

Gyógyszeripari reaktor hűtőközeg-cseréjének a hatása a hőátadásra metanol- és etilénlikol-oldatok esetén

Impact of Coolant Type on Heat Transfer Coefficient in Reactor Jacket

Dr. POÓS Tibor¹, SZIGEDI András².

¹Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Gépészmérnöki Kar, Épületgépészeti és Gépészeti Eljárástechnika Tanszék, H-1111 Budapest, Műegyetem rkp. 3., D épület 110., Tel.: +36 1 463 2529, www.epget.bme.hu, poos.tibor@gpk.bme.hu

²Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Gépészmérnöki Kar, Épületgépészeti és Gépészeti Eljárástechnika Tanszék, H-1111 Budapest, Műegyetem rkp. 3., D épület 110., Tel.: +36 1 463 2529, www.epget.bme.hu, andras.szigedi@gmail.com

Abstract

Most chemical reactions are conducted in stirred-tank reactors, which may require cooling in cases of exothermic reactions. Our study, based on equations from the literature, investigated the difference between the heat transfer coefficients of methanol and ethylene glycol solutions under identical operating parameters in conventional jackets. The relative difference in heat transfer coefficients ranged from 10% to 35%, depending on several parameters.

Keywords: heat transfer coefficient, jacket, heat transfer fluid, ethylene glycol, methanol

Kivonat

A kémiai reakciók jelentős részét keverős autoklávokban végzik, amelyeknél, hőtermelő folyamatok esetén, a reaktor hűtése szükséges. A kutatásunk során vizsgáltuk a szakirodalomban fellelhető egyenletek segítségével a duplikált falú reaktorok köpenyterében a hőátadási tényezők közötti eltérést metanol- és etilénlikol-oldatok alkalmazása esetében, azonos üzemeltetési paraméterek mellett. A hőátadási tényezők közötti relatív eltérés számos paramétertől függően 10% és 35% között változott.

Kulcsszavak: hőátadási tényező, köpenytér, hűtőközeg, etilénlikol, metanol

1. BEVEZETÉS

A gyógyszeriparban jellemzően előforduló, különböző névleges térfogatú duplikáltfalú kialakítású keverős tartályoknál (későbbiekben: reaktor) gyakran alkalmaznak metanol- vagy etilénlikol-oldatokat hőközvetítő közegként. Metanololdat használata kevésbé drága [1], valamint alacsonyabb viszkozitása miatt kisebb nyomásesést és jobb hőközvetítést biztosít. Ennek ellenére kiemelten toxikus és gyúlékony anyag, ami miatt a munka- és tűzvédelmi szabályok is szigorúbban vonatkoznak rá. Az etilénlikol-oldat ezzel szemben viszkozusabb, így rosszabb szivattyúzhatósággal, és hőátadással rendelkezik. Valamennyire ez is toxikus, de a metanolnál csekélyebb mértékben.

Az ASHRAE kézikönyvben [2] már számos hűtőközeg esetén szerepelnek csőben történő áramlásra meghatározott hőátadási tényező értékek adott üzemeltetési paraméterek esetén, beleértve az etilénlikol- és metanololdat is. Az ismertetett a metanol- és etilénlikol-oldatok közel azonos fagyáspontúak, de a hőátadási tényező kb. 14,2%-kal rosszabb etilénlikol-oldat esetén. A köpenytér viszont nem fogható fel csőben történő áramlasként, egyszerűsített modellként a köpenytér leírható a folyadék körgyűrűben történő, függőleges irányú áramlasként, amelyre az irodalom több összefüggést [3–5] is létrehozott. Ezek közül a munkánkban a Dittus-Boelter [3] összefüggést használtuk turbulens áramlásra ($Re > 10000$), illetve a a Sieder-Tate [4] féle összefüggést lamináris áramlásra ($Re < 2300$). Átmeneti tartományra nincs egyértelmű összefüggés, így egyetlen lehetőség a turbulens és lamináris esetre kapott eredmények lineáris interpolálása. Azonban a szakirodalomban megtalálhatóak olyan hőátadási tényezőt leíró egyenletek, amelyeket kifejezetten a duplikáltfalú köpenytérre hoztak létre [5–8]. A leíró egyenleteket az 1. táblázat tartalmazza.

