

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ
СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ

Ведь Олена Валеріївна



УДК 66.097:519.2:504.064(043.3)

**ОЦІНКА ЕКОЛОГІЧНОСТІ ПРОЦЕСІВ ОЧИЩЕННЯ ГАЗОВИХ
СУМІШЕЙ НА БАЗІ КОМПЛЕКСНОЇ МОДЕЛІ КАТАЛІТИЧНОГО
ПЕРЕТВОРЮВАЧА**

Спеціальність 21.06.01 – екологічна безпека

Автореферат
дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата технічних наук

Суми – 2020

Дисертація є кваліфікаційною науковою працею на правах рукопису.
Робота виконана на кафедрі розподілених інформаційних систем і хмарних технологій Національного технічного університету «Харківський політехнічний інститут».

Науковий керівник – доктор технічних наук, професор
Козуля Тетяна Володимирівна,
Національний технічний університет
«Харківський політехнічний інститут»
Міністерства освіти і науки України,
професор кафедри програмної інженерії та
інформаційних технологій управління, м. Харків.

Офіційні опоненти: доктор технічних наук, професор
Третьяков Олег Вальтерович,
Харківська державна академія фізичної культури
Міністерства освіти і науки України,
професор кафедри медичних дисциплін та охорони
здоров'я, м. Харків;

доктор технічних наук, доцент
Гурець Лариса Леонідівна,
Сумський державний університет
Міністерства освіти і науки України,
доцент кафедри прикладної екології, м. Суми.

Захист дисертації відбудеться 19 червня 2020 року о 15 год 00 хв на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 55.051.04 у Сумському державному університеті за адресою: 40007, м. Суми, вул. Римського-Корсакова, 2, корп. «Ц», ауд. 219.

Із дисертацією можна ознайомитися у бібліотеці Сумського державного університету за адресою: 40007, м. Суми, вул. Римського-Корсакова, 2, та на сайті спеціалізованої вченої ради Д 55.051.04 за електронною адресою: <https://sumdu.edu.ua/uk/science/science-info/scientific-infrastructure/specialized-council/102-55-051-04.html>.

Автореферат розісланий 18 травня 2020 року.

Учений секретар
спеціалізованої вченої ради Д 55.051.04

І.Ю. Аблеєва

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Екологічний стан навколишнього середовища в Україні визначається значним техногенним тиском на атмосферне повітря, що обумовлено розвитком соціально-економічного потенціалу країни, недосконалістю систем газоочищення та високим рівнем зносу очисного обладнання на існуючих промислових виробництвах, недостатньою увагою до питань захисту атмосферного повітря при впровадженні інноваційних науково-технічних розробок і збільшенні транспортних артерій.

Надходження шкідливих речовин в атмосферу, відповідно до статистичних даних за 2018–2019 роки, від різних техногенних джерел становило близько 60 млн. тонн, у тому числі 20 млн. тонн за рахунок емісії. Особливо критичною є ситуація в промислових регіонах країни, які визначаються високим рівнем споживання різноманітних видів палива, розвитком технологій виробництва продукції з нафтогазової сировини та підприємств із переробки відходів.

Таким чином, виникає необхідність розробки комплексної системи для контролю якості атмосферного повітря на базі математично-програмної моделі процесів нейтралізації екологічно небезпечних речовин викидів.

Для підвищення рівня екологічної безпеки викидів промислових виробництв доцільним є застосування попереджувальних заходів щодо утворення викидів та зменшення рівня їх небезпечності завдяки впровадженню сучасних комп'ютерно-технологічних рішень. Дієвість таких заходів пов'язана з можливістю їх оперативного корегування на підставі даних спостережень за перебігом перетворення газових небезпечних сумішей під час роботи з математичною моделлю опису процесів у каталітичних апаратах різної конструкції, які запроваджені на виробництвах і очисних спорудах.

Застосування комплексного підходу до математичного моделювання процесів каталітичної нейтралізації екологічно небезпечних сумішей та чисельного розв'язання розроблених моделей очищення викидів на прикладі їх утворення в двигунах із іскровим запалюванням і технологіях переробки відходів є науково-практичною задачею дисертаційної роботи.

Актуальність такої роботи підсилюється можливістю комплексного вирішення завдань контролю якості відхідних газів завдяки прогнозним розрахункам оцінки ступеню перебігу нейтралізації шкідливих газових домішок на основі розробленої блочно-рівневої моделі каталізу для певних конструкцій запропонованого каталітичного перетворювача.

У дисертації надані моделі процесів конверсії вихідних газових сумішей, що системно враховують змінності гідродинамічних параметрів, особливості тепловиділення і масопереносу в каталітичних пристроях, які залишаються поза увагою в сучасних моделях такого рівня досліджень і

визначають новий підхід до розв'язання задач захисту атмосферного повітря з позицій екологічної безпеки народногосподарських об'єктів.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.

Основні завдання дисертаційної роботи згідно з постановкою задачі досліджень щодо питань екологічної безпеки, методів і засобів їх розв'язання цілком відповідають положенням Закону України «Про охорону атмосферного повітря», Постанові Верховної Ради України «Про основні напрями державної політики України в сфері охорони навколишнього середовища, використання природних ресурсів та забезпечення екологічної безпеки», Стратегії державної екологічної політики України на період до 2030 року та Концепції Загальнодержавної програми поводження з відходами на 2013–2020 рр.

Основні дослідження дисертаційної роботи виконувались відповідно до тематики науково-дослідних робіт Національного технічного університету «Харківський політехнічний інститут», зокрема з виконання держбюджетних тем «Теоретичні основи енергозберігаючої інтеграції процесів та технології зменшення шкідливих викидів для промислових підприємств» (номер державної реєстрації 0103U001521); НДР «Создание теоретических основ нормирования потребления энергоресурсов и уменьшения газовых выбросов методом интеграции процессов» (номер державної реєстрації М 4418 № 0109 U002404); НДР «Создание теоретических основ логистики энергоэффективности и ресурсосбережения для обеспечения энергетической и экологической безопасности промышленных комплексов с химико-технологическими системами» (номер державної реєстрації М 4419 № 0112U000409); договірної роботи № 44526 за темою «Разработка методов синтеза сложных теплоэнергетических систем и создание материалов-носителей катализаторов с заданными физическими свойствами», замовник ТОВ «Науково-дослідний інститут «Казахстан інжиніринг», м. Астана, Республіка Казахстан; договірної роботи № 44615 за темою «Создание интегрированных технологий производственных комплексов Республики Казахстан для обеспечения их энергоресурсоэффективности и экологической безопасности» для ТОВ «Research & Development центр «Казахстан інжиніринг», м. Астана, Республіка Казахстан; договірної роботи «Создание интегрированных технологий производственных комплексов Республики Казахстан для обеспечения их энергоресурсоэффективности и экологической безопасности» відповідно до міжнародного проекту DISKNET – «Distributed Knowledge-Based Energy Saving» за контрактом № FP7 – PEOPLE 2011-IRSES-294933.

Мета і завдання дослідження. *Мета роботи* полягає у підвищенні рівня екологічної безпеки атмосферного повітря шляхом зменшення надходжень шкідливих газових домішок завдяки керуванню каталітичним

процесом їх нейтралізації на базі розробленої комплексної блочно-рівневої математичної моделі каталізу. Для досягнення зазначеної мети дослідження поставлені та вирішені такі завдання:

1) надати системний аналіз стану розв'язання задач екологічної безпеки атмосферного повітря щодо підвищення ефективності каталітичного очищення шкідливих домішок викидів на базі удосконалення техніко-технологічного контролю якості охорони атмосферного повітря на об'єктах підвищеної небезпеки;

2) визначити основні досягнення математичного моделювання каталітичних процесів з розв'язання задач підвищення їх екологічної ефективності на базі керованого контролю перебігу каталізу з нейтралізації небезпечних викидів відповідно до прогнозних розрахунків за математичною моделлю опису процесів на поверхні каталітичного носія;

3) сформувати комплексну модель конверсії газових сумішей в об'ємі каталітичного перетворювача на основі математичного опису перебігу процесів тепловиділення, масоперенесення, змін складу багатокомпонентного газового потоку за об'ємом внутрішнього середовища робочого зразка каталітичного пристрою;

4) розробити тривірневу математичну модель для опису процесів нейтралізації шкідливих речовин у екологічно безпечні газові суміші відповідно до зонування каталізатора за стадіями перетворення шкідливих домішок в об'ємі твердого носія;

5) теоретично обґрунтувати принципи комплексного подання процесів каталітичної трансформації шкідливих газових викидів в об'ємі перетворювача з урахуванням особливостей гідродинаміки потоків, тепло- та масообміну протягом перебігу процесів очищення;

6) надати оцінку екологічної ефективності застосування розробленої математичної моделі для керування процесами нейтралізації у спроектованому конвекторі для двигунів з іскровим запалюванням та сміттєпереробного устаткування з метою зменшення впливу шкідливих домішок на стан атмосферного повітря;

7) розробити інформаційно-програмне забезпечення для автоматичного контролю екологічної якості перебігу процесів нейтралізації небезпечних домішок у каталітичному перетворювачі.

