



УКРАЇНА

(19) UA (11) 76469 (13) C2
(51) МПК

C07C 51/12 (2006.01)

C07C 67/37 (2006.01)

C07C 53/08 (2006.01)

C07C 69/14 (2006.01)

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ
І НАУКИ УКРАЇНИДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІОПИС
ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

(54) СПОСІБ БЕЗПЕРЕРВНОГО ОДЕРЖАННЯ ОЦТОВОЇ КИСЛОТИ І/АБО МЕТИЛАЦЕТАТУ

1

(21) 20031212330

(22) 26.06.2002

(24) 15.08.2006

(86) PCT/FR02/02212, 26.06.2002

(31) 01/08798

(32) 03.07.2001

(33) FR

(46) 15.08.2006, Бюл. № 8, 2006 р.

(72) Тьєбо Даніель, FR

(73) АЦЕТЕКС ШИМІ, FR

(56) EP 0161874, A, 21.11.1985

US 5352415, A, 04.10.1994

US 5374774, A, 20.12.1994

(57) 1. Спосіб безперервного одержання оцтової кислоти і/або метилацетату шляхом карбонілювання метанолу або здатної карбонілюватися похідної метанолу монооксидом вуглецю в рідкій фазі за наявності води і гомогенної каталітичної системи, який відрізняється тим, що згаданий спосіб одержання здійснюють у промисловій установці, що включає:

зону I, названу реакційною зоною, що містить реактор, у якому зазначену реакцію карбонілювання метанолу здійснюють у рідкій фазі при температурі від 150°C до 250°C, при тиску від 5·10⁵ Па до 200·10⁵ Па і з видаленням частини газоподібних продуктів, що накопичуються над рівнем рідини реакційного середовища в зазначеному реакторі; зону II, названу зоною випарювання або флеш-зоною, в якій рідину, що утворюється в реакційному середовищі в зоні I, частково випаровують при тиску, нижчому за тиск, що існує у зоні I, причому рідку фракцію, що утворюється в результаті цього часткового випарювання, повертають у реактор; і зону III, названу зоною очищення, в якій випаровувану фракцію, що утворюється у згаданій флеш-зоні II, переганяють на одній або більше ніж одній, регенерній колоні, на виході з якої регенерують оцтову кислоту і/або метилацетат, причому інші компоненти вказаної випарованої фракції принаймні частково повертають у зазначений реактор, у якому для поліпшення моніторингу виробництва оцтової кислоти і/або метилацетату, температуру реактора і швидкість подачі в зазначений реактор

2

метанолу або здатної карбонілюватися похідної метанолу підпорядковують керуванню швидкістю подачі монооксиду вуглецю і принаймні одного з параметрів, що визначають склад реакційного середовища і/або газів, що видаляються.

2. Спосіб за п. 1, який відрізняється тим, що сервокерування здійснюють через багатомірний прогнозуючий регулятор.

3. Спосіб за п. 1 або 2, який відрізняється тим, що його здійснюють, підтримуючи концентрацію води в реакційному середовищі при значенні, більшому за або рівному 14 мас. %.

4. Спосіб за п. 3, який відрізняється тим, що температуру реактора і швидкість подачі метанолу підпорядковують керуванню швидкістю подачі монооксиду вуглецю і селективністю до H₂ або CO₂, яку підтримують при значенні, меншому за або рівному 0,01, і/або концентрацією метилацетату, яку підтримують при значенні, меншому за 5 мас. %, краще меншому за 2 мас. % від маси реакційного середовища.

5. Спосіб за п. 1 або 2, який відрізняється тим, що спосіб здійснюють, підтримуючи концентрацію води в реакційному середовищі при значенні, меншому за 14 мас. % від маси реакційного середовища.

6. Спосіб за п. 5, який відрізняється тим, що температуру реактора і швидкість потоку метанолу або здатної карбонілюватися похідної метанолу, що надходить у згаданий реактор, підпорядковують керуванню швидкістю подачі монооксиду вуглецю і концентрацією води в реакційному середовищі, причому зазначену концентрацію підтримують на заздалегідь визначеному заданому рівні.

7. Спосіб за будь-яким з пп. 1-6, який відрізняється тим, що швидкість потоку рідини з реактора у флеш-зону II і швидкості потоків рециркуляційної рідини із зон II і III в зазначений реактор також підпорядковують керуванню рівнем рідини у згаданому реакторі, так щоб зазначений рівень залишався фіксованим на заздалегідь визначеному значенні.

(13) C2

(11) 76469

(19) UA

8. Спосіб за будь-яким з пп. 1-7, який **відрізняється** тим, що здійснюють моніторинг і регуляцію концентрації води в реакційному середовищі.
9. Спосіб за будь-яким з пп. 1-8, який **відрізняється** тим, що зміни у швидкості подачі монооксиду вуглецю демпфують проведенням через буферний резервуар, розташований перед зазначеним реактором.
10. Спосіб за п. 9, який **відрізняється** тим, що задане значення швидкості потоку монооксиду вуглецю ставлять у залежність від тиску всередині зазначеного буферного резервуара.
11. Спосіб за будь-яким з пп. 1-10, який **відрізняється** тим, що коливання у швидкості потоку монооксиду вуглецю, що надходить у реактор, демпфують шляхом викиду принаймні частини надлишку в атмосферу.
12. Спосіб за будь-яким з пп. 1-11, який **відрізняється** тим, що частину тепла від реакції одержання оцтової кислоти видаляють або регенерують.
13. Спосіб за будь-яким з пп. 1-12, який **відрізняється** тим, що концентрації води й метилацетату

вимірюють за допомогою аналізатора, що працює у ближній інфрачервоній області.

14. Спосіб за будь-яким з пп. 1-13, який **відрізняється** тим, що каталітична система, використовувана у способі одержання оцтової кислоти і/або метилацетату, містить принаймні один метал групи VIII, зокрема родій, іридій або платину.

15. Спосіб за п. 14, який **відрізняється** тим, що каталітична система додатково містить щонайменше співкаталізатор.

16. Спосіб за п. 15, який **відрізняється** тим, що співкаталізатор являє собою метилйодид.

17. Спосіб за п. 16, який **відрізняється** тим, що концентрації води і метилацетату і/або метилйодиду вимірюють за допомогою аналізатора, що працює в ближній інфрачервоній області.

18. Спосіб за будь-яким з пп. 1-17, який **відрізняється** тим, що його застосовують для виробництва оцтової кислоти і/або метилацетату шляхом карбонілювання метанолу.

Винахід відноситься до вдосконалення безперервного способу одержання оцтової кислоти і/або метилацетату.

Конкретніше, це удосконалення спрямоване на поліпшення моніторингу (тобто поточного контролю) й керування способом одержання оцтової кислоти і/або метилацетату з метою поліпшення виходу оцтової кислоти і/або метилацетату.

Одним з найбільш широко використовуваних у промисловості способів одержання оцтової кислоти є карбонілювання метанолу або, в загальнішому сенсі, здатної карбонілюватися похідної метанолу монооксидом вуглецю. Цю реакцію здійснюють у рідкій фазі під тиском, утворюваним монооксидом вуглецю, що є одним з реагентів, за наявності гомогенної каталітичної системи.

Спосіб карбонілювання за наявності родієвого каталізатору є відомим способом, що його застосовують у промисловості та який став предметом численних статей і патентів, наприклад американських патентів US 3769329 і US 3813428.

Європейські патенти EP 618183 і EP 618184, а також європейські патенти EP 785919 і EP 759022 описують спосіб карбонілювання метанолу за наявності іридієвмісної каталітичної системи, яка може містити також родій.

Спосіб карбонілювання за наявності іридію і рутенію, нині застосовуваний у промисловості, описаний у європейському патенті EP 643034.

Мета удосконалення цих способів карбонілювання метанолу полягала у підвищенні продуктивності каталізаторів і зменшенні витрат на промислове виробництво оцтової кислоти.

Так звані способи з "низьким умістом води" фактично дозволяють значно збільшити вихід оцтової кислоти, обмежуючи тим самим рівень необхідних капіталовкладень і знижуючи експлуатаційні витрати шляхом зменшення енергії, що потребується для відділення оцтової кислоти від різнома-

нітних компонентів реакційної суміші, зокрема води.