A duplikatúra köpeny hőtáadását leíró egyenletek

1. táblázat

Referencia	Leíró egyenlet	Információ
Dittus-Boelter 1930	$Nu_{D-B} = 1.86 \left(Re Pr \frac{D}{L} \right)^{\frac{1}{3}} Vi^{0.14}$	Körgyűrű; hidraulikus egyenértékű átmérő; függőleges irányú sebesség; $Re > 10000$
Sieder-Tate 1936	$Nu_{S-T} = 0.023 Re^{0.8} Pr^{\frac{1}{3}} Vi^{0.14}$	Körgyűrű; hidraulikus egyenértékű átmérő; függőleges irányú sebesség; $Re < 2300$.
Lehrer 1970	$Nu_{Lehrer} = \frac{0,03 Re_{Lehrer}^{0.75} Pr}{1 + \phi(Pr - 1)} Vi^{0.14}$	Sebesség, karakterisztikus méret egyénilag definiálva $9000 < Re < 40000$
Stein and Schmidt 1993	$Nu_{S\&S} = \left(\sqrt[3]{Nu_A^3 + Nu_B^3 + Nu_C^3 + Nu_D^3} \right) Vi^{0.14}$	Sebesség, karakterisztikus méretek egyénilag definiálva
Garvin 1999	$Nu_{Garvin} = \begin{cases} 0.0192 Re^{0.795} Pr^{0.495} e^{-0.0225 [\ln(Pr)]^2} Ge Vi^m \{ 1 + 0.059 [Re(D/d_c)^2]^{0.34} \} & ha Re > 15000 \\ 0.984 X \left(1 - \frac{1.48}{X} + \frac{23.2}{X^2} - \frac{120}{X^3} + \frac{212}{X^4} \right) Vi^{0.14} & ha Re \leq Re_b \end{cases}$	Függőleges irányú sebesség hidraulikus egyenértékű átmérő
Kumar 2021	$Nu = 0.00762 Re^{0.66} Ra^{0.34} Pr^{0.33} \left(\frac{W_j}{d_{in}} \right)^{0.935}$	Függőleges irányú sebesség hidraulikus egyenértékű átmérő

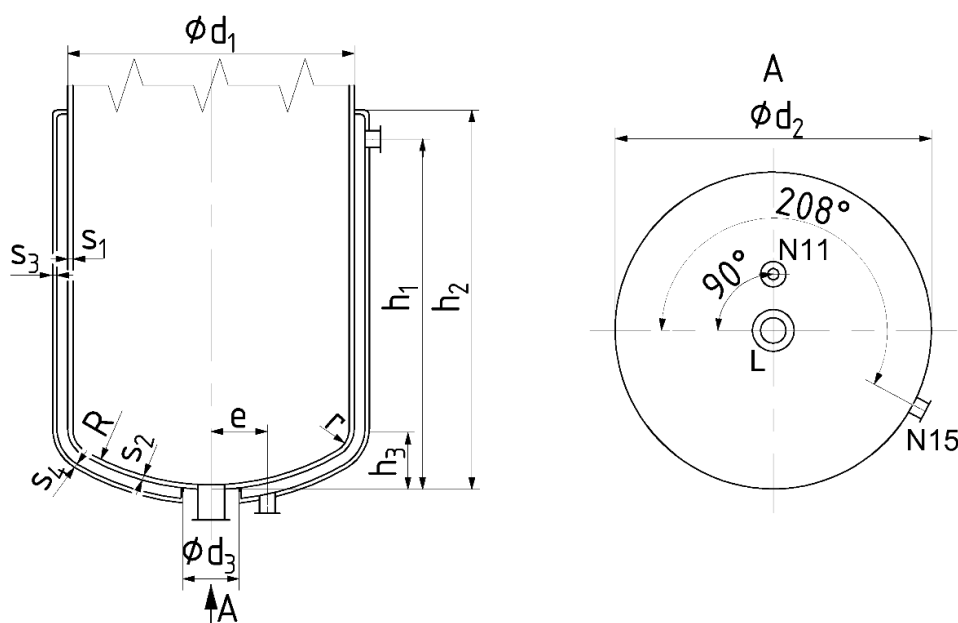
Feladatunk során meghatároztuk, hogy a 28 V/V%-os metanololdat kiváltása hasonló fagyáspontú etilén-glikol-oldatra, hogyan befolyásolja a köpenyterben a hőátadási tényező változását. A vizsgálatokat teoretikusan végeztük. Megvizsgáltuk azt is, hogy az eredeti, metanololdatra vonatkozó hőátadási tényező milyen változtatásokkal érhető el az új hűtőközeg esetén.

