



**Pannon Egyetem
Mérnöki Kar
Folyamatmérnöki Intézeti Tanszék
Országos Tudományos Diákköri
Konferencia
2013.**



**Csörgedező ágyas reaktor vizsgálata technológiai szimulátor és
mérleghiba-kiegyenlítési technika alkalmazásával**

Farsang Barbara

Vegyészmérnöki MSc. II. évfolyam

Témavezetők: Prof. Dr. habil. Abonyi János
egyetemi tanár, oktatási és akkreditációs
dékánhelyettes

Dr. Németh Sándor
egyetemi docens, szakvezető

Készítés éve: 2012.

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés	1
2. Elméleti háttér.....	2
2.1. Technológia bemutatása	2
2.2. Flowsheeting szimulátorok alkalmazása a technológiai rendszer megismerésében...	4
2.3. Mérleghiba-kiegyenlítés módszere	6
2.3.1. A rendszer legvalószínűbb állapotának becslése (ML becslés)	6
2.4. A mérési hiba jellemzésére javasolt Fourier-analízis alapú technika bemutatása	8
3. Mérleghiba-kiegyenlítés hatásának vizsgálata a technológiai rendszerre szimulációs környezetben.....	10
3.1. Technológia stationer szimulátorának elkészítése	10
3.2. Tömegmérleg kiegyenlítése	13
3.2.1. Mérési hiba szórásának meghatározása.....	14
3.1.2. Szimulációs vizsgálatok	17
4. Összefoglalás, értékelés.....	21
Irodalomjegyzék	22
Melléklet.....	23
Köszönetnyilvánítás	29

1. Bevezetés

Az energiafelhasználás és a környezeti terhelés csökkentésének egyik kulcsa a működő technológiák hatékonyságának növelése. A vegyipari folyamatok fejlesztése során gyakran alkalmaznak technológiai szimulátorokat. A szimulátor felhasználható az üzemeltetési paraméterek optimalizálására, a technológia szűk keresztmetszetének feltárására, illetve az Operátor Tréning Szimulátorok (OTS) használatával a kezelők egy virtuális felület felhasználásával készülhetnek fel leendő feladataikra. E feladatok ellátásának sikeressége elsősorban a technológiai szimulátor, illetve a benne leképezett modell pontosságán múlik. Az előadásban ismertetett kutatás célja e modellek fejlesztését és validálását támogató módszertan kidolgozása a technológiai adatsorok és a szimulátorok integrált alkalmazásával.

A megközelítést egy csörgedező ágyas ipari reaktor vizsgálatán keresztül mutatom be [1,2]. A 2.1. fejezetben részletesen ismertetem a technológiát [3], a 2.2. fejezetben a szimulátor felépítéséhez alkalmazott vegyészmérnöki szimulátort [5].

A javasolt megközelítésmód alapja a mérleghiba-kiegyenlítés technikája. A mérleghiba-kiegyenlítés technikája lehetővé teszi, hogy ellenőrizzük méréseink elfogadhatóságát, javítsuk a mérési eredmények pontosságát, miközben azt is biztosítjuk, hogy a korrekcióval nyert eredmények kielégítsék modelljeink alapját képező mérlegegyenleteket [8].

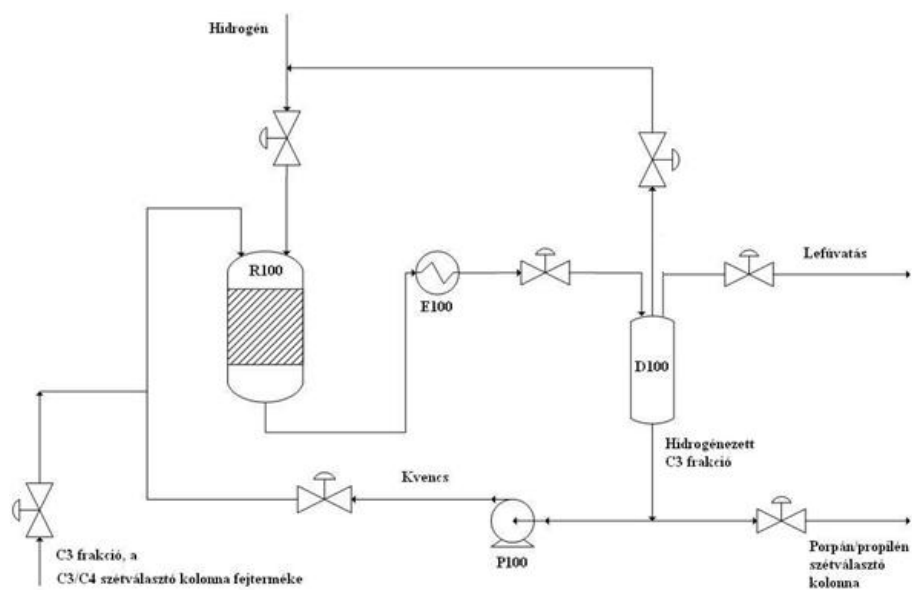
A 2.3. fejezetben összefoglaltam a mérleghiba kiegyenlítés elméleti hátterét [8]. A 3. fejezetben egy esettanulmány során mutatom be a mérleghiba-kiegyenlítés módszerét.

2. Elméleti háttér

A fejezet célja, hogy bemutassa a modellezett technológiát, a stationer szimulátor elkészítéséhez alkalmazott szoftvert és a mérleghiba-kiegyenlítés technikájának alapjait.

2.1. Technológia bemutatása

Magyarország legnagyobb petrokémiai vállalata, a Tiszai Vegyi Kombinát polimer alapanyagokat, etilént és propilént állít elő vegyipari benzin és gázolaj termikus bontásával. A pirolizáló kemencékben számos reakció zajlik le, melynek eredményeképp sokféle komponens keletkezik. A nagyobb mennyiségben képződő könnyű komponensek közé tartozik a metán, etán, etilén, acetilén, propán, propilén, metil-acetilén, propadién, n-bután, izobután, 1,3-butadién, stb. Az acetilén, metil-acetilén és propadién olyan komponensek, amelyek a polimerizáció katalizátorait mérgezik. Ezek a komponensek desztillációval nem, vagy csak nehezen választhatók el a termékektől, ezért szükséges ezen komponensek hidrogénezése. A hidrogénezési folyamatok kulcsfontosságúak a finomításban és a petrokémiában is. A növekvő fontosságát az is igazolja, hogy az alapanyagoknak (pl. polimergyártás alapanyagai: etilén, propilén) egyre nagyobb tisztaságúaknak kell lenniük. A következőkben a metil-acetilén (MA) és propadién (PD) hidrogénezési technológiáját mutatom be. A 2.1. ábra mutatja a folyamatábrát.

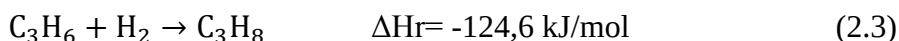
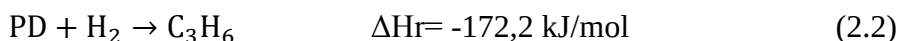
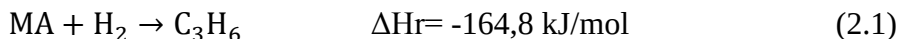


2.1. ábra: C3-hidrogénező rendszer folyamatábrája

A C3 szelektív hidrogénező technológiai rendszer feladata, hogy a nyers C3 frakcióban lévő metil-acetilént és propadiént katalitikusan hidrogénezzé propilénné úgy, hogy a propilén ne hidrogéneződjön tovább propánná. Az olefinüzemekben C3 hidrogénező reaktor leggyakoribb típusa a csörgedező ágyas reaktor [1]. A csörgedező ágyas (angol megnevezés trickle-bed) reaktorban a katalizátor fix ágyas. A folyékony halmazállapotú olefin betáplálás és a gáz halmazállapotú hidrogén egyirányban halad át az ágyon, felülről lefelé áramolva. A recirkuláltatott folyadékárammal biztosítják a reaktor megfelelő hűtését (kvencs). A csörgedező típusú reaktornál felül, a betáplálás környezetében zajlik le a reakció, a reaktor alsó szakaszában a vegyesfázis és a folyadékfázis biztosítja a hűtést (a felszabaduló hőmennyiség a folyadékfázis egy részének elpárologtatására fordítódik, ezáltal hűtve a termékáramot). A hőmérsékleti viszonyok alakulásából is lehet következtetni a katalizátor kimerülésére. Ha a hőmérséklet csúcs lefelé eltolódik, akkor fent már nem aktív a katalizátor, reaktiválni vagy regenerálni kell. A hidrogéngáz tömegáramát a betáplált C3 frakció arányában szabályozzák.

A szakirodalomban különböző típusú diolefin és acetilén hidrogénező katalizátorok ismertek [2], az iparban leggyakrabban palládium tartalmú katalizátorokat alkalmaznak.

A reaktorban lejátszódó hidrogénezés során nagy mennyiségű hő szabadul fel. A 10 és 80 °C közötti hőmérséklet tartományban az átlagos reakcióhők a következők:

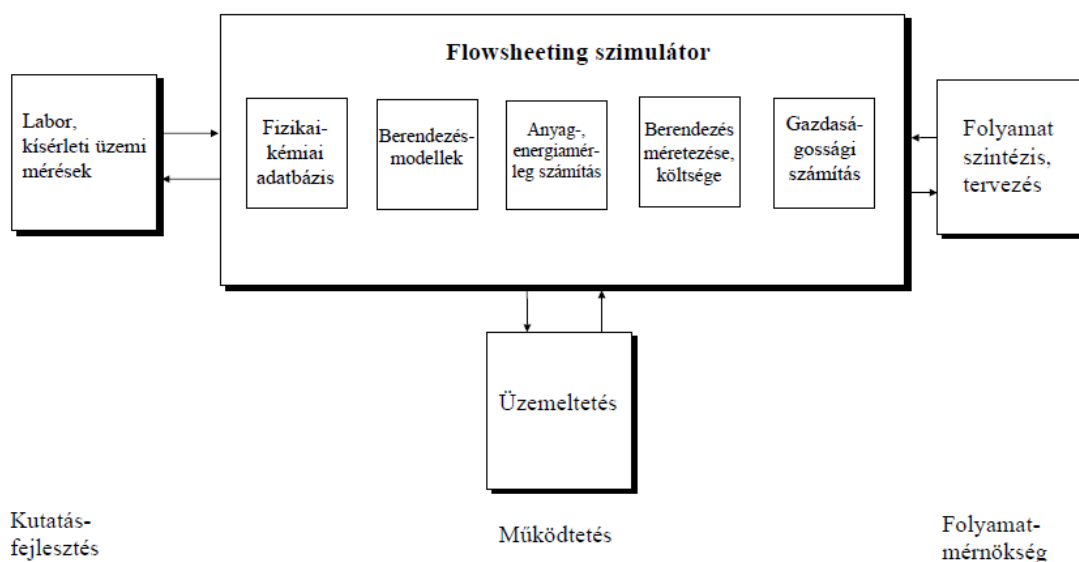


A reaktorban felszabaduló hőmennyiséget a reaktorba betáplált C3 frakció MAPD tartalma és a hidrogén parciális nyomása befolyásolja. A hidrogénező rendszerbe érkező áram MAPD tartalma magas, ezért szükséges az áram hígítása, amelyhez a már hidrogénezett C3-frakció egy részét használják fel (kvencselés). A hidrogénező reaktort elhagyó C3 frakció MAPD tartalmának előírás szerint 1000 mol ppm alatt kell lennie. A reaktor kilépő áramát csököteges hőcserélőben, amelybe ellenáramban recirkuláltatott hűtővizet vezetnek, lehűtik, hogy a gázfázisban lévő propán, propilén kondenzálódjon. Ezután egy szeparátorban elválik a gázfázisú hidrogén és a folyadékfázisban lévő hidrogénezett C3 frakció. A termék egy részét kvencselésre használjuk, a másik részét pedig egy sztrippelő kolonnába vezetjük, ahol az oldott hidrogén eltávolítása történik meg [3].