Об'єкт дослідження – процеси каталітичної нейтралізації екологічно небезпечних компонентів випускних газових сумішей.

Предмет дослідження – оцінка екологічності очищення випускних газів на основі математичного моделювання процесів каталітичного перетворення газових домішок у перетворювачах небезпечних викидів в атмосферне повітря.

Методи дослідження. Теоретичні аспекти дисертаційної роботи ґрунтуються на математичному моделюванні процесів хімічної кінетики на

основі системи диференційно-алгебраїчних рівнянь і газової динаміки за диференційними рівняннями розподілу теплових потоків у просторово-часовому вимірі; на використанні розрахункових систем відповідно до конструкційних особливостей каталітичних перетворювачів.

Лабораторні дослідження у роботі проводилися із застосуванням експериментального стенду для вивчення кінетичних та газодинамічних параметрів каталітичних процесів очищення газів за результатами вивчення перебігу реакцій нейтралізації відповідно до положень теорій сорбції, дифузії, моделювання багатофазних перетворень.

Обробка експериментальних даних і чисельне моделювання побудованих математичних моделей здійснено за допомогою комп'ютерних технологій на базі програмних комплексів: EXCEL 2018, MATLAB R2018, STATISTICA 6.1, CANTERA, PYTHON 3.7, COREL DRAW X8, VISIO 2018.

Наукова новизна одержаних результатів полягає у теоретично-прикладному обґрунтуванні комплексної моделі каталітичної нейтралізації газових домішок у каталітичному перетворювачі для визначення техніко-технологічних умов досягнення високого рівня якості захисту атмосферного повітря, що дозволило отримати такі наукові результати:

- уперше розроблена трирівнева математична модель опису каталітичного перетворення багатокомпонентної шкідливої газової суміші в екологічно безпечний вихідний потік на поверхні та в об'ємі каталітичного носія;

- уперше з метою підвищення рівня екологічної безпеки процесу очищення шкідливих речовин викидів запропонована комплексна система дослідження кінетики перебігу каталітичних процесів у розробленому перетворювачі з нейтралізації екологічно небезпечних газових домішок атмосферного повітря за блочним принципом організації внутрішнього його середовища, що дозволило оптимізувати конструкцію перетворювача відповідно до умов роботи та знизити вміст домішок до 70 % у порівнянні з викидами від штатного каталітичного устаткування на підставі прогнозних розрахунків щодо ефективності перебігу каталізу;

- уперше отримані нові експериментальні та розрахункові результати з контролю умов перетворення екологічно небезпечних викидів на основі розробленого математично-програмного забезпечення відповідно до комплексної трирівневої моделі каталізу для підвищення рівня екобезпеки транспорту, промислових підприємств і переробки відходів;

- отримали подальший розвиток математичні моделі фізико-хімічних процесів у перетворювачі небезпечних домішок викидів при контролі системи «вхідна суміш – процеси формування приповерхневого шару над каталізатором – каталіз в об'ємі носія – вихідна екобезпечна газова суміш», що дозволило комплексно узгоджувати перебіг каталізу та

створення умов його ініціювання в об'ємі перетворювача й досягнути фактично рівня 99 % нейтралізації екологічно небезпечних речовин;

– з метою зниження техногенного навантаження на атмосферне повітря від викидів шкідливих домішок удосконалено моделі опису базових процесів їх перетворення з урахуванням потреб розв'язку задач оптимального проектування конструкції каталітичних перетворювачів, що дозволило знизити витрати до 30 % від вартості закордонних аналогів.

Практичне значення одержаних результатів. Усі розроблені математичні моделі доведені до рівня інженерних методик. На їх основі спроектовано, виготовлено та поставлено в експлуатацію удосконалений каталітичний перетворювач шкідливих газових викидів, що підтверджено патентами на корисну модель і на винахід (Пат. UA 69861, Пат. KZ 33663).

Результати дисертаційної роботи впроваджено в навчальний процес кафедри хімічної техніки та промислової екології Національного технічного університету «Харківський політехнічний інститут» під час викладання дисциплін «Системи технології та промислова екологія» для студентів за спеціальністю 101 «Екологія», та «Теорія, розрахунки та конструювання хімічних реакторів хімічної та переробної промисловості» для студентів за спеціальністю 131 «Прикладна механіка» (акт впровадження від 12.03.2019).

Запропоновані пропозиції стосовно зміни технології виготовлення каталітичного носія та способу розміщення його у вигляді складної геометрії у каталітичному перетворювачі, що дозволило знизити значення коефіцієнта втрат повного тиску в очисному пристрої до 0,005 і забезпечити оптимальні умови обтікання потоком газової суміші поверхні носія для підтримки перебігу активаційних процесів реакцій нейтралізації екологічно небезпечних домішок. Це сприяло зменшенню вмісту екологічно небезпечних домішок до 70 % у порівнянні з викидами від штатного каталітичного устаткування відповідно до експериментальних даних і зменшити витрати до 30 % від вартості закордонних аналогів.

Відповідно до розроблених математичних моделей створено комп'ютерні програми для чисельного моделювання та візуалізації каталітичних процесів на поверхні каталітичного носія з метою ефективного регулювання нейтралізації екологічно небезпечних домішок при використанні каталітичних пристроїв за різних умов їх експлуатації.

Таким чином, у роботі досягається більш високий рівень практичності розробленого комплексу математичних моделей та комп'ютерних програм для прийняття ефективних організаційних і управлінських рішень щодо застосування дієвих заходів із підвищення ступеню екологічної безпеки в техногенно навантажених урбоекосистемах на підставі прогнозно-розрахункових результатів показників каталітичних процесів у перетворювачах із захисту атмосферного повітря.

Особистий внесок здобувача полягає у проведенні експериментальних досліджень і обробленні одержаних результатів та наданні їх аналізу. Усі наукові та прикладні висновки, які складають основний зміст роботи, отримано автором самостійно.

Вибір теми дисертаційної роботи, постановка завдань дослідження, обговорення одержаних результатів були проведені разом із науковим керівником – доктором технічних наук, професором Т.В. Козулею. Внесок автора у роботах, опублікованих у співавторстві, наведений у списку праць за темою дисертації.

Апробація результатів роботи.

Основні положення та результати дисертаційної роботи доповідалися й обговорювалися на 15 наукових конференціях різних рівнів: XIX Менделеевском съезде по общей и прикладной химии (м. Волгоград, 25–30 вересня 2011 року); PRES'11 Conference on Process Integration, Modeling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction (Italy, Florence, 8–11 May 2011); Міжнародних науково-технічних конференціях «MicroCAD» (м. Харків, 15–17 травня 2012 року, 29–31 травня 2013 року, 20–22 травня 2015 року, 18–29 травня 2016 року); CAPE Forum 2012 (Hungary, Veszprem, 26–28 March 2012); CAPE Forum 2013 (Austria, Graz, 7–10 April 2013); PRES'13 Conference on Process Integration, Modeling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction (Greece, Rhodes, 29 September–02 October 2013); CAPE Forum 2015 (Germany, Paderborn, 27–29 April 2015); PRES'16 Conference on Process Integration, Modeling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction (Czech Republic, Prague, 27–31 August 2016); PRES'17 Conference on Process Integration, Modeling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction (China, Tianjin, 21–24 August 2017); 20-th International Conference SAIT 2018 (Kiev, 21–24 May 2018); 5-му Міжнародному конгресі «Захист навколишнього середовища. Енергоощадність. Збалансоване природокористування» (м. Львів, 26–29 вересня 2018 року); EASTWEST Chemistry Conference (м. Львів, 10–12 жовтня 2018 року).

Публікації. За результатами дисертації опубліковано 30 наукових праць, з яких 8 статей у наукових фахових виданнях з переліку МОН України, 5 статей у закордонних наукових виданнях, що індексуються наукометричними базами даних, 15 тез доповідей у матеріалах конференцій, одержано патент на корисну модель та патент на винахід.

Структура та обсяг роботи.

Дисертаційна робота складається з анотації, вступу, п'яти розділів, висновків, списку використаних джерел і додатків. Загальний обсяг роботи становить 250 сторінок, з яких 150 сторінок основного тексту. Дисертаційна робота містить 30 рисунків і 3 таблиці, 181 найменування у списку використаних джерел на 15 сторінках та 8 додатків на 63 сторінках.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У вступі обґрунтовано актуальність теми дисертаційного дослідження, сформульовано мету та завдання роботи, визначено наукову новизну та практичну цінність одержаних результатів, наведено дані про особистий внесок здобувача, апробацію результатів дисертації, структуру й обсяг дисертаційної роботи.

