

DOI: 10.11949/j.issn.0438-1157.20181356

外部环流反应精馏塔的分散控制方案设计

陈海胜, 王腾飞, 黄克谨, 苑杨, 钱行, 张亮

(北京化工大学信息科学与技术学院, 北京 100029)

摘要: 对于具有最不利相对挥发度排序 (即反应物为最轻和最重组分, 生成物为中间组分) 的四元反应分离物系而言, 在反应精馏塔的顶部和底部之间引入外部环流能够提高系统的反应分离效率, 从而大幅度地降低系统的能量消耗和固定投资成本。以理想四元可逆放热反应的分离为例, 研究了外部环流反应精馏塔的分散控制方案的设计问题。结果表明外部环流的引入提高了系统的反应速率, 使得外部环流反应精馏塔的闭环控制效果更好 (与传统反应精馏塔相比), 对干扰的处理能力更强。另外, 由于外部环流反应精馏塔比常规反应精馏塔有更多的操作变量 (即外部环流流量), 利用该变量对出料浓度进行控制, 可以进一步提高系统的闭环控制效果。

关键词: 反应精馏; 外部环流; 过程控制; 动态仿真; 过程系统

中图分类号: TQ 021.8

文献标志码: A

文章编号: 0438-1157 (2019) 02-0440-10

Decentralized control system designs for reactive distillation columns with external recycle

CHEN Haisheng, WANG Tengfei, HUANG Kejin, YUAN Yang, QIAN Xing, ZHANG Liang

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

Abstract: For a quaternary reaction separation system having the most unfavorable relative volatility order (*i.e.*, the reactant is the lightest and heaviest component, the product is the intermediate component), an external is introduced between the top and bottom of the reactive distillation column. The separation for an hypothetical ideal reversible exothermic reaction was taken as an illustrative example to study the problem of the decentralized control system designs. The results show that the reactive distillation columns with a top-bottom external recycle has better closed-loop control performance and stronger controllability in the face of large disturbances as compared to the conventional reactive distillation columns due to the fact that the introducing of external recycle enhance the system reaction rate. In addition, the processes have more operating valuable (*i.e.*, the external recycle flow rate) compared to conventional reactive distillation columns; therefore, one can utilize the extra operating valuable to control the product purity. The unique control system can further enhance process closed-loop control performance.

Key words: reactive distillation; external recycle; process control; dynamic simulation; process systems

收稿日期: 2018-11-16 修回日期: 2018-11-28

通信作者: 黄克谨 (1963—), 男, 博士, 教授, huangkj@mail.buct.edu.cn

第一作者: 陈海胜 (1986—), 男, 博士, 副教授, chenhs@mail.buct.edu.cn

基金项目: 国家自然科学基金项目 (21576014, 21676011, 21878011, 21808007, 61573052)

引用本文: 陈海胜, 王腾飞, 黄克谨, 苑杨, 钱行, 张亮. 外部环流反应精馏塔的分散控制方案设计[J]. 化工学报, 2019, 70(2): 440–449

Citation: CHEN Haisheng, WANG Tengfei, HUANG Kejin, YUAN Yang, QIAN Xing, ZHANG Liang. Decentralized control system designs for reactive distillation columns with external recycle[J]. CIESC Journal, 2019, 70(2): 440–449

引言

对于具有最有利相对挥发度排序(即两种反应物为中间组分,而两种产物分别为最轻和最重组分的情况)的四元可逆反应的分离,采用将反应段仅安排在反应精馏塔一端或中间的传统反应精馏塔(conventional reactive distillation column, CRDC)有节省能耗,提高反应转化率的优势^[1-5]。但对于具有最不利相对挥发度排序(即两种反应物分别为最轻和最重组分,而两种生成物为中间组分的情况)的四元可逆反应的分离而言,采用CRDC[图1(a)]却难以获得高纯度的产品^[6-14]。为了解决这一难题,Tung等^[15]提出了一种双反应段反应精馏塔结构(reactive distillation column with two reactive sections, RDC_TRS),即在RDC_TRS的顶部和底部各配置一个反应段,最重和最轻的组分分别从顶部和底部进料,产物从中间塔板抽出。虽然这种结构可以得到期望的产品浓度,但是能量消耗巨大,需要的设备投资成本也较多。近年来,Chen等^[8-10]提出了一种外部环流反应精馏塔的新型结构(reactive distillation column with top-bottom external recycle, RDC_TBER),即反应段仅安排在RDC_TBER的一端,最重和最轻的反应物分别从反应段的第一块塔

板和最后一块塔板进入,塔顶和塔底之间连接一股外部环流,产物从分离段的其中一块中间塔板抽出。在此结构中,未反应的反应物可以通过外部环流返回反应段发生进一步反应,因此可以大幅提高系统的热力学效率。RDC_TBER相对于传统反应精馏塔而言实际上进行了结构翻新^[16-17],这导致前者的动态特性与后者有所不同,因此,有必要研究前者的控制方案设计问题。

本文将以理想四元连续可逆放热反应($A + B \rightleftharpoons C + D$, $\alpha_A > \alpha_C > \alpha_B > \alpha_D$)的分离为例进行RDC_TBER的分散控制结构的分析与设计,并通过与传统反应精馏塔进行比较。最后给出关于RDC_TBER控制方案的结论。

1 理想RDC_TBER的稳态结构

分离四元理想可逆放热反应^[18-23]的RDC_TBER的稳态结构设计取自Chen等^[9]的研究。其示意图如图1(b)所示。可以看到,RDC_TBER的总塔板数为32块,最轻的反应物A从RDC_TBER的底部进料,最重的反应物B从反应段的上端(即第21块塔板)进料,中间产物(C和D的浓度均为47.5%(mol))从第8块塔板抽出。反应段放置在RDC_TBER的底部(放热反应所放出的热量可用于反应混合物的分

