

应用于两步连续可逆反应的新型反应精馏塔的控制

夏春英, 黄克谨*, 王韶锋

(北京化工大学信息科学与技术学院, 北京 100029)

摘要:设计了一种三回路的浓度控制系统,以合成碳酸二乙酯为例,对 RDC-DRS 的动态操作进行了研究。采用 Aspen Dynamics 模拟软件对 RDC-DRS 控制系统进行闭环仿真研究,结果表明,在对系统施加进料流量扰动和组分扰动时,RDC-DRS 控制系统皆表现出了良好的抗干扰性。与 RDC-SRS 相比,RDC-DRS 的控制效果更好。

关键词:反应精馏塔;两阶反应段;动态可控性;连续可逆反应

中图分类号:TQ021.8;TP29

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2015)08-0173-04

Control of a novel reactive distillation column for the two-stage consecutive reversible reactions

XIA Chun-ying, HUANG Ke-jin*, WANG Shao-feng

(College of Information Science & Technology, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China)

Abstract: In the current work, a control scheme featuring three directly composition control loops is utilized. An illustrative example, the synthesis of diethyl carbonate, is chosen to evaluate the dynamic performance of the RDC-DRS. Simulation results show that the RDC-DRS has good capability of suppressing disturbances in the face of the feed flow and feed composition disturbances. As compared with the RDC-SRS, the RDC-DRS has better dynamic controllability.

Key words: reactive distillation column; double reactive sections; dynamic controllability; consecutive reversible reactions

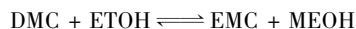
碳酸二乙酯(DEC)是一种生产广谱抗菌素阿莫西林的重要溶剂和中间体,可由碳酸二甲酯(DMC)与乙醇(ETOH)通过两步连续可逆反应进行制备^[1],Luo等^[2]应用一阶反应段反应精馏塔(RDC-SRS)对此进行了模拟。虽然能够得到高纯度的DEC产物,但两步反应之间存在强烈的耦合,恶化了反应操作与分离操作之间的内部物质耦合。为了解决这一问题,Yu等^[1]提出了一种两阶反应段反应精馏塔(RDC-DRS)。与RDC-SRS相比,RDC-DRS增加了反应段塔板数以及反应段之间的塔板数等设计自由度。通过合理地安排RDC-DRS中2个反应段的位置和塔板数,可以协调两步连续可逆反应之间的关系,从而节省系统能耗和设备投资费用。

目前,对于RDC-DRS的研究报道较少。2007年,Tung等^[3]提出了一种特殊的RDC-DRS,将2个反应段分别放置在RDC-DRS的顶部(包含冷凝器)和底部(包含再沸器)。Steyer等^[4]将RDC-DRS应用于环己烯与水间接反应制备环己醇两步

反应体系。虽然以上研究证明了RDC-DRS的可行性,然而,至今为止几乎没有学者对于RDC-DRS的动态操作进行研究。本文中以DMC与ETOH转酯反应合成DEC物系为例,针对RDC-DRS设计了一种三回路浓度控制策略,通过仿真研究了在进料流量和组分扰动下的动态特性,并与RDC-SRS进行比较。

1 应用于两步连续可逆反应的新型反应精馏塔的稳态设计

DMC与ETOH转酯反应生成DEC与甲醇(MEOH)的过程包括两步连续可逆反应:



该反应物系的动力学及热力学参数取自Yu等^[1]的文献,塔压为0.1 MPa,塔板压降为0.000 5 MPa,总的ETOH进料流量为33 kmol/h,DMC进料流量为5.5 kmol/h,设计要求DMC的转化率为99.5%,塔底DEC的摩尔分数为0.995。以TAC最小化为目

收稿日期:2015-02-09

基金项目:国家自然科学基金项目(21176015)

作者简介:夏春英(1989-),女,硕士生;黄克谨(1963-),男,博士,教授,博士生导师,从事化工系统工程研究,通讯联系人,huangkj@mail.buct.edu.cn。

标,分别对乙醇进料分离比、2 个反应段及两反应段之间塔板数、精馏段与提馏段塔板数等进行优化,所得稳态设计结果如图 1(a)所示。同时,在图 1(b)中给出了相同条件的常规一阶反应段反应精馏塔的稳态最优设计结果。