Перший розділ присвячений огляду та системному аналізу методів і засобів очищення відхідних сумішей від забруднюючих речовин; переваг застосування каталітичного очищення випускних газів від забруднювачів атмосферного повітря; техніко-технологічних засобів реалізації каталітичних процесів, математичних моделей процесів нейтралізації домішок у каталітичних перетворювачах.

За результатами аналітичного огляду праць зарубіжних та українських фахівців Я. О. Адаменка, Л. Д. Пляцука, М. М. Биченка, А. Б. Качинського, С. О. Боголюбова, С. І. Дарагунцова, Г. І. Рудька, К. Ф. Фролова, М. Д. Гомелі, Olaf Deutschmann, Lothar Kunz, Frank M. Kuhn, Jan Коор та ін. з моделювання процесів каталітичного очищення небезпечних вихідних промислових газів зроблено висновок, що для підвищення ефективності роботи з питань екологічної безпеки стосовно зниження техногенного впливу на атмосферне повітря необхідним і доцільним є впровадження нових математичних та інформаційно-програмних комплексів з розроблення та реалізації моделей функціонування каталітичного перетворювача.

Виконано системний аналіз вітчизняних і закордонних літературних даних із такого досвіду використання інноваційних рішень з математичного моделювання каталітичного знешкодження шкідливих викидів для підвищення рівня екологічності процесів очищення газових сумішей:

– модель процесів безпосередньо каталітичного окиснення: модель Vortruba J., Sinkole J., модель Young та Finlayson, модель Heck R.H., Wei J.;

– опис дифузійних процесів, що супроводжують пересування вхідного потоку за напрямом руху до приповерхневого шару носія та в його об'ємі: модель Lee та Aris, модель Otto та LeGray, модель Oh, Cavendish, модель Flytzani-Stephanopoulos, модель Chen;

– узагальнені моделі, що містять увесь спектр явищ каталітичних перетворень: модель Gottberg, модель Montreuil.

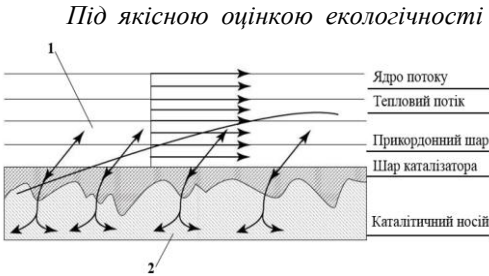
У науковій літературі простежується еволюційний шлях надання моделей каталітичного знешкодження екологічно небезпечних домішок від одномаршрутного опису процесів нейтралізації (усі названі вище моделі) до тримаршрутного комплексного подання каталізу. Комплексний опис у цілому процесу каталізу апріорі дозволяє визначати та оперативно реагувати на відповідні результати модельних розрахунків показників стосовно динаміки тепло- і масообмінних технологічно-транспортних

процесів на поверхні, у внутрішньому середовищі та на вихідній поверхні каталізатора під час перебігу процесів очищення випускних газів.

Отже, повнота та точність опису процесів нейтралізації за об'ємом перетворювача дозволить створити умови керованого каталітичного процесу на базі розробленої комплексної блочно-рівневої математичної моделі каталізу, що забезпечить розв'язання основної задачі з підвищення рівня екологічної безпеки атмосферного повітря шляхом оперативного контролю якості вихідного потоку після каталітичного пристрою.

У **другому розділі** надано характеристику експериментальної стендової установки дослідження процесів нейтралізації екологічно небезпечних домішок газових сумішей, утворених під час роботи двигуна із іскровим запалюванням та сміттєпереробного устаткування.

За результатами експериментів визначено за необхідне комплексно враховувати нейтралізацію екологічно-небезпечних домішок: на поверхні твердого носія, у внутрішньому об'ємі каталізатора та на виході з носія екологічно безпечної газової суміші (рис. 1).



- 1 – дифузія в системі «приповерхневий шар – поверхня носія»;
2 – дифузія в системі «поверхня носія – внутрішній простір каталізатора»

Рисунок 1 – Процеси нейтралізації екологічно небезпечної газової суміші в перетворювачі

рівнянь дозволили надати комплексний опис системи «приповерхневий шар – поверхня носія – внутрішній простір каталізатора»:

$$\dot{c}_i = \sum_{s=1}^m \gamma_s w_s (\vec{c}_i, T), \quad \gamma_s = \beta_{is} - \alpha_{is}, \quad (1)$$



$$\sum_{i=1}^n \alpha_{is} c_i \rightarrow \sum_{i,j=1}^n \beta_{is} c_j, \quad s = 1, \dots, m, \quad (3)$$

$$w_{is} = k_s (T) \prod_{i=1}^n c_i^{\alpha_{is}}, \quad i = 1, 2, \dots, N, \quad (4)$$

Під якісною оцінкою екологічності процесів очищення розуміється відповідність результатів модельних розрахунків параметрів каталітичного перетворення за обраною тривірневою моделлю каталізу фактичним даним нейтралізації випускних газів, які дорівнюють прийнятим нормативним показникам стану якості атмосферного повітря.

Визначені методи моделювання процесу каталізу на твердому носії, види базових

види базових

де $\dot{c}_i = \partial c_i / \partial t$ – зміна концентрації i -ї речовини за час перебігу реакції; $\vec{c}_i = (c_{i1} \dots c_{in})$ – вектор концентрацій i -ї речовини; γ_s – вектор стехіометрії перетворення на s -й стадії реакції речовини з концентрацією c_i з урахуванням перебігу каталітичного перетворення; α_{is} – показник зайнятості активних центрів на s -й стадії реакції i -ї речовини на поверхні каталітичного носія, од. виміру; β_{is} – показник зайнятості активних центрів на s -й стадії реакції на поверхні каталітичного носія j -тою утвореною речовиною, од. виміру; w_{is} – швидкість перетворення на s -й стадії каталітичної реакції i -ї речовини поверхні носія, м/с; $k_s(T)$ – константа швидкості s -ї стадії реакції при температурі T ; c_i – поверхнева концентрація i -ї речовини, кг/м³; α_{is} – стехіометричні коефіцієнти реакції s -ї стадії перетворення i -ї речовини на поверхні каталітичного носія, од. виміру; T – температура перебігу реакції, К.

Стан запропонованої вище системи дослідження перебігу каталітичних процесів визначається, таким чином, створенням умов каталітичного акту завдяки дотриманню вимог дифузійних переміщень, співвідношення сорбції-десорбції речовин на поверхні носія.

У висновках з аналізу літературних джерел щодо моделей опису фізико-хімічних процесів каталітичних перетворень звернено увагу на доцільність для побудованої комплексної моделі каталізу визначати опис дифузійних процесів відповідно до зазначеного рівня дослідження – мікро-, мезо-, макромасштабу. Для цього застосовано фундаментальні рівняння дифузійних явищ, що використані надалі для опису тепло- та масоперенесення у потоці газової суміші.

У розділі проаналізовано базові математичні описи динамічних процесів сорбції-десорбції у приповерхневому шарі та в об'ємі носія:

$$\begin{cases} \frac{\partial c_i}{\partial t} = k_1(1 - \xi - c_i - c_j)^2 - k_2 c_i c_j - k_{des, c_i} c_i; \\ \frac{\partial c_j}{\partial t} = k_3(1 - \xi - c_i - c_j) - k_2 c_i c_j - k_{des, c_j} c_j, \end{cases} \quad (5)$$

де $\partial c_i / \partial t$, $\partial c_j / \partial t$ – зміни концентрацій речовин i -го, j -го виду, відповідно, протягом каталітичного процесу; k_1 , k_2 , k_3 – константи швидкості складових реакцій каталітичних перетворень на поверхні носія, 1/с; ξ – параметр неоднорідності поверхні, що призводить до зменшення швидкості поверхневого перетворення i -ї, j -ї речовини з концентрацією c_i і c_j

од. виміру; k_{des,c_i} , k_{des,c_j} – константи швидкостей десорбції речовин з концентрацією c_i і c_j , $c^{-1} \cdot \text{Па}^{-1}$.

Таким чином, для визначення комплексної системи дослідження системи перетворень екологічно небезпечних домішок запроваджена експериментально-методична база моделювання процесів каталізу у перетворювачах екологічно небезпечних викидів в атмосферне повітря.

Третій розділ присвячений створенню моделі трирівневого опису каталітичної системи очищення газових потоків від забруднювальних речовин. Перший рівень опису відноситься до визначення особливостей кінетики адсорбції і хемосорбції молекул газової суміші на поверхні певного каталітичного носія у запропонованому перетворювачі, тобто враховуються співвідношення між природою інгредієнтів потоку та поверхні каталізатора, умов активізації сорбційних центрів на поверхні.