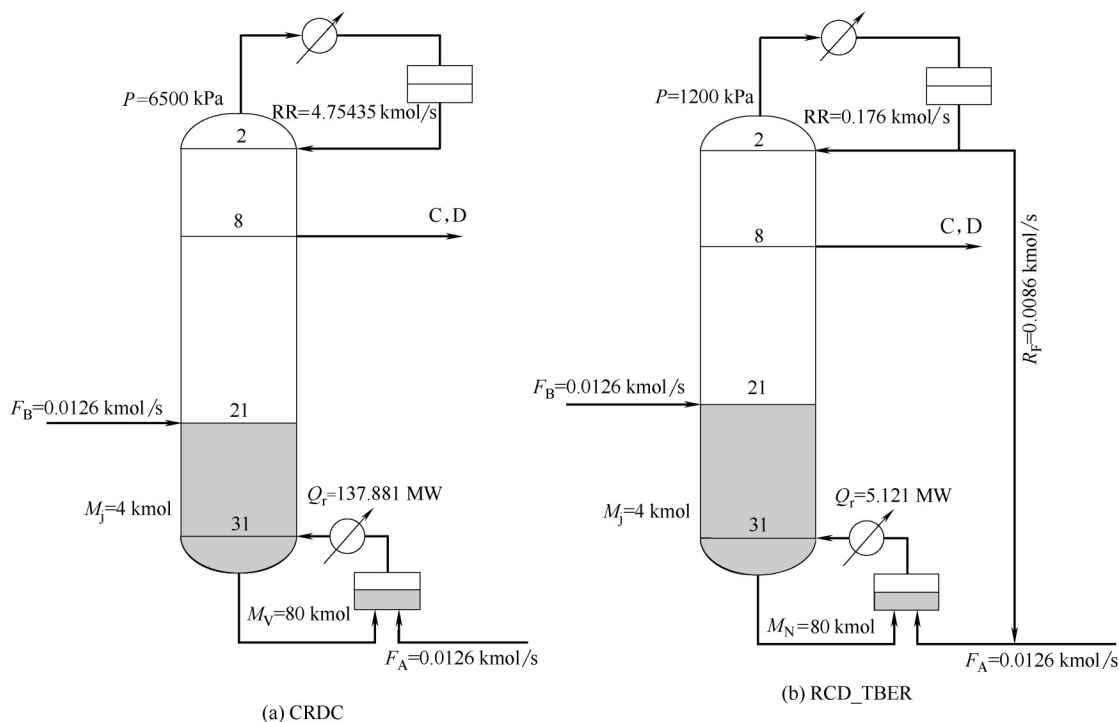


图1 CRDC和RDC_TBER的结构
Fig.1 Schematic of CRDC and RDC_TBER

离,这提高了系统的热力学效率),外部环流从塔顶流向塔底,由于塔顶聚集了较多的未反应的最轻反应物 A,因此将这股流股返回反应段可以提高反应的转化率,从而降低系统的设备投资成本和操作能耗。图2给出了RDC_TBER的稳态气液相流量和液相浓度分布。

采用RDC_TBER分离的四元理想连续可逆放热反应为



其反应速率计算如下

$$\text{rate}_{i,j} = v_i M_j (k_{f,j} x_{A,j} x_{B,j} - k_{b,j} x_{C,j} x_{D,j}) \quad (1)$$

其中

$$k_{f,j} = \alpha_f e^{-E_f/RT_j} \quad (2)$$

$$k_{b,j} = \alpha_b e^{-E_b/RT_j} \quad (3)$$

式中,下角标“b”代表逆反应,“f”代表正反应。

汽液平衡方程为

$$V_j = V_{j+1} - \text{rate}_{C,j} \times \Delta H_R / \Delta H_V \quad (4)$$

$$L_j = L_{j-1} + \text{rate}_{C,j} \times \Delta H_R / \Delta H_V \quad (5)$$

具体的反应物性参数和RDC_TBER的详细结构设计参数如表1所示。

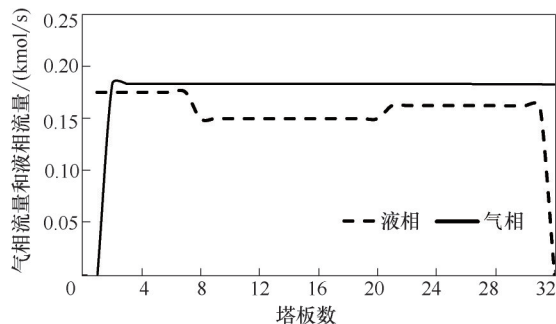
2 外部环流反应精馏塔的分散控制方案设计

假定系统的主要干扰源于进料A的流量和浓度,如图1(a)所示,CRDC共有5个操作变量:①回流量;②冷凝器热负荷;③B进料流量;④出料流量;⑤再沸器热负荷。通常采用冷凝器热负荷控制CRDC的操作压力,回流量控制塔顶液位,B进料流量控制CRDC中灵敏板上B的浓度以达到平衡进料化学反应计量比的目的。若采用出料流量控制塔底液位,则出料浓度通过再沸器热负荷进行控制,此时,由于出料的位置位于B进料位置之上,塔底液

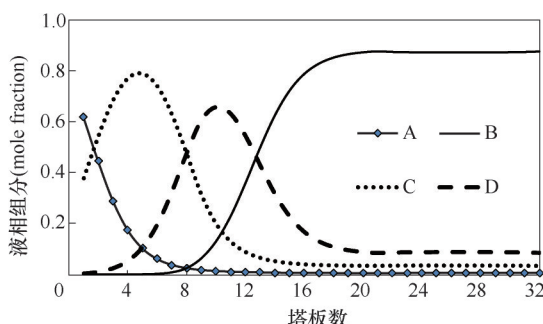
表1 物性参数和理想四元放热反应体系的结构设计参数

Table 1 Physical properties and structure design specifications of hypothetical ideal quaternary exothermic reaction system

参 数	数 值
塔压/kPa	1200
塔板数	
精馏段	19
反应段	11
提馏段	0
滞液量/kmol	
冷凝器/再沸器	80
塔板	4
进料流量/(kmol/s)	
A	0.0126
B	0.0126
进料塔板	
A	32
B	21
产物浓度/% (mol)	
C	47.5
D	47.5
活化能/(kJ/kmol)	
正向	50208
反向	71128
366 K时的反应速率/(kmol/(s·kmol))	
正向	0.008
反向	0.004
相对挥发度 A:B:C:D	8:1:4:2
反应热/(kJ/kmol)	-20920
汽化潜热/(kJ/kmol)	29053.7
饱和蒸气压常数	
A (A_{vp}/B_{vp})	17.65/3862
B (A_{vp}/B_{vp})	15.57/3862
C (A_{vp}/B_{vp})	16.95/3862
D (A_{vp}/B_{vp})	16.26/3862



