

Daniel SERAFIN
Miroslaw GRZESIK

O PEWNYM ZADANIU OPTIMALIZACJI REAKTORA DO SYNTEZY METANOLU

Streszczenie. W pracy przedstawiono sposób rozwiązania tzw. zadania minimax-u w odniesieniu do rozkładu temperatury w reaktorze rurowym adiabatyicznym chłodzonym wtryskiem zimnego surowca. Otrzymane rozwiązania zastosowano w praktyce w procesie syntezy metanolu.

WSTĘP

W zagadnieniach optymalizacji reaktorów chemicznych można wyróżnić dwie grupy zadań:

- 1) zadania optymalizacyjne na etapie projektowania reaktorów,
- 2) zadania optymalizacyjne na etapie eksploatacji reaktorów.

Pierwszą grupę można scharakteryzować ogólnie jako zadania takiego doboru parametrów konstrukcyjnych $[p_1, p_2, \dots, p_m]$, aby uzyskać optymalną wartość wybranego wskaźnika jakości Q dla reaktora pracującego w określonych warunkach $[w_1, w_2, \dots, w_n]$. Poszukuje się więc:

$$\min_{p \in S} Q(p, \underline{w}) \quad (1)$$

gdzie: p, \underline{w} są wektorami o składowych: $p = [p_1, p_2, \dots, p_m]$
 $\underline{w} = [w_1, w_2, \dots, w_n]$

a S jest dopuszczalnym obszarem zmian wektora p .

Przykładem tego typu zadania jest problem znalezienia takiego rozkładu warstw masy katalizatora reaktora wielostopniowego, aby uzyskać żadaną produkcję, a całkowita masa katalizatora była minimalna $[1], [2], [3]$.

Druga grupa zadań dotyczy reaktorów już pracujących, w których nie można dokonać żadnych zmian konstrukcyjnych. Są to głównie reaktory zainstalowane w przeszłości, a zaprojektowane w sposób przybliżony, odbiegający od optymalności. Zadania optymalizacyjne dotyczą w tych przypadkach znalezienia odpowiednich nastaw n_1, n_2, \dots, n_p , sterujących procesem, takich aby zoptymalizować określony wskaźnik jakości Q . Należy więc wyznaczyć

$$\min_{n \in D} Q(\underline{n}, \underline{w}) \quad (2)$$

gdzie \underline{n} jest wektorem o składowych: $\underline{n} = [n_1, n_2, \dots, n_p]$,

a D jest dopuszczalnym obszarem zmian wektora \underline{n} .

OGÓLNA CHARAKTERYSTYKA ZADANIA POSZUKIWANIA MINIMUM TEMPERATURY- MAKSYMALNEJ

Wśród zagadnień należących do drugiej z omawianych wyżej grup interesujące, z punktu widzenia korzyści eksploatacyjnych, jest zadanie określenia takich warunków pracy reaktora, aby zachowując wydajność reaktora uzyskać optymalny profil temperatury; optymalny oznacza, iż chodzi tu w istocie o obniżenie do minimum wartości maksymalnej temperatury wzdłuż reaktora adiabatyicznego, wielostopniowego ochłodzonego wtryskami międzystopniowymi. Wielkościami sterującymi są: T_p^1 - temperatura mieszaniny gazów na wejściu do reaktora, $\lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}$ - części osalkowitego strumienia podawanego do reaktora przepływające przez odpowiednio 1, 2, ..., (N-1)-sze złoże. Strukturę reaktora wielostopniowego przedstawia rys. 1.

Zastosowanie uzyskanych rozwiązań optymalnych w praktyce oznacza przedłużenie czasu pracy reaktora pomiędzy kolejnymi wymianami katalizatora. Ziągodzenie profilu temperaturowego powoduje zmniejszenie dezaktywacji katalizatora oraz bardziej równomierną eksploatację masy katalizatora w reaktorze.

MODEL MATEMATYCZNY PROCESU

W rozważaniach przyjęto model matematyczny kinetyki procesu adiabatyicznego zachodzącego w reaktorze wielostopniowym [4], [5]. Model ma postać układu trzech równań różniczkowych:

$$\left. \begin{aligned} \lambda^n \frac{d\xi_1}{dz} &= r_1(\xi_1, \xi_2, T), \\ \lambda^n \frac{d\xi_2}{dz} &= r_2(\xi_1, \xi_2, T), \\ \frac{dT}{dz} &= a r_1 + b r_2; \end{aligned} \right\} n = 1, 2, \dots, N \quad (3)$$

dla:

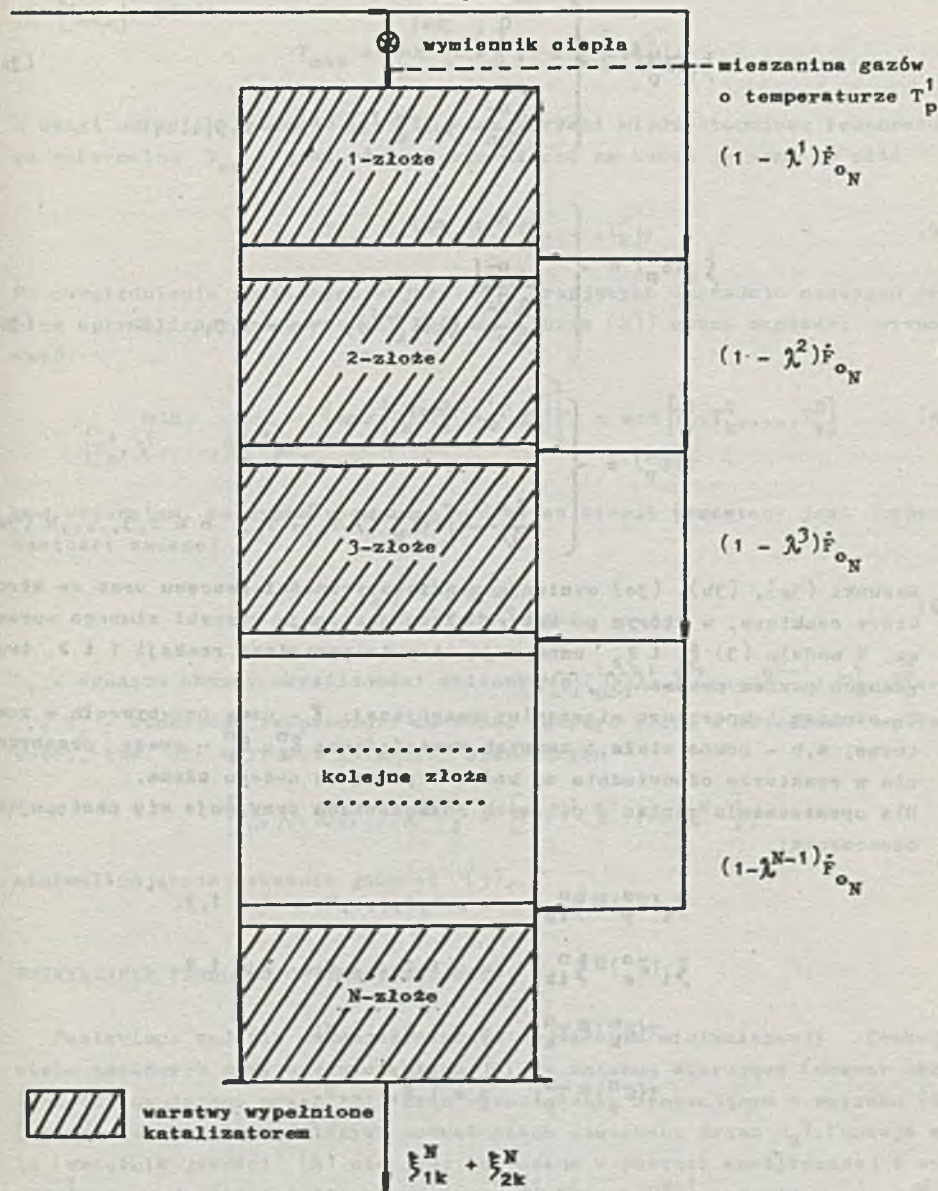
$$\xi_p^n \leq z \leq z_k^n$$

$$\xi_p^n = \xi_k^{n-1}$$

$$\xi_p^1 = 0$$

Całkowity strumień
podawany do reaktora - \dot{F}_{ON}

część strumienia całko-
witego przeznaczona na
wtryski



Rys. 1. Schemat strukturalny reaktora wielostopniowego wtryskowego

Warunki początkowe dla każdego z N stopni reaktora:

$$\xi_1(\tilde{z}_p^n) = \begin{cases} 0; & n=1 \\ \frac{\lambda^{n-1}}{\lambda^n} \xi_1(\tilde{z}_k^{n-1}); & n = 2, 3, \dots, N \end{cases} \quad (3a)$$

$$\xi_2(\tilde{z}_p^n) = \begin{cases} 0; & n=1 \\ \frac{\lambda^{n-1}}{\lambda^n} \xi_2(\tilde{z}_k^{n-1}); & n = 2, 3, \dots, N \end{cases} \quad (3b)$$

$$T(\tilde{z}_p^n) = \begin{cases} T_p^1; & n=1 \\ \frac{\lambda^{n-1}}{\lambda^n} [T(\tilde{z}_k^{n-1}) - T_0] + T_0; & n = 2, 3, \dots, N \end{cases} \quad (3c)$$

Warunki (3a), (3b), (3c) wynikają z adiabatyeczności procesu oraz ze struktury reaktora, w którym po każdym złożu następują wtryski zimnego surowca. W modelu (3) ξ_1 i ξ_2 oznaczają stopnie przemiany reakcji 1 i 2 tworzących pewien proces [5], [9].

