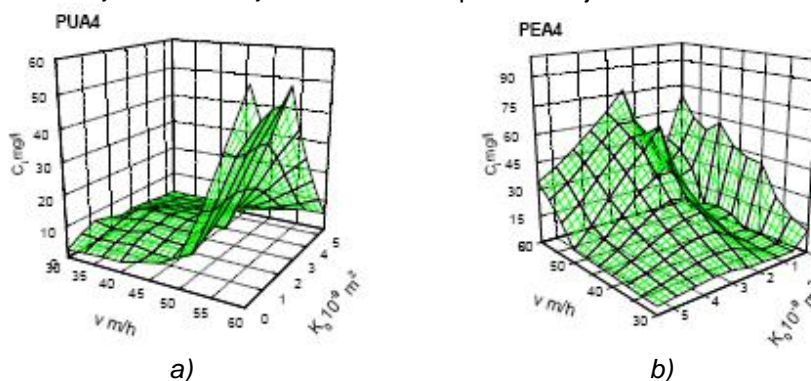
Lako je uočljivo da za oblast odabranih brzina fluida sloj PU ima usku regiju visoke efikasnosti separacije ulja A1 između 30 i 35 m/h, a da pri većim brzinama nije u mogućnosti da obavi uspešnu separaciju. Pri niskoj i visokoj permeabilnosti sloja i brzinama ispod 50 m/h izlazna koncentracija je takođe niska, ali su to uska područja i ne mogu se birati za rad uređaja. Kada je reč o sloju polietilena postoji uska oblast niskih izlaznih koncentracija ulja pri skoro svim brzinama ali samo za najnižu permeabilnost sloja. Na osnovu ovih rezultata može se uočiti da priroda ulja drastično utiče na efikasnost

separacije. Ulje A1 ima znatno nižu viskoznost od ulja A, niži neutralizacioni broj, veći i međupovršinski napon i manju molsku masu.

Separacija ulja A4, kao što se sa dijagrama vidi, slika 4, je efikasnija i to primenom oba filterna materijala. Vidimo da postoje široke oblasti brzina i permeabilnosti sloja u kojima se realizuju niske vrednosti izlazne koncentracije ulja, čak i ispod 10 mg/l. Vrednosti brzina su od 30 do 45 m/h, pa čak i do 50 m/h za sve permeabilnosti sloja. Međutim, uočljivo je da srednje vrednosti permeabilnosti pokazuju neki porast izlazne koncentracije koje rastu

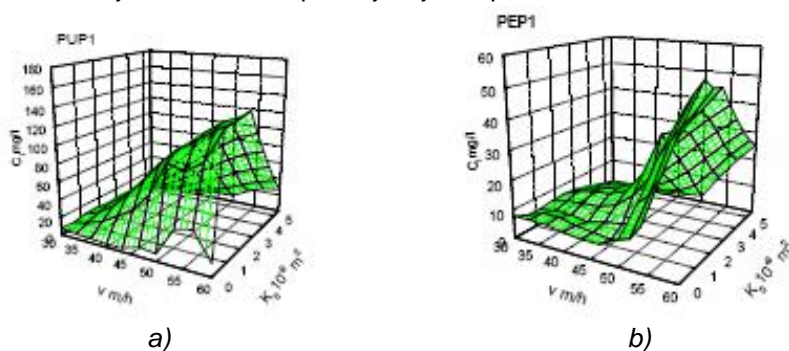
porastom brzine fluida, ovo je naročito važno za sloj PE. Treba ista i da ulje A4 ima najvišu viskoz-

nost, neutralizacioni broj i molsku masu od svih ispitivanih ulja.



Slika 4 - Zavisnost izlance koncentracije ulja A4 od promene brzine fluida i permeabilnosti sloja a) za sloj vlakana PU b) za sloj vlakana PE.

etvrti ispitivani uzorak ulja je ulje P1, koje je blend za razliku od prethodna dva ulja koja su frakcije nafte A. Na slici 5. prikazana je efikasnost separacije ulja P1 primenom oba filtarska materijala.