(a) 气液相流量



(b) 液相浓度分布

图2 RDC_TBER的稳态分布

Fig.2 Steady-state profiles of RDC_TBER

位控制回路、出料浓度控制回路和灵敏板浓度控制回路之间的耦合非常强,这将对CRDC的控制产生负面的影响,这一点与传统的反应精馏塔的控制^[24-29]有所不同。因此,本文将采用再沸器热负荷控制塔底液位,则出料浓度通过出料流量进行控制[CS0_CRDC,图3(a)],这一控制方案有助于降低控制回路之间的耦合度。需要说明的是,由于没有足够的操作变量,CRDC只能对C或D的浓度进行控制,另一个未控制的D或C的浓度只能通过系统的化学反应缓慢地进行调节,因此,系统的时间常数很大,这也是CRDC控制的主要缺陷之一。

由于外部环流的引入,与CRDC相比,RDC_TBBER的操作变量更多,共有6个,它们是:①回流量;②冷凝器热负荷;③B进料流量;④出料流量;⑤再沸器热负荷;⑥外部环流流量。与CRDC一样,采用冷凝器热负荷控制RDC_TBBER的操作压力,回流量控制塔顶液位,B进料流量控制RDC_TBBER中灵敏板上B的浓度,再沸器热负荷控制塔底液位,出料流量控制中间出料中C的浓度。

外部环流是提高RDC_TBBER稳态性能的关键因素,同时,它的引入对系统的动态性能也有很大的影响。本文将通过对外部环流流量的两种不同控制方案研究外部环流对系统动态性能的作用。一种控制方案[CS1_RDC_TBBER,图3(b)]是固定外部环流流量,即通过采用流量控制,使其稳定在初始值。另一种控制方案[CS2_RDC_TBBER,图3(c)]是采用外部环流流量控制中间出料中D的浓度,即通过外部环流流量的调节调整系统反应速率,从而降低过程的过渡时间。

假定浓度控制器有5 min的滞后,其参数均采用Tyreus-Luyben方法进行整定^[30],具体的整定方法为:①被整定控制器回路处于闭环状态,其余回路开环;②该闭环回路积分时间设置无穷大,去掉积分作用和微分作用;③调整比例系数,使输出响应呈现等幅振荡,记下此时比例值 KU 和振荡周期 PU ;④根据公式 $KC = KU/3$, $TC = 2PU$,计算出单个闭环回路比例积分作用下的参数值;单回路整定方法得到的控制系统之间若存在较强的相互作用,可以设

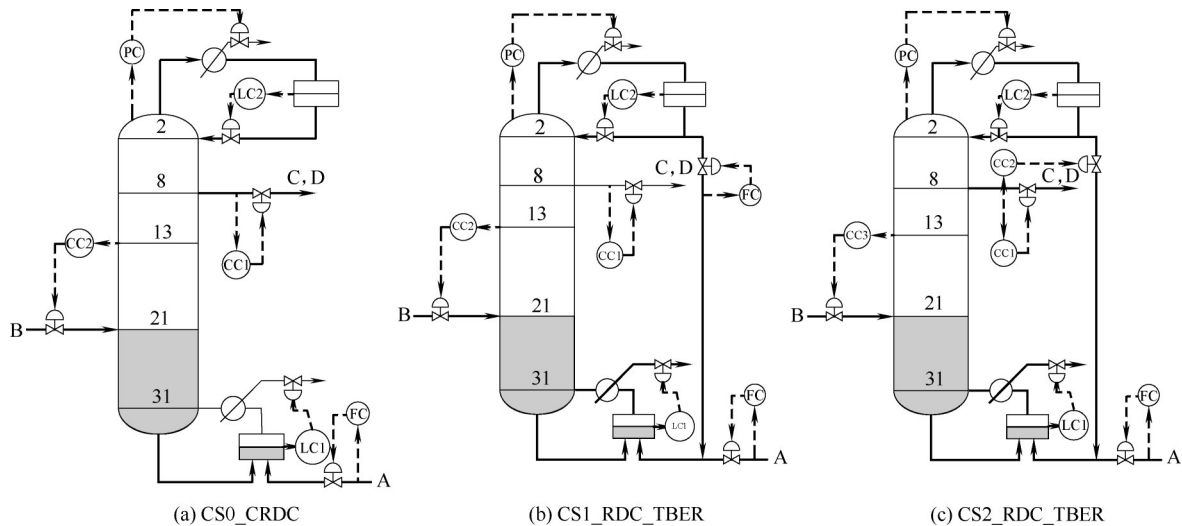


图3 CRDC和RDC_TBBER的三种分散控制方案

Fig.3 Three decentralized control schemes of CRDC and RDC_TBBER

表2 CRDC和RDC_TBBER三种控制方案的控制器参数

Table 2 Controller parameters for three control systems of CRDC and RDC_TBBER

参数	CS0_CRDC		CS1_RDC_TBBER		CS2_RDC_TBBER	
	KC	TI/s	KC	TI/s	KC	TI/s
塔顶液位	1	—	0.5	—	0.5	—
B进料流量	0.05	—	0.001	—	0.0005	240000
出料中C的浓度	1.36	3000	1.36	3000	0.68	6000
塔底液位	0.5	—	40	—	40	—
出料中D的浓度	—	—	—	—	0.4	4500