2. VIZSGÁLT BERENDEZÉS, ANYAGOK, MÓDSZER

Kutatásunk során a két különböző hűtőközegről vonatkozó hőátadást három különböző méretű reaktor esetén vizsgáltuk, különböző üzemi állapotok mellett.

2.1. Vizsgált berendezés

A továbbiakban **630 l**; **2500 l** és **6300 l** névleges űrtartalmú, duplikatúrás AE típusú reaktorokat vizsgáltunk. A geometriai adatok elérhetősége miatt De Dietrich gyártmányú reaktorokra [10] kiadott katalógust használtuk fel. A köpenyter termodinamikai vizsgálatához szükséges méreteket az 1. ábra szemlélteti.



1. ábra. A duplikatúrás köpenyter leírásához szükséges geometriai adatok

Az 1. ábrán megadott méretek alapján minden olyan méret rendelkezésre áll, ami ahhoz kell, hogy a reaktor 3D modellje (geometria) elkészíthető legyen, ezáltal modellezni lehessen a köpenyteret. Azonban az analitikus módszerhez elegendő a 2. táblázatban szereplő geometriai méretek a reaktorokról.

A számításokhoz szükséges adatok a vizsgált reaktoroknál mm-ben

2. táblázat

Reaktor	d_1	d_2	s_3	d_{N11}	h_2
AE630	1000	1100	6	51,2	1000
AE2500	1600	1700	8	51,2	1600
AE6300	2000	2100	10	82,5	2500

2.2. Hűtőközegek

A Methanol Institute weblapján [11] található diagram segítségével megállapítottuk, hogy a vizsgált 28 V/V%-os metanololdat -18°C -os fagyásponttal rendelkezik, és a tömegtört-koncentrációja 22,5 m/m%-nak felel meg. A metanololdat tulajdonságai a VDI Heat Atlasban [12] találhatóak. Ebben a könyvben, valamint az etilén-glikol gyártók (DOW [13], Mokon [14], Dynalene [15], WITTIG [16]) által közzétett táblázatokban megfigyelhető, hogy a metanololdathoz hasonló fagyásponttal a ~ 35 V/V% etilén-glikol-oldat rendelkezik. A két oldat tulajdonságai a hivatkozott táblázatokban bizonyos koncentráció és hőmérséklet közönségenként vannak megadva. Ennek megfelelően a vizsgált oldatok hőtechnikai tulajdonságait bilineáris interpoláció segítségével

határoztuk meg. A téma szempontjából a Glysofor N típusú oldat biztosítja a releváns adatokat, mert megadja a -20°C fagyáspontú oldat tulajdonságait a fagyáspont hőmérsékletének közelében. Emiatt ezzel az oldattal a számításokat extrapoláció nélkül lehetett elvégezni.

A két oldat esetében a $-16,1^{\circ}\text{C}$ alkalmazási hőmérsékletre tartozó fizikai és hőtani tulajdonságokat a 3. táblázat tartalmazza. Megfigyelhető, hogy mindegyik, a hőátadás szempontjából fontos tulajdonság eltérő a két oldat esetén. Ezek a tulajdonságok felhasználásra kerülnek a dimenzió nélküli egyenletekben is, így a hűtőközegekre meghatározott hőátadási tényező értékek is eltérőek egymástól. A két oldat tulajdonságai közül legjobban a viszkozitás tér el egymástól, amely nemcsak a hőátadást, hanem a szivattyúzási energiaszükségletet is befolyásolja.