A hidrogénező rendszer optimális működési paramétereinek meghatározásához elkészítettem a reaktor matematikai modelljét és technológiai szimulátorát. A szimulátor segítségével lehetőség nyílik a különböző paraméterkombinációk hatásának előrejelzésére anélkül, hogy a valós berendezést esetleges kockázatoknak tennénk ki. Ezáltal pénz és idő is megtakarítható.

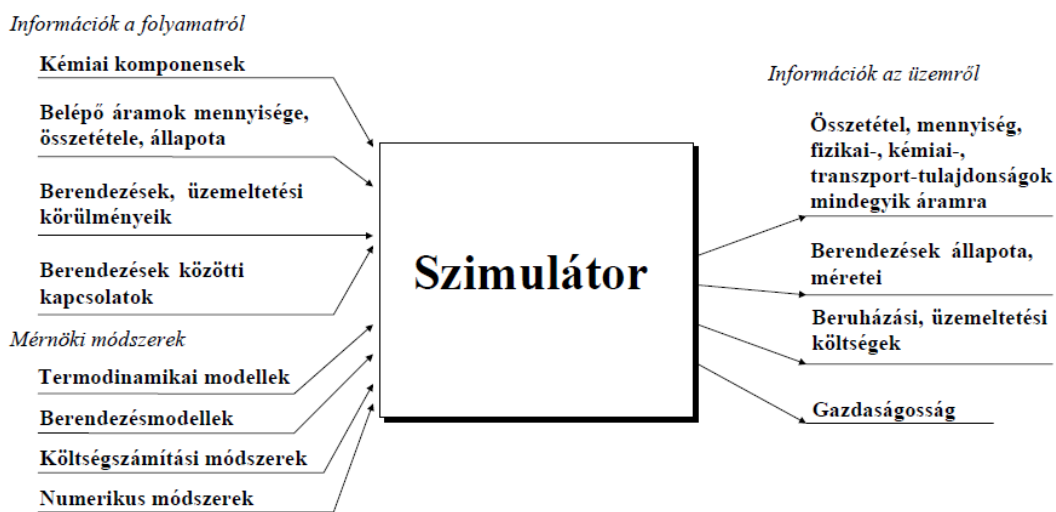
2.2. Flowsheeting szimulátorok alkalmazása a technológiai rendszer megismerésében

A globalizálódó világban egyre nagyobb szükség van bonyolult rendszerek és problémák kezelésére. Egyre több munkáltató, vállalat ismeri fel a számítógépes modellezés fontosságát. Megjelentek már üzleti és biztonságtechnikai alkalmazásokban, üzemi adatok összehangolása során, on-line optimalizálásnál, stb. Ezért nem csoda, hogy az új technológiák és irányítási rendszerek tervezésénél, fejlesztésénél a modellezés és a számítógépes szimulációk használata széles körben kezd elterjedni. Előnye, hogy relatíve olcsón és gyorsan realisztikus képet kaphatunk az adott problémával kapcsolatban. A szimulátor és a technológia kapcsolatát mutatja a 2.2. ábra.



2.2. ábra: Flowsheeting szimuláció alkalmazása a kutatásban, tervezésben és üzemeltetésben [4]

A modell a valóság leképezése, ezeket a modelleket szimulátorokban oldjuk meg, a rendszer alaphelyzetét ismerve, az ismeretlen változók meghatározásával. A szimulátor megfelelő működéséhez számos információra van szükség (ld. 2.3. ábra). Szükséges a technológiai folyamatról szerzett pontos információ (belépő anyagáramok mennyisége, összetétele, állapota, berendezések típusa, berendezések közötti kapcsolatok, üzemeltetési körülmények). A szimulátorba beépített mérnöki modellek alkalmazásával információt kaphatunk a technológia beruházási és üzemeltetési költségeiről, a technológia áramainak jellemzőiről.



2.3. ábra: Információs kapcsolat a szimulátor és a technológia között [4]

A kereskedelemben számos vegyészmérnöki szimulátor kapható, mint például Aspen Plus, ChemCad, PRO/II., Unisim Design. A technológia szimulátorának elkészítéséhez Aspen Plus szoftvert alkalmaztam [5]. A szoftver bemutatását az 1. számú melléklet tartalmazza.

A szimulátor pontossága a benne leképezett modell és a technológiától érkező adatok pontosságán múlik. A mérések azonban minden esetben hibával terheltek. Ezért az adatok felhasználása előtt meg kell arról győződni, hogy elfogadhatóak-e, nem haladják-e meg a felhasználás szempontjából még megengedhető értéket. Téves adatokra alapozva ugyanis hibás következtetéseket vonhatunk le. Az adatok ellenőrzésére a mérleghiba-kiegyenlítés módszerét alkalmaztam, amit a 2.3. fejezetben ismertetek.

2.3. Mérleghiba-kiegyenlítés módszere

Számos kereskedelmi szoftver alkalmas mérleghiba-kiegyenlítésre, mint pl. VALI [6] és DataCon [7]. Ezek a szoftverek szimultán használhatók a mért tömegáram, hőmérséklet és összetétel adatok kiegyenlítésére a technológia minden berendezése esetében.

Mérési hibaelemzésen az alábbi kérdések vizsgálatát értjük: A rendszerre vonatkozó előzetes ismereteink alapján elfogadhatónak tekinthetünk-e egy összetartozó mérést, vagy azok halmazát? Ha nem fogadjuk el, vajon melyik mérési hely lehet a hiba legfőbb forrása? M a rendszer legvalószínűbb állapota a mérések és az előzetes ismeretek figyelembevételével?

A mérleghiba kiegyenlítés során a következő feltevések érvényesek:

- A mérési hibák a mérlegváltozóktól függetlenek.
- A mérési hibák 0 várható értékűek.
- A mérési hibák normál (Gauss) eloszlásúak.
- Méréshelyenként függetlenek a hibák (diagonális varianciamátrix). [8]

2.3.1. A rendszer legvalószínűbb állapotának becslése (ML becslés)

Ebben a fejezetben röviden bemutatom az ML becslés elméleti hátterét [8]. A változó valószínűségi értékét a fölé írt $\tilde{}$ jellel, a mért értékét $\hat{}$ jellel, a becsült értéket pedig $\hat{}$ jellel különböztetjük meg. A felső jelzés nélküli jelölést csak a változó általános megjelölésére, vagy integrációs változóként vagy sűrűségfüggvényének független változójaként használjuk.

Az $\mathbf{x} - \tilde{\mathbf{x}}$ különbséget hibának nevezzük és $\mathbf{d}$ -vel jelöljük.

Az $\mathbf{x} - \tilde{\mathbf{x}}$ különbséget korrekciónak nevezzük és $\mathbf{c}$ -vel jelöljük.

Az $\mathbf{Ax} - \mathbf{b}$ vektort mérleghibának nevezzük és $\mathbf{f}$ -fel jelöljük. ($\mathbf{A}$ az együtthatómátrixot jelenti.)

Kiindulunk a mérési hibavektor sűrűségfüggvényéből:

$$\tilde{\mathbf{d}} \sim N(0, \mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}) \quad (2.4)$$

ahol $\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}$ a hiba varianciamátrixa. Ennek megfelelően

$$f(\tilde{\mathbf{d}}) = C \cdot \exp[-0.5 \cdot \tilde{\mathbf{d}}' \mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}^{-1} \tilde{\mathbf{d}}] \quad (2.5)$$

amiből

$$f(\tilde{\mathbf{x}}) = C \cdot \exp[-0.5 \cdot (\tilde{\mathbf{x}} - \check{\mathbf{x}})' \mathbf{V}_{\check{\mathbf{d}}}^{-1} (\tilde{\mathbf{x}} - \check{\mathbf{x}})] \quad (2.6)$$

és fennáll az

$$\check{\mathbf{f}} = \mathbf{A}\check{\mathbf{x}} - \mathbf{b} = 0 \quad (2.7)$$

feltétel a mérlegegyenlet szerint. Az összefüggésben C kizárólag a dimenziószámtól függő állandó, értékére nem lesz szükség.

Az ML becslés lényege: ha $\tilde{\mathbf{x}}$ adott és sűrűségfüggvénye ismert, a sűrűségfüggvény milyen $\check{\mathbf{x}} \rightarrow \tilde{\mathbf{x}}$ paraméterével lesz $f(\mathbf{x})$ maximális?

Mivel a logaritmus függvény szigorúan monoton növekvő, a csak pozitív értéket felvevő $f(y)$ függvény logaritmusának ugyanott van a maximuma, mint az argumentumának. Ezt kihasználva képezzük a fenti függvény logaritmusát:

$$\ln(f(\mathbf{x})) = -0.5 \cdot (\check{\mathbf{x}} - \mathbf{x})' \mathbf{V}_{\check{\mathbf{d}}}^{-1} (\check{\mathbf{x}} - \mathbf{x}) + \ln C \quad (2.8)$$

és keressük ennek maximumát az

$$\mathbf{A}\mathbf{x} - \mathbf{b} = 0 \quad (2.9)$$

feltétel mellett.

Mivel az $\ln C$ konstans, a szélsőérték helyét nem befolyásolja, ezért elhagyható. Keressük azt az $\mathbf{x}$ -et, amivel ez maximális, vagy a '-' előjelet elhagyva minimális. Ezt az $\mathbf{x}$ értéket fogjuk a valódi érték $\hat{\mathbf{x}}$ ML becslésének tekinteni. A minimalizálandó függvény tehát:

$$L(\mathbf{x}) = 0.5 \cdot (\check{\mathbf{x}} - \mathbf{x})' \mathbf{V}_{\check{\mathbf{d}}}^{-1} (\check{\mathbf{x}} - \mathbf{x}) \quad (2.10)$$

$$\mathbf{A}\mathbf{x} - \mathbf{b} = 0 \quad (2.11)$$

feltétellel.