Звичайно ці різноманітні способи карбонілювання метанолу в рідкій фазі і за наявності гомогенної каталітичної системи здійснюють в установках, що мають три окремі зони, як описано у статті [M.J. Howard із співавт. (Catalysis Today, 18(1993)325-354)].

Реакційна зона складається з реактора безперервної дії з механічним перемішуванням, що працює під тиском (5-200бар, що відповідає $5 \cdot 10^5$ - $200 \cdot 10^5$ Па) і при підвищеній температурі (150-250°C).

Метанол і ряд рециркуляційних потоків вводять у нижню частину цього реактора. Монооксид вуглецю розпорошують у реакторі.

Отримане рідке реакційне середовище потім подають у другу зону, названу зоною випарювання або флеш-зоною, в якій рідина частково випаровується при тиску, нижчому за тиск реакції.

Це викликає миттєве випарювання (від англ. "flash" - "флеш"), або адіабатичне розширення, при якому більшість легких компонентів (метилйодид, метилацетат і вода) випаровуються разом із утвореною кислотою.

Флеш-зона дає можливість відділити газ від рідини; випаруваний потік потім переходить у третю зону, названу зоною поділу, тоді як рідкий потік (по суті, оцтову кислоту, що містить каталізатор) повертають до першої зони.

Зона очищення може містити одну або більше, ніж одну, перегінну колону; це дає можливість відділяти оцтову кислоту і/або метилацетат від інших компонентів і повертати потоки до реакційної зони.

Крім того, відсмоктування газу у верхній частині реактора дає можливість контролювати рівень парціального тиску монооксиду вуглецю і видаляти побічні газоподібні продукти реакції разом з інертними газами, наявними при подачі монооксиду

вуглецю.

Результатом оптимізації сучасних способів одержання оцтової кислоти є максимізація виходу оцтової кислоти в уже існуючому устаткуванні. Для цього реакцію здійснюють з різноманітними компонентами реакційного середовища, концентрації яких підтримуються на заздалегідь визначених рівнях, для того щоб скористатися найбільш придатними кінетичними умовами.

Ця умова є істотною для моніторингу реактора і рециркуляційних потоків.

Багато нещодавніх статей і патентів було присвячено цій галузі.

Доповідь, названа "Адаптивний спосіб контролю реактора з оцтовою кислотою", представлена Д.З. Тобіасом на IEEE конференції (IEEE - Institute of Electrical and Electronics Engineers, Інститут інженерів з електротехніки та радіоелектроніки), що відбулася у Ванкувері 29-30 квітня 1999 року і була присвячена передовим способам керування (D.Z. Tobias, "Adaptive Process Control of an Acetic Acid Reactor", IEEE Conference on Advanced Process Control, Vancouver, 29-30 April 1999), демонструє застосування зовнішнього обмінника для створення матеріального балансу, не залежного від теплового балансу, оскільки без цього обмінника неможливо змінити рівень продуктивності реактора, для того щоб підтримувати температуру реактора, тобто рівень продуктивності реактора насправді визначається матеріальним балансом.

Кінцевою метою є стабілізація температури реактора, для того щоб збільшити продуктивність агрегату; таким чином, встановлення нової системи моніторингу вможливило зменшення стандартного відхилення температури з 3,6 до 0,8°C.

При безперервній експлуатації монооксид вуглецю звичайно подають згідно з вимогою, контролюючи при цьому сумарний тиск у реакторі.

Предметом європейської патентної заявки EP 0983752 є встановлення системи моніторингу, яка спрямована на підтримку швидкості потоку монооксиду вуглецю нижчою за розрахункове максимальне значення, що представляє прийнятну максимальну швидкість потоку.

Ціль європейської патентної заявки EP 0999198 полягає в підтримці складу реакційного середовища, зокрема концентрацій води й метилацетату в реакторі, де здійснюється карбонілювання, шляхом рециркуляції збагаченого оцтовою кислотою потоку, що надходить із зони очищення кислоти.

Патенти EP 0846674 і FR 2750984 описують оптимізацію споживання CO шляхом введення другого реактора для карбонілювання (ефект доведення) між першим реактором (реакційною зоною) і флеш-зоною (зоною випарювання).

Патенти US 5352415 і US 5374774 описують способи промислового виробництва оцтової кислоти, в яких контролюють рівні реактора і флеш-зони, а також концентрацію води в реакційному середовищі.

Патент US 5831120 пропонує технічне вирішення, що дозволяє уникнути накопичення води в реакційному середовищі з одержанням заданої концентрації води в реакторі для карбонілювання.

В цих різноманітних документах описано, що в

стандартному способі, розробленому Монсанто, теплоту, що виділяється в результаті реакції, видаляють шляхом збільшення виходу реактора або миттєвого випарювання між реактором і флеш-зоною. Таким чином, існувала постійна залежність між швидкістю потоку метанолу, що надходить у реактор, і флеш-швидкістю, для того щоб контролювати температуру реактора. Це призвело до незначної мінливості в рівні рідини в реакторі і проміжних потоках.

З введенням способів з низьким умістом води ця система стає недоречною, бо швидкість флеш-випарювання значно збільшується завдяки тому факту, що кількості випареної води стають меншими, і вони мають заміщуватися набагато більшими кількостями органічних продуктів, що їх питома теплота випарювання нижча за питому теплоту випарювання води.

Це призвело до встановлення охолоджуючих теплообмінників для поглинання частини тепла реакції, а це, у свою чергу, збільшило мінливість рівнів рідини в реакторі і флеш-зоні, а також швидкостей потоків рідин (витрат рідин).

Ця сильна зміна у швидкостях потоків рідин, зокрема, належить до недоліків способу, позаяк може виникнути необхідність у зниженні виходу, для того щоб зменшити потік, що надходить у зону очищення.

Крім того, ці коливання викликають зміни в концентрації води в реакторі і, оскільки кінетика реакції залежить від концентрації води у випадку способів із низьким умістом води, це знову збільшує ризик виникнення нестабільності в системі.

Мета патентної заявки EP 1002785 полягає в підтриманні концентрації метилацетату в реакторі на заздалегідь визначеному рівні шляхом коригування співвідношення метанолу та монооксиду вуглецю, що регулює швидкість подачі метанолу в реактор.

У публікації міжнародної заявки WO 00/37405 описується спосіб моніторингу процесу шляхом вимірювання концентрацій різноманітних компонентів реакційного розчину за допомогою інфрачервоного аналізатора і, відповідно, коригування концентрацій, щонайменше, різновидів каталізатора, метилйодиду, метилацетату і води, для того щоб оптимізувати вихід оцтової кислоти.

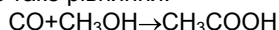
Незалежно від способу була ясно визначена задача моніторингу реактора з оцтовою кислотою, яка полягала в підтримці, зокрема, концентрацій води і метилацетату, але способи автоматичного досягнення цих цілей ніколи не пропонувалися.

Крім того, в жодному з цих документів не розглядалися проблеми, пов'язані з більшими або меншими коливаннями в потоці монооксиду вуглецю, що надходить у реактор, і не намагалося перебороти недоліки, що могли виникнути в процесі виробництва оцтової кислоти.

Предмет даного винаходу полягає саме в тому, щоб перебороти ці недоліки, запропонувавши спосіб моніторингу, який автоматично підтримує, зокрема, концентрації води і/або метилацетату і який дає можливість максимізувати вихід оцтової кислоти при коливаннях швидкості подачі CO, як буде описано нижче.

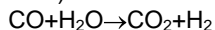
Насамперед відзначають, що:

Основна реакція карбонілювання метанолу має таке рівняння:



Основними побічними реакціями є:

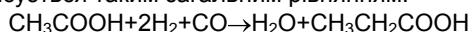
- Реакція конверсії водного газу, що також починається WGSR (від англ. Water Gas Shift Reaction):



Ця реакція є причиною втрати монооксиду вуглецю з одночасним утворенням водню і діоксиду вуглецю.

