ПМТФ, № 6, 1974

УДК 541.124 : 532.5

О РЕЖИМАХ РАБОТЫ РЕАКТОРА ИДЕАЛЬНОГО ВЫТЕСНЕНИЯ С РЕЦИКЛОМ

В. С. Берман, Ю. П. Гупало, А. В. Мартиросов, Ю. С. Рязанцев

(Москва)

Рассматривается влияние рециркуляции на режимы работы химического реактора, модель которого была предложена ранее в [1]. Целесообразность и эффективность осуществления многих химических процессов в системах с рециркуляцией показаны в [2]. Исследовалась также устойчивость режимов работы для одной простой модели реактора с рециклом [3].

В работе [1] была предложена математическая модель химического реактора идеального вытеснения с интегральным учетом тепловыделения, в котором диффузионный перенос пренебрежимо мал по сравнению с конвективным переносом, а теплопроводность настолько велика, что температуру внутри реактора можно считать одинаковой. Был исследован вопрос о стационарных режимах и их устойчивости. Ниже этот вопрос рассматривается в случае, когда в таком реакторе часть прошедшего через него потока снова подается на вход реактора. Так же как в [1, 4], принимается во внимание зависимость вязкости смеси реагентов и продуктов реакции от температуры.

1. Уравнения. Граничное условие. Стационарные режимы. Уравнения массотеплопереноса в адиабатическом реакторе с интегральным учетом тепловыделения при наличии рецикла имеют вид

$$\rho\frac{\partial\xi}{\partial t}+m\frac{\partial\xi}{\partial x}-\rho f(T)(\xi_m-\xi)=0 \tag{1.1}$$

$$\rho\frac{dT}{dt}+\frac{c_1}{cl}m(1-r)(T-T_0)-\frac{h}{c}f(T)\left(\xi_m-\frac{1}{l}\int_0^l\xi dx\right)=0 \tag{1.2}$$

Здесь x, t — координата и время, l — длина реактора $(0\leqslant x\leqslant l)$, ξ — степень продвижения реакции, ξ_m — максимальное значение степени продвижения реакции, m — массовая скорость смеси в реакторе, h — плотность смеси, T — температура, $f(T)$ — зависимость скорости химической реакции от температуры, функция аррениусовского типа, h — теплота реакции, c_1 — теплоемкость смеси, c — суммарная теплоемкость смеси и катализатора, T_0 — температура исходной смеси, r — коэффициент рециркуляции.

Предполагая, что фильтрационное движение смеси сквозь слой катализатора подчиняется закону Дарси, массовую скорость течения можно выразить через перепад давления на выходе и входе реактора P

$$m=kP/\nu l \tag{1.3}$$

где $\nu=\nu(T)$ — кинематическая вязкость смеси, k — проницаемость.

Уравнение (1.1) дополним граничным условием, учитывающим наличие рецикла

$$\xi(0,\ t)=r\xi(l,\ t)+(1-r)\xi_0 \tag{1.4}$$

Анализ стационарных режимов сводится к определению функции $\xi^\circ(x)$ и значения T° из (1.2) при $\partial / \partial t = 0$; для $\xi^\circ(x)$ можно получить

$$(1.5)\qquad \xi^\circ(x) = \xi_m - \left[(\xi_m - \xi_0)(1 - r)\exp\left(-\frac{\rho f(T^\circ)}{m^\circ}x\right)\right] \times \left[1 - r\exp\left(-\frac{\rho f(T^\circ)\, l}{m^\circ}\right)\right]^{-1}$$

Трансцендентное уравнение для T° имеет вид

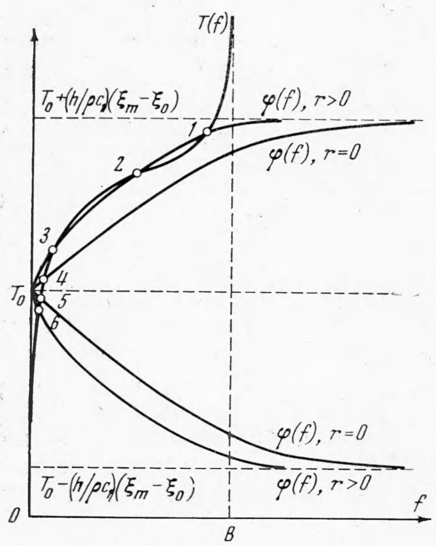
$$(1.6)\qquad T^\circ = T_0 + \frac{h}{\rho c_1}\left[(\xi_m - \xi_0)\left(1 - \exp\left(-\frac{\rho f(T^\circ)}{m^\circ}l\right)\right)\right] \times \left[1 - r\exp\left(-\frac{\rho l f(T^\circ)}{m^\circ}\right)\right]^{-1}$$

Число стационарных режимов работы реактора с рециклом равно числу решений уравнения (1.6).

Анализ уравнения (1.6) удобно провести графически, считая левую и правую части (1.6) функциями от f. На фиг. 1 показан ход зависимостей $T^\circ = T^\circ(f)$

$$(1.7)\qquad f(T^\circ) = B\exp(-E / RT^\circ)$$

Пересечения кривых определяют стационарные режимы. С увеличением коэффициента рециркуляции кривые, соответствующие правой части, будут располагаться выше (экзотермическая реакция) или ниже (эндотермическая реакция), по-прежнему проходя через точку $T = T_0$, $f = 0$ и сохраняя прежние асимптоты



Фиг. 1

$$\varphi = T_0 + \frac{h}{\rho c_1}(\xi_m - \xi_0)$$

$$\varphi = T_0 - \frac{h}{\rho c_1}(\xi_m - \xi_0)$$

Видно, что рост параметра r в случае экзотермической реакции может привести к изменению числа режимов (как к увеличению, так и к уменьшению), в то время как при эндотермической реакции всегда возможен только один режим.