A Lagrange multiplikátorok módszerét alkalmazzuk. A célfüggvényhez hozzáadom a 0-ra kifejezett feltételének egy ismeretlen λ multiplikátorral való szorzatát:

$$\begin{aligned} \Lambda(\mathbf{x}) &= 0.5 \cdot (\check{\mathbf{x}} - \mathbf{x})' \mathbf{V}_{\check{\mathbf{d}}}^{-1} (\check{\mathbf{x}} - \mathbf{x}) - (\mathbf{x}' \mathbf{A}' - \mathbf{b}') \lambda = \\ &= 0.5 \cdot (\check{\mathbf{x}} - \mathbf{x})' \mathbf{V}_{\check{\mathbf{d}}}^{-1} (\check{\mathbf{x}} - \mathbf{x}) - \lambda' (\mathbf{A}\mathbf{x} - \mathbf{b}) \end{aligned} \quad (2.12)$$

Keressük ennek az $\mathbf{x}$ és λ szerinti szélső értékét. Ahol a függvénynek szélsőértéke van, ott a parciális deriváltak értéke 0.

$$\frac{\partial \Lambda(\mathbf{x})}{\partial \mathbf{x}} = \mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}^{-1}(\tilde{\mathbf{x}} - \mathbf{x}) - \mathbf{A}'\lambda = 0 \quad (2.13)$$

$$\frac{\partial \Lambda(\mathbf{x})}{\partial \lambda} = \mathbf{A}\mathbf{x} \quad (2.14)$$

A megoldandó két ismeretlenes vektor egyenletrendszer ebből

$$\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}^{-1}\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{A}'\hat{\lambda} = \mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}^{-1}\tilde{\mathbf{x}} \quad (2.15)$$

$$\mathbf{A}\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{b} \quad (2.16)$$

Megoldás:

A 2.15 egyenletből következik, hogy

$$\mathbf{A}\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{A}\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}'\hat{\lambda} = \mathbf{A}\tilde{\mathbf{x}} \quad (2.17)$$

Ebből kivonom a 2.16-t:

$$-\mathbf{A}\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}'\hat{\lambda} = \mathbf{A}\tilde{\mathbf{x}} - \mathbf{b} \quad (2.18)$$

Amiből:

$$\hat{\lambda} = (\mathbf{A}\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}')^{-1}(\mathbf{A}\tilde{\mathbf{x}} - \mathbf{b}) \quad (2.19)$$

Ezt visszahelyettesítve:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{x}} &= \tilde{\mathbf{x}} - \mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}'(\mathbf{A}\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}')^{-1}\mathbf{A}\tilde{\mathbf{x}} + \mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}'(\mathbf{A}\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}')^{-1}\mathbf{b} = \\ &= (\mathbf{I} - \mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}'(\mathbf{A}\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}')^{-1}\mathbf{A})\tilde{\mathbf{x}} + \mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}'(\mathbf{A}\mathbf{V}_{\tilde{\mathbf{d}}}\mathbf{A}')^{-1}\mathbf{b} \end{aligned} \quad (2.20)$$

ahol $\mathbf{I}$ egységmátrix.

Tehát a becslés mátrix-vektor szorzást és egy vektor összeadást igényel. Ugyanis a változó benne az $\tilde{\mathbf{x}}$, a többi műveletben csak állandók szerepelnek.

2.4. A mérési hiba jellemzésére javasolt Fourier-analízis alapú technika bemutatása

Annak érdekében, hogy megbízható eredményt kapjunk a szimuláció során, a szimulátor paramétereit a mért adatokhoz kell illeszteni. Mivel a mért adatok minden esetben bizonyos fokig hibával terheltek, első lépésként szükséges a mért adatsorról a zavarás leválasztása, hiszen a számításokhoz ismerni kell a mérési hibák varianciamátrixát.

Egy időben változó jel előállítható különböző frekvenciájú, fázisú és amplitúdójú jelek összegeként. A Fourier-transzformáció az a művelet, amely egy adott jelhez megadja ezt a

felbontást. A Fourier-transzformáció inverze szolgál arra, hogy a frekvencia spektrumból (frekvenciatartomány) megadja az időfüggő jelet (időtartomány).

A Fourier-transzformációknak és a Fourier-soroknak számos alkalmazásuk van:

- a valószínűségi számítás, statisztika elméletében
- a jelfeldolgozásban
- a hang- és videotechnikában
- a rezgésanalízisben
- spektrométerekben
- differenciálegyenletek megoldásában [9]

A Fourier analízis négy részre bontható, a szerint, hogy a jel periodikus, aperiodikus, illetve folytonos, diszkrét.

Mivel a számítógépek diszkrét adatokkal dolgoznak, ezért diszkrét Fourier transzformációt (DFT) alkalmaznak a zaj leválasztására. Fourier transzformáció alkalmazásával az adatsorok olyan grafikus elemzésére van lehetőség, amely megjeleníti egy hibával terhelt mérés esetében az eltérések alakulását. Mivel a zaj frekvenciája sokkal nagyobb, mint az alapfolyamaté, ezért diszkrét Fourier-transzformációval kapunk egy grafikus képet arról, hogy az alapfolyamat és a zaj hol van egymáshoz képest. Ezáltal a szűrési frekvencia meghatározható, így a zaj leválasztható az alapfolyamatról. A zaj amplitúdóját meghatározva a szórása becsülhető.

A DFT diszkrét jeltartományból diszkrét frekvenciatartományba viszi át a jelet. A gyors Fourier-transzformáció (Fast Fourier Transform) eredménye megegyezik a DFT eredményével, azonban a művelethez szükséges számítási teljesítmény igénye sokkal kisebb. Az FFT egyetlen korlátja, hogy a pontszám nem lehet tetszőleges, csak 2 valamely hatványa lehet [10]. A mintavételezés frekvenciáját úgy kell választani, hogy legalább kétszer akkora legyen, mint a maximális feldolgozandó frekvencia, különben torz kép jön létre. Több perióduson át kell mintavételezni úgy, hogy a mintavételezés máshova essen az egyes periódusokban.

A DFT fontos művelet, mivel az eredeti, véges időintervallumon adott jel rekonstruálható a DFT-jéből. A másik hasznos tulajdonsága, hogy rendkívül gyorsan elvégezhető, mert egy úgynevezett gyors Fourier-transzformációval (Fast Fourier Transform, FFT) számolható, ami igen könnyen implementálható bármely software vagy hardware részeként. Legvégül pedig, mivel igen szoros kapcsolatban van a diszkrét idejű Fourier-transzformáltakkal és Fourier-sorokkal, számos fontos tulajdonságát is birtokolja ezeknek [11].

3. Mérleghiba-kiegyenlítés hatásának vizsgálata a technológiai rendszerre szimulációs környezetben

Ebben a fejezetben a technológia stacioner szimulációjának elkészítése során alkalmazott berendezés-modulokat ismertetem, illetve a mérleghiba-kiegyenlítés módszerét a technológia tömegmérlegére.

3.1. Technológia stacioner szimulátorának elkészítése

SI mértékegységrendszert alkalmaztam. A szimulátort folyamat modellezésére fogom használni, ezért a Flowsheet módot választottam.

A folyadék- és gőzfázis közötti fázisegyensúly számításához az SRK termodinamikai állapotegyenletet használtam. A Soave-Redlich-Kwong (SRK) kétparaméteres köbös állapotegyenlet paramétereit a következőképpen számítja ki [12]:

$$p = \frac{RT}{V-b} - \frac{a}{V^2+bV} \quad (3.1)$$

$$a = \frac{0,08664RT_c}{p_c} \quad (3.2)$$

$$b = \frac{0,42748R^2T_c^2}{p_c} [1 + f_w(1 - T_r^{0,5})]^2 \quad (3.3)$$

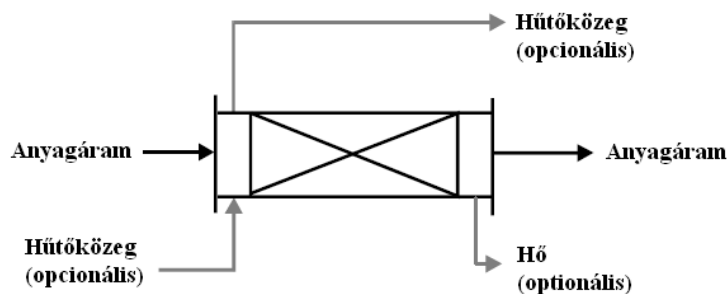
$$f_w = 0,48 + 1,57w - 0,176w^2 \quad (3.4)$$

A TVK Olefin-2. üzemében működő R-5363-as reaktoron gyűjtött adatok ismeretében a technológia bemenő áramainak jellemzőit (tömegáram, összetétel, nyomás, hőmérséklet) és a berendezések üzemeltetési tartományait ismertem.

A szükséges hidrogén áramot a friss C3 alapanyagban lévő MAPD tartalom alapján határoztam meg.

A reaktorban lejátszódó folyamatok jobban nyomon követhetők, ha ismerjük a reakciók sebességi egyenleteit [13,14]. Szakirodalomból mindhárom reakcióra ismertem az aktiválási energiákat, a pre-exponenciális tényezőt pedig az üzemi mérési adatok alapján identifikáltam.

Rplug reaktormodult használtam a számításokhoz (ld. 3.1. ábra). Ezzel a reaktortípussal csőreaktorban lejátszódó reakciókat lehet modellezni [15].

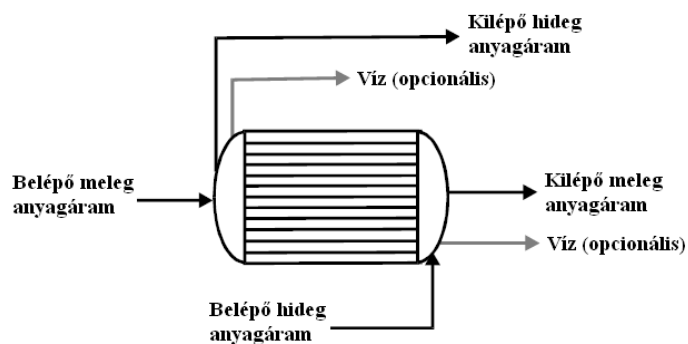


3.1. ábra: Rplug reaktormodell [16]

A reakció leírása a sztöchiometriai mátrix és az Arrhenius-egyenlet segítségével történt. A reaktor izoterm, adiabatikus és politróp üzemmódban is működhet, de akár előírt hőmérsékletprofil alapján is specifikálható. Hűtőközeget vezethet be egyen- és ellenáramban is, és a hűtőközegnek is be lehet állítani a hőmérséklet-profilját. A C3-hidrogénező technológia során külső hűtőközegre nincsen szükség, a recirkuláltatott C3-frakció látja el ezt a szerepet.

A specifikáláshoz szükséges volt a reaktor típusának (adiabatikus), hosszának és átmérőjének ismerete, csövek száma (1), a fázisok száma (folyadék, gáz, szilárd), melyik fázisban játszódik a reakció (folyadék), mekkora a nyomás és a nyomásesés a reaktorban, katalizátor mennyisége, jellemzői (sűrűség, porozitás, hőkapacitás).

A hőcserélő számításához HeatX modult választottam. A kétáramú hőcserélő felépítését mutatja a 3.2. ábra. A hideg áramot vezethetem egyen- és ellenáramban is. Alkalmazható hűtésre, fűtésre, kondenzáltatásra, forralásra is.