Важливо кількісно оцінити цю побічну реакцію щодо основної реакції. Використовуючи не залежний від рівня виробництва критерій, дехто говорить про селективність до водню або CO_2 , при цьому селективність виражається як співвідношення кількості молей монооксиду вуглецю, що бере участь у побічній реакції, та сумарної кількості молей монооксиду вуглецю, що бере участь в основній реакції й у побічних реакціях.

- Реакція утворення пропіонової кислоти, що описується таким загальним рівнянням:



У такий спосіб споживаються водень і монооксид вуглецю. Тут можна відзначити, що частина водню, отриманого за допомогою згаданої вище реакції конверсії водного газу, споживається в ході реакції з одержанням у якості побічного продукту пропіонової кислоти. Таким чином, коли аналізують газовий потік на виході з реактора, селективність до водню і селективність до CO_2 уже не є еквівалентними.

Селективність до CO_2 є більш показовою для реакції конверсії водного газу, але з практичних міркувань, пов'язаних з газовим аналізом, для керування промисловою установкою не виключається також застосування селективності до водню.

- Реакція етерифікації оцтової кислоти і метанолу з одержанням метилацетату.

Метилацетат, що утворюється в цій реакції, може перешкоджати поділу рідкого потоку, конденсованого у верхній частині першої очисної колони, якщо його концентрація в реакторі збільшується безконтрольно.

Залежно від способу одержання монооксиду вуглецю до його надходження в реактор з оцтовою кислотою, потік монооксиду вуглецю може виявитися непостійним. Незначні зміни можуть бути демпфовані шляхом встановлення буферного резервуара для монооксиду вуглецю до реактора з оцтовою кислотою, що дає можливість зменшити зміни у швидкості потоку монооксиду вуглецю і згладити їх на якийсь час, оскільки рівень тиску в джерелі монооксиду вуглецю вищий за рівень тиску, при якому він витрачається в реакторі для карбонілювання.

Результатом великих коливань є те, що потік монооксиду вуглецю, який може бути визначений як надлишок CO , не може використовуватися в реакції і, отже, має викидатися в атмосферу або через розтруб витяжної труби, або через систему згорання з регенерацією тепла.

Удосконалення за даним винаходом полягає у зміні температури реактора і швидкості подачі метанолу в реактор з метою коригування виходу оцтової кислоти щодо кількості доступного моноок-

сиду вуглецю при одночасному підтримуванні низької селективності до водню чи CO_2 , або умов, які дають можливість оптимізувати споживання CO , особливо за допомогою заздалегідь запрограмованого електронного пристрою, як-от багатомірний регулятор з прогнозуючим керуванням.

Таким чином, на протипагу попереднім режимам роботи, де температура реактора залишалася фіксованою на заданому значенні протягом тривалого часу, температура реактора в способі за даним винаходом змінюється таким чином, щоб міг бути використаний весь доступний монооксид вуглецю.

Стало очевидним, що навіть якщо параметри, використані в регуляторі як вхідні перемінні, не були однаковими, в усіх випадках незалежно від того, чи був це спосіб, що його використовують звичайно з умістом води в реакційному середовищі, більшим за або рівним 14мас.%, чи це був так званий спосіб з "низьким умістом води", можна було оптимізувати вихід оцтової кислоти і/або метилацетату за допомогою регулятора, що впливає на температуру реактора і швидкість подачі метанолу (вихідні перемінні або перемінні дії), як функцію швидкості подачі монооксиду вуглецю і принаймні одного додаткового параметра, вибраного як множинну перемінну (вхідні значення або оптимізовані значення).

Таким чином, відповідно до його суттєвої характеристики, винахід відноситься до способу безперервного одержання оцтової кислоти і/або метилацетату шляхом карбонілювання метанолу або здатної карбонілюватися похідної метанолу монооксидом вуглецю в рідкій фазі за наявності води і гомогенної каталітичної системи, причому вказаний препаративний спосіб здійснюють у промисловій установці, що включає:

- зону I, названу реакційною зоною, що включає реактор, у якому здійснюють згадану вище реакцію карбонілювання метанолу в рідкій фазі при температурі від 150 до 250°C, при тиску від $5 \cdot 10^5$ до $200 \cdot 10^5$ Па і з видаленням частини газоподібних продуктів, що накопичуються над рівнем рідини реакційного середовища в зазначеному реакторі;

- зону II, названу зоною випарювання або флеш-зоною, в якій рідину, що утворюється в реакційному середовищі в зоні I, частково випаровують при тиску, нижчому за тиск, що існує в зоні I, при цьому рідку фракцію, що утворюється в результаті цього часткового випарювання, повертають у реактор;

- зону III, названу зоною очищення, в якій випарену фракцію, що утворюється в зазначеній вище флеш-зоні II, переганяють на одній або більше, ніж одній, перегінній колоні, на виході з якої регенерують оцтову кислоту і/або метилацетат, при цьому інші компоненти вищезгаданої випареної фракції, щонайменше, частково повертають у зазначений вище реактор,

у якому з метою поліпшення моніторингу одержання оцтової кислоти і/або метилацетату, температуру реактора і швидкість подачі в зазначений реактор метанолу або здатної карбонілюватися похідної метанолу підпорядковують керуванню швидкістю подачі монооксиду вуглецю і, щонайме-

нше, одного з параметрів, що визначають склад реакційного середовища і/або газів, що видаляються.

Таким чином, у даному винаході запропонований поліпшений засіб моніторингу виробництва оцтової кислоти і/або метилацетату в безперервному способі карбонілювання метанолу або здатної карбонілюватися похідної метанолу монооксидом вуглецю в рідкій фазі за наявності води і гомогенної каталітичної системи, при цьому зазначений спосіб здійснюють у промисловій установці, що включає три основні зони - I, II і III, визначені вище.

"Здатна карбонілюватися похідна метанолу" означає будь-яку похідну метанолу, що її звичайно використовують у промислових способах для одержання оцтової кислоти і/або метилацетату шляхом карбонілювання, наприклад диметилловий ефір, метилгалогеніди або метилацетат.

Моніторинг, виконуваний у способі за даним винаходом, може здійснюватися за допомогою будь-якого електронного пристрою для забезпечення необхідного сервокерування, для того щоб мінімізувати втрати монооксиду вуглецю при коливаннях у подачі монооксиду вуглецю.

Зокрема, цей пристрій для сервокерування може являти собою електронний пристрій керування, заздалегідь запрограмований на виконання цієї мети.

Точніше, пристрій для сервокерування діє на температуру реактора і на швидкість подачі в реакцію метанолу, для того щоб мінімізувати втрати монооксиду вуглецю шляхом постійного моніторингу швидкості подачі в реактор монооксиду вуглецю і, щонайменше, одного з параметрів, що визначають склад реакційного середовища і/або газів, що видаляються.

Фахівці в даній галузі легко зрозуміють, що параметр, вибраний як вхідний параметр для пристрою, що здійснює сервокерування, залежить від режиму роботи промислової установки з виробництва оцтової кислоти і/або метилацетату, і що ці параметри, зокрема, можуть різнитися залежно від того, який спосіб використовують: так званий стандартний спосіб за типом Монсанто або так званий спосіб з "низьким умістом води", що стане очевидним з наступного опису.

Пристрій керування може являти собою або систему моніторингу і керування, якщо він має необхідні функції, або багатомірний прогнозуєчий регулятор, або будь-яку іншу електронну систему, що має такі характеристики:

- пристрій ввід/вивід (I/O від англ. input/output);
- інтерфейс для цифрового перетворення аналогових вхідних/вихідних сигналів; і
- процесор для опрацювання даних.

Проте багатомірний прогнозуєчий регулятор було вибрано для прикладів, з одного боку, для того щоб уникнути особливих характеристик, пов'язаних з системами моніторингу/керування, а з іншого боку, для того щоб можна було безпосередньо застосовувати програми, постачені багатомірним регулятором.

Такий пристрій заснований на застосуванні математичної моделі керування і дозволяє здійснювати прогнозуєче керування, яке на підставі цієї

математичної моделі створює гіпотезу про майбутню поведінку перемінної, за якою здійснюють поточний контроль.