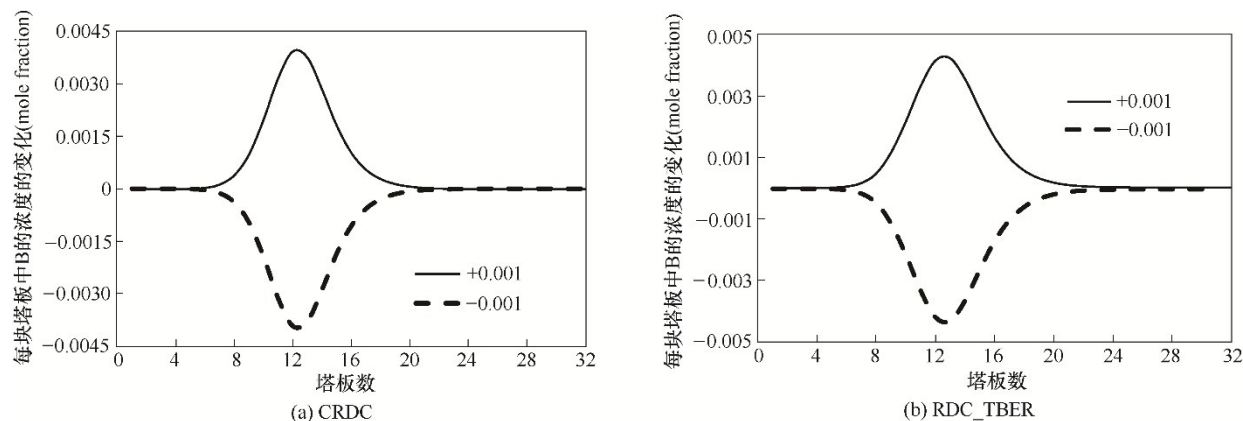
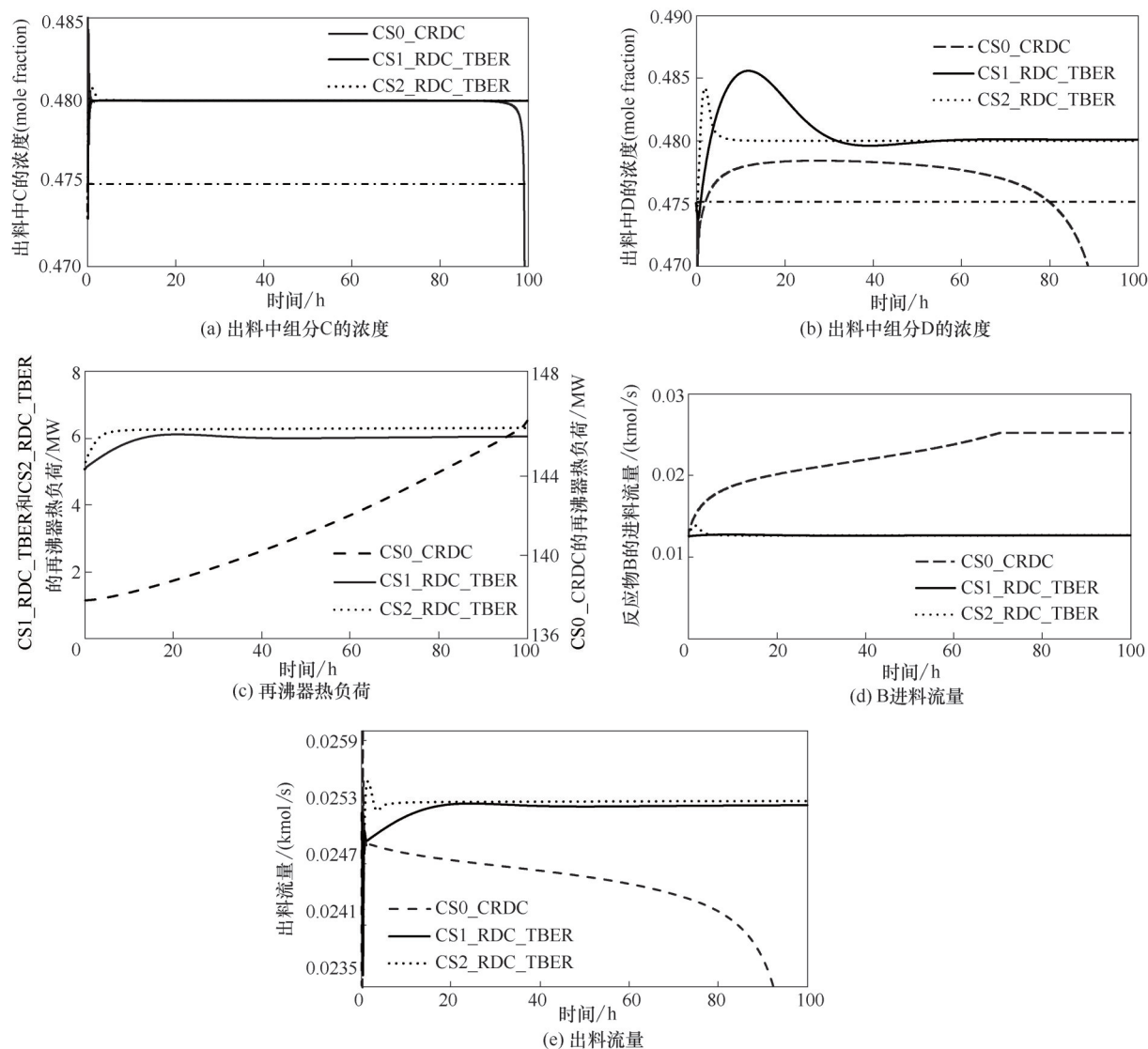
图4 B进料流量出现 ± 0.001 扰动时的开环响应曲线Fig.4 Open-loop responses in face of ± 0.001 step changes in B feed flow rate

图5 中间出料浓度调整+0.5%(mol)后系统的动态响应曲线

Fig.5 Dynamic responses in face of +0.5%(mol) adjustment in composition of side draw

定一个合适的系数 f ,根据公式 $K = KC/f$, $TI = TC \times f$ 进一步调整得到较好的动态响应曲线。

表2给出了RDC_TBER各控制回路的整定参数。各控制回路的控制阀的初始状态均为半开,控

制目标有二:一是在干扰出现的情况下产品质量不变(中间出料中C和D的浓度均稳定在47.5%(mol));二是当产品浓度的设定值改变时产品C和D的浓度能够调整到新的稳态值。

CRDC和RDC_TBER的控制方案均采用B进料流量控制反应精馏塔中灵敏板的浓度以控制进料化学反应计量比。灵敏板的选择关系到该控制的有效性。本文采用灵敏度分析的方法选择灵敏板,即手动调整操作变量B进料流量,观测反应精馏塔中每块塔板中B的浓度变化,取变化最大的一块塔板为灵敏板。

图4(a)、(b)分别给出了CRDC和RDC_TBER在B进料流量出现 ± 0.001 扰动时(即进料流量增加或减少初始值的0.1%),每块塔板中B的浓度

变化曲线。可以看出CRDC和RDC_TBER的灵敏板均为第13块板。

3 CRDC和RDC_TBER的闭环控制结果比较

图5和图6分别给出了中间出料浓度的设定值调整 $\pm 0.5\%$ (mol)后三种控制结构CS0_CRDC、CS1_RDC_TBER和CS2_RDC_TBER的动态响应曲线。其中,虚线表示CS0_CRDC,实线表示CS1_RDC_TBER,点线表示CS2_RDC_TBER,点画线表示出料浓度的设定值,设定值为0.475(摩尔数)。如图所示,对于CS0_CRDC,系统无法实现稳定控制的目标。对于CS1_RDC_TBER,系统在60 h