A $-16,1^{\circ}\text{C}$ -os metanol és etilénlikol-oldat hőtechnikai tulajdonságai

3. táblázat

	Metanololdat 28 V/V%	Etilénlikol-oldat 35 V/V%	δ [%]
Sűrűség, ρ $\left[\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}\right]$	1014	1067	5,2
Fajhő, c_p $\left[\frac{\text{J}}{\text{kg}^{\circ}\text{C}}\right]$	4011	3545	11,6
Hővezetési tényező, λ $\left[\frac{\text{W}}{\text{m}^{\circ}\text{C}}\right]$	0,445	0,417	6,3
Din. viszkozitás, η [mPas]	7,18	11,53	60,6

2.3. Vizsgálati módszer

A leíró egyenletek [5-8] csak bizonyos geometriákra és üzemi tartományokra érvényesek, ezért valós rendszereknél kísérleti validálás szükséges. Mivel a kutatásunk elsődleges célja a hűtőközegek (metanol- és etilénlikol-oldatok) összehasonlítása, így a legnagyobb hangsúly a relatív eltérésen és nem feltétlen a hőátadási tényezők pontos értékeinek meghatározásán van. Gyakran előfordul, hogy az egyenletek eltérő eredményeket adnak a hőátadási tényezőre, viszont a hasonló relatív eltérés többféle rendszerre adhat megalapozott következtetést.

Az öt vizsgált megközelítés során kiderült, hogy a Kumar et al. [9] által javasolt összefüggés nagyságrendileg sem elfogadható eredményt ad, így a további számítások során azt nem alkalmaztuk. Abban az esetben, ha rendelkezésre állnak valós mérési eredmények, validálni lehet, hogy melyik összefüggés írja le legjobban a vizsgált reaktort. Mivel esetünkben nem állt rendelkezésre minden mérési adat, így mi a négy számítási módszerrel kapott hőátadási tényezők átlagát vettük alapul, amelyből számítottuk az átlagos hőátadási tényezők relatív eltérését. A bemenő adatok közül a hűtőközeg belépési hőmérsékletet $-16,1^{\circ}\text{C}$ -nak vettük és az áramlásnál feltételeztük, hogy a körgyűrűben levő oldat átlagos függőleges irányú sebessége $0,1 \text{ m/s}$.

3. EREDMÉNYEK

A 4. táblázat foglalja össze a metanololdat és etilénlikol-oldatra a hőátadási tényezőket, továbbá azok egymáshoz képesti eltérését, azonos üzemeltetési feltételek mellett. A táblázatban szerepel a felvett $0,1 \text{ m/s}$ -os áramlási sebességhez tartozó köpenytéri térfogatáram is.

Hőátadási tényezők és relatív eltérésük $-16,1^{\circ}\text{C}$ belépési hőmérsékletű hűtőközegek esetén

4. táblázat

Reaktor	\dot{V}_{in} [m^3/s]	$\bar{\alpha}_{metanol}$ [$\text{W}/\text{m}^2/\text{K}$]	$\bar{\alpha}_{glikol}$ [$\text{W}/\text{m}^2/\text{K}$]	$\delta\bar{\alpha}$ [%]
AE 630	0,01443	249	199	20,3
AE 2500	0,02167	231	174	24,5
AE 6300	0,02564	202	157	22,3

A 4. táblázatban található átlagos hőátadási tényezők minden reaktor esetén a metanololdat adott nagyobb értéket az etilénlikol-oldathoz képest. Ha a vizsgált három reaktortípusnál kapott eltéréseket

átlagoljuk, akkor elmondható, hogy közel 22%-kal romlik a hőátadási tényező értéke etilén-glikol-oldat esetén, ha minden más üzemi paramétert azonos értéken tartunk, mint metanololdatnál volt. Megfigyelhető továbbá, hogy a legkisebb és legnagyobb vizsgált reaktor összehasonlításakor a nagyobb reaktor alkalmazása esetén a hőátadási tényező nagyjából 20%-kal csökken. Az 5. táblázatban megadtuk, hogy mekkora térfogatáram esetén lesz az etilén-glikol-oldatra számított hőátadási tényező közel azonos a metanololdatével.

A hőátadási tényező kompenzálásához szükséges térfogatáram

5. táblázat

Reaktor	\dot{V}_{in} eredeti [m ³ /s]	\dot{V}_{in} kompenzált [m ³ /s]	$\delta\dot{V}_{in}$ [%]
AE 630	0,01443	0,02053	42,3
AE 2500	0,02167	0,02772	27,9
AE 6300	0,02564	0,03705	44,5

4. ÖSSZEFOGLALÁS

Megvizsgáltuk több szakirodalmi dimenzió nélküli egyenlet segítségével, hogy egy esetleges hűtőközegcsere metanololdatról etilén-glikol-oldatra, milyen hőátadási tényező változással járhat köpenyteres reaktor esetén. A szakirodalomnak megfelelően az etilén-glikol-oldat – többek között a nagyobb viszkozitása miatt – rosszabb hőátadást eredményez a metanololdathoz képest ($\delta\bar{\alpha} = 20 - 25\%$) a vizsgált üzemeltetési adatok, peremfeltételek és reaktor típus mellett.