Другий рівень описує процеси гідрогазодинаміки прикордонних шарів – гідродинамічного, теплового, дифузійного. Розрахунки за визначеною системою рівнянь фізичних процесів установлюють умови перебігу процесів на поверхні та поширення реакції у внутрішнє середовище: швидкість ламінарної течії потоку газової суміші біля поверхні, температуру в ядрі потоку, концентрації речовин у потоці. У моделі пропонується врахувати особливості гідродинаміки наближення потоку до поверхні та властивості температурного поля у дифузійних прикордонних шарах, зміни під час проходження потоку вздовж каталітичної поверхні. У моделі цього рівня опису перетворення речовин присутні рівняння кінетики процесів на поверхні каталізатора.

Третій рівень стосується безпосередньо визначення результатів каталітичного перетворення шкідливих домішок газової суміші у внутрішньому середовищі каталітичного блоку перетворювача (рис. 2).

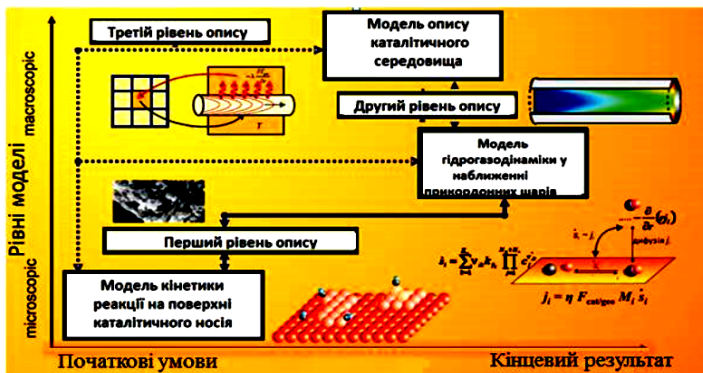


Рисунок 2 – Схема трирівневої моделі процесів у каталітичному перетворювачі

Для забезпечення цілісності моделі каталізу речовин небезпечної газової суміші передбачено врахувати наслідковий характер опису параметрів каталітичної нейтралізації, тобто надані змістовно узгоджені рівні активізації процесу каталізу, його перебіг і ефективне закінчення, враховано зв'язок між особливостями перебігу процесів і характеристиками конструкції каталітичного перетворювача. Наприклад, математичні моделі першого рівня опису каталітичного перетворення Карбон (II) оксиду становлять рівняння перебігу реакційних процесів на поверхні носія:

$$\begin{cases} \frac{\partial c_{[O]}}{\partial t} = 2k_1^+ P_{O_2} z - 2k_1^- (c_{[O]})^2 - k_3 c_{[O]} c_{[CO]} - k_4 P_{CO} c_{[O]}; \\ \frac{\partial c_{[CO]}}{\partial t} = k_2^+ P_{CO} z - k_2^- c_{[CO]} - k_3 c_{[O]} c_{[CO]}; \\ c'_{[O]} + c'_{[CO]} + z' = 1, \end{cases} \quad (6)$$

де k_1^+ , k_2^+ – константи швидкості процесів активізації молекул кисню та Карбон (II) оксиду, $k_1^+ = 0,2 \cdot 10^6$, $k_2^+ = 0,45 \cdot 10^6$; k_1^- , k_2^- – константи швидкості зворотних процесів, $k_1^- = 0,16 \cdot 10^3 e^{\frac{-2,1 \cdot 10^5}{8,3 \cdot T}}$, $k_2^- = 10^3 e^{\frac{-1,46 \cdot 10^5}{8,3 \cdot T}}$; k_3 , k_4 – константи швидкості реакції нейтралізації монооксиду вуглецю, $k_3 = 0,40 \cdot 10^4 e^{\frac{-4,6 \cdot 10^4}{8,3 \cdot T}}$, $k_4 = 0,45 \cdot 10^6 e^{\frac{-4,2 \cdot 10^3}{8,3 \cdot T}}$; * – вільні активні центри; $[O]$, $[CO]$ – сорбовані атоми кисню та Карбон (II) оксиду поверхні каталізатора; $c_{[O]}$, $c_{[CO]}$ – концентрація сорбованих атомів O та CO на поверхні носія, кг/м³; z – концентрація атомів металу каталітичного носія на поверхні, кг/м³; P_{O_2} , P_{CO} – тиск кисню і Карбон (II) оксиду у суміші, наближеної до каталітичної поверхні, Па; $c'_{[O]}$, $c'_{[CO]}$, z' – відносні концентрації сорбованих атомів і металу на поверхні каталітичного носія, од. виміру.

До моделі опису другого рівня перетворень CO включені процеси руху газової суміші до поверхні носія – рівняння Нав'є-Стокса, утворення стаціонарного ламінарного потоку вздовж поверхні каталізатора при умові утримання необхідної температури ініціалізації реакцій на поверхні –

рівняння конвективного переносу тепла та рівняння збереження кількості речовини Ломоносова - Лавуаз'є. Граничними умовами для каталізу є дотримання швидкості потоку, температури і температурного градієнту в ламінарному прошарку течії біля поверхні носія, вимог теплообміну в дифузійному прикордонному шарі каталізатора. Зазначені рівняння опису процесів другого рівня перетворень розглядаються системно:

$$\begin{cases} \rho(T)(\vec{v}\nabla) = \nabla\mu(T)\nabla\hat{v} - \nabla; \\ \rho(T)c_p(T)(\vec{v}\nabla)T = \nabla\lambda(T)\nabla; \\ \nabla(\rho(T)\vec{v}) = 0, \end{cases} \quad (7)$$

де ρ – густина суміші, кг/м³; μ – в'язкість суміші, Па·с; c_p – теплоємність суміші при постійному тиску, Дж/(м³·К); \vec{v} – вектор швидкості руху суміші, кг/с; \hat{v} – тензор швидкості деформації в суміші, од. виміру; λ – коефіцієнт теплопровідності суміші, Вт/м·К.

Оптимальна кількість інгредієнтів у суміші для початку перетворень контролюється їх концентраційними змінами у потоці до поверхні і на поверхні за коефіцієнтами дифузії D_{ik} за рівнянням Стефана – Максвелла.

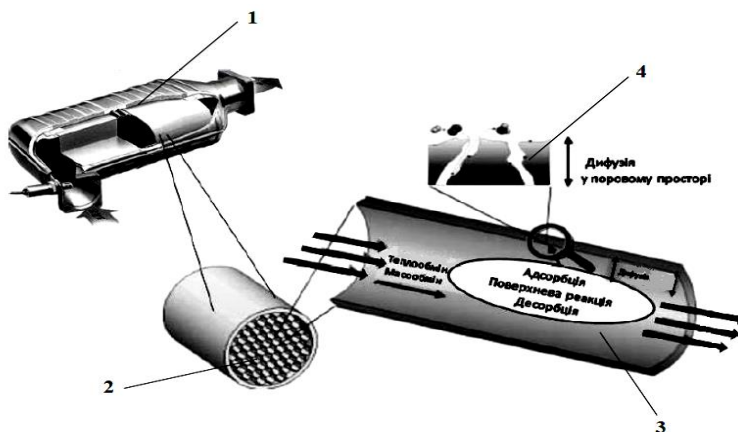
Третій рівень становить систему рівнянь, які описують процеси внутрішнього переміщення газової суміші у просторі пор каталізатора, що є фільтруючим. Перебіг динамічних процесів у каталізаторі, включаючи реакції перетворення, залежить від таких фізичних показників дифузійної газової суміші: теплопровідності речовин у середовищі пор, що характеризується параметром λ_{s1} і з урахуванням контактних виступів – λ_{s1} ; теплопровідності елемента внутрішнього середовища λ_m з урахуванням співвідношення теплопровідності твердої фази і газу у порах та особливостей організації пор в об'ємі носія; теплопровідності газу за наявності теплової конвекції у порах.

Отже, перший рівень модельного опису каталітичного перетворення газової суміші задає умови початку каталітичної реакції. Другий рівень – це опис поведінки багатокомпонентної суміші при переході з дифузійного прошарку на поверхню носія і далі у внутрішнє середовище каталізатора.

Третій рівень модельного уявлення про каталітичне перетворення речовини встановлює особливості поведінки потоку в порах і результативність каталітичних реакцій.

Таким чином, модель комплексного опису процесів каталітичного перетворення дозволяє контролювати дотримання вимог екологічної безпеки за рахунок отримання прогностичних результатів перебігу процесу нейтралізації екологічно небезпечних домішок.