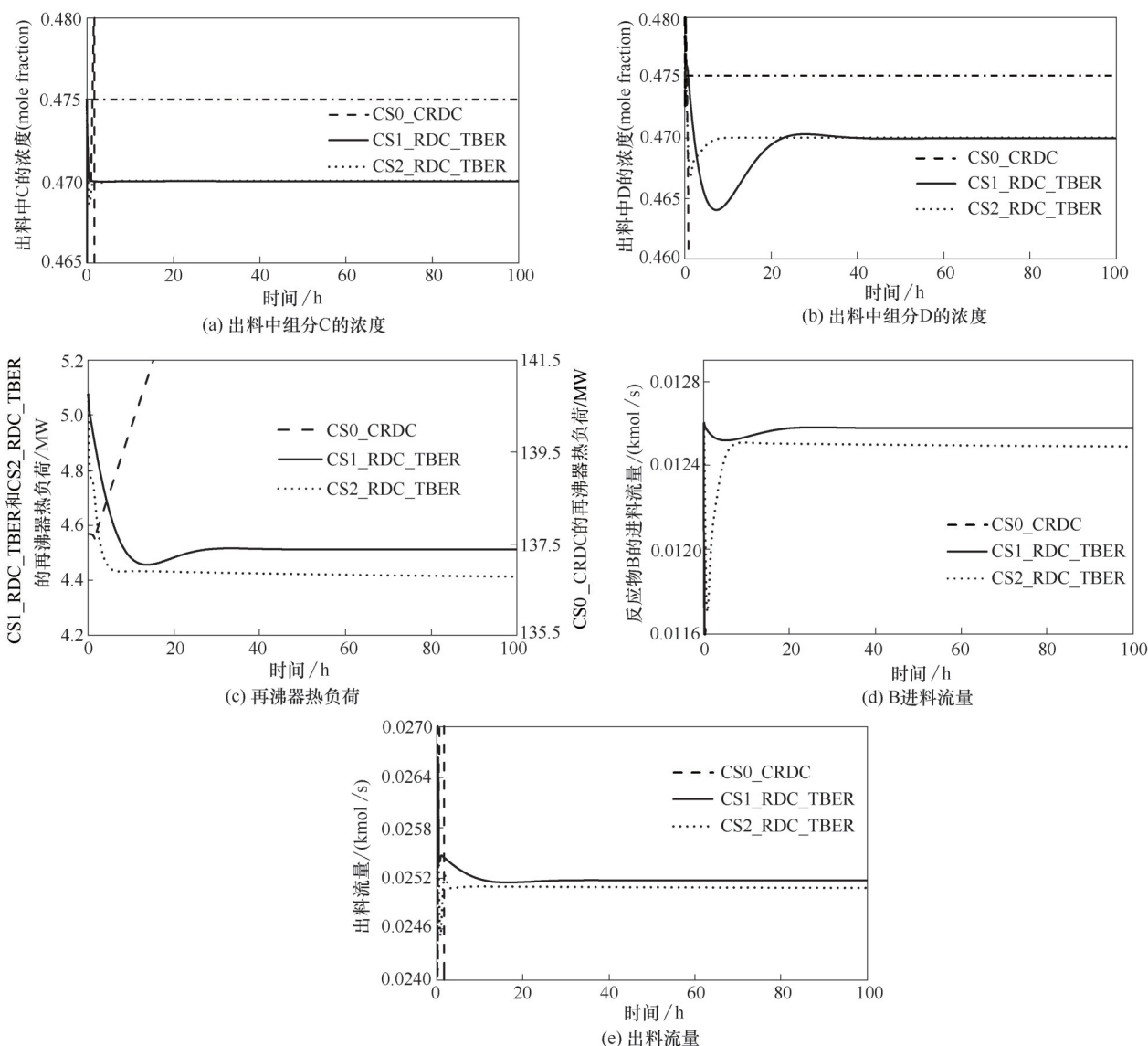


图6 中间出料浓度调整 -0.5% (mol)后系统的动态响应曲线

Fig.6 Dynamic responses in face of -0.5% (mol) adjustment in composition of the side draw

后达到稳定状态。当中间出料浓度的设定值变化 $+0.5\%$ (mol)时,初始阶段系统的出料流量减少,塔底液位升高,再沸器热负荷增大,导致B进料流量增加,一段时间后,中间出料浓度达到设定值,出料流量增大到初始值,再沸器热负荷和B进料流量减少至新的稳态值。反之,当中间出料浓度的设定值变化 -0.5% (mol)时,系统也能达到稳定状态。对于CS2_RDC_TBER,系统在10 h左右即可达到稳定状态。系统动态过渡时间减少的原因在于通过对外部环流流量的操作可以调整系统的反应速率,从而降低了系统反应的过渡时间。

图7和图8分别给出了A进料流量出现 $\pm 5\%$ 干

扰后三种分散控制结构CS0_CRDC、CS1_RDC_TBER和CS2_RDC_TBER的动态响应曲线。如图所示,对于CS0_CRDC,系统无法实现稳定控制的目标。对于CS1_RDC_TBER,由于出料D的浓度仅通过过程的化学反应(即过程的时间常数大)进行调节,因此系统在50 h左右才能达到稳定状态。对于CS2_RDC_TBER,由于调整外部环流流量可以调节系统的反应速率,因此,系统的过渡时间较短,仅需约25 h即可达到稳定状态。