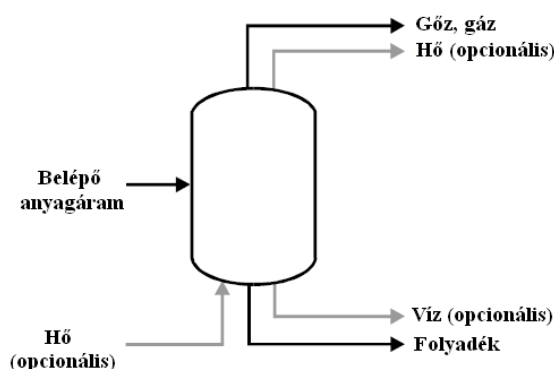
3.2. ábra: HeatX hőcserélőmodell [16]

Ezt a berendezéstípust többféle módon használhatjuk: shortcut tervezési, részletes tervezési és „rating” módban. Egyszerűsített tervezési módban a falon átadott hőmennyiséget, vagy a kilépő melegáram hőmérsékletét és a hűtőközeget kell specifikálni.

Részletes tervezési módban ismerni kell a hőcserélő geometriáját, hogy a hőátadási tényező értékét a cső- és köpenyoldali ellenállás függvényében meg tudjuk határozni. „Rating” üzemmód használatához először az Aspen Plus Heat Exchanger modulban meg kell tervezni a hőcserélőt, majd ezt a fájlt importáljuk. Így le tudjuk ellenőrizni, hogy az általunk tervezett hőcserélő megfelelően működik-e [15].

A szimulátor elkészítése során egyszerűsített tervezési módban használtam, működését a kilépő meleg áram hőmérsékletének megadásával definiáltam.

A folyékony halmazállapotú terméket és a hidrogéngázt egy FLASH2 szeparátorban választom el (ld. 3.3. ábra) [15].



3.3. ábra: FLASH2 szeparátor [16]

Legalább egy bemenő áram van, egy kilépő gáz-/gőzáram és egy kilépő folyadékáram (ha három fázis létezik, akkor a két folyadékfázis együtt távozik a szeparátor alján.). A szeparátort lehet fűteni és hűteni is.

A modell paraméterei: hőmérséklet, nyomás, moláris gőzfrakció, hőáram a rendszer és a környezete között. Megadható az is, hogy a gőzáram mennyi folyadékot hord ki magával. A szimuláció elkészítése során a hőmérséklettel és a nyomással specifikáltam a szeparátort.

A recirkulációs áramokban egy kompresszor (Compr) és egy szivattyú (Pump) van, amelyeket a kilépő áram nyomásával specifikáltam.

Mivel a technológiai rendszerben a tartózkodási idő másodperces nagyságrendbe esik, ezért a stacioner szimuláció eredménye összehasonlítható az ipari reaktoron gyűjtött adatokkal.

3.2. Tömegmérleg kiegyenlítése

A mérleghiba-kiegyenlítés módszerét a hidrogénező technológia tömegmérlegének kiegyenlítése alapján mutatom be. A technológia két bemenetű (C3 frakció és hidrogén áramok) és két kimenetű rendszer (hidrogénezett folyadék C3 frakció és lefúvatás). A TVK Olefin II. üzemében működő C3 hidrogénező rendszer betáplálási és elvételi áramait is ismertem. Az adatsor egy hónapos időintervallumot ölel fel, egy órás mintavételezési idővel.

A tömegmegmaradás törvénye kimondja, hogy egy rendszerbe belépő tömeg megegyezik a kilépő és felhalmozódó tömegek összegével.

$$\text{Belépő tömegáram} = \text{Kilépő tömegáram} + \text{felhalmozódás} \quad (3.5)$$

Mivel a hidrogénező rendszerben nincsen felhalmozódás, ezért a rendszerbe bemenő két tömegáram összege megegyezik a két kilépő tömegáram összegével.

$$\text{Belépő C3 frakció} + \text{belépő } H_2 = \text{lefúvatás} + \text{elvett C3 termék} \quad (3.6)$$

azaz

$$\text{Belépő C3 frakció} + \text{belépő } H_2 - \text{lefúvatás} - \text{elvett C3 termék} = 0 \quad (3.7)$$

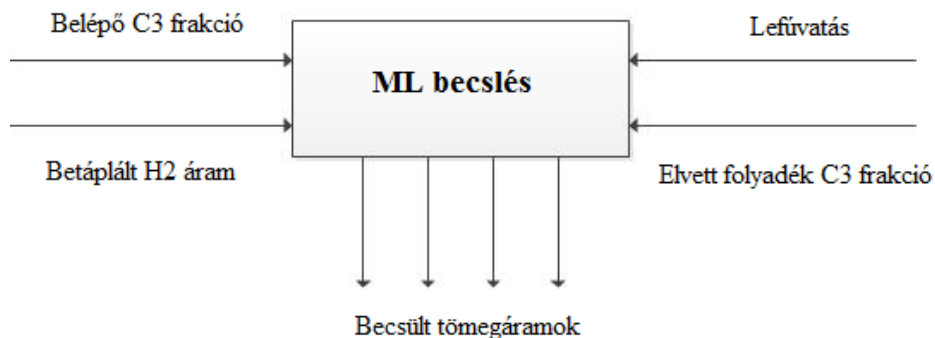
Ezért az együtthatómátrix a következőképpen alakul: $\mathbf{A}=[1 \ 1 \ -1 \ -1]$. A mátrixműveletek elvégzése során fontos, hogy az $\mathbf{A}$ sorvektor legyen.

A 2.20. összefüggés alapján a következő összefüggéssel számíthatók ki az új változók ($\mathbf{b}=0$, mert nincsen forrás):

$$\hat{\mathbf{x}} = (\mathbf{I} - \mathbf{V_d A'} (\mathbf{A V_d A'})^{-1} \mathbf{A}) \tilde{\mathbf{x}} \quad (3.8)$$

ahol $\tilde{\mathbf{x}}$ a mért változókat tartalmazó vektor, $\mathbf{I}$ egységmátrix, $\mathbf{V_d}$ a hiba varianciamátrixa, $\mathbf{A}$ együtthatómátrix.

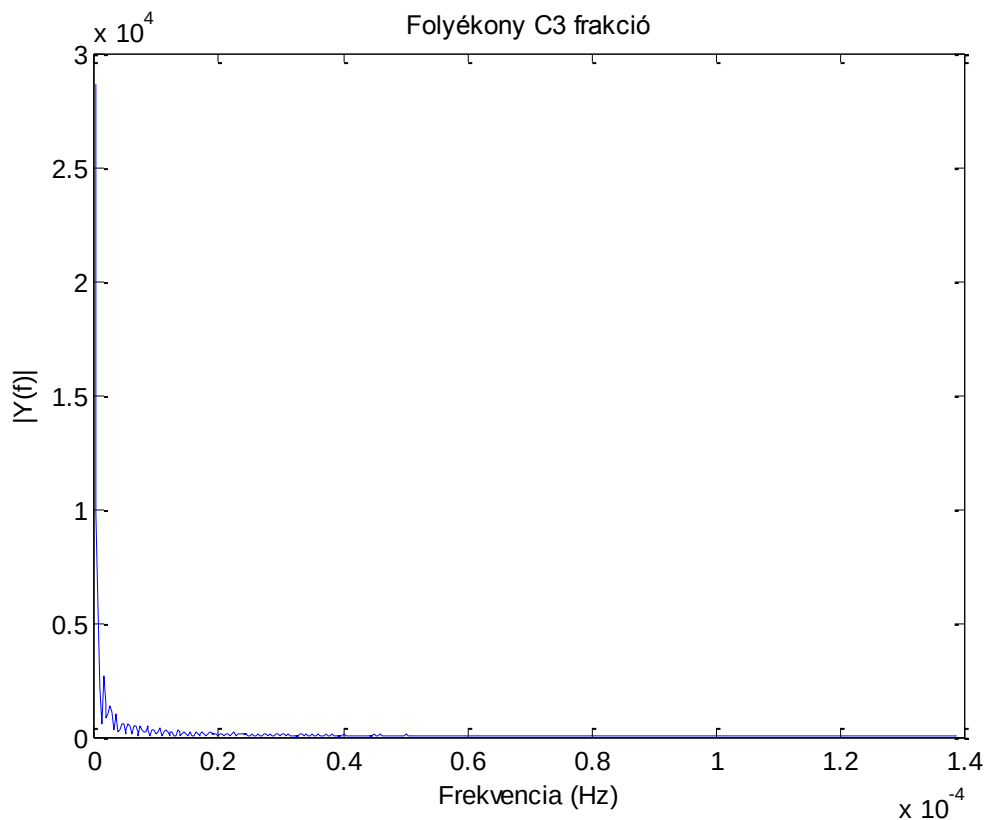
Ahogy a 3.4. ábrán is látszik, az $\tilde{\mathbf{x}}$ vektornak négy oszlopa lesz, hiszen négy mért tömegáram van. Az ML becslés eredménye pedig szintén egy négy oszlopot tartalmazó mátrix lesz, amely a 3.8. egyenlet alapján számított tömegáramokat tartalmazza.