T oznacza temperaturę mieszaniny reagującej; \tilde{z} - czas przebywania w reaktorze; a, b - pewne stałe o znanych wartościach; $\tilde{z}_k^n, \tilde{z}_p^n$ - czasy przebywania w reaktorze odpowiednio na końcu i początku n -tego złoża.

Dla uproszczenia zapisu w dalszych rozważaniach przyjmuje się następujące oznaczenia:

$$\xi_1(\tilde{z}_p^n) \equiv \xi_{1p}^n; \quad n = 1, 2, \dots, N; \quad i = 1, 2.$$

$$\xi_2(\tilde{z}_k^n) \equiv \xi_{2k}^n; \quad n = 1, 2, \dots, N; \quad i = 1, 2.$$

$$T(\tilde{z}_k^n) \equiv T_k^n; \quad n = 1, 2, \dots, N;$$

$$T(\tilde{z}_p^n) \equiv T_p^n; \quad n = 1, 2, \dots, N.$$

SFORMUŁOWANIE ZADANIA OPTIMALIZACYJNEGO

Przyjmując jako zmienne sterujące: $T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}$, należy znaleźć $\min [T_{\max}]$, gdzie:

$$T_{\max} = \max_{\mathcal{Z}} [T(\mathcal{Z})]; \quad \mathcal{Z} \in [0; z_k^N].$$

Z uwagi na adiabatyczność procesu oraz wtryski międzystopniowe temperatury maksymalna T_{\max} jest równa temperaturze na końcu jednego ze złożeń

$$T_{\max} = \max [T_k^1, T_k^2, \dots, T_k^N]. \quad (4)$$

Po uwzględnieniu powyższych wyjaśnień i przyjętych uprzednio oznaczeń problem optymalizacyjny (wyrażony ogólnie wzorem (2)) można zapisać: wyznaczyć:

$$\min_{[T_p^1, \lambda^1, \dots, \lambda^{N-1}] \in D_1} \left\{ \max [T_k^1, T_k^2, \dots, T_k^N] \right\} = \max [T_k^1, T_k^2, \dots, T_k^N] \quad (5)$$

pod warunkiem, że wyznaczona suma końcowych stopni przemiany jest równa wartości zadanej

$$\xi_{1k}^N + \xi_{2k}^N = \xi_{\text{zad}} \quad (6)$$

D_1 - oznacza obszar określoności zmiennych $T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}; T_k^1, T_k^2, \dots, T_k^N$ - oznaczają temperatury na końcu każdego złożeń w warunkach optymalności, tzn. dla wartości zmiennych sterujących

$$[T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}] = [T_p^1, \bar{\lambda}^1, \bar{\lambda}^2, \dots, \bar{\lambda}^{N-1}]$$

minimalizujących wskaźnik jakości (5).

ROZWIĄZANIE PROBLEMU OPTIMALIZACYJNEGO

Postawione zadanie można sprowadzić do zadania minimalizacji funkcji wielu zmiennych przy ograniczeniach [6] na zmienne sterujące (obszar określoności oznaczono przez D_1) oraz ograniczeniu wynikającym z warunku (6) (obszar ten będzie w dalszych rozważaniach oznaczony przez D_2). Funkcja celu (wskaźnik jakości) (4) nie jest tu podana w postaci analitycznej i wyznaczenie jej wartości dla pewnych $T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}$ przebiega w dwóch fazach:

1 - rozwiązanie układu równań (3) - (3c) (rozwiązanie numeryczne, gdyż równania opisujące kinetykę procesów chemicznych są w praktyce równaniami różniczkowymi nieliniowymi i uzyskanie rozwiązania analitycznego jest niemożliwe [7]),

2 - obliczenie wartości T_{\max} wg wzoru (4).

W wyniku rozwiązania układu równań (3) - (3c) otrzymuje się wartości temperatur na końcu każdego złoza, będące w ogólnym przypadku funkcjami zmiennych sterujących:

$$T_k^n = T_k(T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}); \quad n = 1, 2, \dots, N, \quad (7)$$

przy czym zmienne sterujące muszą spełniać warunek (6), tzn.

$$[T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}] \in D_2 = \left\{ T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1} : \xi_{1k}^N + \xi_{2k}^N = \xi_{\text{zad}}^N \right\} \quad (7a)$$

Biorąc pod uwagę (7) i (7a) można twierdzić, iż wskaźnik jakości (6) jest funkcją zmiennych $[T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}]$, na które z kolei narzucone są ograniczenia wynikające ze struktury reaktora oraz z warunków pracy reaktora (obszar D_1), tj.:

$$[T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}] \in D_1 =$$

$$= \left\{ T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1} : T_p^1 \geq T_{\text{dopuszczalne}}, \lambda^n \leq \lambda^{n+1} \leq 1; n=1, 2, \dots, N-2 \right\} \quad (9)$$