У **четвертому розділі** запропонована модель блочної структури перебігу процесів тривірневого каталізу за об'ємом запропонованого каталізатора з очищення багатокомпонентної суміші від екологічно небезпечних домішок; надано аналіз змін стану газової суміші за рухом до поверхні носія та середовища біля виходу її з поверхні носія (рис. 3).



- 1 – конструкція каталітичного пристрою;
2 – каталітичний наповнювач; 3 – внутрішній простір каталітичного носія; 4 – пористий простір носія

Рисунок 3 – Блочно-рівнева організація каталітичного процесу у каталітичному перетворювачі

Перший блок комплексної тривірневої моделі каталітичного перетворення у загальному вигляді надає опис стану сорбції та десорбції у системі: «приповерхневий шар – поверхня носія» з урахуванням переміщення газової суміші у просторі внутрішнього об'єму перетворювача до поверхні носія, змін концентрацій речовин теплопровідності та в'язкості речовин і дифузійних характеристик:

$$\begin{aligned}
c_{CO} &= \frac{Ae^{\frac{B}{T_0}} \sqrt{2P_{O_2}^0 - c_{CO_2}}}{1 + Ae^{\frac{B}{T_0}} \sqrt{2P_{O_2}^0 - c_{CO_2}}} \cdot \frac{2P_{O_2}^0 - c_{CO_2}}{(2P_{O_2}^0 - c_{CO_2}) + (P_{CO}^0 - c_{CO_2})} + \frac{Ee^{\frac{F}{T_0}} \sqrt{(2P_{O_2}^0 - c_{CO_2})}}{\sqrt{(P_{CO}^0 - c_{CO_2})^3}} \cdot \frac{P_{CO}^0 - C_0}{(2P_{O_2}^0 - c_{CO_2}) + (P_{CO}^0 - c_{CO_2})}; \\
\frac{1}{3} \frac{\rho^* T^*}{T^\infty + (T_0 - T^\infty) \left(1 - \frac{\delta_w}{\delta_T}\right)} &\left\{ \frac{U^\infty}{\delta_w} \cdot \frac{\partial U^\infty}{\partial x} \left[1 - \frac{(T_0 - T^\infty) \left(1 - \frac{\delta_w}{\delta_T}\right) \frac{\delta_w}{\delta_T}}{T^\infty + (T_0 - T^\infty) \left(1 - \frac{\delta_w}{\delta_T}\right)^2} \right] \right\} = \\
&= \frac{2\mu(T_0)}{\delta_w^2} + \rho^* \frac{\partial U^\infty}{\partial x} \cdot \frac{T^*}{T^\infty + (T_0 - T^\infty) \left(1 - \frac{\delta_w}{\delta_T}\right)^2}; \\
w_{CO_2} &= \frac{k_2^+ k_3 (P_{CO}^0 - c_{O_2}) c_{CO} (1 - c_{CO})}{k_2^+ (P_{CO}^0 - c_{O_2}) + k_2^- + k_3 c_{CO}} + k_4 (P_{CO}^0 - c_{O_2}) c_{CO}; \\
\frac{1}{3} \frac{\rho^* T^*}{T^\infty} c_\rho &\left\{ 2U^\infty \frac{\partial T^\infty}{\partial x} - \frac{T_0 - T^\infty}{\delta_T} \left(\delta_T \frac{\partial U^\infty}{\partial x} + U^\infty \frac{\partial \delta_T}{\partial x} \right) \right\} = \frac{-2r \cdot w_{CO_2}}{\delta_T}; \\
\frac{2}{3} U^\infty \frac{\partial C^\infty}{\partial x} - \frac{1}{3} (c_{CO_2} - C^\infty) \frac{\partial U^\infty}{\partial x} - \frac{1}{3} U^\infty \frac{\partial \delta_c}{\partial x} \cdot \frac{c_{CO_2} - C^\infty}{\delta_c} &= -2 \frac{w_{CO_2}}{\delta_c}; \\
T_0 = T^\infty + \frac{r \cdot w_{CO_2}}{2\lambda(T_0)} \delta_T; \quad c_{CO_2} = C^\infty + \frac{w_{CO_2}}{2D(T_0)} \delta_c; \\
\lambda(T_0) = \lambda^* \cdot \frac{T^* + C_\lambda}{T_0 + C_\lambda} \left(\frac{T_0}{T^*} \right)^{\frac{3}{2}}; \quad \lambda(T^\infty) = \lambda^* \cdot \frac{T^* + C_\lambda}{T^\infty + C_\lambda} \left(\frac{T^\infty}{T^*} \right)^{\frac{3}{2}}; \\
\mu(T_0) = \mu^* \cdot \frac{T^* + C_\mu}{T_0 + C_\mu} \left(\frac{T_0}{T^*} \right)^{\frac{3}{2}}; \quad \mu(T^\infty) = \mu^* \cdot \frac{T^* + C_\mu}{T^\infty + C_\mu} \left(\frac{T^\infty}{T^*} \right)^{\frac{3}{2}}; \\
D(T_0) = D(T^*) \left(\frac{T_0}{T^*} \right)^{1.85}; \quad D(T^\infty) = D(T^*) \left(\frac{T^\infty}{T^*} \right)^{1.85}; \\
U^\infty \frac{\partial C^\infty}{\partial x} = \frac{D(T^\infty)}{\delta_c^2} (C_0 - C^\infty); \\
\frac{\rho^* T^*}{T^\infty} c_\rho U^\infty \frac{\partial T^\infty}{\partial x} = \frac{\lambda(T^\infty)}{\delta_T^2} (T_0 - T^\infty),
\end{aligned} \tag{8}$$

де c_{CO} – поверхнева концентрація Карбон (II) оксиду на поверхні носія, кг/м^3 ; A , B , E , F , – узагальнюючі параметри констант швидкості відповідних реакцій, які реалізуються на поверхні носія, од. виміру; $P_{O_2}^0$,

P_{CO}^0 – значення величин тиску кисню P_{O_2} і тиску Карбон (II) оксиду P_{CO} на початку контролю реакції, Па; c_{O_2} – концентрація O_2 на твердій каталітичній поверхні, кг/м³; w_{CO_2} – параметр швидкості утворення CO_2 , м/с; δ_w – товщина гідродинамічного прикордонного шару, м; δ_T – товщина температурного прикордонного шару, м; δ_c – товщина дифузійного прикордонного шару, м; T_0 – температура на поверхні каталітичного носія, К; T^∞ – температура у ядрі потоку, К; C^∞ – концентрація речовини у ядрі потоку, кг/м³; $\mu(T_0)$ – коефіцієнт в'язкості газової суміші на поверхні каталітичного носія, Па·с; $\mu(T^\infty)$ – коефіцієнт в'язкості газової суміші у ядрі потоку, Па·с; μ^* – коефіцієнт в'язкості газової суміші за нормальних умов, Па·с; $\lambda(T_0)$ – коефіцієнт теплопровідності газової суміші на поверхні каталітичного носія, Вт/(м·К); $\lambda(T^\infty)$ – коефіцієнт теплопровідності газової суміші у ядрі потоку, Вт/(м·К); λ^* – коефіцієнт теплопровідності газової суміші за нормальних умов, Вт/(м·К); $D(T_0)$ – коефіцієнт дифузії газової суміші на поверхні каталітичного носія, м²/с; $D(T^\infty)$ – коефіцієнт дифузії газової суміші в ядрі потоку, м²/с; U^∞ – швидкість суміші у ядрі потоку, м/с; $\partial c^\infty / \partial x$ – зміна концентрації речовини в потоці суміші відповідно до координати вздовж поверхні носія; ρ^* – коефіцієнт густини газової суміші за нормальних умов, кг/м³; C_ρ – коефіцієнт теплоємності газової суміші за нормальних умов, Дж/(кг·К); T^* – початкове значення температури газової суміші за нормальних умов, К, $T^* = 273$ К.

Для забезпечення ініціалізації каталізу та його пересування у внутрішній об'єм носія необхідно створити певні умови тепло- і масообміну при взаємодії внутрішнього простору перетворювача та поверхні носія, що відноситься до моделювання процесів другого блоку: «каталітичне середовище – приповерхневий шар – каталітична поверхня»:

$$\begin{cases} U^\infty \frac{\partial c^\infty}{\partial x} = \frac{q \cdot S}{V}; \\ \frac{\rho^* \cdot T \cdot c_\rho}{T^\infty} \cdot \frac{\partial T^\infty}{\partial x} = \frac{r \cdot q \cdot S}{V} - \frac{K \cdot P}{S_1} (T^\infty - T^e) \cdot \theta, \end{cases} \quad (9)$$

де U^∞ – швидкість течії газової суміші у реакційному об’ємі, м/с; V – об’єм каталітичної поверхні, м³; S – площа каталітичної поверхні, м²; P – периметр зрізу об’єму носія, м; K – коефіцієнт об’ємної теплопередачі у межах каталітичного блоку носія і НС, од. виміру; T^e – температура НС, К; θ – функція відведення теплової енергії у НС, од. виміру; r – коефіцієнт тепловіддачі, Дж/м·с; q – джерело енергії, Дж.