3.4. ábra: ML becslés bemenő és kilépő vektorai

3.2.1. Mérési hiba szórásának meghatározása

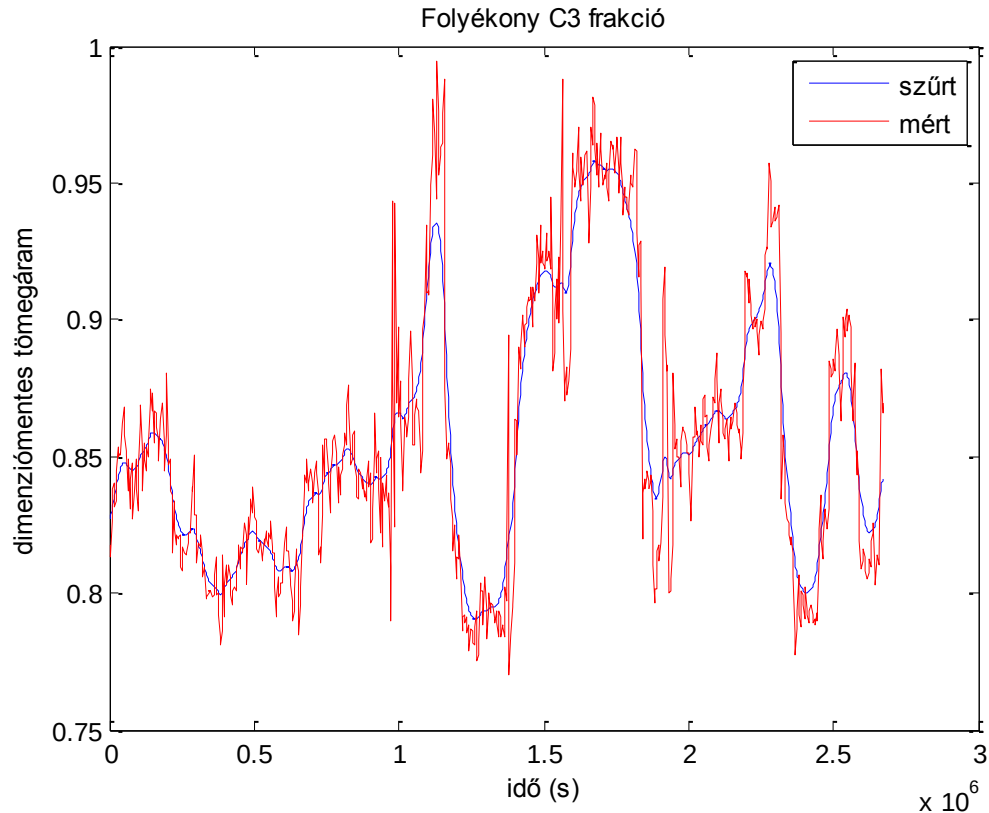
A 3.8. egyenlet alkalmazásához szükség van a mérési hiba szórására. Ezt diszkrét Fourier transzformációval határoztam meg. Mivel a mintavételezési idő egy óra, ezért a mintavételezési frekvencia $1/3600$ Hz. 744 mérési adatom van. Az FFT korlátja, hogy a pontszám nem lehet tetszőleges, csak kettő valamely hatványa. Éppen ezért megkerestem a 744-nél nagyobb számot, amely a kettő hatványa. Ez a pontszám az 1024. Mivel a jel hossza nem egyezik meg az FFT által alkalmazott pontszámmal, ezért fontos a megfelelő skálázás. A vágási frekvenciát az ábra alapján határoztam meg. A folyékony C3 frakció tömegáramának Fourier-transzformációval kapott függvénye látható a 3.5. ábrán. A 2. számú melléklet tartalmazza a többi áram esetében a Fourier transzformáció eredményét.



3.5. ábra: Folyékony C3 frakció Fourier transzformáltja

Az első magas csúcs jeleni a jelet, a lecsengő szakasz pedig a jelre ráakódott zavarás. $0,4 \cdot 10^{-4}$ Hz-nél már nem változik a Fourier-transzformált értéke, így ezt az értéket választottam a szűrési frekvenciának.

A beérkező jelet elsőrendű szűrővel szűrtem meg. A szűrő időállandója a kiválasztott szűrési frekvencia reciproka. A folyékony C3 frakció esetében a 3.6. ábra, a többi áram esetében pedig a 3. számú melléklet mutatja az eredeti és a szűrt adatsort.

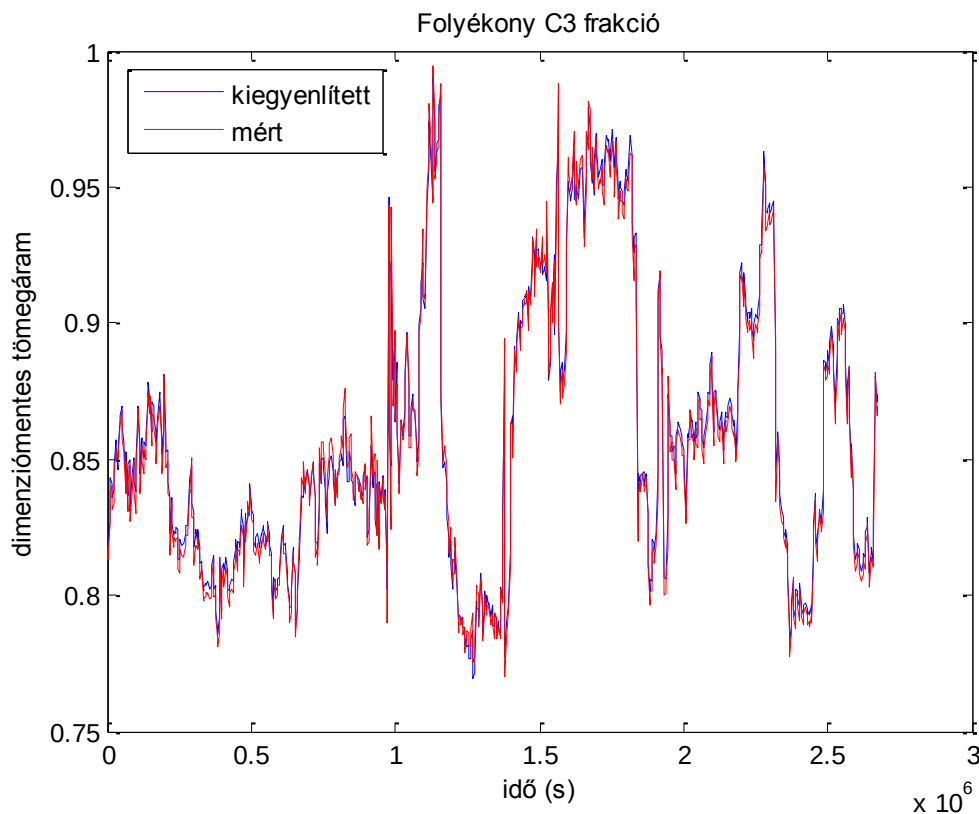


3.6. ábra: Folyékony C3 frakció esetében a mért és szűrt adatsor

Az eredeti és a szűrt adatsor különbsége adja meg a zajt. Ebből már számítható a zaj szórása. Így a varianciamátrix:

$$V_{\tilde{a}} = \begin{bmatrix} 385,19 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 3,89 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 29,21 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 389,24 \end{bmatrix}$$

A varianciamátrix ismeretében már alkalmazható a 3.8. egyenlet, melynek eredményeként olyan értékeket kapunk, amelyek kielégítik a tömegmérleget. A mért és kiegyenlített adatsort mutatja folyékony C3 frakció esetében a 3.7. ábra. (4. számú melléklet tartalmazza az összes adatsort.)

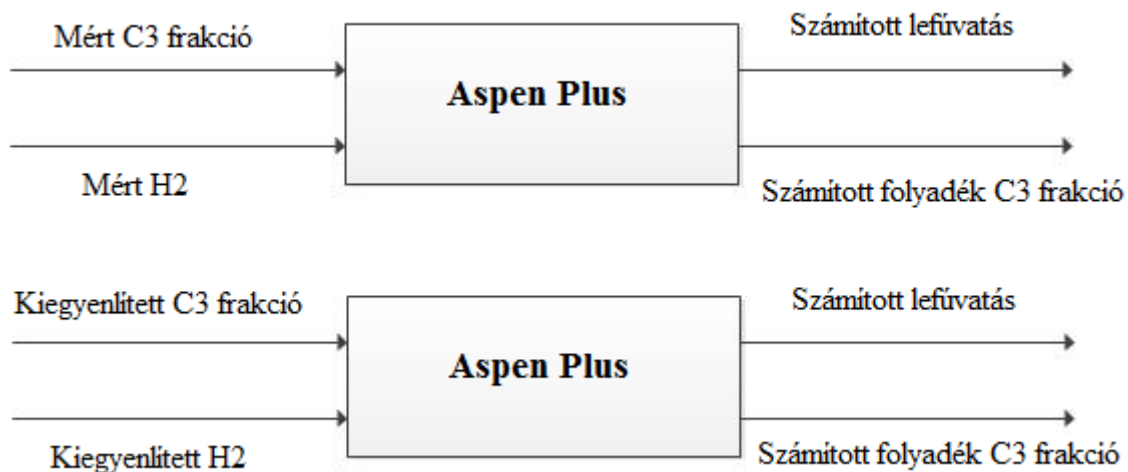


3.7. ábra: Folyékony C3 frakció esetében a kiegyenlített és mért adatsor

3.1.2. Szimulációs vizsgálatok

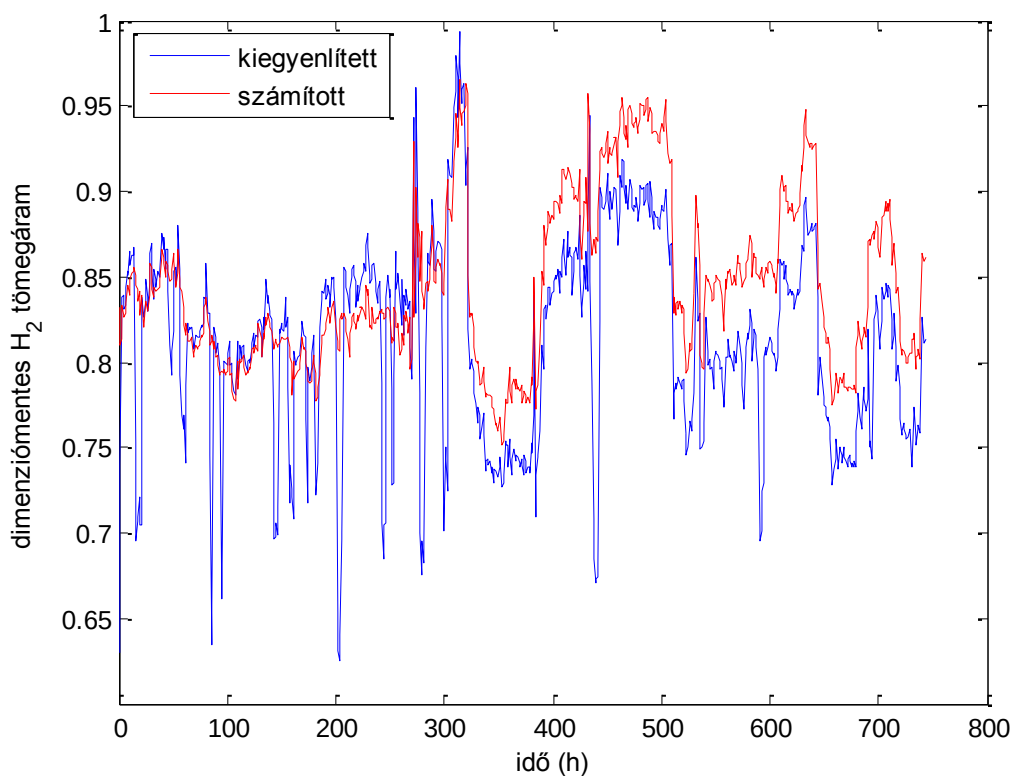
Aspen Simulation Workbook (ASW) alkalmazásával lehetőség van technológiai adatsorok fogadására, vagyis a szimulátor és Excel összekapcsolására. Az Excel kimenete az Aspen fájl bemenete lesz, az Aspen fájl kimenete pedig az Excel fájl bemenete. A kapcsolat makrókon keresztül valósul meg.