Комерційно доступні багатомірні прогнозуєчі регулятори звичайно включають бібліотеку математичних моделей керування.

Перед використанням багатомірний прогнозуєчий регулятор має бути запрограмований, що звичайно здійснюють таким чином:

1) Зі згаданої бібліотеки вибирають математичну модель як функцію використовованого реактора і хімічної реакції, що її бажано здійснити. Цей вибір роблять звичайно емпірично за допомогою попередніх тестів, що полягають у перевірці всіх математичних моделей на шукану хімічну реакцію і спостереженні отриманих контрольних відповідей.

2) Значення так званих перемінних дії і відповідні значення так званих оптимізованих перемінних потім уводять у регулятор. Перемінні дії являють собою перемінні, на які можна впливати так, щоб оптимізовані перемінні регулювалися близько до бажаних заданих значень. У даному винаході перемінні дії включають температуру реактора і швидкість потоку метанолу, а оптимізовані перемінні включають швидкість подачі монооксиду вуглецю і згаданий параметр, що визначає склад реакційного середовища і/або газів, що видаляються.

Ця друга фаза зводиться до створення в автоматичному регуляторі бази даних, що представляє залежності між перемінними дії та оптимізованими перемінними.

Обчислювальна програма, постачена автоматичним регулятором, потім оптимізує контрольні параметри, як-от посилення і затримка, що їх необхідно буде застосовувати до електричних вихідних сигналів регулятора, для того щоб пристрої керування (звичайно клапани) діяли на перемінні дії.

Значення перемінних дії й оптимізованих перемінних, що їх уводять у регулятор, одержують під час попередньої експериментальної фази, здійснюваної без керування, яка полягає у проведенні хімічної реакції зі швидким збільшенням значення однієї з перемінних шляхом приросту, з тим щоб викликати зміну системи, і спостереження зміни різноманітних перемінних шляхом безперервного вимірювання їхніх значень.

Після того, як регулятор запрограмований, його інтегрують у пульт керування і поступово включають у процес.

При здійсненні процесу автоматичний регулятор регулює оптимізовані перемінні близько до заданих значень, впливаючи на перемінні дії через згадані пристрої.

В першому варіанті винахід застосовують для моніторингу стандартного способу карбонілювання метанолу в оцтову кислоту і/або метилацетат із умістом води, більшим за або рівним 14мас. %.

Добре відомо що, в такому стандартному способі карбонілювання метанолу в оцтову кислоту і/або метилацетат у рідкій фазі, що каталізується родієм, з умістом води, більшим за або рівним 14мас. %, монооксид вуглецю вводять під контролем сумарного тиску в реакторі; метанол вводять з постійною швидкістю з одержанням бажаного виходу оцтової кислоти при постійній температурі

реактора.

Цей спосіб моніторингу працює, якщо каталізатор є достатньо активним.

У іншому випадку метанол, що не перетворився на оцтову кислоту, етерифікують до метилацетату. Збільшення концентрації метилацетату в реакторі є причиною низької продуктивності в зоні очищення, зокрема, у верхній частині першої очисної колони, де збільшення концентрації метилацетату спочатку погіршує, а потім інгібує розділення конденсованої рідини на дві різні рідкі фази (легку водну фазу, частина якої служить для зрощення колони і частину якої повертають у реактор, і важку органічну фазу, що її всю повертають у реактор для карбонілювання).

Рівень продуктивності в цьому випадку доводиться знижувати, для того щоб відкоригувати ситуацію, після чого додають більше каталізатора або збільшують температуру реактора, для того щоб дати можливість працювати при більш високому рівні продуктивності процесу.

Було виявлено, що реакцією краще управляти шляхом моніторингу побічної реакції конверсії водного газу, яка дає водень і діоксид вуглецю.

Безперервний або послідовний аналіз заводських очищених газів у сполученні з вимірюванням сумарної швидкості потоку заводських газів, що видаляються, дає можливість визначати швидкості потоку водню і діоксиду вуглецю, одержаних у побічних реакціях у реакторі для карбонілювання.

Співвідношення цих часткових швидкостей потоку та сумарної швидкості потоку монооксиду вуглецю, що надходить у реактор, забезпечує підхід до селективностей.

Тут можна відзначити, що частина водню, одержаного в реакції конверсії водного газу (WGSR), витрачається в реакції з одержанням пропіонової кислоти як побічного продукту, так що селективність до водню і селективність до CO_2 вже не є еквівалентними.

Селективність до CO_2 більш показова для реакції конверсії водного газу, але з певних причин, з практичних міркувань, пов'язаних з газовим аналізом, для керування промисловою установкою може бути використана селективність до водню.

Таким чином, у першому варіанті винаходу реакцію контролюють значною мірою за зміною швидкості потоку метанолу або застосовуваної і здатної карбонілюватися похідної метанолу на вході в реактор і за температурою реактора з одержанням селективності до CO_2 або водню, меншої за або рівної 0,01, і/або концентрації метилацетату в реакторі, меншої за 5мас.%, краще меншої за 2мас.%, що забезпечує гарну декантацію у верхній частині першої очисної колони.

Тести, виконані автором даного винаходу, ясно показали, що шляхом впливу через автоматичний регулятор на температуру реактора і швидкість подачі CO , можна обмежити втрати CO при зміні швидкості подачі монооксиду вуглецю в реактор, обмежуючи задане значення селективності до CO_2 або H_2 величиною, меншою за або рівною 0,01, і/або підтримуючи концентрацію метилацетату на значенні, меншому за 5мас.%, краще меншому за 2мас.% у реакційному середовищі.

В такий спосіб у цьому першому варіанті, де

концентрація води в реакційному середовищі більша за або дорівнює 14мас.%, керування здійснюється із залученням селективності до CO_2 або H_2 і швидкості потоку споживаного CO , і регулятор діє як на температуру реактора, так і на швидкість потоку метанолу (або здатної карбонілюватися похідної метанолу), що надходить у реактор.

Використання пристрою керування в цьому першому варіанті винаходу дало можливість підтримувати селективність до CO_2 (або водню) у вузьких межах зміни шляхом впливу на температуру реактора і на швидкість подачі метанолу (або здатної карбонілюватися похідної метанолу) в реактор, а також дозволяє оптимізувати споживання монооксиду вуглецю навіть за наявності відносно великих коливань у швидкості подачі монооксиду вуглецю в реактор.

В другому варіанті винахід пристосований також до так званих способів з "низьким умістом води" для промислового виробництва оцтової кислоти і/або метилацетату в рідкій фазі за наявності гомогенного каталізатора, тобто до тих випадків, коли концентрація води в реакційному середовищі становить менше за 14мас.%.

Добре відомо, що на противагу стандартним способам, де концентрація води більша за або дорівнює 14мас.% реакційного середовища, концентрація води в способах з "низьким умістом води" представляє собою жорсткий параметр кінетики реакції одержання оцтової кислоти, тоді як реакція карбонілювання є відносно інтенсивною за селективністю до CO_2 ; з цієї причини фахівці в даній галузі легко зрозуміють, що в цьому випадку, на відміну від попереднього випадку, саме концентрація води в реакційному середовищі, а не селективність до CO_2 , буде вибрана як параметр, використовуваний як оптимізована перемінна регулятора.

Тому концентрація води, яка буде зафіксована на заздалегідь визначеному рівні, і швидкість потоку монооксиду вуглецю, що надходить у реактор, будуть переважно вибрані як оптимізовані перемінні регулятора для способів промислового виробництва з "низьким умістом води".

Стало очевидним, що в цьому випадку також можна було діяти через заздалегідь запрограмований регулятор, зокрема через багатомірний прогностичний регулятор на температуру реактора і швидкість потоку метанолу, що надходить у реактор, для того щоб підтримувати концентрацію води на вищезгаданому заздалегідь визначеному рівні й оптимізувати споживання монооксиду вуглецю, коли його подача схильна до коливань.

У одному кращому варіанті, застосованому для обох описаних вище реалізацій винаходу, очевидно, особливо корисно також підпорядковувати швидкість потоку рідини, що проходить з реакційної зони I у флеш-зону II, і швидкості потоків рециркуляційної рідини, що проходять із зон II і III у реактор, керуванню рівнем рідини в реакторі, так щоб рівень залишався фіксованим на заздалегідь визначеному значенні.