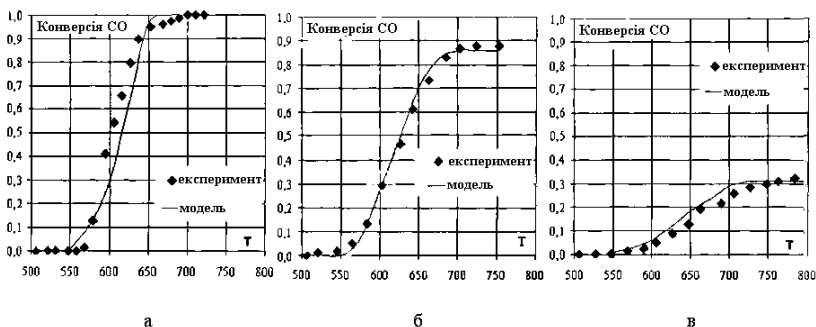
Значення температури і концентрацій компонентів суміші на зовнішніх кордонах відповідних прикордонних шарів контролюють умови виходу екологічно безпечної газової суміші після каталітичного перетворення, що стосується третього блоку перетворювача «поверхня каталізатора – каталітичний простір – вихід із системи»:

$$\begin{cases} \frac{\partial c^\infty}{\partial x} = \frac{S}{V} \cdot \frac{\bar{k} \cdot k_{4_0}}{U^\infty} (P_{CO}^0 - c^\infty) \cdot e^{-\frac{500}{T^\infty}}; \\ \frac{\rho^* \cdot T^* \cdot c_p}{T^\infty} \cdot U^\infty \cdot \frac{\partial T^\infty}{\partial x} = \frac{S}{\sigma} \frac{\bar{k} \cdot k_{4_0}}{U^\infty} (P_{CO}^0 - c^\infty) e^{-\frac{500}{T^\infty}} - \frac{K \cdot P}{S_1} (T^\infty - T^e). \end{cases} \quad (10)$$

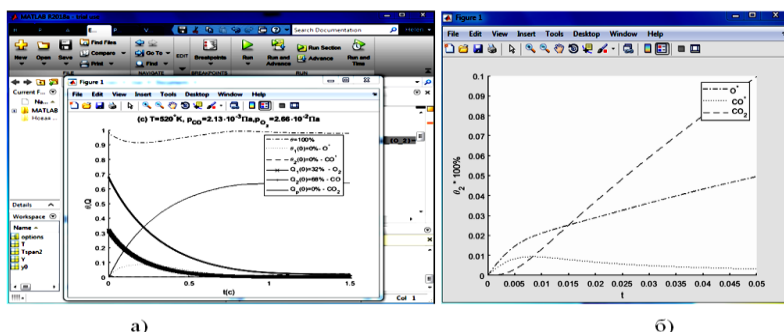
Таким чином, отримана блочно-рівнева математична модель з визначення умов контролю ефективного перетворювання за прогнозними обчисленнями концентрації, температури, керуючої швидкості дифузійного потоку в об’ємі каталітичного перетворювача, що дозволяє вчасно регулювати умови підтримки параметрів каталізу та забезпечує зниження техногенного навантаження на атмосферне повітря.

У п’ятому розділі надано результати практичного використання трирівневої моделі та експериментальне підтвердження її ефективності у вигляді розробленого аналітично-програмного комплексу з контролю екологічної безпеки на виході газової суміші з очисного устаткування. Прикладом нейтралізації шкідливих домішок викидів обрано конверсію на металевому каталітичному носії CO у CO₂, що входять до складу випускної небезпечної газової суміші, утвореної у результаті роботи двох різномасштабних об’єктів: автомобільного двигуна з іскровим запалюванням та обладнання зі спалювання відходів на сміттєпереробному комплексі МПК-300 (рис. 4, 5).

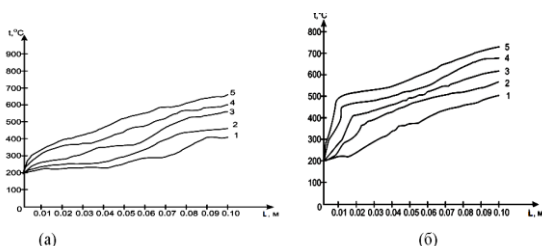
Система розрахунків параметрів з оцінки екологічності роботи перетворювача згідно з розробленою моделлю (рівняння (8)) реалізована у пакеті MATLAB за допомогою скомпільованої функції, створеної на основі мови PYTHON. За отриманими результатами експериментальних спостережень щодо особливості поведінки потоку протягом перебігу реакцій перетворення встановлено, що високий ступінь окиснення CO досягається всередині каналу носія за умови малих швидкостей руху суміші за оптимального температурного режиму каталізу (рис. 4).



а – нейтралізація випускної «бідної» суміші в каталітичному об'ємі;
 б – нейтралізація випускної суміші стехіометрично дотриманого складу;
 в – нейтралізація багатоконпонентної суміші в каталітичному об'ємі
 Рисунок 4 – Експериментальні дані й модельні розрахунки з нейтралізації СО



а) – очищення суміші з двигуна; б) – нейтралізація після сміттепереробача
 Рисунок 5 – Залежності результатів перетворення від адсорбції Карбон (II) оксиду та кисню, часу перебігу реакції для різного устаткування



а – канал носія $d = 10^{-3}$ м двигуна з іскровим запалюванням; б – канал носія $d = 2 \times 10^{-2}$ м сміттепереробного устаткування
 Рисунок 6 – Залежності зміни температури суміші від швидкості в каналі носія

Зміни температури перетворення уздовж робочої поверхні довжиною l під час нейтралізації домішок випускних газів досліджені для різних швидкостей руху газової суміші: 1 – 0,1 м/с; 2 – 0,075 м/с; 3 – 0,05 м/с; 4 – 0,025 м/с; 5 – 0,013 м/с (рис. 6).

Розроблена модель блочно-рівневої структури каталізу на відміну від попередніх модельних описів процесів каталітичної переробки газових сумішей надає додаткове визначення температурного дрейфу теплофізичних і дифузійних характеристик суміші, теплообміну і масообміну у просторі пор каталітичного об'єму, розглядає наявність двох ділянок течії суміші, а саме нестабілізованої та стабілізованої. Це дозволило підвищити рівень екологічної безпеки роботи системи очищення випускних газів двигунів з іскровим запалюванням та МПК-300 під час застосування перетворювача удосконаленої конструкції, на модель якої одержано патент.

ВИСНОВКИ

У дисертаційній роботі розв'язана актуальна науково-практична задача з оцінки екологічності процесів конверсії шкідливих газових домішок у каталітичному перетворювачі на основі розроблення математичної моделі з визначення параметрів техніко-технологічних умов досягнення екологічної безпеки на функціонуючих об'єктах, які становлять загрозу зниження якості атмосферного повітря. За результатами дисертаційних досліджень одержано такі наукові та практичні висновки.

1. Наведено основні сучасні підходи з вивчення умов підвищення екологічної ефективності процесів каталітичного очищення шкідливих викидів, можливостей систематизованого вибору параметрів знешкодження забруднювальних домішок випускних газів. Це дозволило встановити вимоги до структури каталітичного перетворювача та визначити теоретичні підстави щодо моделювання різних типів каталітичних носіїв для підвищення рівня екологічної безпеки і зменшення витрат до 30 % від вартості закордонних аналогів.

2. Уперше запропоновано три рівня математичного опису комплексу процесів на поверхні каталітичного носія: перший рівень визначає стан динамічних явищ на каталітичній поверхні, особливостей поведінки адсорбованих і хемосорбованих молекул на носії; другий – описує процеси, що відбуваються в прикордонних шарах – гідродинамічному, тепловому і дифузійному; на третьому рівні опису надана модель перебігу процесів у внутрішньому середовищі каталітичного носія. Таким чином, визначені основи комплексного дослідження системи «вхідний потік газової суміші – приповерхневий шар носія – каталітична поверхня та об'єм каталізатора – випускна газова суміш» на базі тривірневої моделі каталізу для контролю перебігу процесів у перетворювачах, що дозволило підвищити їх екоефективність за рахунок зменшення вмісту домішок до 70 % у порівнянні з викидами від штатного каталітичного устаткування відповідно до експериментальних даних.

3. Уперше отримані нові експериментальні та розрахункові результати стосовно досліджень складних процесів на поверхні каталізатора конверсії газових сумішей з урахуванням тепловиділення, масопереносу, зміни складу потоку у каталітичному перетворювачі за допомогою розроблених технічних, математичних і програмних засобів. Це дозволило досягти узгодження модельних розрахунків параметрів дифузійної газової суміші та умов перебігу фізико-хімічних процесів за об'ємом перетворювача – по факту досягнуто рівень нейтралізації 99 %.