Ennek köszönhetően a technológia összes inputja leképezhető a szimulációban is, így lehetővé válik a mért és számított eredmények összehasonlítása. Az összehasonlításnak kétféle módja lehet: az eredeti mért adatok vagy a kiegyenlített adatok feldolgozásán alapuló módszer (ld. 3.8. ábra)



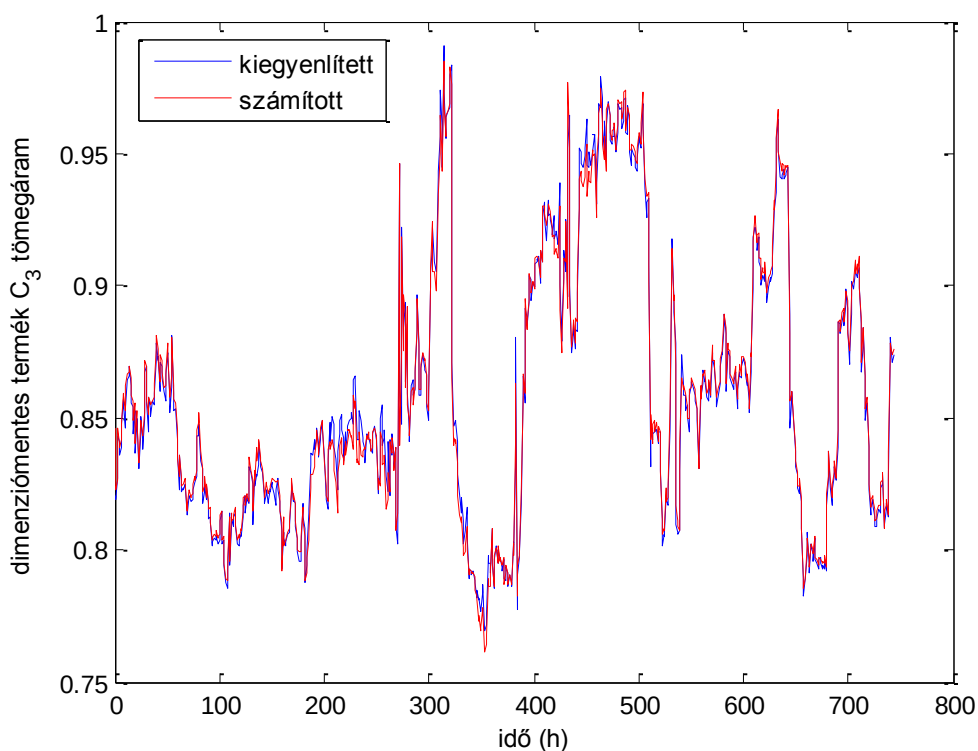
3.8. ábra: Adatok feldolgozási lehetőségei Aspen Plus szimulációs szoftverben

A 3.9. és 3.10. ábrákon látható az első esetre példa, vagyis a szimulátor bemenete az eredeti mért adatsor.



3.9. ábra: Számolt és kiegyenlített H₂ tömegáram összehasonlítása mért C3 betáplált tömegáram bemenet esetében

A 3.9. ábrán látható, hogy a mérés első részében a szimulátor által számított H_2 áram közelítőleg megegyezik. 200 óra után a számított érték kevesebb, 300 óra után pedig több mint a mért érték. Ennek több oka is lehet. A hidrogénáramot a betáplált C_3 frakció MAPD tartalmához állítják be. Azonban ha a katalizátor kimerülőben van, akkor növelnek a hidrogénáramon. Regenerálás után, amikor aktív a katalizátor, kevesebb hidrogénfelesleg is elegendő. Ha a dokumentálás pontatlan vagy hiányos lenne, a szimuláció segítségével erre is fény derül. 300. óra előtt a katalizátort regenerálták, és a hidrogénfelesleg mértékét csökkentették, de a kapott adatsorban a csökkentés mértéke nem szerepelt. A szimuláció eredménye azonban mutatta, hogy a technológiában változás történt. Mindez jól mutatja, hogy a technika az összetett folyamatok figyelemmel kísérésében, diagnosztikájában is alkalmazható, ugyanis segítségével feltárhatók a technológia megváltozott üzemállapotai.

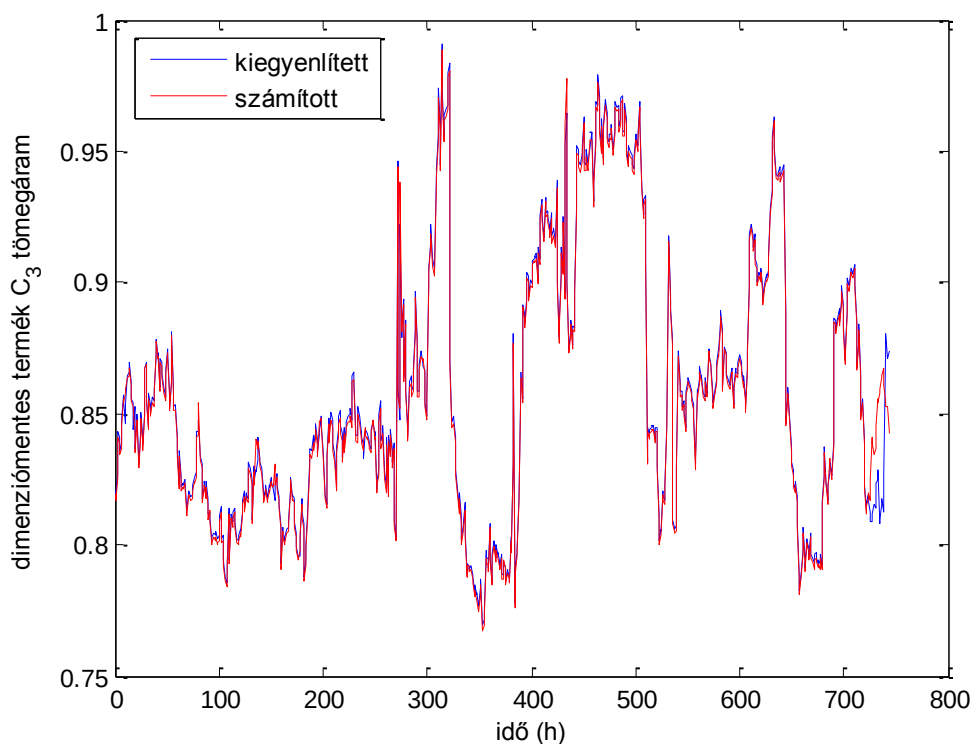


3.10. ábra: Számolt és kiegyenlített termék C_3 tömegáram összehasonlítása mért C_3 betáplált tömegáram bemenet esetében

A 3.10. ábrán is látható, hogy a szimulátor és a kiegyenlített adatsor jó közelítéssel megegyezik (0,39 %-os eltérés).

Egy másik ellenőrzési lehetőség, hogy a kiegyenlített adatsor lesz a szimulátor bemenete. Ebben az esetben akkor működik jól a szimulátor, ha a számított és a

kiegyenlített eredmény megegyezik (kisebb eltérés várható a két eredmény között, mint abban az esetben, ha a mért adatsorral végzem el a számításokat). Ezt mutatja a 3.11. ábra.



3.11. ábra: Számolt és kiegyenlített termék C₃ tömegáram összehasonlítása kiegyenlített C₃ betáplált tömegáram bemenet esetében

A 3.11. ábrán is látható, hogy a szimulátorral számított és a kiegyenlített adatsor minimális eltéréssel megegyezik (0,31 %-os eltérés). Tehát a szimulátor megfelelően írja le a valóságot, illetve a mért tömegáram adatok hitelesnek tekinthetők.

4. Összefoglalás, értékelés

A nagytisztaságú olefin termékek előállítása elengedhetetlen, hiszen polimerizációs alapanyagokként a lehető legkevesebb szennyezést tartalmazhatják. A 99,99 %-os tisztaság eléréséhez szükséges a szennyező komponensek (acetilén, metil-acetilén, propadién) hidrogénezése.

Elkészítettem a C3 hidrogénező rendszer stationer szimulátorát Aspen Plus szoftver alkalmazásával. A szimuláció eredményét összehasonlítottam ipari reaktoron gyűjtött mérési adatokkal.

A szimulátor bemenő és kimenő adatait mérleghiba kiegyenlítési technikák alkalmazásával minősítettem, mely algoritmus paramétereinek meghatározására Fourier transzformáción alapuló módszert javaslok. Az eredmények igazolták, hogy az összetartozó mérések nem szorulnak jelentős korrekcióra, azok a szimulátor validálására elfogadhatónak tekinthetők. A szimulációs eredmények és kiegyenlített, feldolgozott bemenet-kimenet adatpárok megfelelő egyezése alapján megállapítható, hogy az általunk fejlesztett szimulátor jól leírja az ipari technológia működését, a kiegyenlített adatokkal pedig alkalmas további vizsgálatokra, pl. kinetikai paraméterek meghatározására.

További vizsgálataim tárgya a szimulátor becsült paramétereinek az identifikálása, a technológia komponens- és a hőmérlege.

Irodalomjegyzék

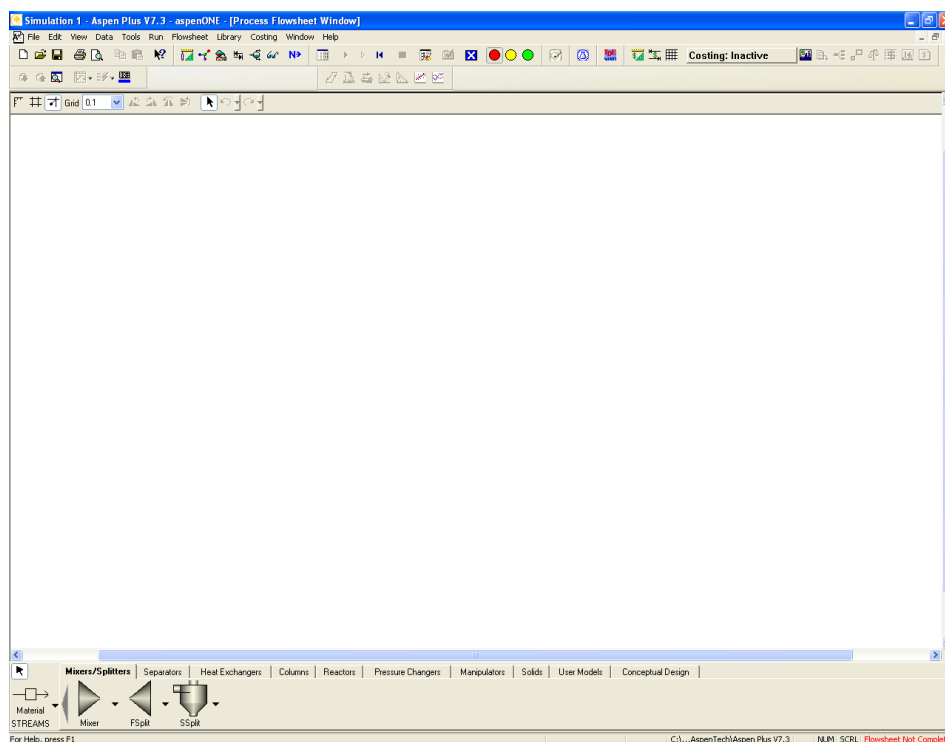
- [1] Vivek V. Ranade et al.: *Trickle Bed Reactors*, Reactor Engineering & Applications, Elsevier B.V., 2011.
- [2] Tungler A. : *Ipari katalízis*, BME Kémiai és Környezeti Folyamatmérnöki Tanszék, 2008
- [3] Farsang B.: *Ipari C3-hidrogénező reaktor irányítási rendszerének tervezése*, Egyéni tervezési feladat, Veszprém, 2011.
- [4] Szeifert F., Árva P., Chován T., Nagy L., Németh S. : *Korszerű technológia analízis I., A folyamatmérnöki eszközök és módszerek áttekintése*, Mérnöktovábbképző tanfolyam jegyzet, Veszprém, 1997.
- [5] AspenOne v7.3 User and Reference Guide, AspenTech Inc., Boston (MA), USA, 2011
- [6] B. Kalitventzeff, D. Kyriakopoulou: *Validation of measurement data using an interior point sqp.*, Computers & Chemical Engineering 20, 563-568, 1996
- [7] SimSci-Esscor Inc.,
http://iom.invensys.com/en/pages/simsci-esscor_processengsuite_datacon.aspx
- [8] Dr. Almásy G.: *Mérlegegyenletek-mérési hibák*, Veszprém, Egyetemi Kiadó, 1, 31-41. oldal 1996
- [9] <http://hu.wikipedia.org/wiki/Fourier-transzform%C3%A1ci%C3%B3>
- [10] <http://www.stud.u-szeged.hu/Pongracz.Gabor/kepfeld/fourier.html>
- [11] *Fourier Analysis for Discrete-Time Signals and Systems*, Prentice-Hall, Inc., Simon & Schuster A Viacom Company, 1996.
- [12] Dallos A.: *Műszaki termodinamika*, vázlat, Veszprém, 2008.
- [13] R. Gobbo, et al.: *Modeling, simulation, and optimization of a front-end system for acetylene hydrogenation reactors*, Brazilian Society of Chemical Engineering, 21. kötet, 4. szám, 2004.
- [14] Warren E. Stewart, et al.: *Kinetics of propylene hydrogenation of platina-alumina*, Chemical Engineering Science, Vol.43. No.8., 2257-2262, 1988
- [15] Aspen Plus 12.1 User Guide, AspenTech Inc., Cambridge (MA), USA, 2003.
- [16] Aspen Plus 12.1 Unit Operation Models, AspenTech Inc., Cambridge (MA), USA, 2003.
- [17] Dr. Németh S: *Fázisegyensúly számítása*, Technológia analízis vázlat, Veszprém, 2010.