Ostatecznie zadanie optymalizacyjne ma postać:

znaleźć

$$\begin{aligned} & \min_{[T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}] \in D_1 \cap D_2} \left\{ \max [T_k^1, T_k^2, \dots, T_k^N] \right\} = \\ & = \max [T_k^1, T_k^2, \dots, T_k^N] \left| \begin{array}{l} [T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}] \in D_1 \cap D_2 \\ [T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}] = [\bar{T}_p^1, \bar{\lambda}^1, \bar{\lambda}^2, \dots, \bar{\lambda}^{N-1}] \end{array} \right. \quad (10) \end{aligned}$$

Omówienia wymaga jeszcze problem przeszukiwania obszaru ograniczeń $D_1 \cap D_2$ oznaczającego, iż zmienne należące do obszaru D_1 muszą być tak dobrane, aby uzyskać sumaryczny stopień przemiany (6). W tym celu należy przy znalezieniu wskaźnika jakości rozwiązać układ równań (3) - (3c) dla pewnych $[T_p^1, \lambda^1, \lambda^2, \dots, \lambda^{N-1}] = 1$ tak, aby uzyskać warunek

$$\xi_{1k}^N + \xi_{2k}^N < \xi_{\text{zad}}^N \quad (11a)$$

oraz dla $[\hat{T}_p^1, \hat{\lambda}^1, \hat{\lambda}^2, \dots, \hat{\lambda}^{N-2}, \hat{\lambda}^{N-1} = \hat{\lambda}^{N-2}]$, aby uzyskać warunek

$$\sum_{1k}^N \xi_{1k}^N + \sum_{2k}^N \xi_{2k}^N > \xi_{\text{zad}} \quad (11b)$$

Stosując z kolei metodę bisekcji [8], należy rozwiązać równanie nieliniowe

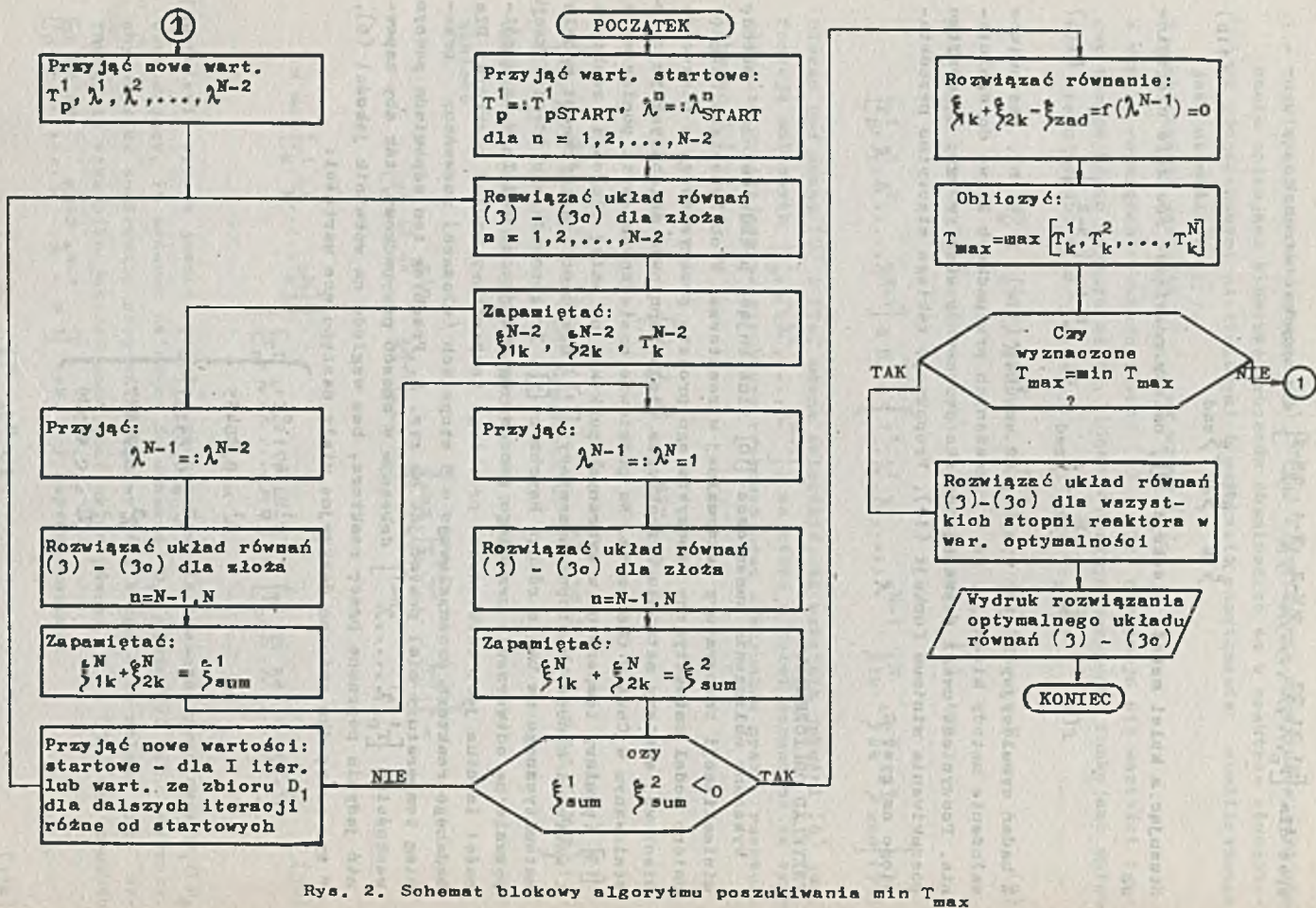
$$f(\lambda^{N-1}) = \sum_{1k}^N \xi_{1k}^N + \sum_{2k}^N \xi_{2k}^N - \xi_{\text{zad}} = 0; \quad \lambda^{N-1} \in [\lambda^{N-2}; j] \quad (11c)$$