4. Надані пропозиції щодо удосконалення моделей різнорідних процесів каталітичної конверсії у перетворювачі з отриманням екологічно безпечної газової суміші на підставі досягнення результативності проектування конструкцій каталітичних пристроїв нейтралізації шкідливих домішок за рахунок зниження коефіцієнта втрат повного тиску в очисному пристрої до 0,005 і забезпечення оптимальних умов обтікання потоком газової суміші поверхні носія для підтримки перебігу активаційних процесів реакцій нейтралізації екологічно небезпечних домішок.

5. Отримали подальший розвиток математичні моделі перебігу фізико-хімічних процесів на основі дослідження особливостей поведінки системи «вхідна газова суміш – дифундуєчий потік за об'ємом перетворювача – приповерхневий шар суміші – поверхня носія – внутрішній простір каталізатора – вихід газової суміші» у ході перебігу очищення. Це дозволило комплексно контролювати дотримання умов екологічності роботи каталітичного перетворювача будь-якої конструкції.

6. Запропоноване комплексне подання опису процесів каталітичної конверсії складових викидів у вигляді блочно-рівневої моделі з контролю стану нейтралізації екологічно небезпечних домішок для створення техніко-технологічних засобів захисту атмосферного повітря на прикладі двигунів з іскровим запалюванням і сміттєпереробних устаткувань.

7. Розроблені та практично впроваджені в систему контролю якості атмосферного повітря програмні комплекси для робочих розрахунків в EXCEL, STATISTICA, MATLAB, PYTHON, CANTERA для вирішення виробничих завдань різного рівня складності з оцінки рівня екологічності технологічних рішень при моделюванні каталітичних пристроїв.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

Наукові праці, в яких опубліковані основні наукові результати дисертації

1. Вєдь Е. В., Толчинський Ю. А. Модель массообмена процесса конверсии трехкомпонентной газовой смеси. *Интегрированные технологии та энергосбережения*. 2010. №4. С. 46–54.

Здобувач надав математичний опис та чисельне розв'язання моделі масообміну.

2. Толчинський Ю. А., Ведь Е. В. Математическая модель пограничного слоя контакта газовая смесь – катализатор. *Східноєвропейський журнал передових технологій*. 2010. Т. 3. №8 (45). С. 4–7.

Здобувач надав результати літературного огляду існуючих моделей прикордонних шарів, їх математичний опис і чисельне розв'язання.

3. Толчинский Ю. А., Ведь Е. В. Модель химической кинетики поверхностной каталитической реакции. *Вісник НТУ «ХПИ»*. 2010. № 67. С. 38–45.

Здобувач розробив основи математичної моделі поверхневої каталітичної реакції.

4. Толчинський Ю. А., Ведь Е. В. Модель теплового и гидравлического сопротавления. *Інтегровані технології та енергозбереження*. 2012. №3. С. 72–78.

Здобувач розробив математичну модель фільтруючого середовища та її складових.

5. Ведь Е. В. Моделирование кинетики реакции доокисления СО на твердой поверхности катализатора. *Проблемы машиностроения*. 2012. Т. 15. №5–6. С. 85–91.

6. Любчик Л. М., Ведь Е. В. Математическая модель гидравлического сопротивления и теплопроводности каталитических сред. *Вісник НТУ «ХПИ»*. 2013. №3(977). С. 141–152.

Здобувач запропонував модель гідравлічного опору та вигляд коефіцієнта теплопровідності для внутрішніх просторів різних каталітичних середовищ.

7. Ведь Е. В. Теоретическое обоснование математической модели процесса каталитического превращения СО. *Вісник НТУ «ХПИ»*. 2015. №14(1123). С. 125–131

8. Ведь Е. В., Козуля Т. В. Обзор моделей гетерогенного катализа. *«Проблеми інформаційних технологій»*. Херсон. 2018. № 01 (23). С. 140–147.

Здобувач надав літературний огляд моделей гетерогенного каталізу.

9. Tovazhnyanskii L. L., Tolchinsky Y. A., Ved E. V., Meshalkin V. P. Three-level Model of a Surface Catalytic Reaction Over a Platinum Catalyst. *Theoretical Foundations of Chemical Engineering*. 2012. Vol. 45. № 5. P. 498–503. **(Scopus)**.

Здобувач надав опис тривірвєвної математичної моделі каталітичних процесів.

10. Ved O. V., Tolchinky Ju. A., Kapustenko P. A. Mathematical Model of the Carbon Monoxide Conversion in Porous Catalyst. *Chemical Engineering Transactions*. 2012. Vol. 25. P. 1025–1030. **(Scopus)**.

Здобувач надав літературне обґрунтування вибраного підходу для опису процесів каталізу на пористих носіях.

11. Seferlis P., Kapustenko P. O., Ved O. V. A Multi-Level Mathematical Model of the CO Catalytic Conversion. *Chemical Engineering Transactions*. 2013. Vol. 35. P. 691–696. **(Scopus)**.

Здобувач отримав чисельний алгоритм розв'язання та результати моделювання системи диференціально-алгебраїчних рівнянь.

12. Ved' V. E., Satayev M. I., Saipov A. A., Ved O. V. Calculation of the Operation Parameters of the Catalytic Converters of the Harmful Gas Impurities. *Chemical Engineering Transactions*. 2016. Vol. 52. P. 91–96. **(Scopus)**.

Здобувач надав алгоритм та чисельне розв'язання операційних параметрів системи.

13. Ved' V. E., Krasnokutskiy E. V., Tovazhnyanskii L. L., Ved O. V. Catalyst Coatings Carriers Based on Aluminium-Silicon Glass Crystalline Compositions. *Chemical Engineering Transactions*. 2017. Vol. 61. P. 397–402. **(Scopus)**.

Здобувач надав літературний огляд каталітичних носіїв з поверхнею 3-d, 4-d перехідних матеріалів.

Наукові праці, які засвідчують апробацію матеріалів дисертації

14. Ведь Е. В., Толчинский Ю. А., Мешалкин В. П. Модели внутренних пространств каталитических сред. *XIX Менделеевский съезд по общей и прикладной химии: тезисы докладов*. Волгоград: ИУНЛ ВолгГТУ, 2011. С. 429.

15. Ved O. V., Tolchinky Ju. A., Kapustenko P. A. Mathematical Model of the Carbon Monoxide Conversion in Porous Catalyst. *PRES'11 Conference on Process Integration, Modeling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction: Book of Abstracts*. Italy. Florence, 2011. P. 70.

16. Ved O. V., Tolchinky Ju. A., Kapustenko P. A. Model of CO Pre-Oxidation Concentrated on Surface of Catalyst and Dimensional Dispersion on Macro Level of Catalyst Capacity. *CAPE Forum 2012 Computer Aided Process Engineering: Book of Abstracts*. Hungary. Veszprem: University of Pannonia, 2012. P. 37.

17. Ведь Е. В. Хімічні підприємства як спеціальний клас об'єктів промислової логістики. *Інформаційні технології: Наука, техніка, технологія, освіта, здоров'я: матеріали XX Міжнародної науково-практичної конференції (MicroCAD-2012)*. Харків: НТУ «ХПІ», 2012. С. 288.

18. Tovazhnyanskii L. L., Tolchinsky Y. A., Ved E. V. Theoretical Substantiation Model of Catalytic CO Conversion Process and its Experimental Confirmation. *CAPE Forum 2013 Computer Aided Process Engineering: Book of Abstracts*. Austria. Graz: Graz University of Technology, 2013. P. 6.

19. Ведь Е. В. Теоретическое обоснование модели каталитического процесса конверсии CO и ее экспериментальное подтверждение. *Інформаційні технології: Наука, техніка, технологія, освіта, здоров'я: матеріали XX Міжнародної науково-практичної конференції (MicroCAD-2013)*. Харків: НТУ «ХПІ», 2013. С. 252.

20. Ved O.V., Seferlis P., Kapustenko P. A multi-level mathematical model of the CO catalytic conversion process. *PRES'13 Conference on Process Integration, Modeling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction: Book of Abstracts*. Rhodes. Greece, 2013. P. 61

21. Ved O. V., Tolchinsky Yu. A. Numerical Simulation of the Three Level Modeling Approach of Exhaust Gas Catalytic Combustion Reaction Mechanism. *CAPE Forum 2015 Computer Aided Process Engineering: Book of Abstracts*. Germany. Paderborn: University of Paderborn, 2015. P. 133.

22. Ведь Е. В. Обзор кинетических моделей каталитического окисления угарного газа. *Інформаційні технології: Наука, техніка, технологія, освіта, здоров'я: матеріали XXIII Міжнародної науково-практичної конференції (MicroCAD-2015)*. Харків: НТУ «ХПІ», 2015. С. 320.