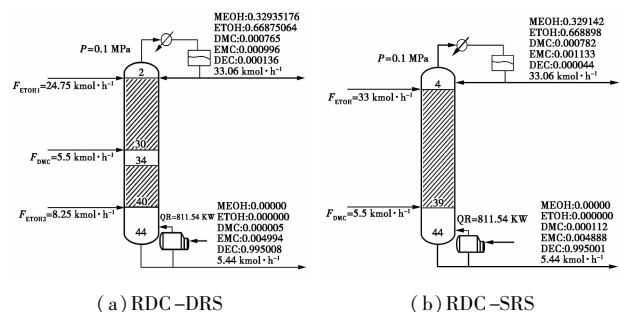


图 1 DMC 与 ETOH 转酯反应合成 DEC 体系的反应精馏塔的最优设计结构

2 应用于两步连续可逆反应的新型反应精馏塔的动态控制

Wei 等^[5]曾将温度控制方案应用于合成 DEC 的 RDC-SRS 中,其结果显示,在对进料组成进行干扰时,产物 DEC 的纯度会存在偏差。为了保证 DEC 的纯度达到设计值,本文中采用一种三回路直接浓度控制方案对 RDC-DRS 和 RDC-SRS 的动态操作进行研究。

2.1 过程变量分析

合成 DEC 的 RDC-DRS 具有 8 个设计自由度: 3 股进料的流量、塔顶产物的出料流量、塔底产物的出料流量、冷凝器热负荷、再沸器热负荷和回流比。其中冷凝器热负荷用于控制塔压,反应物 DMC 进料流量用于控制产量,塔顶、塔底产物的出料流量分别用于控制塔顶回流罐液位和塔釜液位。其他操作变量包括再沸器热负荷 (Q_{reb})、塔顶回流比 (RR)、第一股乙醇进料流量 (F_{ETOHI}) (两股 ETOH 进料之间采用比例控制),可用于实现系统的控制要求和维持反应物化学计量平衡。控制要求包括塔底主要产物 DEC 浓度 ($X_{DEC,b}$) 和 DMC 的转化率[通过控制塔顶 ETOH 的摩尔分数 ($X_{ETOH,d}$) 达到间接控制的目的]保持在设定值附近。其次,为维持反应物之间的化学平衡,本文中采用 Al-Arfaj 等^[6]提出的通过控制某块塔板(即灵敏板)上反应物浓度实现。RDC-SRS 与 RDC-DRS 相比少了 1 股 ETOH 进料,可省略 2 股 ETOH 进料之间的比例控制,其余变量分析同 RDC-DRS。

2.2 灵敏板选择

利用灵敏度原则选择灵敏板,即对过量反应物 ETOH 进料流量施加 0.1% 的变化,计算出各塔板浓度与 ETOH 进料流量的开环增益,结果如图 2 所示。为了保证所选浓度灵敏板在面对正负扰动时均具有较好的灵敏度,在选择灵敏板时需要考虑控制点的对称性,在此基础上选择灵敏度较大的塔板。由图 2 可知,开环增益对称且最大的塔板 RDC-DRS 为 29 块,RDC-SRS 为 34 块。但考虑到这 2 块塔板上乙醇浓度较低,在动态控制中容易造成控制阀的饱和,所以选择灵敏度次之且浓度稍大的塔板,RDC-DRS 选择第 21 块塔板,RDC-SRS 选择 27 块塔板为浓度灵敏板。则 RDC-DRS 另外一个被控变量为第 21 块塔板上乙醇摩尔分数 $X_{ETOH,21}$;RDC-SRS 中另外一个被控变量为第 27 块塔板上乙醇摩尔分数 $X_{ETOH,27}$ 。

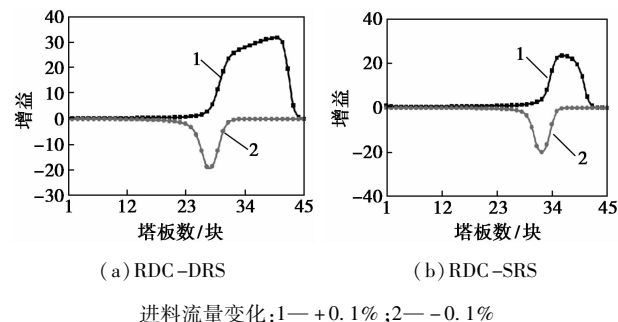


图 2 RDC-DRS 和 RDC-SRS 的灵敏度分析

2.3 相对增益矩阵(RGA)分析

本文中采用 RGA 确定操作变量与被控变量之间的配对关系,使不同控制回路之间的耦合作用减弱。依次对操作变量施加阶跃扰动得到对应控制通道的开环响应曲线,拟合出对应的传递函数,然后计算出 RDC-DRS 与 RDC-SRS 的 RGA,如表 1 所示。