Az etilén-glikol-oldat fizikai, hőtani tulajdonságai gyártóktól függően is eltérőek a különböző adalékanyagok hozzáadása miatt. Problémát jelentett az oldattulajdonságok meghatározása során, hogy számos gyártó nem tett közzé adatot 0°C alatti alkalmazásra. Így csak azoknak a gyártóknak az adatait használtuk fel, amelyek ez alatti értékeket is közöltek. Az egyes gyártói oldatok összehasonlítása során megállapítottuk, hogy egymástól némileg eltérő, de bizonyos esetekben elhanyagolható eltérés van az oldatok tulajdonságaiban.

Összességében elmondható, hogy etilén-glikol-oldat használatával – metanololdat helyett – a vizsgált üzemeltetési adatok és feltételek mellett, rosszabb hőátadási tényező érhető el. A számítási modelleknél a két oldat közötti hőátadási tényezőbeli eltérés nem ugyanolyan. Viszont ahhoz, hogy validálni lehessen, hogy melyik modell írja le hőtanilag legjobban a reaktor köpenyterét, mérések szükségesek.

KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Köszönjük az Egis Gyógyszergyár Zrt.-nek a projektben nyújtott anyagi támogatását. A munka a Bolyai János Kutatási Ösztöndíj (BO/00059/23/6) és a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatalnak (NKFIH FK-142204) támogatásával készült.

IRODALMI HIVATKOZÁSOK

- [1] Perry RH., Green DW., Maloney JO. Perry's chemical engineers' handbook. McGraw-Hill; 1997.
- [2] 2022 ASHRAE handbook. Refrigeration. ASHRAE; 2022.
- [3] Dittus FW, Boelter LMK. Heat transfer in automobile radiators of the tubular type. University of California Publications in Engineering. 1930;2:443–61.
- [4] Sieder EN, Tate GE. Heat Transfer and Pressure Drop of Liquids in Tubes. Ind Eng Chem. 1936;28:1429–35.
- [5] Gnielinski V. New Equations for Heat and Mass Transfer in Turbulent Pipe and Channel Flow. Int Chem Eng. 1976;16:359–68
- [6] Lehrer IH. Jacket-Side Nusselt Number. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development. 1970;9:553–8.
- [7] Alexander Stein W, Schmidt W. Wärmeübergang auf der Wärmeträgerseite eines Rührbehälters mit einem einfachen Mantel. Forsch Ingenieurwes. 1993;59:73–90.
- [8] Garvin J. Understand the thermal design of jacketed vessels. Chem Eng Prog. 1999;95:61–8.
- [9] Kumar A, Joshi JB, Vitankar V. Numerical simulations of jacket side thermal-hydraulic performance for large stirred vessels. Numer Heat Transf A Appl. 2021;79:513–36.
- [10] De Dietrich Process Systems: Products Portfolio: Glass-Lined Technology & Other Materials. 2014.

- [11] Methanol Institute: Freezing Points Methanol-Water Solutions. methanol.org (Utolsó letöltés: 2025.08.02).
- [12] VDI Heat Atlas. Second Edition. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg; 2010.
- [13] DOW: DOWTHERM 4000 Technical Data Sheet. <https://www.dow.com/en-us/document-viewer.html?randomVar=410918219924197395&docPath=/content/dam/dcc/documents/180/180-01313-01-dowtherm-4000-tds.pdf>. (Utolsó letöltés: 2025.08.18).
- [14] MOKON: Heat Transfer Fluid - Ethylene Glycol Technical and Engineering Data. <https://www.mokon.com/products/fluids/glycol-solutions/>. (Utolsó letöltés: 2025.08.18).
- [15] Dynalene: Dynalene EG Technical Data Sheet. <https://www.dynalene.com/product-category/heat-transfer-fluids/ethylene-glycol-series/>. (Utolsó letöltés: 2025.08.18).
- [16] WITTIG Umweltchemie GmbH.: Glysofor N – Specification. <https://www.glysofor.de/en/downloads/>. (Utolsó letöltés: 2025.08.18).