图9给出了A进料组分变为0.95A和0.05B的混合进料后三种控制结构的动态响应曲线。如图所示,对于CS0_CRDC,系统在30 h左右达到新的平

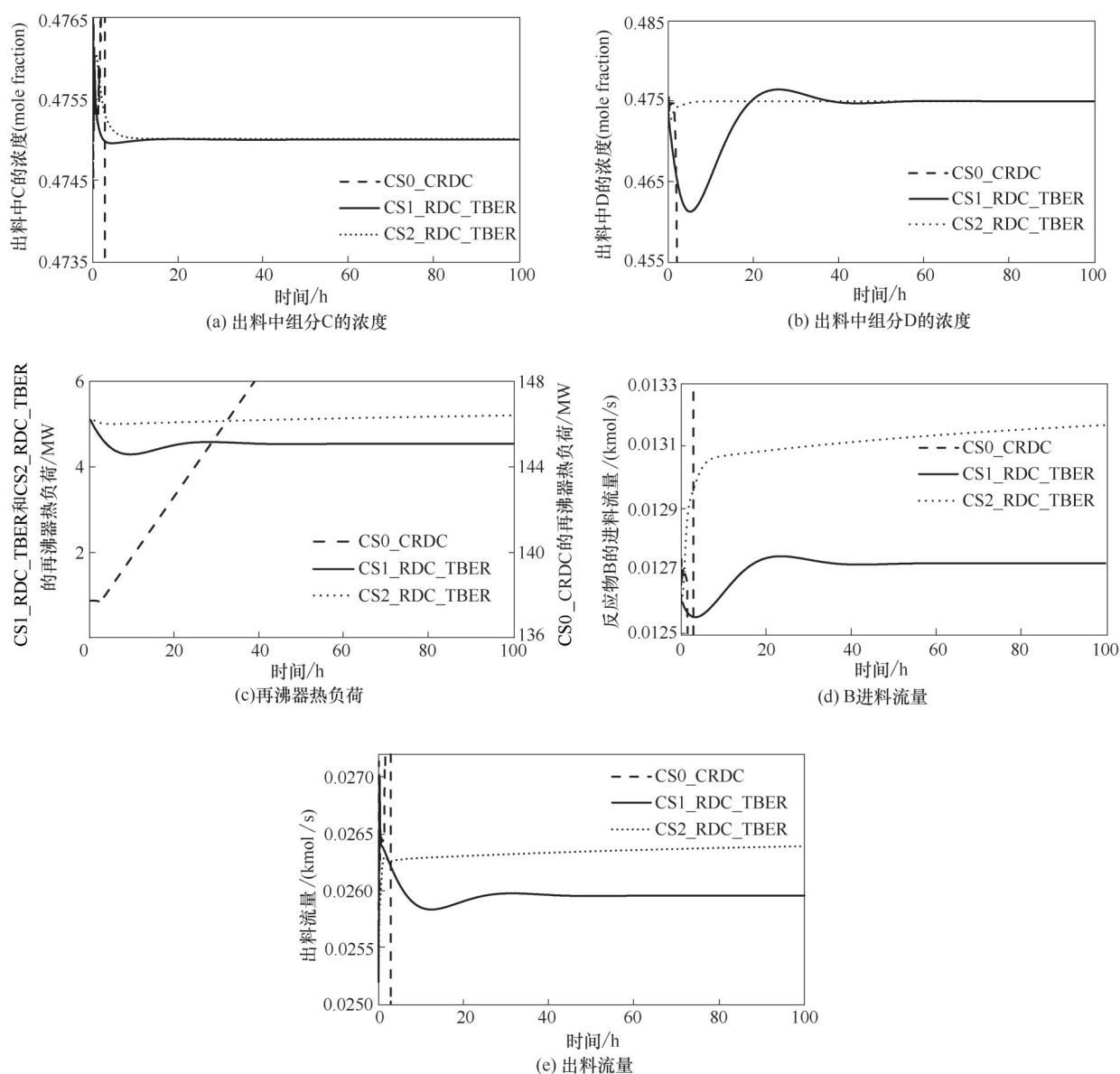


图7 A进料流量出现 $+5\%$ 干扰后系统的动态响应曲线

Fig.7 Dynamic responses in face of $+5\%$ step changes in composition of side draw