Z badań symulacyjnych [10] wynika, iż warunki (11a) i (11b), stanowiące założenie metody bisekcji, są w rozważanych przypadkach łatwe do spełnienia. Poczynione uwagi pozwalają na skonstruowanie efektywnego algorytmu poszukiwania minimum funkcji (10). Propozycję takiego algorytmu przedstawiono na rys. 2.

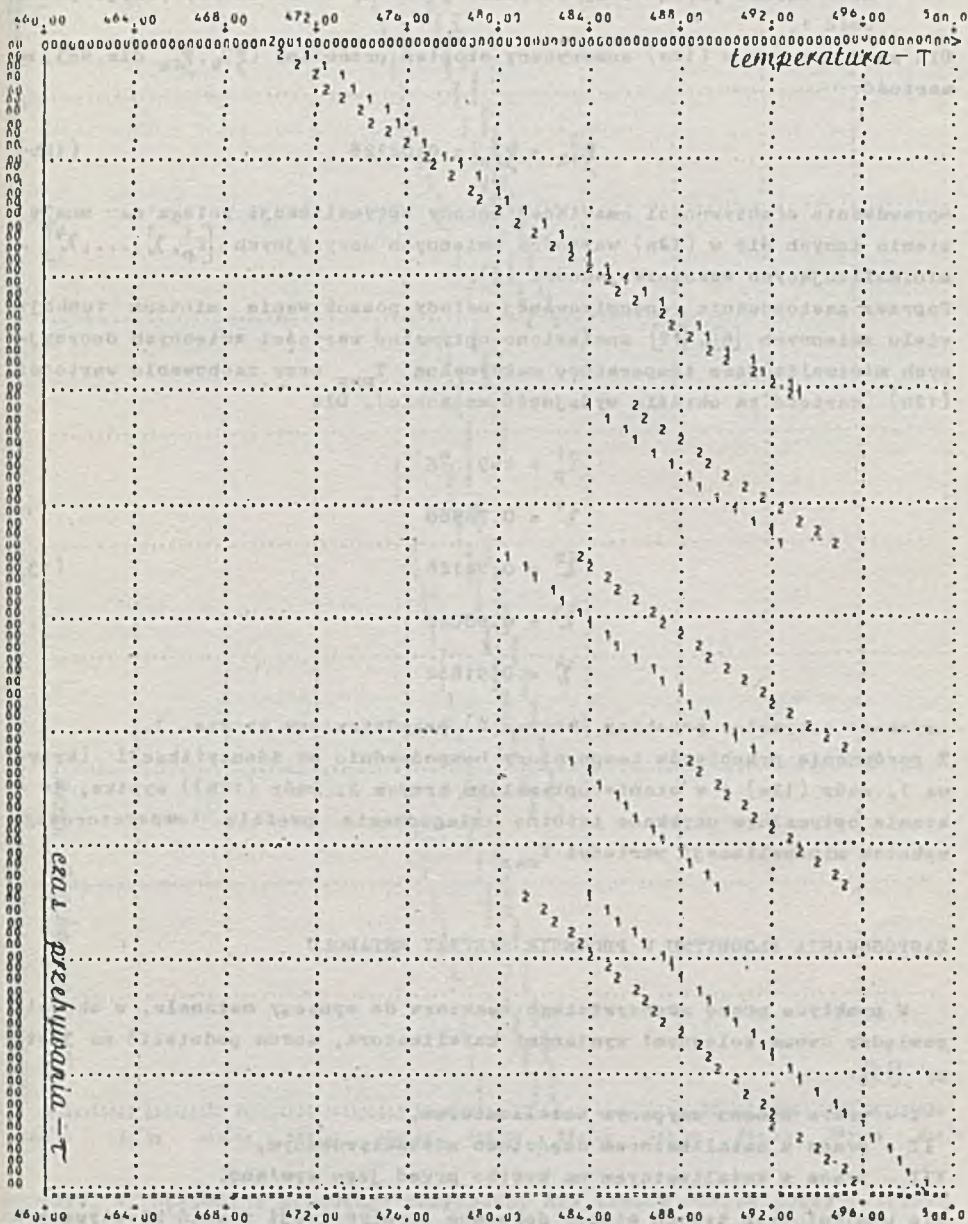
PRZYKŁAD OBLICZENIOWY

Wykonano obliczenia numeryczne [10] ilustrujące przedstawioną metodę minimalizacji temperatury maksymalnej w reaktorze. W obliczeniach uwzględniono model matematyczny rzeczywistego procesu przemysłowego - niskociśnieniowej syntezy metanolu w reaktorze wielostopniowym adiabatycznym zainstalowanym w ChZA w Chorzowie. Na podstawie posiadanych serii pomiarowych [13] (pomiarów temperatur w wybranych punktach na całej długości reaktora i wartości końcowych stopni przemiany [11]) dokonano identyfikacji modelu matematycznego na bazie równań Reyobmana [5]. Przeprowadzenie identyfikacji pozwala na odtworzenie przebiegu procesu wg przyjętego modelu. W szczególności istotne jest odtworzenie przebiegu temperatury wzdłuż reaktora. Dla badanego reaktora przemysłowego o 5 stopniach (złożach) rozważany przebieg temperatury miał postać jak na rys. 3. Przebieg ten odpowiada pewnym wartościom $[\hat{T}_p^1, \hat{\lambda}^1, \dots, \hat{\lambda}^{N-1}]$ dobranym w sposób przypadkowy, tak aby zapewnić jedynie poprawną pracę reaktora, bez względu na wskaźnik jakości (6). W tym przypadku zmienne decyzyjne miały następujące wartości:

$$\left. \begin{aligned} T_p^1 &= 471 \text{ } ^\circ\text{K} \\ \lambda^1 &= 0,80465 \\ \lambda^2 &= 0,85231 \\ \lambda^3 &= 0,91877 \\ \lambda^4 &= 0,96509 \end{aligned} \right\} \quad (12a)$$



Rys. 2. Schemat blokowy algorytmu poszukiwania min T_{max}



Rys. 3. Przykładowe przebiegi temperatur dla reaktora o pięciu złożach
 krzywa "1" - przebieg nieoptymalny, krzywa "2" - przebieg optymalny

λ^5 - zgodnie z obowiązującym rozdziałem wtłoków (przez ostatnie złoża musi zawsze płynąć cały strumień podawany do reaktora) przyjmuje wartość 1.

Dla wartości jak w (12a) sumaryczny stopień przemiany (ξ_{1k}^N, ξ_{2k}^N dla $N=5$) ma wartość:

$$\xi_{1k}^5 + \xi_{2k}^5 = 0,02128 \quad (12b)$$

Sprawdzenie efektywności omawianej metody optymalizacji polega na znalezieniu innych niż w (12a) wartości zmiennych decyzyjnych $[T_p^1, \lambda^1, \dots, \lambda^4]$ - minimalizujących wskaźnik jakości (6).

Poprzez zastosowanie randomizowanej metody poszukiwania minimum funkcji wielu zmiennych [6], [12] znaleziono optymalne wartości zmiennych decyzyjnych minimalizujące temperaturę maksymalną T_{\max} przy zachowaniu wartości (12b) (wartość ta określa wydajność metanolu). Dla

$$\begin{aligned} \bar{T}_p^1 &= 469 \text{ } ^\circ\text{K} \\ \bar{\lambda}^1 &= 0,78580 \\ \bar{\lambda}^2 &= 0,82128 \\ \bar{\lambda}^3 &= 0,88022 \\ \bar{\lambda}^4 &= 0,91862 \end{aligned} \quad (13)$$

uzyskano optymalny przebieg (krzywa B) przedstawiony na rys. 3.