Це заздалегідь визначене значення (рівень) переважно фіксують на величині між 50 і 100% абсолютної сумарної шкали рівнів у реакторі.

У такий спосіб регулятор, застосовуваний за

даним винаходом, може бути також використаний для регуляції рівня рідини в реакторі шляхом додавання в регулятор, як перемінної дії, швидкості потоку рідини з реактора у флеш-зону і швидкостей різноманітних рециркуляційних потоків у реактор, зокрема, швидкостей потоків рідини і потоків, що надходять із зон II і III.

В іншому особливо бажаному варіанті винаходу пристрій сервокерування, застосовуваний за даним винаходом, зокрема багатомірний прогноуючий регулятор, може бути використаний для моніторингу і регуляції вмісту води в реакційному середовищі.

Зокрема, він може використовуватися для моніторингу і регуляції устаткування, щоб уникнути накопичення води в реакційному середовищі, зокрема, у випадку перехідної колони - для видалення води з процесу одержання оцтової кислоти.

З метою моніторингу вмісту води в реакційному середовищі вищезгаданий пристрій може бути використаний також для моніторингу і регуляції зазначеної швидкості потоку або швидкостей потоків метилацетату, диметилового ефіру або оцтового ангідриду, що вводяться для заміни частини витраченого метанолу, з метою коригування вмісту води в реакторі.

В іншому особливо бажаному варіанті винаходу, для того щоб звільнити очисний агрегат, можна додати теплообмінники для поглинання частини тепла від реакції одержання оцтової кислоти. В цьому випадку моніторинг температури реактора заснований на моніторингу теплоти, яка обмінюється таким шляхом, і можна було продемонструвати, що система за даним винаходом справді дає можливість ефективно використовувати весь доступний монооксид вуглецю з гарним контролем складу в реакторі (метилацетату).

В іншому варіанті винаходу частина тепла від реакції одержання оцтової кислоти може бути видалена або регенована.

Це видалення або регенерація можуть здійснюватися або на виході з реактора через теплообмінник, розташований у контурі для рециркуляції реакційної рідини в зазначений реактор, або на вході в реактор на рециркуляційних потоках, що надходять у згаданий реактор.

В іншому варіанті коливання або зміни у швидкості подачі монооксиду вуглецю можуть бути демпфовані через буферний резервуар, розташований на схемі до згаданого реактора.

В цьому варіанті задане значення швидкості потоку монооксиду вуглецю роблять залежним від тиску всередині зазначеного буферного резервуара.

В іншому варіанті винаходу коливання у швидкості потоку монооксиду вуглецю, що надходить у реактор, можуть бути демпфовані шляхом викиду щонайменше частини надлишку в атмосферу.

Цей викид може здійснюватися, зокрема, звичайним способом або через розтруб витяжної труби, або через систему регенерації тепла.

Зрештою, стало очевидним, що особливо бажаним є з'єднання пристрою керування, застосовуваного за даним винаходом, з аналізатором, що працює у ближній інфрачервоній області, для вимірювання концентрації води і метилацетату в

реакційному середовищі.

Той самий тип з'єднання може бути виконаний також для вимірювання концентрації води і метилацетату і/або метилйодиду в реакційному середовищі, коли метилйодид використовують як співкаталізатор відповідно до кращої реалізації способу за даним винаходом.

Було виявлено, що це з'єднання аналізатора процесу, що відбувається у реальному масштабі часу, на основі аналізу в ближній інфрачервоній області переважно застосовують у способах з "низьким умістом води", де важливо контролювати не тільки концентрацію метилацетату, але також і вміст води, що прямо впливає на кінетику реакції одержання оцтової кислоти і/або метилацетату.

Загалом, удосконалення за даним винаходом пристосоване для будь-яких безперервних способів промислового виробництва оцтової кислоти і/або метилацетату в рідкій фазі за наявності гомогенної каталітичної системи.

Воно переважно застосовується до промислових способів виробництва, в яких каталітична система містить принаймні один метал групи VIII, зокрема родій, іридій або платину.

Особливо бажано застосовувати його також до способів карбонілювання, в яких каталітична система містить також принаймні один співкаталізатор, зокрема метилйодид.

Винахід стане зрозумілішим з наступних прикладів, описаних з посиланням на представлені фігури, де:

Фігура 1 представляє схему установи для промислового виробництва оцтової кислоти шляхом карбонілювання відповідно до відомого рівня техніки. Ця фігура подана з посиланням на приклад 1.

Фігура 2 представляє схему удосконаленої установки за даним винаходом. Ця фігура подана з посиланням на приклад 2.

Приклади здійснення винаходу

Приклад 1 (порівняльний)

У цьому Прикладі оцтову кислоту одержують шляхом карбонілювання метанолу монооксидом вуглецю в рідкій фазі за наявності гомогенної каталітичної системи в установці, схематично зображеної на Фігурі 1.

Реакцію карбонілювання здійснюють при температурі 185°C при абсолютному сумарному тиску 29бар (29·10⁵Па).

Концентрацію води підтримують при значенні 14мас.% реакційного середовища.

Концентрації, виражені у відсотках по масі від загальної маси реакційного середовища, такі:

Вода:	14%
Метилйодид:	10%
Метилацетат:	1,75%
Оцтова кислота і каталізатори:	до 100%
Вихід оцтової кислоти складає	54,1т/год.

Установка включає реакційну зону I, що має по суті реактор 1, флеш-зону II, що включає по суті флеш-пристрій 2, і зону очищення III, що включає три перехідні колони 3, 4 і 5 у випадку, зображеному на цій фігурі.

Монооксид вуглецю подають після очищення у криогенній розділювальній системі (не показано на фігурі), що включає промивання рідким метаном.

Його чистота варіюється від 98 до 99% (ці відсотки виражені як відношення об'єм/об'єм) і залежить від ефективності очисного устаткування.

Монооксид вуглецю потім вводять у нижню частину реактора 1 через трубопровід 7, постачений витратоміром 9 і впускним клапаном 11. Буферний резервуар 12 для монооксиду вуглецю, розташований до впускного клапана 11, уможливорює демпфування будь-яких змін у швидкості подачі CO у реактор 1.

Метанол також вводять у нижню частину реактора 1 через трубопровід 6, постачений витратоміром 8 і впускним клапаном 10.

Пристрої для введення інших компонентів реакційного середовища, як-от вода, каталітична система і, зокрема, будь-які розчинники, не показані на схемі Фігури 1.

Автоматичний регулятор тиску 13, з'єднаний із впускним клапаном 11 для монооксиду вуглецю, дає можливість здійснювати моніторинг сумарного тиску в реакторі 1.

Температура в реакторі 1 вимірюється за допомогою термометричного пристрою 14 і може змінюватися завдяки циркуляції фракції реакційної рідини в охолоджувальному контурі, що проходить через теплообмінник 15, який постачається охолоджувальною рідиною через клапан 30.

Потік реакційного матеріалу, у такий спосіб видалений з реактора і потім охолоджений і повернутий, дає можливість видаляти близько 20% тепла з реакції утворення оцтової кислоти.

Гази, що видаляються, залишають верхню частину реактора 1 через трубопровід 16.

Швидкість потоку газу, очищеного у верхній частині реактора 1, регулюють таким чином, щоб підтримувати парціальний тиск монооксиду вуглецю 10бар ($10 \cdot 10^5$ Па) у газоподібних продуктах, що накопичуються у верхній частині реактора.

Гази, що видаляються, потім вводять у газорідинний сепаратор 17, який повертає частину рідини у реактор 1 і спрямовує газоподібну частину в промивну колону 19, у якій газ промивають оцтовою кислотою або метанолом перед його пропусканням через розтруб витяжної труби 18 і викидом у атмосферу.

В установці, зображеній на Фігурі 1, було передбачено також вмикання у схему видалення газів, до їхнього викиду в атмосферу, витратоміра 20, аналізатора 21 для аналізу газів, що видаляються, й обчислювального модуля 21', з'єданого з витратоміром 20, аналізатором 21 і витратоміром 9. Аналізатор 21 може бути будь-яким пристроєм для безперервного або послідовного вимірювання вмісту очищених газів, зокрема вмісту водню і/або CO₂.