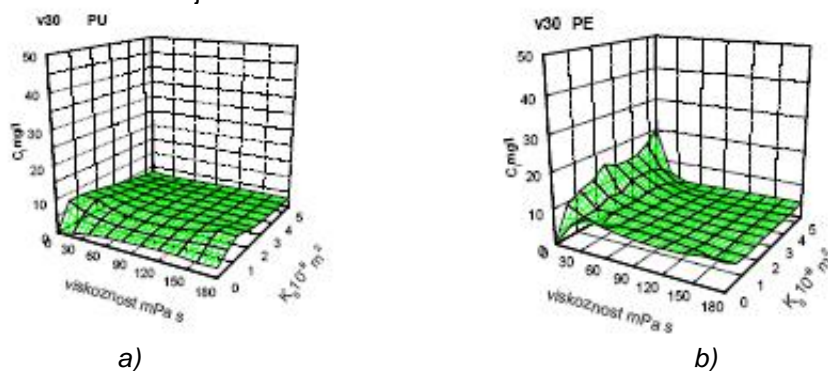


Slika 5 - Zavisnost izlance koncentracije ulja P1 od promene brzine fluida i permeabilnosti sloja a) za sloj vlakana PU b) za sloj vlakana PE.

Odabrani filtarski materijali pokazuju značajnu međusobnu razliku u efikasnosti separacije jedino pri separaciji ulja P1. Primenom polimera PE kao filtarskog medijuma, proces separacije je visoko efikasan za široki opseg brzina (ak do 50 m/h) i permeabilnosti sloja pri kojima je izlazna koncentracija ulja P1 niža od 10 mg/l. I kod ovog ulja srednje vrednosti permeabilnosti pokazuju blago povećanje izlance koncentracije koje rastu porastom brzine fluida. Kod poliuretana oblast efikasne separacije ulja P1 je izuzetno uska, i nalazi se samo pri brzinama od 30 do 35 m/h. Pojava maksimuma

izlance koncentracije pri srednjim vrednostima permeabilnosti ovde je drastično izražena i po svom obliku odgovara situaciji kao kod ulja A1.

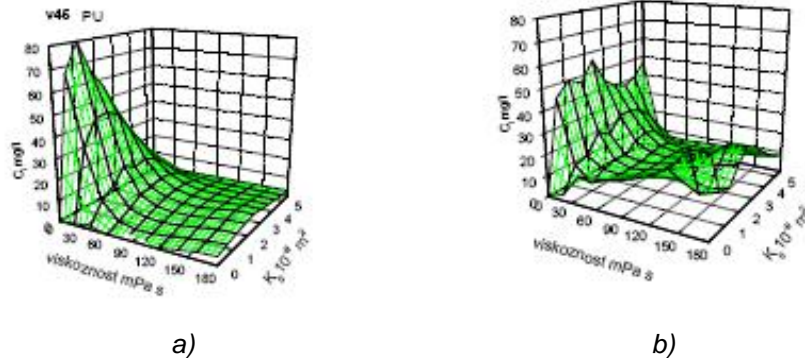
Naša prethodna istraživanja pokazuju da je viskoznost ulja osobina koja najadekvatnije prezentuje njegovo ponašanje kada se radi o separaciji koalescentnom filtracijom [9, 10, 19]. Iz tih razloga prikazali smo zavisnost izlance koncentracije ulja od njihove viskoznosti i permeabilnosti sloja pri konstantnoj brzini fluida od 30 m/h za oba filtarska materijala, slika 6.



Slika 6 - Zavisnost izlance koncentracije ispitivanih ulja od njihove viskoznosti i permeabilnosti sloja pri brzini fluida od 30 m/h, a) za sloj vlakana PU b) za sloj vlakana PE.