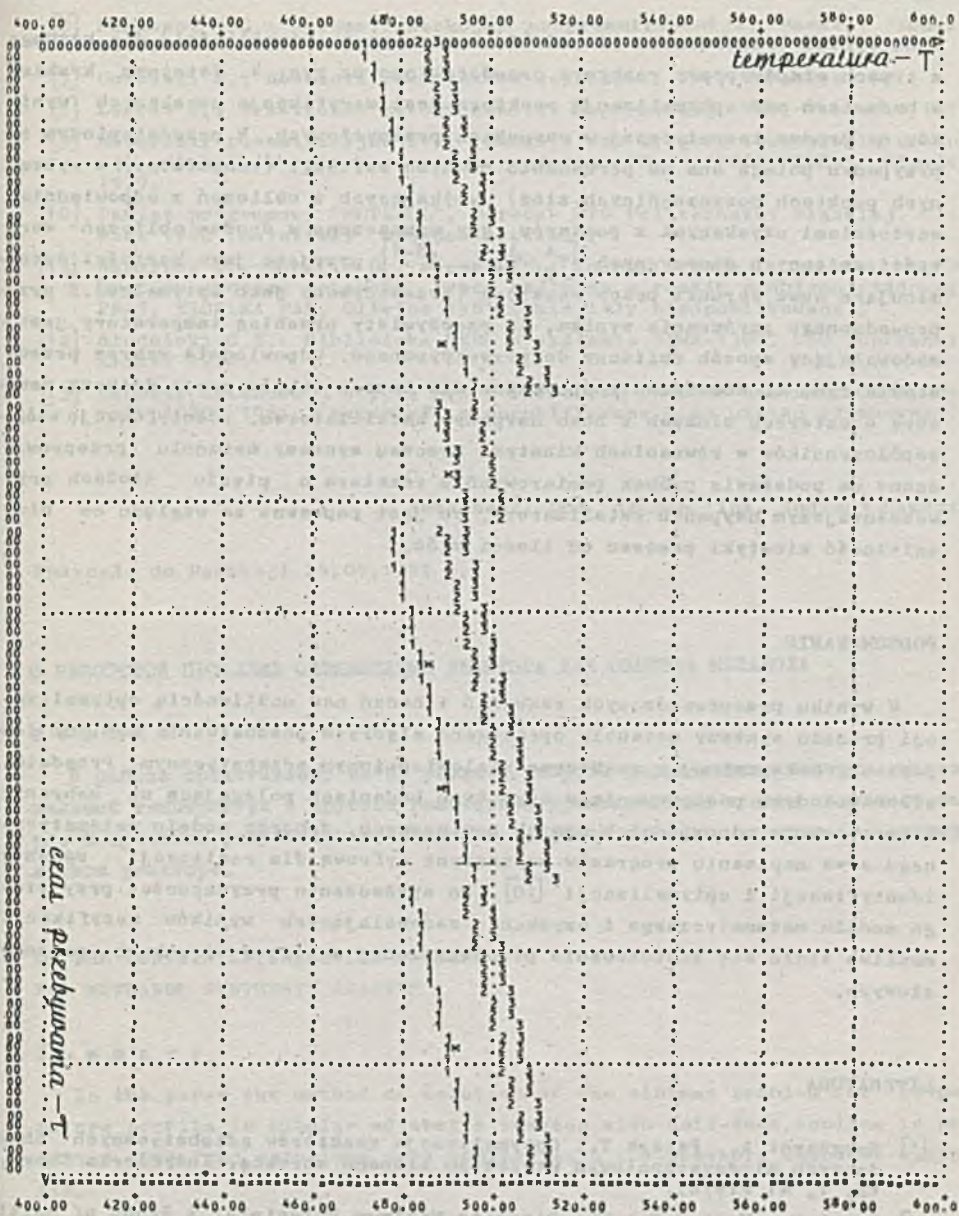
Z porównania przebiegów temperatury bezpośrednio po identyfikacji (krzywa 1, wzór (12a) i w stanie optymalnym krzywa 2, wzór (12b)) wynika, iż w stanie optymalnym uzyskano istotne złagodzenie profilu temperaturowego wskutek minimalizacji wartości T_{\max} .

ZASTOSOWANIA ALGORYTMU W PROCESIE SYNTEZY METANOLU

W praktyce pracę rzeczywistego reaktora do syntezy metanolu, w okresie pomiędzy dwoma kolejnymi wymianami katalizatora, można podzielić na 3 etapy [13]:

- I - praca z nowo usypanym katalizatorem,
- II - praca z katalizatorem częściowo zdezaktywowanym,
- III - praca z katalizatorem na krótko przed jego wymianą.

Dla wymienionych trzech etapów dokonano identyfikacji równań kinetycznych (w celu dopasowania pewnych nieznanych stałych, zależnych od stopnia zużycia katalizatora). Pozwala to uzyskać 3 różne (ze względu na wartości identyfikowanych stałych) modele. Dla każdego z trzech etapów można wtedy dokonać optymalizacji profilu temperaturowego wg rozważanej metody. Uzy-