Цей аналіз у поєднанні з вимірюванням сумарної швидкості потоку заводських газів, що видаляються, дає можливість визначати швидкості потоку водню і діоксиду вуглецю, отриманих у результаті побічних реакцій у реакторі для карбонілювання 1.

Вирахування в модулі 21' співвідношення цих часткових швидкостей потоку та сумарної швидкості потоку монооксиду вуглецю, що надходить у реактор 1, у такий спосіб забезпечує перехід до селективностей.

За допомогою відповідних аналізів можна також контролювати вміст різних елементів у реакційному середовищі, зокрема, вміст води й вміст метилацетату.

Було передбачено також моніторинг рівня рідини в реакторі. Цей моніторинг може бути здійснений будь-якими способами, звичайно застосовуваними для моніторингу рівня рідини в реакторі, зокрема, через вимірювання перепаду тиску у відповідній гілці системи в реакторі, позначеній позицією 37.

Фракцію рідини, що утворює реакційне середовище, переносять безперервно з реактора 1 через трубопровід 31 у флеш-пристрій 2, в якому тиск підтримується при значенні, нижчому за значення, що переважає в реакторі 1, для того щоб одержати часткове випарювання реакційної рідини. Швидкість потоку F6 рідини, введеної у флеш-пристрій 2, вимірюють за допомогою витратоміра 22a. Фракцію, не випаровану у флеш-зоні 2, повертають у реактор 1 через трубопровід 32, та її швидкість потоку F2 може бути вирахована за допомогою витратоміра 22b.

Фракцію, випаровану у флеш-пристрої 2, спрямовують у першу перегінну колону 3 через трубопровід 33. Рідину, зібрану на дні цієї першої перегінної колони, повертають у флеш-зону, як показано шляхом посилення на трубопровід 34, тоді як частину водної рідкої фази у верхній частині цієї першої колони 3 повертають у реактор 1 через сепаратор 23 для декантації двох рідких фаз, отриманих зі швидкістю потоку F3, яка може бути виміряна за допомогою витратоміра 24, при цьому залишок водної фракції повертають у верхню частину першої перегінної колони 3. Крім того, органічну рідку фазу, що надходить з верхньої частини перегінної колони 3, також повертають у реактор із швидкістю потоку F4, яка може бути виміряна за допомогою витратоміра 25. Фракцію, що залишається в колоні 3 після видалення фракцій, що утворюються у верхній і нижній частинах, спрямовують у другу перегінну колону 4 через трубопровід 35.

Частину рідини, конденсованої у верхній частині цієї другої колони 4, повертають зі швидкістю потоку F5 у реактор 1 через трубопровід 36. Швидкість потоку цієї фракції може бути виміряна за допомогою витратоміра 26. Залишок верхньої фракції повертається в колону 4, як показано за допомогою посилення 39.

Фракція, зібрана на дні цієї другої перегінної колони 4, що складається по суті з оцтової кислоти, піддається кінцевій стадії очищення в колоні 5, де оцтову кислоту відокремлюють від важких побічних продуктів, зібраних на дні колони, і від легших продуктів, зібраних у верхній частині колони і частково повернутих у колону 4.

У процесі роботи установки трапляється, що швидкість подачі монооксиду вуглецю піддається коливанням, пов'язаним з виробничим устаткуванням, що передує реактору в технологічній схемі.

Швидкість потоку метанолу регулюють відносно швидкості потоку монооксиду вуглецю кваліфікованим методом.

Селективність до CO₂ встановлюють на значенні, меншому або рівному 0,01:

- шляхом коригування концентрації родію в реакційному середовищі для одержання достатньої каталітичної активності;

- шляхом коригування концентрації йодовмісного промотору, тобто метилйодиду, що має вигляд буферної суміші метилйодиду в декантаторі у верхній частині першої перегінної колони; збільшення або зменшення цього буферного об'єму дає можливість регулювати вміст метилйодиду в реакторі й, отже, активність каталітичної системи;

- шляхом коригування температури реактора в межах заданого діапазону: від 175°С до 190°С.

Для виходу з перехідних станів, що дають нерегульовані періоди роботи, потрібний постійний режим, який дасть можливість підтримувати концентрації різноманітних компонентів у реакторі на фіксованих рівнях і належним чином контролювати зворотні потоки, що надходять у реактор; для досягнення цього необхідно підтримувати температуру реактора, для того щоб максимізувати вихід оцтової кислоти відповідно до швидкості потоку монооксиду вуглецю, що надходить у реактор.

Швидкість потоку реакційної рідини, що надходить у флеш-зону, потім коректують таким чином, щоб видалити залишкову теплоту реакції.

При керуванні установками стандартним способом втрата монооксиду вуглецю або надлишок CO складали 2 об'ємних % на основі сумарної подачі CO.

У цьому випадку було необхідним зменшити значні коливання у швидкості потоку монооксиду вуглецю шляхом поетапної зміни температури реактора, для того щоб максимізувати вихід оцтової кислоти й уникнути перехідних режимів при виникненні неконтрольованих періодів роботи.

Мета в цьому випадку полягала в тому, щоб фіксувати значення температури, для того щоб стабілізувати концентрації різноманітних компонентів у реакторі, а також потоки.

Приклад 2

Цей приклад ілюструє, як здійснюють спосіб за даним винаходом для промислового виробництва оцтової кислоти за робочих умов, описаних у прикладі 1, для установки, зображеної схематично на Фігурі 2.

Установка, зображена на Фігурі 2, представляє вдосконалення до установки, зображеної на Фігурі 1, що включає в себе багатомірний прогнозуєчий регулятор 40.

Регулятор 40 запрограмований для регулювання оптимізованих перемінних близько до заданих значень шляхом впливу на перемінні дії.

В цьому прикладі 2 оптимізовані перемінні, що їх необхідно регулювати, являють собою швидкість подачі монооксиду вуглецю в реактор 1 і селективність до CO₂. Перемінні дії являють собою температуру всередині реактора 1 і швидкість подачі метанолу в цей реактор.

Докладніше, регулятор 40 приймає:

- на першому вході E1 швидкість подачі монооксиду вуглецю в реактор 1, виміряну за допомогою витратоміра 9;

- на другому вході E2 селективність реакції до CO₂, розраховану за допомогою обчислювального модуля 21' як функцію аналізу результатів, отриманих за допомогою аналізатора 21, значення

швидкості потоку, виміряної за допомогою витратоміра 20, і вимірювання швидкості подачі CO, одержаного за допомогою витратоміра 9;

- на третьому вході E3 швидкість подачі метанолу в реактор 1, виміряну за допомогою витратоміра 8; та

- на четвертому вході E4 температуру всередині реактора 1, виміряну за допомогою термометричного пристрою 14.

Для ясності, з'єднання між регулятором та іншими частинами установки не були показані на Фігурі 2.

У зазначений момент регулятор 40 порівнює оптимізовані перемінні (швидкість потоку CO і селективність) із заданими значеннями CCO і CS і видає керуючі сигнали S1 і S2, які залежать від:

- різниці між кожною з оптимізованих перемінних та її заданим значенням,

- вимірювання швидкості подачі метанолу та вимірювання температури в реакторі 1, та

- співвідношень перемінних дії та оптимізованих перемінних, записаних у регуляторі при його програмуванні.

Керуючі сигнали S1 і S2 використовують, відповідно, для керування клапаном 10, що контролює швидкість подачі метанолу в реактор 1, і клапаном 30, що контролює швидкість подачі охолоджувальної рідини в теплообмінник 15, для того щоб швидкість потоку монооксиду вуглецю і селективність до CO₂ досягли їхніх заданих значень для CCO і CS.

Задане значення CS, близько до якого регулюють селективність до CO₂, являє собою заздалегідь визначене фіксоване значення, яке переважно вибирають меншим за або рівним 0,01.