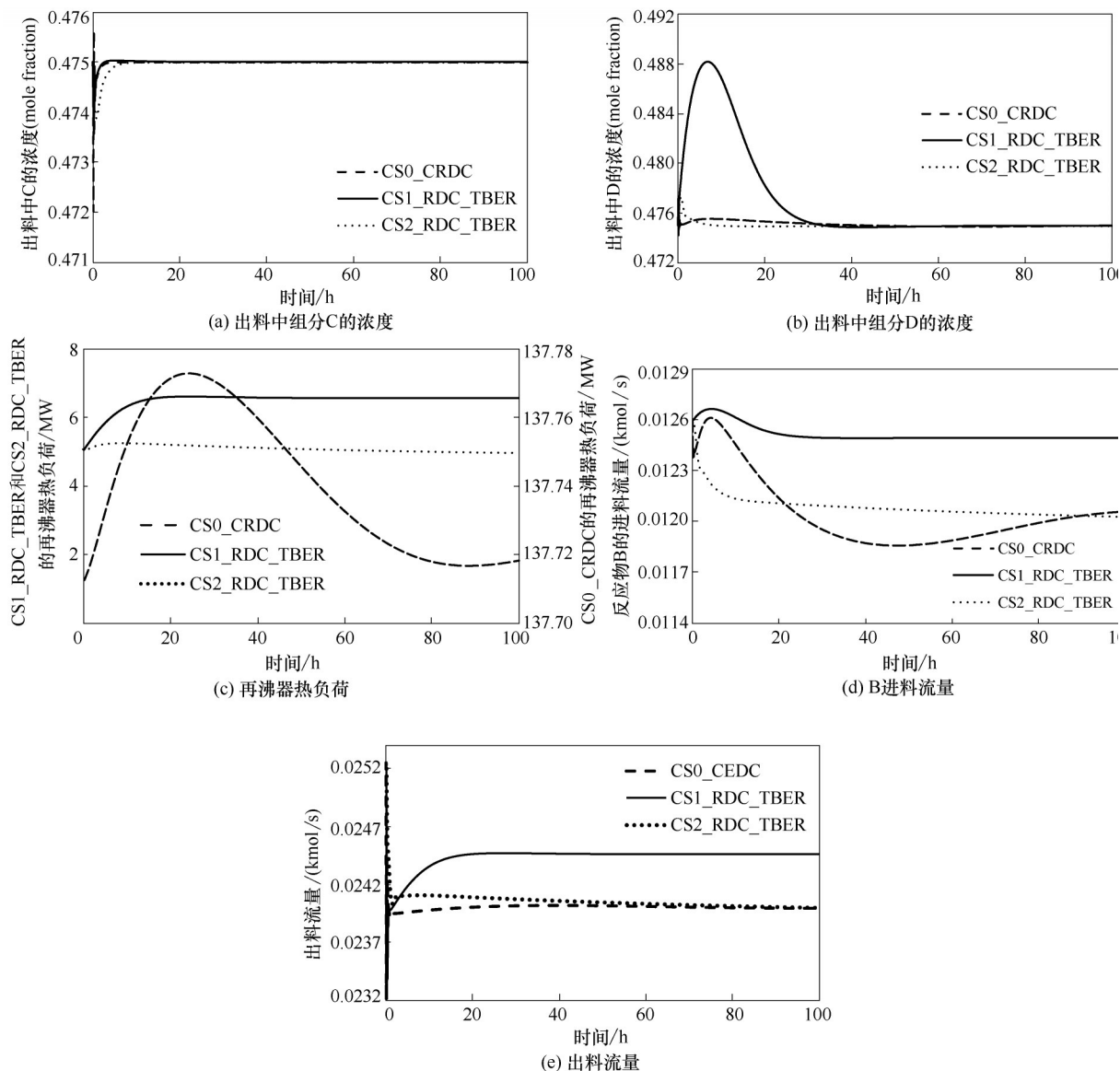


图8 A进料流量出现-5%干扰后系统的动态响应曲线

Fig.8 Dynamic responses in face of -5% step changes in composition of side draw

衡。对于CS1_RDC_TBER,由于塔顶A的浓度下降,即通过外部环流返回反应段的流股中A的浓度下降(但外部环流的流量不变),导致反应速率下降,因此系统在40 h左右才能达到稳定状态,且稳定后系统的再沸器热负荷较大。对于CS2_RDC_TBER,由于调整外部环流流量可以调节系统的反应速率,因此,系统的过渡时间较短,仅需约10 h即可达到稳定状态。

综上所述,由于外部环流的引入,系统的可控性得以提高,另外,通过系统增加的操作变量(外部环流流量)对出料中D的浓度进行控制,可以进一步改善系统的动态性能。

4 结 论

本文以理想四元连续可逆放热反应($A+B \rightleftharpoons C+D, \alpha_A > \alpha_C > \alpha_D > \alpha_B$)的分离为例进行RDC_TBER的控制结构的分析与设计,提出了对于该系统,应采用再沸器热负荷控制塔底液位,出料流量控制出料浓度的控制方案以降低控制回路之间的耦合度。由于外部环流的引入,与CRDC相比,RDC_TBER的可控性得到很大的提高(CS1_RDC_TBER)。与CRDC相比,RDC_TBER增加了一个操作变量——外部环流流量,它可以被用来控制出料产品中D的浓度(CS2_RDC_TBER),此时,系统可以根据扰动调整其反应速率,大大减少了系统的过渡时间,提

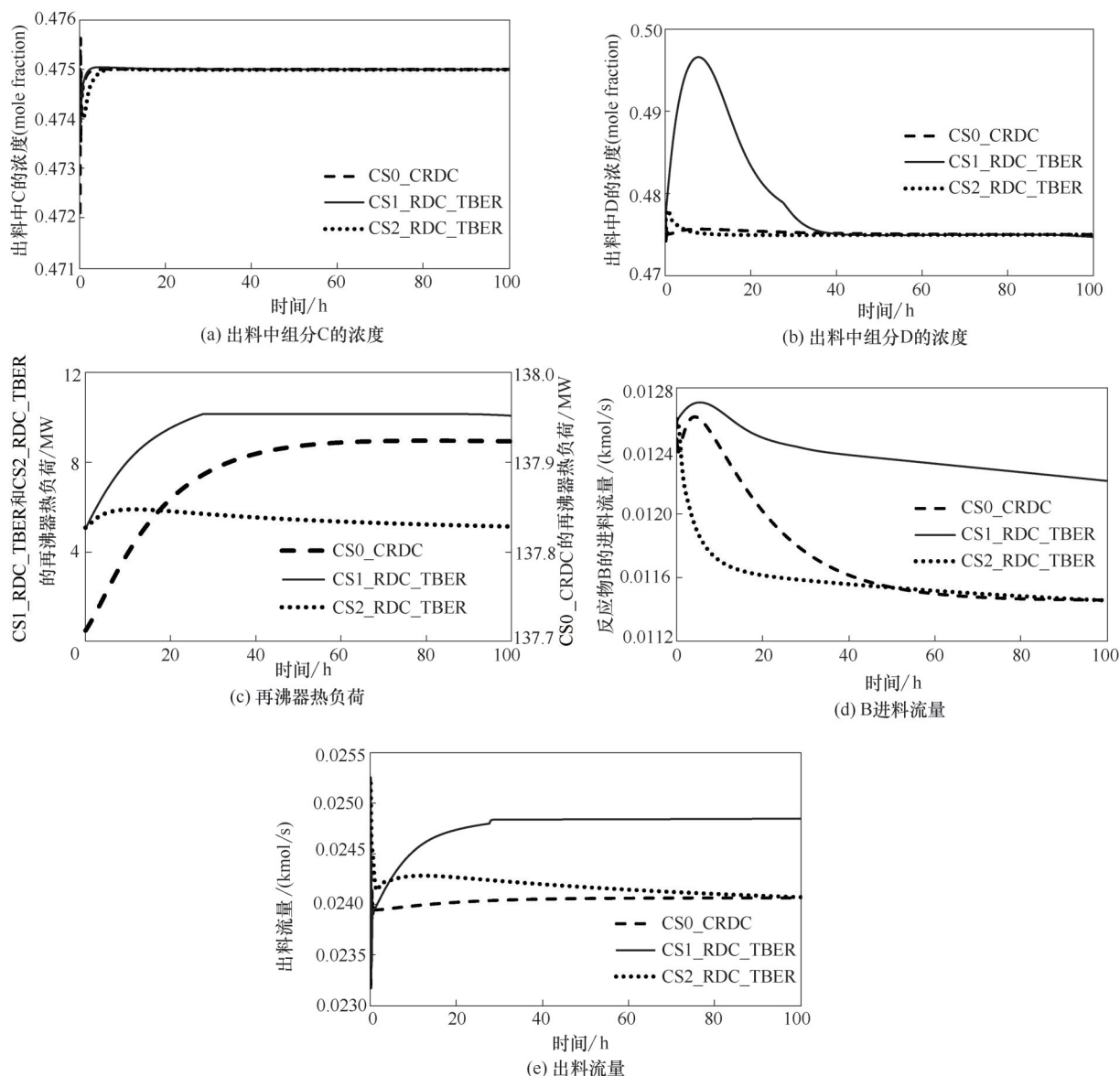


图9 A进料变为0.95A和0.05B的混合进料后系统的动态响应曲线

Fig.9 Dynamic responses while A composition changes into 0.95A and 0.05B mixed feed

高了系统的动态性能,即CS2_RDC_TBER的控制效果优于CS1_RDC_TBER。

符 号 说 明

ΔH_R ——反应热, kJ/kmol
 ΔH_V ——汽化潜热, kJ/kmol
 L ——液相流量, kmol/s
 M ——塔板滞液量, kmol
 $rate$ ——反应速率, kmol/s
 V ——气相流量, kmol/s