Rys. 4. Optymalne przebiegi temperatur dla trzech etapów pracy reaktora
 krzywa "1" - I etap, krzywa "2" - II etap, krzywa "3" - III etap - "x" - oznacza
 wartości temperatur otrzymane z pomiarów przy optymalnych nastawach tem-
 peratury początkowej i wtrysków dla I etapu pracy reaktora

kane wyniki (rozwiązania równań (3) w warunkach optymalności) dla każdego z trzech etapów pracy reaktora przedstawiono na rys. 4. Istotnym krokiem w badaniach nad optymalizacją reaktora jest weryfikacja uzyskanych wyników na drodze teoretycznej w warunkach przemysłowych. W przedstawionym tu przypadku polega ona na porównaniu pewnych wartości (temperatury w wybranych punktach poszczególnych ziół) wynikających z obliczeń z odpowiednimi wartościami uzyskanymi z pomiarów, gdy wyznaczone w drodze obliczeń wartości zmiennych decyzyjnych $[T_p^1, \lambda^1, \dots, \lambda^{N-1}]$ przyjęto jako wartości determinujące nowe warunki pracy reaktora (przewidywane jako optymalne). Z przeprowadzonego porównania wynika, iż rzeczywisty przebieg temperatury jest w zadowalający sposób zbliżony do przewidywanego. Odpowiednie wykres przedstawia rys. 4. Rozwiązania optymalne dla trzech etapów pracy dotyczą reaktora o czterech złożach z nowo usypanym katalizatorem. Identyfikację współczynników w równaniach kinetyki procesu syntezy metanolu przeprowadzono na podstawie próbek pomiarowych z reaktora o pięciu złożach przy wcześniejszym usypaniu katalizatora, co jest poprawne ze względu na niezależność kinetyki procesu od ilości ziół.

PODSUMOWANIE

W wyniku przeprowadzonych rozważań i badań nad możliwością optymalizacji procesu syntezy metanolu opracowano algorytm poszukiwania minimum temperatury maksymalnej w reaktorze wielostopniowym adiabaticznym. Przedstawiono metodykę postępowania w tego typu badaniach polegającą na zebraniu i opracowaniu odpowiednich danych pomiarowych, doborze modelu matematycznego oraz napisaniu programów na maszynie cyfrową dla realizacji zadania identyfikacji i optymalizacji [10]. Po sprawdzeniu przydatności przyjętego modelu matematycznego i uzyskaniu zadowalających wyników weryfikacji możliwe stało się zastosowanie przedstawionej metody w warunkach przemysłowych.

LITERATURA

- [1] Burghardt A., Patzek T.: Optymalizacja reaktorów adiabaticznych obciążonych międzystopniowym wtryskiem zimnego surowca. Inżynieria Chem., VI, 1, 41 (1976).
- [2] Fan L.R., Wang C.S.: The Discrete Maximum Principle; A Study of Multi-stage System Optimization. J. Wiley, New York 1964.
- [3] Malange P.J., Vincent L.M.: Optimal Design of Adiabatic Reactor with Cold-Shot Cooling. Ind.Eng.Chem.Process Des.Dev., Vol. 11, No 4, 465 (1972).
- [4] Szarawara J., Skrzypek J.: Podstawy inżynierii reaktorów chemicznych. WNT, Warszawa 1980.
- [5] Reychman K.: Praca doktorska. Politechnika Śląska, Gliwice 1974.

- [6] Karmanow W.G.: Matematyčeskoe programirovanija. Moskwa, "Nauka" 1980.
- [7] Gutowski R.: Równania różniczkowe zwyczajne. WNT, Warszawa 1971.
- [8] Legras J.: Praktyczne metody analizy numerycznej. WNT, Warszawa 1974.
- [9] Materiały poseminaryjne nt.: "Badania nad krajową technologią produkcji metanolu w ramach programu rządowego PR-1" "PROSYNCHEM", Gliwice 1979.
- [10] Pakiet programowy "METANOL". Ośrodek ETO Politechniki Śląskiej, Gliwice 1980 (materiały nieopublikowane).
- [11] Skrzypek J., Serafin D., Crzesik M.: Identyfikacja i optymalizacja procesu syntezy metanolu. Praca badawcza w ramach problemu rządowego PR-1, ZICHKA PAN, Gliwice 1981 (materiały nieopublikowane).
- [12] Studniński G.S.: Biblioteka CERN w systemie ODRA-1300. SCO Cyfronet, Kraków 1978.
- [13] Raporty zmianowe o stanie pracy reaktora. Oddział Metanolu, ChZA, Chorzów 1980, 1981, (Materiały nieopublikowane - do użytku służbowego).

Recenzent: Doc. dr hab. inż. Andrzej Gawdzik

Wpłynęło do Redakcji 24.09.1982 r.

О НЕКОТОРОЙ ПРОБЛЕМЕ ОПТИМИЗАЦИИ РЕАКТОРА ДЛЯ СИНТЕЗА МЕТАНОЛА

Р е з ю м е

В работе представлено метод решения вопроса определения минимума максимальной температуры в трубном реакторе с промежуточным вводом холодного сырья. Полученные результаты применено в процессе синтеза метанола в промышленном реакторе.

ON THE CERTAIN OPTIMIZATION PROBLEM FOR METHANOL SYNTHESIS REACTOR

S u m m a r y

In the paper the method of solution of the minimax problem for temperature profile in tubular adiabatic reactor with cold-shot cooling is presented. Obtained solutions were applied into low-pressure methanol synthesis.