Melléklet

1. melléklet: A technológia szimulátorának elkészítéséhez felhasznált szoftver bemutatása

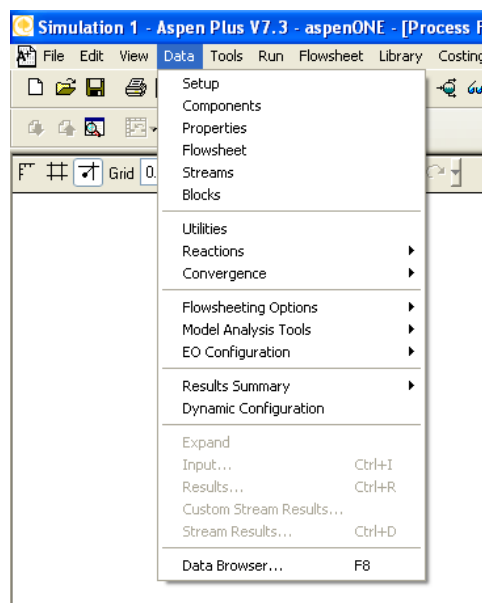
A stacioner vizsgálatokat az Aspen Plus mérnöki szoftvercsomaggal végeztem el [5]. A szimulátor segítségével a technológia objektum stacioner állapotát lehet meghatározni a technológiát felépítő műveleti egységek és az egységekbe bemenő anyagáramok definiálásával. A szimulátor adatbázisa tartalmazza vegyiparban használt anyagok fizikai, kémiai tulajdonságait és a beépített termodinamikai modellek segítségével képes az adott komponensek fizikai, kémiai tulajdonságainak számítására különböző körülmények között.

Az M1. ábrán látható kép a sikeres bejelentkezés után jelenik meg a képernyőn. Ebben az ablakban építhetjük fel a technológiát a képernyő alsó részén lévő ikonok (berendezés modellek) kiválasztásával, illetve a közöttük lévő kapcsolatok definiálásával.



M1. ábra: A program kezdő oldala

A számításához szükséges specifikációkat a képernyő felső részén látható Data menüpontban adhatjuk meg (ld. M2. ábra).



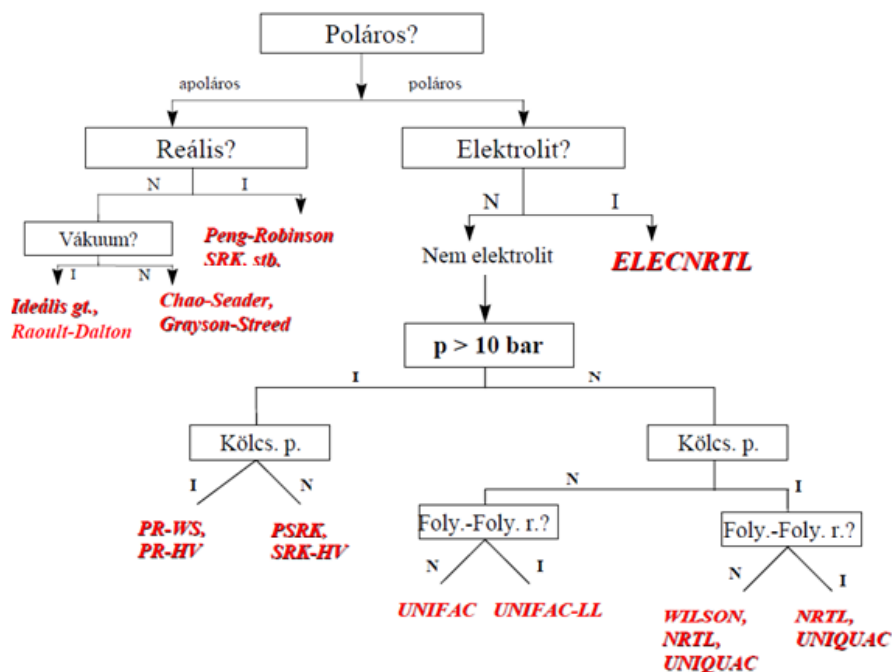
M2. ábra: Data menü alpontjai

A Setup alpontban az eredmények megjelenítéséhez szükséges általános információkat adhatjuk meg. Itt állíthatjuk be, milyen mértékegységrendszerben szeretnénk dolgozni. Választhatunk az alapbeállításokból is (SI, angolszász), illetve testre is szabhatjuk. Beállíthatjuk az eredmények kijelzésének részletességét is, hogy milyen tulajdonságok jelenjenek meg az eredmények között. Itt választhatunk, hogy a szimulátort milyen feladat megoldására szeretnénk felhasználni: kőolajtermékek (komponensek) tulajdonságainak becslésére mérési adatok alapján, modellparaméterek meghatározására mérési adatok alapján, folyamat modellezésére, tervezési és szimulációs számításokra (Flowsheet), termodinamikai tulajdonságok számítására (Property Analysis) vagy tulajdonságok becslésére szerkezeti képlet alapján.

A Components alpontban a feladatmegoldás során előforduló komponenseket választhatjuk ki a következő adatbázisokból:

- szerves kémiai adatbázis
- szervesetlen kémiai adatbázis
- szilárd anyagok
- vizes oldatok (elektrolitok)
- extrém körülmények között lévő komponensek.

A tulajdonságszámító módszert a Properties pont alatt adhatjuk meg. Az M3. ábra mutatja a tulajdonságszámító módszer kiválasztásának alapelveit.



M3. ábra: Termodinamikai módszer kiválasztása [17]

A Blocks menüpont alatt a folyamatábrán szereplő berendezések paramétereit állíthatjuk be, illetve itt tekinthetők meg a szimuláció során számított értékek is (pl. berendezés belépő és kilépő áramainak tulajdonságai, tartózkodási idő, szükséges energiaigények, stb.) . Főbb „berendezés”-modellek: áramkeverők, -osztók, -módosítók; egy- és többfokozatú egyensúlyi szeparátorok; reaktorok; hőcserélők; csővezetékszámító modul; nyomásváltoztató berendezések; aprítók, osztályozók; gáz-szilárd szeparátorok; folyadék-szilárd szeparátorok; szilárd mosók. A C3-hidrogénező rendszer szimulációjának elkészítéséhez felhasznált berendezés modelleket 3.1. fejezetben ismertetem.

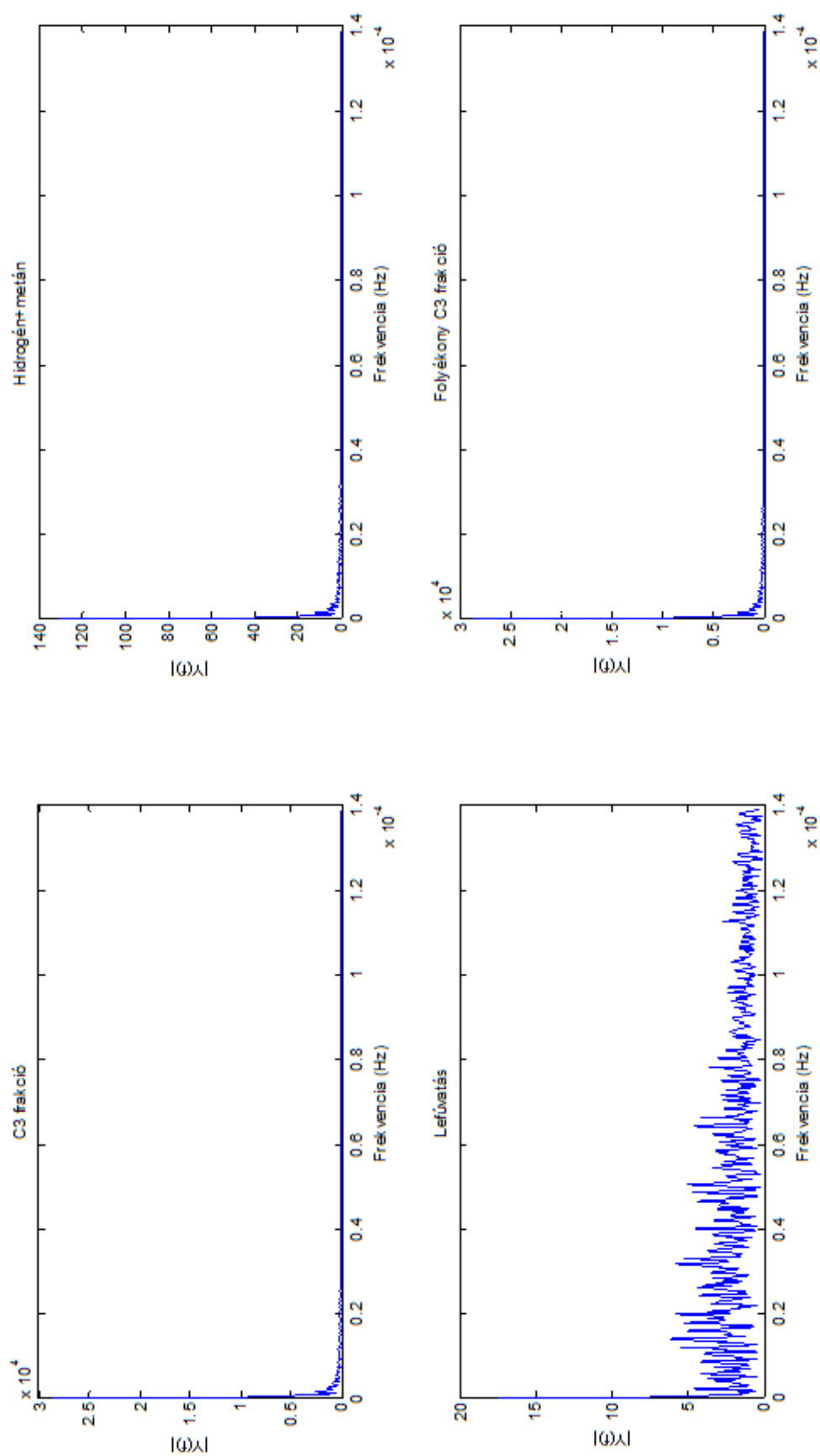
Kémiai reakciókat a Reactions pontban definiálhatunk a sztöchiometriai együtthatók és a sebességi egyenlet paramétereinek megadásával.