Možemo konstatovati da pri posmatranoj brzini fluida od 30 m/h sloj poliuretana, PU, efikasno separiše sva ispitivana ulja u celom opsegu permeabilnosti pri emu je izlazna koncentracija ulja niža od 10 mg/l. Prime uje se da se u oblasti najniže permeabilnosti javlja blagi maksimum izlazne koncentracije koji je odsutan kod separacije

slojem polietilena, PE. Pri istoj brzini fluida materijal PE uspešno separiše sva ulja osim ona sa najnižom viskoznošću, ulja A1 i P1. Kod tih ulja izlazna koncentracija prelazi preko 10 mg/l i to sve više što je permeabilnost sloja veća. Ako poredimo ova dva ispitivana materijala na brzini fluida od 45 m/h situacija je sledeća:



Slika 7 - Zavisnost izlanske koncentracije ispitivanih ulja od njihove viskoznošći i permeabilnosti sloja pri brzini fluida od 45 m/h, a) za sloj vlakana PU b) za sloj vlakana PE.

Kada je brzina fluida visoka, onda je hidrodinamička sila intenzivnija, i tada sloj poliuretana PU pokazuje izrazitu efikasnost separacije ulja visoke viskoznošći, to su ulja A i A4. Sloj polietilena, PE, pri ovoj brzini pokazuje nestabilnost i nižu efikasnost separacije svih ulja nezavisno od njihove viskoznošći. Postoje uske oblasti u kojima je vrednost izlazne koncentracije oko 10 mg/l.

Ura enje su jedna ine multiregresione analize za oba filtarska materijala. Za materijal PU dobijena je jedna ina zavisnosti izlazne koncentracije ulja od njegove viskoznošći, brzine fluida i permeabilnosti sloja koja glasi:

$$C_i \text{ PU} = 2.78397 \cdot 10^{-05} \mu^{-0.41879553} V^{3.292955896} K_0^{-0.09625023}$$

dok je za materijal PE jedna ina oblika:

$$C_i \text{ PE} = 6.96112 \cdot 10^{-05} \mu^{-0.18692355} V^{2.98825403} K_0^{-0.08542227}$$

Kod oba materijala je vidljivo da je brzina fluida dominantna veličina koja određuje izlaznu koncentraciju, iza toga je viskoznošć uljne faze, pa zatim permeabilnost sloja.

ZAKLJUČAK

Efikasnost separacije ulja izrazito zavisi od brzine fluida, geometrije sloja, prirode vlakana filtarskog materijala kao i prirode ulja. U tim okolnostima nije jednostavno projektovati koalescer za separaciju ulja. U ovom radu testirana su dva filtarska materijala poliuretan, PU, i polietilenteraftalat visoke gustine, PE, za separaciju četiri ulja različitih osobina. Generalno posmatrano materijal PU je efikasniji za separaciju posmatranih ulja od materijala PE. Uspešnije se separišu ulja više viskoznošći što

se može objasniti time da viskoznije ulje postojanije opstaje u zapremini sloja kao zasićena faza koja i dominantno uslovljava koalescenciju i efikasnost separacije.

Zahvalnica

Ovaj rad je ura en uz finasijsku pomoć Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (projekat br.172022).

REFERENCES

- [1] Spielman, L. A., Separation of finely dispersed liquid-liquid suspensions by flow through fibrous media, Ph. D. Dissertation, University of California, Berkeley, 1968.
- [2] Spielman, L. A., Goren, S. L. *Env. Sci. Technol.*, 1968, 2, 4, 279-287.
- [3] Spielman, L. A., Goren, S. L., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 1972, 11, 1 66-72.
- [4] Spielman L. A., Goren S. L., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 1972, 11, 1, 73-83.
- [5] Spielman, L. Goren S. L. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 1970, 62, 10, 11-24.
- [6] Spielman, L. A., Su, Y. P., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 1977, 16, 2, 272-282.
- [7] Sokolovi, S. M.; Še erov Sokolovi, R. M.; Putnik, S. *Env. Technol. Lett.*, 1992, 13(10), 987
- [8] R. Še erov Sokolovi, S. Sokolovi, (2004) Effect of the Nature of Different, Polymeric Fibers on Steady-State Bed Coalescence of an Oil-in-Water Emulsion, *Ind. Eng. Chem. Res.* **43**, 6490-6495.
- [9] Še erov Sokolovi R. M., Sokolovi S.M, Ševi S. N., Mihajlović S., *Sep. Sci. Technol.* 1996, 31, 2089-2104.