Задане значення CCO, близько до якого регулюють швидкість потоку монооксиду вуглецю, змінюється як функція доступності монооксиду вуглецю в резервуарі 12 для CO, розташованому до реактора 1. Цю доступність визначають безпосередньо шляхом вимірювання тиску P в буферному резервуарі 12 за допомогою автоматичного регулятора тиску 38. Задане значення CCO розраховують за допомогою регулятора 40 як функцію тиску P, що його докладають до п'ятого входу E5 регулятора, як показано на Фігурі 2.

Підпорядкування температури в реакторі 1 і швидкості подачі метанолу в зазначений реактор керуванню швидкістю потоку монооксиду вуглецю й селективністю до CO₂, як описано вище, дає можливість, з одного боку, зменшити надлишок потоку монооксиду вуглецю, тобто втрати монооксиду вуглецю, а з іншого боку, підтримувати селективність до CO₂ на заздалегідь визначеному рівні й, отже, підтримувати концентрацію метилацетату.

Далі йде опис того, як спосіб за даним винаходом здійснюють у цьому прикладі 2.

Регулятор, вибраний як регулятор 40, являє собою пристрій IDCOM-HIECON, який, у свою чергу, являє собою модель багатомірного "чорного ящика" на основі прогнозуєчого регулятора, сконструйованого для безперервних способів промислового виробництва. Він був розроблений фірмою ADERSA.

Цей регулятор був заздалегідь запрограмований у такий спосіб:

Математична модель керування була вибрана для регулятора з бібліотеки відомих заданих моделей за допомогою попередньо записаних тестів.

Експериментальну фазу потім здійснювали у формі стрес-тестів (дослідів у важкому режимі), без контролю, які здійснювалися протягом двох днів.

Сигнали, зібрані на промисловій площадці за 5-секундні інтервали, пропускали через фільтр, що приглушує перешкоди, і зберігали із 2-хвилинними інтервалами для ідентифікації.

Спочатку, після двогодинного періоду стабілізації, температуру реактора 1 швидко збільшували шляхом приросту на $0,5^{\circ}\text{C}$; після того, як збільшення температури завершувалося, стежили за зміною параметрів до досягнення ними плато, виходячи із селективності до CO_2 і швидкості подачі монооксиду вуглецю (тривалість близько двох годин).

Температуру реактора знову швидко збільшували на $0,5^{\circ}\text{C}$ і стежили за параметрами (тривалість близько двох годин).

Температуру потім двічі знижували на $0,5^{\circ}\text{C}$, при цьому контролюючи параметри.

Ті самі операції виконували наступного дня шляхом зниження швидкості потоку метанолу двічі на $0,5\text{т/год}$, і потім збільшення її двічі шляхом збільшення на $0,5\text{т/год}$.

Контроль параметрів, що полягає, зокрема, в безперервному вимірюванні значень перемінних дії (температури в реакторі 1 і швидкості потоку метанолу, що надходить у зазначений реактор) і значень оптимізованих перемінних (швидкості потоку монооксиду вуглецю, що надходить у реактор 1, і селективності до CO_2).

Остаточне настроювання регулятора було здійснено за допомогою програмного забезпечення HIECON, що постачається виробником. Виміряні значення різних параметрів вводили в регулятор. Програмне забезпечення потім оптимізувало параметри посилення і затримки, які мають прикладатися до вихідних сигналів S1 і S2.

Після того, як регулятор запрограмований, його вводили в дію, як показано на Фігурі 2, і спосіб здійснювали за тих самих умов, як описано вище в прикладі 1.

Несподівано було виявлено, що за допомогою регулятора 40 можна було підтримувати зміни в селективності до CO_2 у вузьких межах при одночасній зміні температури реакційної суміші і швидкості подачі метанолу, що дозволяло максимізувати споживання монооксиду вуглецю й, отже, максимізувати вихід оцтової кислоти.

Установлення регулятора дало можливість зменшити надлишкову швидкість потоку CO до $0,5\%$ на основі сумарної швидкості потоку CO , що надходить, тим самим досягаючи $1,5\%$ -ого збільшення виходу оцтової кислоти протягом показового 5-місячного періоду. Це відповідає збільшенню виходу оцтової кислоти більше, ніж на 2000 тонн протягом цього 5-місячного періоду на підставі такої самої кількості доступного CO .

Застосування за даним винаходом багатомірного прогнозуючого регулятора в способі, який, наприклад, описаний у порівняльному прикладі 1, дало можливість зняти різноманітні обмеження,

деякі з яких суперечать одне одному. Фактично, в рівні техніки потрібно було підтримувати температуру, за можливістю більш постійну, для того щоб стабілізувати інші параметри, але швидкість потоку монооксиду вуглецю виявляла коливання.

Приклад 3

Цей Приклад знову відноситься до промислової установки й пристрою, використаних у прикладі 2.

Проте в цьому прикладі регулятор 40 використовують також для того, щоб підпорядкувати рециркуляційні потоки, що надходять у реактор 1, керуванню рівнем рідини у згаданому реакторі.

Основні потоки рідини, що надходять у реактор 1, являють собою:

- швидкість подачі метанолу - F1;
- рециркуляційні потоки, що надходять із зон II і III у реактор, а саме:

- рециркуляція рідкої фракції з флеш-зони разом із рідиною з нижньої частини першої перегінної колони - F2,
- рециркуляція частини водної рідкої фази з верхньої частини першої перегінної колони - F3,
- рециркуляція органічної рідкої фази з верхньої частини першої перегінної колони - F4,
- рециркуляція частини конденсованої рідини з верхньої частини другої перегінної колони - F5.

Основний потік рідини, що залишає реактор, складається з рідини, що надходить із реактора у флеш-зону - F6.

Після того, як потік F1 уже включений у багатомірний регулятор, достатньо додати потоки F2, F3, F4, F5 і F6, виміряні, відповідно, за допомогою витратомірів 22b, 24, 25, 26 і 22a, у вигляді перемінних дії, і рівень рідини в реакторі 1, виміряний за допомогою пристрою 37, як оптимізовану перемінну.

Отже, існують три оптимізовані перемінні:

- кількість споживаного CO ,
 - селективність до CO_2 ,
 - рівень рідини в реакторі,
- і сім перемінних дії:
- швидкість потоку метанолу F1,
 - температура реактора,
 - швидкості потоку F2, F3, F4, F5 і F6.

Проте нова ціль керування, що має відношення до рівня рідини в реакторі, може бути досягнута різноманітними способами.

Наприклад, можна вибрати тільки швидкості потоків F2, F4, F5 і F6 як перемінні дії (тобто пропустити швидкість потоку F3) і компенсувати це пропускання шляхом додавання в регулятор постійного співвідношення швидкостей потоків F4 і F3 в якості додаткової цілі.

Щоб додатково зменшити кількість перемінних дії, можна також задавати додаткові задачі, як-от підтримання значення співвідношення F2/F1 і підтримання значення співвідношення F6/F1.

Таким чином можна автоматично управляти основними рідкими потоками установки з виробництва оцтової кислоти при одночасній максимізації виходу оцтової кислоти шляхом кращого застосування доступного монооксиду вуглецю.

В цьому прикладі 3 тести перед програмуванням регулятора 40 були виконані в такий спосіб:

Співвідношення різноманітних перемінних мо-

делювали, викликаючи деякі зміни в перемінній дії для кожної пари - перемінна дії/оптимізована перемінна (в цьому разі пари утворюються між різноманітними швидкостями потоку, з одного боку, і рівнем рідини в реакторі, з іншого боку) і спостерігаючи вплив цих змін на оптимізовану перемінну при сталості інших параметрів.

Сигнали, зібрані на промисловій площадці за 5-секундні інтервали, фільтрували через фільтр, що приглушує перешкоди, і зберігали з 2-хвилинними інтервалами для ідентифікації.

Тести здійснювали протягом декількох днів з різницевою модифікацією тільки однієї зі швидкостей потоку (F1, F2, F4, F5, F6) протягом одноденного періоду, при цьому швидкість потоку F3 мала задане значення, прямо пропорційне швидкості подачі метанолу.

Збільшення кожного параметра вибирали відповідно до амплітуди відхилень, отриманих на заводі в цілому.