表 1 RDC-DRS 和 RDC-SRS 相对增益矩阵(RGA)

		F_{ETOHI}	RR	Q_{reb}
RDC-DRS	$X_{ETOH,21}$	1.7608	0.9164	-1.6772
	$X_{ETOH,d}$	-0.7033	1.0613	0.6420
	$X_{DEC,b}$	-0.0575	-0.9777	2.0352
RDC-SRS	$X_{ETOH,27}$	2.1880	1.7939	-2.9819
	$X_{ETOH,d}$	-0.8627	2.0040	-0.1413
	$X_{DEC,b}$	-0.3253	-2.7979	4.1232

当 RGA 中的数值 λ_{ij} (RGA 中第 i 行第 j 列数值) 接近于 1 时,表示该控制通道不受其他控制通道的影响,属于最好的配对方式,因此,RDC-DRS

和 RDC-SRS 的控制回路可分别选择为 $X_{DEC,b} - Q_{reb}$ 、 $X_{ETOH,d} - RR$ 、 $X_{ETOH,21} - F_{ETOH1}$ 和 $X_{DEC,b} - Q_{reb}$ 、 $X_{ETOH,d} - RR$ 、 $X_{ETOH,27} - F_{ETOH}$ 。其中灵敏板浓度控制与乙醇进料流量控制组成串级控制回路。RDC-DRS 与 RDC-SRS 的控制结构如图 3 所示

需要注意的一点是 RDC-DRS 的 RGA 中 λ_{11} 、 λ_{22} 、 λ_{33} 的数值(1.760 8, 1.061 3, 2.035 3)比 RDC-SRS 的 RGA 中 λ_{11} 、 λ_{22} 、 λ_{33} 的数值(2.188 0, 2.004 0, 4.123 2)均更接近于 1, 说明了 RDC-DRS 各控制通道间的相互作用比之 RDC-SRS 减弱了, 反映了 RDC-DRS 在过程可控性上有所改善。

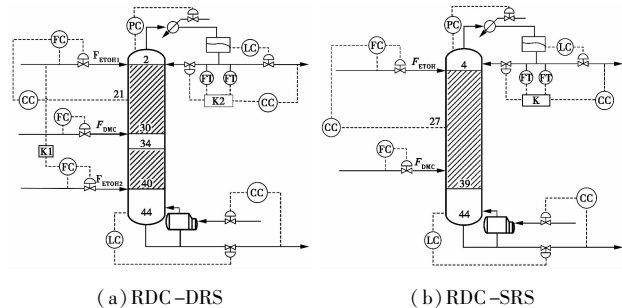


图 3 单/双反应段反应精馏塔的控制结构

2.4 控制器设计及参数整定

RDC-DRS 与 RDC-SRS 中的液位控制器采用纯比例(P)作用, 流量控制器、塔压控制器和浓度控制器采用比例积分(PI)作用。浓度控制器参数采用 Tyreus-Luyben 整定法进行整定, 按照 $X_{DEC,b} - Q_{reb}$ 、 $X_{ETOH,d} - RR$ 、 $X_{ETOH,21/27} - F_{ETOH1/ETOH}$ 的回路整定顺序分别对 3 个浓度控制回路进行整定。具体整定流程如下: ①对每个控制回路进行中继反馈测试, 得到输出曲线的增益值和周期值; ②根据公式 $K_C' = K_U / 3.2$, $\tau_I' = 2.2P_U$ 得到每个控制回路 PI 作用下的控制器参数; ③为了减小各个控制回路之间相互作用, 引入一个因子 f , 计算 $K_C = K_C' / f$, $\tau_I = f * \tau_I'$ 为最终的控制器增益和积分时间。得到的 RDC-DRS 和 RDC-SRS 的控制器参数如表 2 所示。

表 2 RDC-DRS 和 RDC-SRS 控制器参数

	控制回路	K_C	T_I
RDC-DRS	$X_{ETOH,21} - F_{ETOH1}$	1.3	100
	$X_{ETOH,d} - RR$	5	60
	$X_{DEC,b} - Q_{reb}$	10	40.32
RDC-SRS	$X_{ETOH,27} - F_{ETOH}$	0.89	106
	$X_{ETOH,d} - RR$	2.95	35.64
	$X_{DEC,b} - Q_{reb}$	6.4	50.64