A Convergence pontban a numerikus módszerek paramétereinek megadása történik, illetve a felvágott áramok kezdeti értékének megadása (Tear).

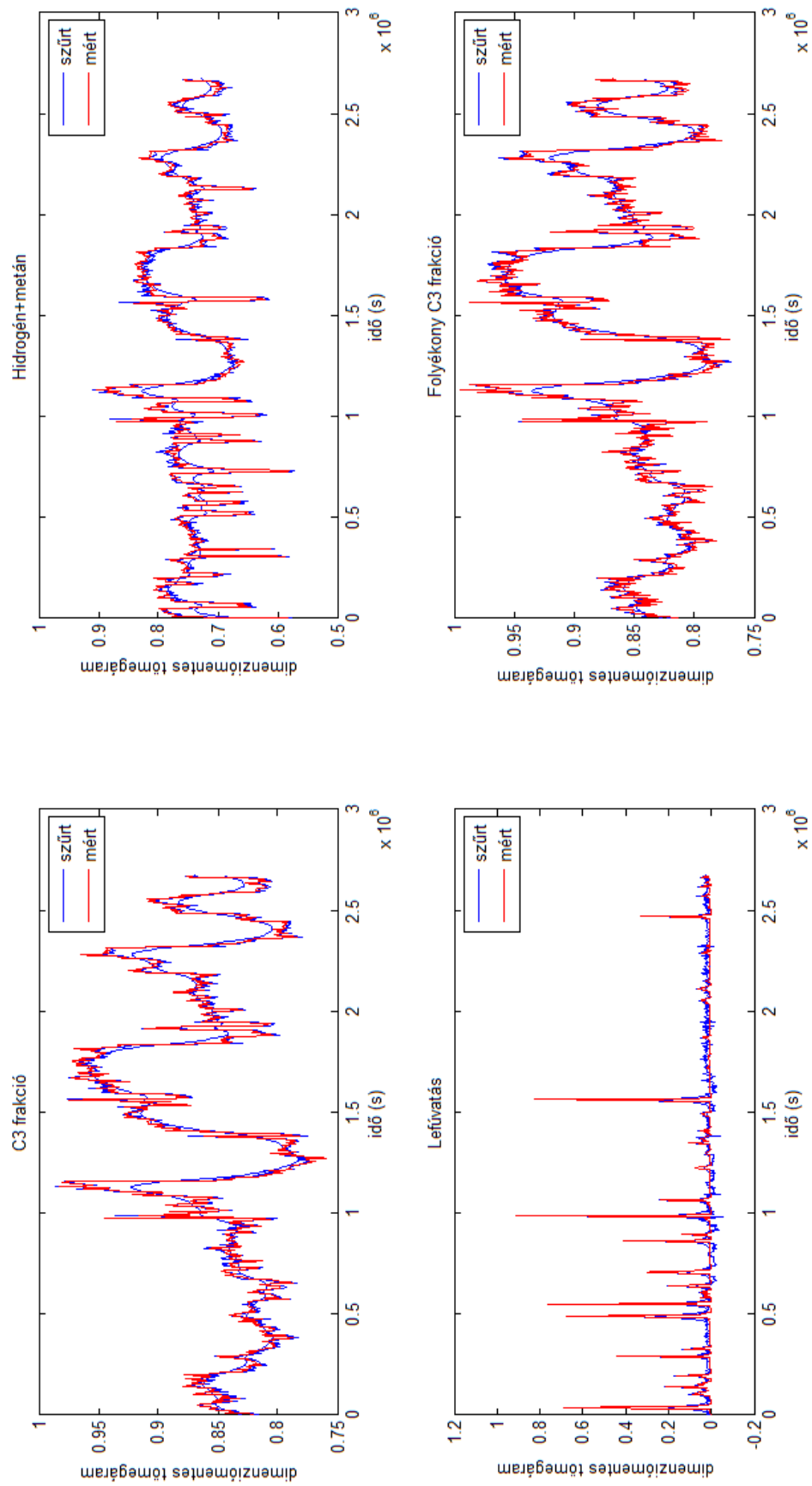
Flowsheeting option Design Spec pontjában recirkuláció esetében a technológia egyes jellemzőire feltételeket tudunk megadni (pl. változtassa úgy a program a betáplálási áram tömegáramát, hogy a betáplált áram és a recirkuláltatott áram keverékében egy adott komponens koncentrációja állandó, megadott érték legyen).

Model analysis tools Sensitivity pontjában érzékenységvizsgálatok elvégzésére van lehetőség (stacionárius karakterisztika felvétele).

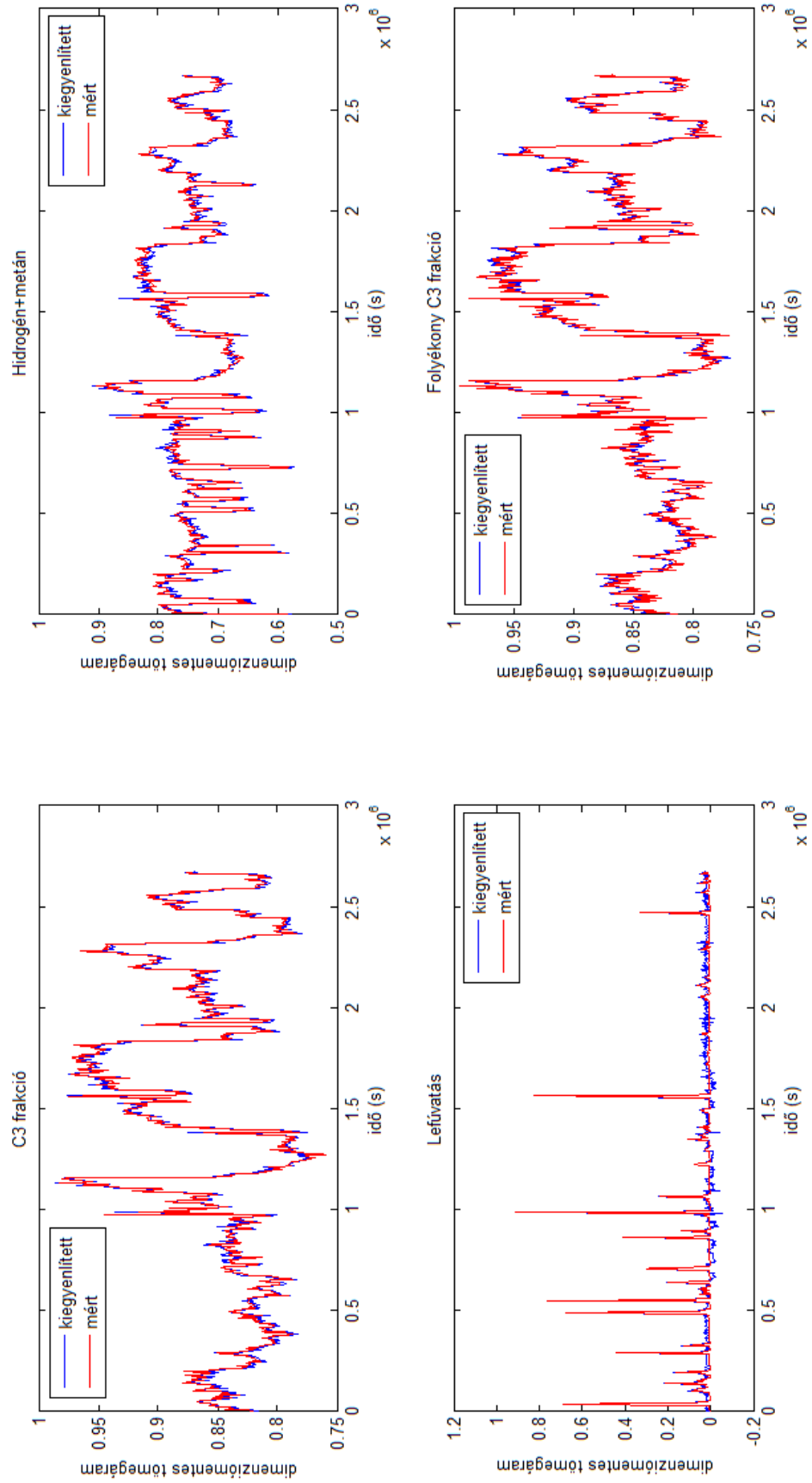
2. melléklet: Fourier transzformáció eredménye



3. melléklet: Mért és szűrt adatsor ábrázolása



4. melléklet: Kiegyenlített és mért adatsor ábrázolása



Köszönetnyilvánítás

Köszönettel tartozom témavezetőimnek, dr. Abonyi Jánosnak és dr. Németh Sándornak szakmai tanácsaikért, amelyekkel dolgozatom elkészítését segítették. Köszönöm, hogy olyan türelmesen válaszoltak a felmerülő kérdéseimre.

Köszönetemet szeretném kifejezni a Folyamatmérnöki Intézeti Tanszék doktorandusz hallgatóinak: Kulcsár Tibornak a Fourier-transzformáció leképezésében nyújtott segítségéért, illetve Szabó Lászlónak az ASW megismerésében nyújtott segítségéért.

Ezúton szeretnék köszönetet mondani Gömöri Zoltánnak, Horváth Gyulának és a TVK Olefin-2 üzem C3 poszt felelőseinek, hogy segítettek az ipari C3-hidrogénező rendszer megismerésében.

Jelen dolgozat a TAMOP-4.2.1/B-09/1/KONV-2010-0003 és TAMOP-4.2.2/B-10/1-2010-0025 projektek keretében készült. A projekt a Magyar Állam és az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósult meg.