Таким чином, позитивні або негативні збільшення складали 0,2т/год. для F1, 2т/год. для F2, 0,5т/год. для F4 і F5, і 15т/год. для F6.

Програмне забезпечення HIECON потім використовували для оптимізації параметрів керування.

Регулятор потім вводили в дію в установці.

Приклад 4

В цьому прикладі карбонілювання метанолу здійснюють у експериментальній установці безперервної дії, що відтворює принципи роботи промислового заводу з реактором з механічним перемішуванням, флеш-зоною і рециркуляцією рідкої фази (що містить різновиди каталізатора) із флеш-сепаратора в реактор.

Перегонку не виконують, і рециркуляцію потоків у зоні III стимулюють шляхом введення так званих свіжих реагентів (суміші оцтової кислоти, метилацетату, метилйодиду і води); каталізатор, утрачений при випарюванні фази у флеш-сепараторі, періодично повторно вводять у реактор у вигляді свіжого каталізатора.

Склад реакційного середовища такий:

Вода:	7%
Метилйодид:	10%
Метилацетат:	15%
Іридій:	1250ppm (мільйонних часток)
Оцтова кислота:	до 100%

Сумарний тиск становить 35бар ($35 \cdot 10^5$ Па), і температура реактора 190°C.

Парціальний тиск монооксиду вуглецю становить 23бар ($23 \cdot 10^5$ Па).

Швидкість карбонілювання становить 15,5моль/(год.л) за цих умов.

Селективність до CO_2 становить 0,01, селективність до водню має значення 0,001, і селективність до метану має значення 0,009.

У цьому Прикладі експериментальної установки основна ціль полягає не в оптимізації використання доступного монооксиду вуглецю, а в досягненні реакційних умов і робочих умов, які є достатньо стабільними для обґрунтування й оптимізації активності каталітичного середовища.

Параметри контролювання родієвого каталізу, описаного у прикладі 2, не можуть більше використовуватися: насправді зміна в селективності до

CO_2 є відносно невеличкою протягом вибраного періоду роботи, так що це не дозволяє здійснювати моніторинг вмісту метилацетату.

Крім того, хімія процесу при низьких вмістах води дуже чутлива до вмісту води, який є жорстким параметром кінетики реакції одержання оцтової кислоти.

Тому необхідно постійно стежити за вмістом води у реакторі:

- або шляхом прямого вимірювання,
- або шляхом розрахунку, що враховує концентрації води в різноманітних рециркуляційних потоках, що надходять у реактор.

Спектрометричний аналізатор у ближній інфрачервоній області визначав *in situ* вміст води, метилацетату, метилйодиду й оцтової кислоти в реакційному середовищі з часом відповіді меншим за одну хвилину.

Використаний аналізатор являв собою модель 5000 з NIRSystems.

Його було відкалібровано в такий спосіб:

- аналізатор переключають на автоматичний збір (зберігання спектрів),
- зразок беруть у кожній різноманітній робочій точці,
- зразок визначають за допомогою газової хроматографії (стандартний спосіб),
- вибирають спектр, що відповідає часу добору зразків,
- база даних спектральних концентрацій збагачується.

Потім створюють математичну модель, для того щоб у реальному масштабі часу визначити концентрації трьох основних вибраних компонентів: води, метилацетату і метилйодиду.

Після цього визначають недоліки передбачення:

вода:	0,2% для діапазону від 0,5% до 21%,
метилацетат:	0,4% для діапазону від 0,5% до 24%,
метилйодид:	0,7% для діапазону від 2% до 14%.

Регулятор використовують у цьому прикладі 4 для регуляції двох оптимізованих перемінних:

- швидкості потоку споживаного CO_2 ,
- вмісту води в реакційному середовищі шляхом впливу на дві перемінні дії:
- температуру реакційного середовища в реакторі для карбонілювання,
- швидкість потоку споживаного метанолу.

Установлення цього регулятора дало можливість автоматично підтримувати наступні параметри на заздалегідь визначених рівнях без людського втручання:

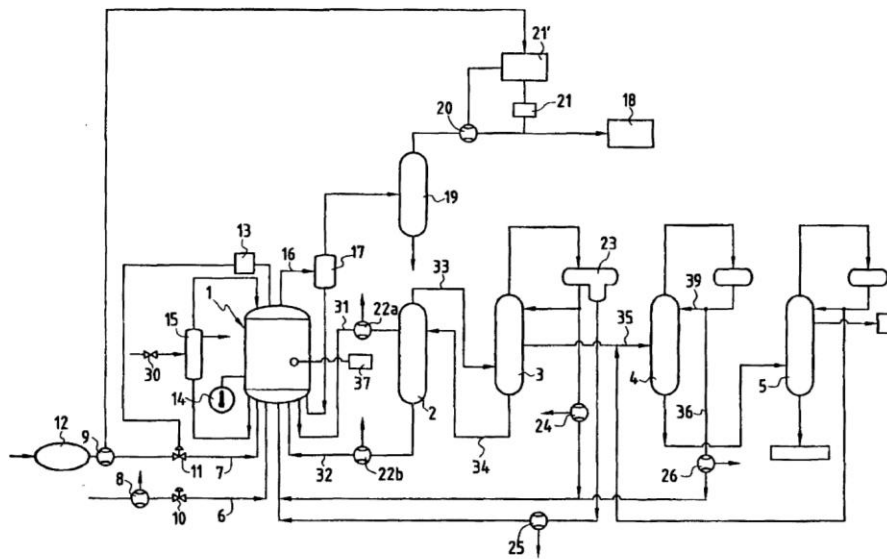
- швидкість потоку споживаного CO_2 ,
 - вмісту води
- під час повних циклів протягом декількох годин для тестування каталітичних систем із низьким вмістом води.

Тести, що передують програмуванню регулятора, полягали в основному у створенні декількох змін перемінної дії для кожної пари перемінна дії/оптимізована перемінна і спостереження за впливом цих змін на оптимізовану перемінну, при збереженні інших параметрів постійними.

Сигнали, зібрані на промисловій площадці у 5-секундні інтервали, фільтрували через фільтр, що знімає перешкоди, і зберігали з 2-хвилинними ін-

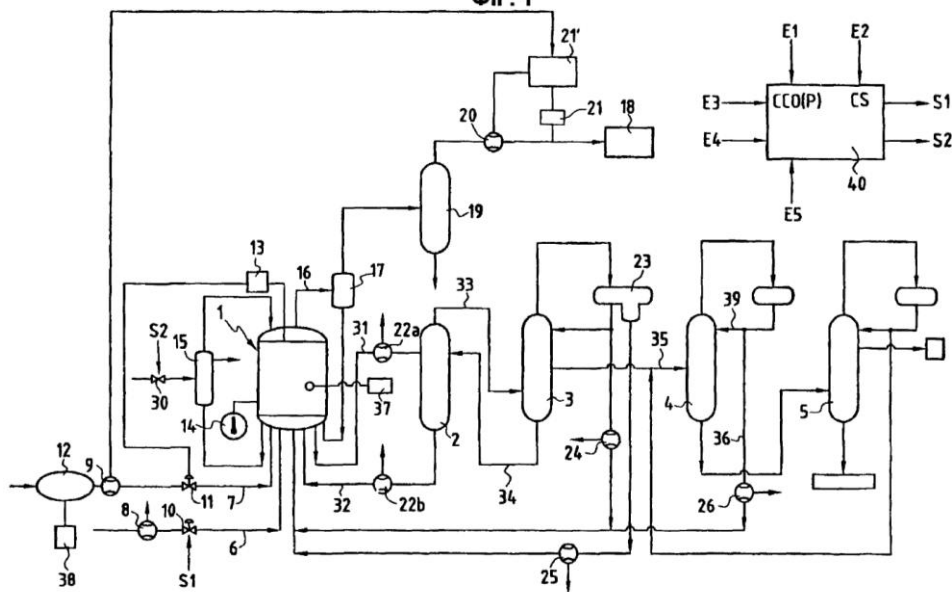
тервалами для ідентифікації.

Програмне забезпечення HIECON потім дозволяло адаптувати регулятор до проблеми.



РІВЕНЬ ТЕХНІКИ

ФІГ. 1



ФІГ. 2