3 应用于两步连续可逆反应的新型反应精馏塔的动态性能与评价

采用 Aspen Dynamics 商业模拟软件对 RDC-DRS 和 RDC-SRS 分别进行闭环仿真研究。图 4 给出了 DMC 进料流量出现 10% 扰动时, RDC-DRS 和 RDC-SRS 中各操作变量和被控变量的闭环响应曲线。在 RDC-DRS 中, 塔底主要产物浓度 $X_{DEC,b}$ 和其操作变量 Q_{reb} 动态响应曲线稳定于 19 h, 而 RDC-SRS 对应的动态响应曲线稳定于 24 h。RDC-DRS 中各响应曲线的超调量小于 RDC-SRS, 且具有更快的响应速度。

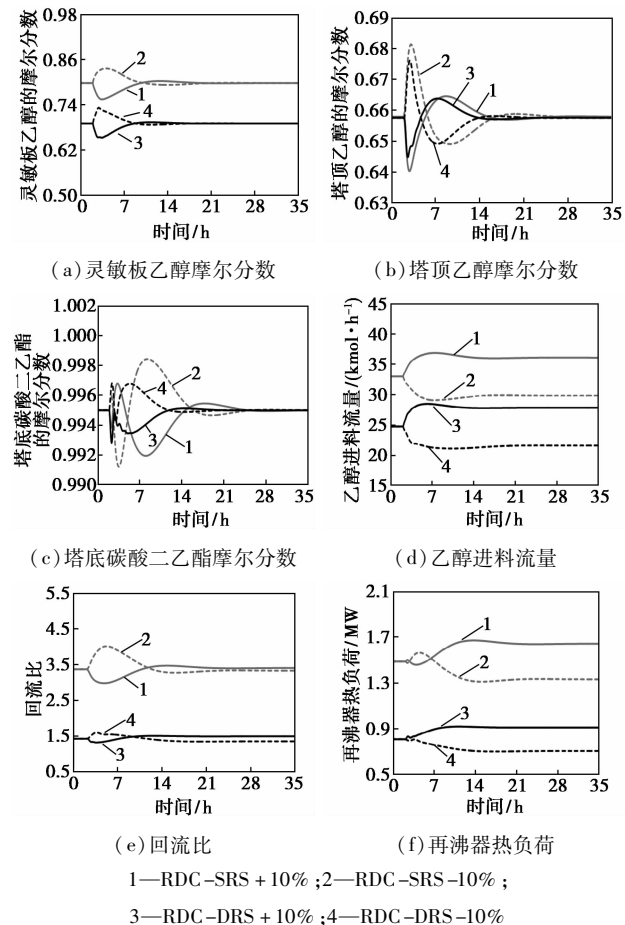


图 4 DMC 进料流量出现 $\pm 10\%$ 扰动时 RDC-DRS 与 RDC-SRS 的闭环响应曲线

图 5 给出了 DMC 进料组分出现 5% 扰动(即首先将纯 DMC 进料变化为 95% DMC 和 5% ETOH 的混合进料, 待系统运行至稳态时, 再分别使 DMC 组分增大或减小 5%)时, RDC-DRS 和 RDC-SRS 中各操作变量和被控变量的闭环响应曲线。在 RDC-DRS 中, 塔底主要产物浓度 $X_{DEC,b}$ 和其操纵变量 Q_{reb} 动态响应曲线稳定于 19 h, 而 RDC-SRS 对应的动

态响应曲线稳定于 23 h。RDC-DRS 中各响应曲线的超调量小于 RDC-SRS, 且具有更快的响应速度。与对控制系统施加 DMC 进料流量扰动时具有一致的分析结果, 充分说明了在面对流量扰动和组分扰动时 RDC-DRS 比 RDC-SRS 具有更好的抗干扰能力。