- [10] R. M. Še erov Sokolovi , D. D. Govedarica, D. S. Sokolovi , (2010) Separation of oil- in-water emulsion using two coalescers of different geometry, J. Hazard. Mater. **175**, 1001–1006.
- [11] Še erov Sokolovi R., Sokolovi S., Đokovi B., Ind. Eng. Chem. Res. 1997, 36, 11, 4949-4953.
- [12] R. Še erov Sokolovi , O. Stanimirovi , S. Sokolovi , (2003) Uticaj promene nasipne gustine na osobine sloja vlaknastih materijala, Hem.Ind. **57** (7-8) 335-340.
- [13] R. Še erov Sokolovi , T. Vuli , S. Sokolovi , R. Marinkovi Nedu in, (2003) Effect of Fibrous Bed Permeability on Steady-State Coalescence, Ind. Eng. Chem. Res. **42**, 3098-3102.
- [14] R. Še erov Sokolovi , T. Vuli , S. Sokolovi , (2007) Effect of Bed Length on Steady-State Coalescence of Oil-in-Water Emulsion, Sep. Purif. Technol. **56**, 79-84.
- [15] Še erov Sokolovi R., Sokolovi S. Chem. Ind. 1995, 49, 2.
- [16] R. Še erov Sokolovi , T. Vuli , S. Sokolovi , (2006) Effect of Fluid Flow Orientation on the Coalescence of Oil Droplets in Steady-State Bed Coalescers Ind. Eng. Chem. Res. **45** 3891-3895.
- [17] Še erov Sokolovi R., Sokolovi S., Vlaši M., Galešev B., Voda i sanitarna tehnika, 1989, 9, 3, 41-44.
- [18] Še erov Sokolovi R., Sokolovi S., Ševi S., Hem. Ind.1994, 11, 315-318.
- [19] R. Še erov Sokolovi , S. Sokolovi , S. Ševi , (2009) Oily water treatment using a new steady-state fiber-bed coalescer, J. Hazard. Mater. **162** 410–415.
- [20] Še erov Skolovi R, Sokolovi S., Koalescencija u poroznom sloju-Teorija i praksa, Tehnološki fakultet, Novi Sad, 1999
- [21] R. Še erov Sokolovi , S. Sokolovi , (2004) Višefazni sistemi i porozni sloj, Hem. Ind. **58** (2) 49-54.

ABSTRACT

SEPARATION OF DISPESED OIL USING FIBER BED COALESCER

Although coalescers with fibers bed used in the industry for more than half a century, its design still requires experimental work. It is very hard to obtain some lasting relationships and interdependencies. Two-phase flow system (liquid / liquid dispersion) through the porous bed is quite complex and unknown. Fiber bed is a layer of high porosity, up to 98%, disordered structure; it is completely different from the bed of granular material that is still the focus of researchers modeling. Polymer fibers are elastic and their bed can compress provide different geometry. When you are looking to accomplish separation of different oil from waste water efficiency of different polymers can be extremely high for one oil, and low for another. This paper presents some results of the separation of different oils using fibers of different polymers. The experiments were performed in a laboratory device in the horizontal orientation of fluid flow, which in our studies proved the most effective. Model emulsion was prepared in drinking water at room temperature with 500 mg / l of dispersed mineral oil stirring constantly to obtain the average droplet size in the range of 10 μ m.

Keywords: oily water, bed coalescer, separation.

Scientific paper

Received for Publication: 11. 07. 2013.

Accepted for Publication: 13. 10. 2013.