23. Ведь Е. В. Модели гидравлических сопротивлений некоторых классов пористых сред. *Інформаційні технології: Наука, техніка, технологія, освіта, здоров'я: матеріали XXIV Міжнародної науково-практичної конференції (MicroCAD-2016)*. Харків: НТУ «ХПІ», 2016. С. 338.

24. Ved' V. E., Krasnokutskiy E. V., Satayev M. I., Saipov A. A., Ved O. V. Calculation of the Operation Parameters of the Catalytic Converters of the Harmful Gas Impurities. *PRES'16 Conference on Process Integration, Modeling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction: Book of Abstracts*. Czech Republic. Prague, 2016. P. 89.

25. Ved' V. E., Krasnokutskiy E. V., Tovazhnyanskii L. L., Ved O. V. Catalyst Coatings Carriers Based on Aluminium-Silicon Glass Crystalline Compositions. *PRES'17 Conference on Process Integration, Modeling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction: Book of Abstracts*. China. Tianjin. 2017. P. 54

26. Ved O. V. Basic Concepts of Catalytic Exhaust Gas Aftertreatment. *Матеріали 20-ї Міжнародної науково-технічної конференції SAIT-2018*. К.: ННК «ІПСА» НТУУ «КПІ», 2018. С. 35

27. Kozulya T. V., Ved O. V. Solving issues of environmental safety using the proposed three-level model of catalytic gas neutralization. *Захист навколишнього середовища. Енергоощадність. Збалансоване природокористування: збірник матеріалів 5-го міжнародного конгресу*. Львів, 2018. С. 73.

28. Ved O. V., Kozulya T. V. Modeling of Chemical Processes in a Catalytic System of the Tree-level View of Pollutants transformation. *"EASTWEST" Chemistry Conference: Abstract book*. Львів. 2018. P. 73

Наукові праці, які додатково відображають наукові результати дисертації

29. Пат. 69861 Україна, МПК B01D 53/86, B01D 53/92, B01D 53/94, B01J 23/40. Спосіб виготовлення каталітичного перетворювача / Халєєв А.Б., Коцій В.А., Ровенський Р.О., Ведь О.В.; заявники та

патентовласники Халєєв А.Б., Кошій В.А., Ровенський Р.О., Ведь О.В., Краснокутський Є.В. – u201114352 ; заявл. 05.12.2011; опубл. 10.05.1012, Бюл. № 9. – 4 с.

Здобувач надав опис математичної моделі каталітичного перетворювача.

30. Пат. 33663 Республіка Казахстан, МПК В01D 53/92 (2006.01), В01J 23/40 (2006.01). Спосіб виготовлення каталітичного перетворювача / Саипов А.А., Сатаєв М.И., Ведь В.Е., Толчинський Ю.А., Краснокутський Е.В., Абибулла У.А., Ведь О.В.; заявники та патентовласники Південно-Казахстанський державний університет імені М. Ауєзова Міністерства освіти та науки Республіки Казахстан. – 2017/0953.1 ; заявл. 20.10.2017; опубл. 07.06.2019, Бюл. №23 . – 4 с.

Здобувач підготував чисельно-аналітичний апарат для опису математичної моделі перетворювача.

АНОТАЦІЯ

Ведь О. В. Оцінка екологічності процесів очищення газових сумішей на базі комплексної моделі каталітичного перетворювача. – На правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата технічних наук за спеціальністю 21.06.01 – екологічна безпека. Сумський державний університет, 2020. Спеціалізована вчена рада Д 55.051.04.

Дисертаційна робота присвячена питанням захисту атмосферного повітря на основі розроблення математичних моделей каталітичних процесів очищення від екологічно небезпечних речовин газових сумішей у перетворювачах запропонованої конструкції.

Проаналізовано існуючі математичні моделі каталітичних процесів на твердій поверхні та відзначено актуальність їх подальшого дослідження стосовно комплексного надання опису каталітичних реакцій з урахуванням особливостей взаємодії «газовий потік – поверхня каталітичного носія – тепло- і масообмін уздовж поверхні носія – процеси перетворення у внутрішньому середовищі і на поверхні виходу екобезпечної газової суміші». На основі теоретичного опису конверсії шкідливих речовин викидів запропоновано трирівнева модель опису процесів у сконструйованому каталітичному перетворювачі. Показано зв'язок теоретично обґрунтованих моделей із відомими феноменологічними моделями окиснення чадного газу, визначено переваги трирівневої моделі каталітичної конверсії як основи для прийняття рішень щодо оптимального проектування каталітичного пристрою із захисту атмосферного повітря.

Розроблено алгоритми та програмні засоби реалізації розрахунків модельних процесів каталітичного очищення газових сумішей для

контролю екологічної якості техногенних небезпечних об'єктів щодо захисту атмосферного повітря. Перевагою запропонованих математичних моделей та алгоритмів є їх висока швидкість, можливість автоматизації процесів контролю екологічної безпеки на основі розроблених інформаційно-програмних продуктів, якісне та кількісне узгодження отримуваних числових розрахункових результатів з встановленими даними експериментальних досліджень.

Ключові слова: екологічна безпека, захист атмосферного повітря, небезпечні газові суміші, каталітичне перетворення, математичне моделювання, поверхня носія, оцінка екологічності.

АННОТАЦІЯ

Ведь Е. В. Оценка экологичности процессов очистки газовых смесей на базе комплексной модели каталитического преобразователя. – На правах рукописи.

Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 21.06.01 – экологическая безопасность. Сумский государственный университет, 2020. Специализированный ученый совет Д 55.051.04.

Диссертация посвящена вопросам защиты атмосферного воздуха на основе разработки математических моделей каталитических процессов очистки экологически опасных веществ газовых смесей в преобразователе предложенной конструкции.

Проанализированы существующие математические модели каталитических процессов на твердой поверхности и отмечена актуальность их дальнейшего исследования для комплексного описания каталитических реакций с учетом особенностей взаимодействия «газовый поток – поверхность каталитического носителя – тепло- и массообмен вдоль поверхности носителя – процессы преобразования во внутренней среде и на поверхности выхода экологически безопасной газовой смеси». На основе теоретического описания конверсии вредных выбросов предложена трехуровневая модель описания процессов в сконструированном каталитическом преобразователе. Показана связь теоретически обоснованных моделей с известными феноменологическими моделями окисления угарного газа, определены преимущества трехуровневой модели каталитической конверсии как основы оптимального проектирования каталитического преобразователя защиты атмосферного воздуха.

Разработаны алгоритмы и программные средства по реализации модельных процессов каталитической очистки газовых смесей для контроля экологического качества работ по защите атмосферного воздуха. Преимуществом предложенных математических моделей и алгоритмов

является их высокое быстродействие, возможность автоматизации процессов контроля экологической безопасности на основе разработанных информационно-программных продуктов, качественное и количественное согласование получаемых числовых расчетных результатов с установленными данными экспериментальных исследований.

Ключевые слова: экологическая опасность, защита атмосферного воздуха, опасные газовые смеси, каталитическое превращение, математическое моделирование, поверхность носителя, оценка экологичности.

SUMMARY

Ved O. V. Environmental assessment of gas mixture cleaning processes based on a comprehensive model of a catalytic converter. – Manuscript.

Thesis for a Candidate of Engineering Sciences Degree by specialty 21.06.01 – ecological safety. Sumy State University, 2020. Specialized Academic Council D 55.051.04.

The thesis is devoted to the atmospheric air protection based on the development of mathematical models of catalytic processes for purification environmentally hazardous substances at gas mixtures in proposed design converter.

The existing mathematical models of catalytic processes on a solid surface have been analyzed and the relevance of further research on the complex rendering of a description of catalytic reactions taking into account the interaction features «gas flow – the surface of the catalytic carrier – heat and mass transfer along the carrier surface – transformation processes in the internal medium and on the surface of the exit is ecologically safe gas mixture». Based on the theoretical description of the conversion, a three-level model describing the processes in the constructed catalytic converter is proposed. The connection of theoretically grounded models with known phenomenological models of carbon monoxide oxidation is shown, the advantages of the three-level model of catalytic conversion as the basis for making decisions on improving the structure of the catalytic device are determined.

Algorithms and software for modelling the processes of catalytic purification of gas mixtures from technogenic dangerous objects have been developed. The advantage of the proposed mathematical models and algorithms is their high speed, the ability to automate the monitoring of environmental safety, based on the developed information and software products, the qualitative and quantitative agreement of the obtained numerical results with the results of experimental studies.

Key words: environmental danger, protection of atmospheric air, hazardous gas mixtures, catalytic conversion, mathematical modelling, media surface, environmental assessment.