下角标

i ——组分
 j ——塔板

参 考 文 献

- [1] 高鑫, 赵悦, 李洪, 等. 反应精馏过程耦合强化技术基础与应用研究述评[J]. 化工学报, 2018, **69**(1): 218-238.
 Gao X, Zhao Y, Li H, et al. Review of basic and application investigation of reactive distillation technology for process intensification[J]. CIESC Journal, 2018, **69**(1): 218-238.
- [2] Segovia-hernandez J G, Hernandez S, Petriciolet A B. Reactive distillation: a review of optimal design using deterministic and stochastic techniques[J]. Chem. Eng. Processing, 2015, **97**: 134-143.
- [3] Kiss A A. Distillation technology—still young and full of breakthrough opportunities[J]. J. Chem. Tech. Bio., 2014, **89**(4): 479-498.
- [4] Kumar M V P, Kaistha N. Decentralized control of a kinetically controlled ideal reactive distillation column[J]. Chem. Eng. Sci.,

- 2008, **63**(1): 228–243.
- [5] Hung S B, Lee M J, Tang Y T, et al. Control of different reactive distillation configurations[J]. *AIChE Journal*, 2006, **52**(4): 1423–1440.
- [6] Kaymak D B, Unlu H, Ofkeli T. Control of a reactive distillation column with double reactive sections for two-stage consecutive reactions[J]. *Chem. Eng. Processing*, 2016, **113**: 86–93.
- [7] Cao Y, Huang K J, Yuan Y, et al. Dynamics and control of reactive distillation columns with double reactive sections: feed-splitting influences[J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2017, **56**(28): 8029–8040.
- [8] Chen H S, Huang K J, Liu W, et al. Enhancing mass and energy integration by external recycle in reactive distillation columns[J]. *AIChE Journal*, 2013, **59**(6): 2015–2032.
- [9] Chen H S, Huang K J, Zhang L, et al. Reactive distillation columns with a top-bottom external recycle[J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2012, **51**(44): 14473–14488.
- [10] Zhang L, Chen H S, Yuan Y, et al. Adopting feed splitting in design of reactive distillation columns with two reactive sections[J]. *Chem. Eng. Processing*, 2015, **89**: 9–18.
- [11] Chen H S, Zhang L, Huang K J, et al. Reactive distillation columns with two reactive sections: feed splitting plus external recycle[J]. *Chem. Eng. Processing*, 2016, **108**: 189–196.
- [12] Yao X H, Huang K J, Chen H S, et al. Employing top-bottom recycled reactive distillation to the separations of adipic acid and glutaric acid esterifications[J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2013, **52**(47): 16870–16879.
- [13] 陈海胜, 黄克谨, 王韶锋. 一种新型的双环流反应蒸馏塔[J]. *中国科技论文*, 2013, **8**(12): 1277–1281.
- Chen H S, Huang K J, Wang S F. A novel reactive distillation column with two external recycles[J]. *China Science Paper*, 2013, **8**(12): 1277–1281.
- [14] Yu N, Li L M, Chen M Q, et al. Novel reactive distillation process with two side streams for dimethyl adipate production[J]. *Chem. Eng. Processing*, 2017, **118**: 9–18.
- [15] 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.
- [16] Niu M W, Rangaiah G P. Process retrofitting *via* intensification: a heuristic methodology and its application to isopropyl alcohol process[J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2016, **55**(12): 3614–3629.
- [17] Long N V D, Lee M Y. Review of retrofitting distillation columns using thermally coupled distillation sequences and dividing wall columns to improve energy efficiency[J]. *J. Chem. Eng. Jap.*, 2014, **47**(2): 87–108.
- [18] Luyben W L, Yu C C. *Reactive Distillation Design and Control* [M]. New York: John Wiley & Sons Inc., 2008: 15–36.
- [19] Kaymak D B, Luyben W L. Evaluation of a two-temperature control structure for a two-reactant/two-product type of reactive distillation column[J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2006, **61**(13): 4432–4450.
- [20] Kumar M V P, Kaistha N. Decentralized control of a kinetically controlled ideal reactive distillation column[J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2008, **63**(1): 228–243.
- [21] Kaymak D B, Yilmaz D, Gurer A Z. Effect of relative volatilities on inferential temperature control of reactive distillation columns[J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2011, **50**(13): 8138–8152.
- [22] Mathew A K, Kaistha N, Kumar M V P. Control of quaternary ideal endothermic reactive distillation with and without internal heat integration[J]. *Chem. Eng. Tech.*, 2016, **39**(4): 775–785.
- [23] Al-Arfaj M, Luyben W L. Comparison of alternative control structures for an ideal two-product reactive distillation column[J]. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2000, **39**(47): 3298–3307.
- [24] Kumar M V P, Kaistha N. Reactive distillation column design for controllability: a case study[J]. *Chem. Eng. Processing*, 2009, **48**(2): 606–616.
- [25] Sharma N, Singh K. Control of reactive distillation column: a review[J]. *Int. J. Chem. React.*, 2010, **8**(R5): 1–55.
- [26] 陈镭, 孙炜. 反应精馏法生产醋酸丁酯动态模拟[J]. *广东化工*, 2015, **42**(1): 5–8.
- Chen L, Sun W. Dynamic simulation of reactive distillation synthesis of butyl acetate[J]. *Guangdong Chem. Ind.*, 2015, **42**(1): 5–8.
- [27] 李洪, 孟莹, 李鑫钢, 等. 乙酸戊酯酯化反应精馏过程系统控制模拟及分析[J]. *化工进展*, 2015, **34**(12): 4165–4171.
- Li H, Meng Y, Li X G, et al. Dynamic simulation and analysis of reactive distillation column for production of amyl acetate[J]. *Chem. Ind. Eng. Progress*, 2015, **34**(12): 4165–4171.
- [28] Al-Arfaj M, Luyben W L. Comparative control study of ideal and methyl acetate reactive distillation[J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2002, **57**(24): 5039–5050.
- [29] Mansouri S S, Huusom J K, Gani R, et al. Systematic integrated process design and control of binary element reactive distillation processes[J]. *AIChE Journal*, 2016, **62**(9): 3137–3154.
- [30] Luyben W L. *Distillation Design and Control Using Aspen™ Simulation* [M]. New York: John Wiley & Sons Inc., 2013: 166–172.