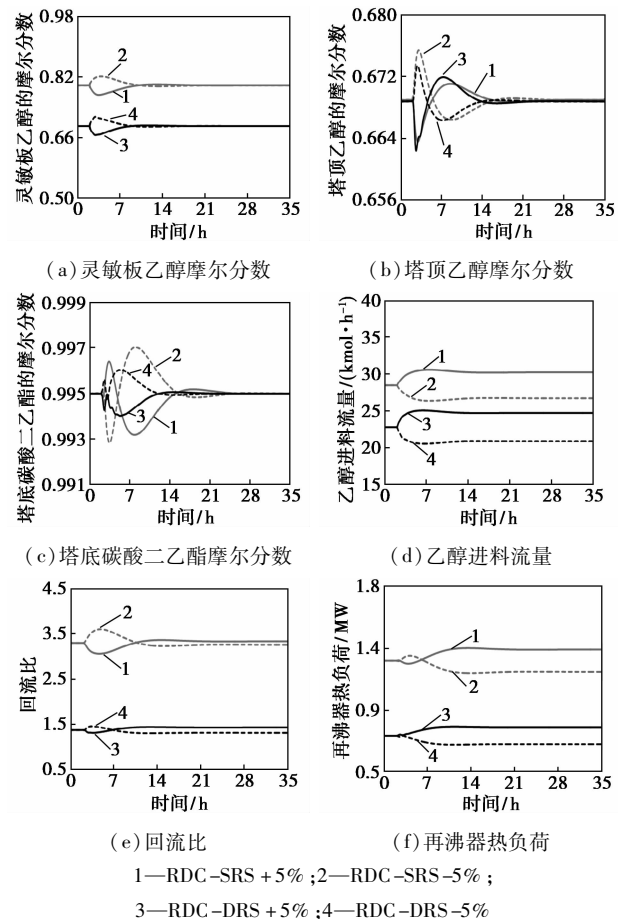


图 5 DMC 进料组分出现 $\pm 5\%$ 扰动时 RDC-DRS 与 RDC-SRS 的闭环响应曲线

出现上述现象的原因在于 DMC 与 ETOH 反应合成 DEC 的过程中包括两步连续可逆反应, 反应与操作之间的矛盾在 RDC-SRS 中常难以协调, 造成了反应与分离之间的强烈相互作用, 影响了系统的可操作性。RDC-DRS 将两步可逆反应分别设置在 2 个反应段中, 减弱了反应与分离操作之间的耦合作用, 这一点在 RGA 分析中也有所体现。同时, 2 反应段之间塔板可用于分离操作, 增加了系统的传

质推动力, 从而改善了系统的动态性能。

4 结论

为了探究应用于两步连续反应的新型反应精馏塔 RDC-DRS 的动态可控性, 本文中以 DMC 与 ETOH 转酯反应生成 DEC 为例, 对 RDC-DRS 设计了一种三回路直接浓度控制策略。塔底浓度控制回路用来保证主要产物 DEC 的质量指标, 塔顶浓度控制回路用来维持反应物的转化率, RDC-DRS 中灵敏板浓度与乙醇进料流量组成的串级控制回路用来保证反应物之间的化学计量平衡。采用 Aspen Dynamics 对该系统进行闭环仿真研究, 证明了该控制策略下 RDC-DRS 比 RDC-SRS 具有更好的抗干扰性和更优的动态性能。其原因在于 2 个反应段的巧妙设计缓解了反应与分离之间的强烈相互作用, 同时增加了系统的传质推动力, 从而改善了系统的动态性能。

参考文献

[1] Yu C H, Yao X H, Huang K J, *et al.* A reactive distillation column with double reactive sections for the separations of two-stage consecutive reversible reactions[J]. *Chemical Engineering and Processing*, 2014, 79:56-68.

[2] Luo H P, Xiao W D. A reactive-distillation process for a cascade and azeotropic reaction system: Carbonylation of ethanol with dimethyl carbonate[J]. *Chemical Engineering Science*, 2001, 56(2):403-410.

[3] Tung S T, Yu C C. Effects of relative volatility ranking to the design of reactive distillation[J]. *AIChE Journal*, 2007, 53(5):1278-1297.

[4] Steyer F, Freund H, Sundmacher K. A novel reactive distillation process for the indirect hydration of cyclohexene to cyclohexanol using a reactive entrainer[J]. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 2008, 47(23):9581-9587.

[5] Wei H, Rokmah A, Handogo R, *et al.* Design and control of reactive-distillation process for the production of diethyl carbonate via two consecutive trans-esterification reactions[J]. *Journal of Process Control*, 2011, 21(8):1193-1207.

[6] Al-Arfaj M A, Luyben W L. Effect of number of fractionating trays on reactive distillation performance[J]. *AIChE Journal*, 2000, 46(12):2417-2425. ■