Видно также, что возможны как устойчивые стационарные режимы (*1*), так и неустойчивые (*2*).

2. Устойчивость стационарных режимов. Введем безразмерные переменные

$$x' = x / l,\quad T' = T / T_0,\quad \nu' = \nu / \nu^\circ$$

$$m' = m / m_0,\quad P = P / P^\circ,\quad t' = t / (l\rho / m^\circ)$$

$$S = \frac{\rho f^\circ l}{m^\circ},\quad \Phi(T') = \frac{f(T)}{f^\circ},\quad \sigma = \frac{h}{c\rho}\,\frac{(\xi_m - \xi_0)}{T^\circ}$$

$$a = \frac{\xi_m - \xi}{\xi_m - \xi_0},\quad \gamma = T_0 / T^\circ$$

Тогда соотношения (1.1) — (1.6) (далее опускаем штрихи у вновь введенных величин) примут вид

$$\frac{\partial a}{\partial t} + m\frac{\partial a}{\partial x} + Sa\Phi(T) = 0 \tag{2.1}$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \lambda m(T-\gamma) - \sigma S\Phi(T)\int_0^1 a dx = 0 \tag{2.2}$$

$$M = P / \nu \tag{2.3}$$

$$a(0, t) = ra(1, t) + 1 - r \tag{2.4}$$

$$a^\circ(x) = \frac{(1-r)}{(1-re^{-S})} e^{-Sx} \tag{2.5}$$

$$\lambda(1-\gamma) = \frac{\sigma(1-r)}{(1-re^{-S})}(1-e^{-S}) \tag{2.6}$$

При анализе устойчивости применим метод малых возмущений. Представим $T(t)$, $a(x, t)$, $m(t)$, $P(t)$ в виде

$$\begin{gathered} K = K^\circ + \delta K \\ T = 1 + \delta T, \quad a = a^\circ + \delta a, \quad m = 1 + \delta m \\ P = 1 + \delta p \end{gathered} \tag{2.7}$$

После линеаризации вместо (2.1) — (2.4) получим

$$\frac{\partial(\delta a)}{\partial t} + \frac{\partial(\delta a)}{\partial x} + S\delta a + K_1 e^{-Sx}\delta T - K_1 e^{-Sx}\delta p = 0 \tag{2.8}$$

$$\frac{d}{dt}(\delta T) + K_3\delta T - K_4\int_0^1 \delta a\, dx + K_5\delta p = 0 \tag{2.9}$$

$$\delta a(0, t) = r\delta a(1, t) \tag{2.10}$$

$$\delta m = \left(\frac{\partial m}{\partial p}\right)^\circ \delta p + \left(\frac{\partial m}{\partial T}\right)^\circ \delta T = \delta p - \left(\frac{\partial \nu}{\partial T}\right)^\circ \delta T$$

$$K_1 = \frac{S(1-r)}{(1-re^{-S})}\left[\left(\frac{\partial\Phi}{\partial T}\right)^\circ + \left(\frac{\partial\nu}{\partial T}\right)^\circ\right]$$

$$K_2 = \frac{S(1-r)}{(1-re^{-S})}, \quad K_3 = \lambda - \frac{\sigma(1-r)}{(1-re^{-S})}\left[\left(\frac{\partial\Phi}{\partial T}\right)^\circ + \left(\frac{\partial\nu}{\partial T}\right)^\circ\right]$$

$$K_4 = \sigma S, \quad K_5 = \frac{\sigma(1-r)}{(1-re^{-S})}(1-e^{-S}), \quad \lambda = \frac{i_1}{i}(1-r)$$

считая $\lambda = \mathrm{const}$, $\gamma = \mathrm{const}$. Полагаем, что возмущения стационарного режима вызваны изменением перепада давления, степени продвижения реакции и температуры.

$$\delta p = \begin{cases} 0, & t < 0 \\ \exp(-\sigma_0 t)(t > 0), & \operatorname{Re}\sigma_0 > 0 \end{cases} \tag{2.11}$$

$$\delta a(x, 0) = \eta_1(x), \quad \delta T(0) = \eta_2$$

Здесь величины $\eta_1(x)$ и η_2 произвольны. Решение задачи (2.8) — (2.10) найдем методом преобразования Лапласа, введем для $\delta p(t)$, $\delta a(x, t)$ и $\delta T(t)$ изображения по формуле

$$\delta K^*(z, x) = \int_0^\infty \exp(-zt)\,\delta K\, dt$$

После применения преобразования Лапласа получим

$$(S+z)\,\delta a^* + \frac{d}{dx}(\delta a^*) + K_1 e^{-Sx}\delta T^* - \frac{K_2 e^{-Sx}}{\sigma_0 + z} - \eta(x) = 0 \tag{2.12}$$

$$\delta T^*(z + K_3) - K_4 \int_0^1 \delta a^* dx + \frac{K_5}{\sigma_0 + z} - \eta_2 = 0 \tag{2.13}$$

$$\delta a^*(0,\ z) = r\delta a^*(1,\ z) \tag{2.14}$$

Для решения (2.12) — (2.14) проинтегрируем сначала уравнение (2.12)

$$\delta a^* = ce^{-(S+z)x} + \frac{K_2 e^{-Sx}}{(\sigma_0 + z)\,z} - \frac{K_1}{z}\delta T^* e^{-Sx} + J(x)$$

$$c = c(z), \quad J(x) = e^{-(S+z)x}\int_0^x e^{(S+z)y}\eta_1(y)\,dy$$

где c находится из уравнения (2.14)

$$c = \frac{K_z}{(\sigma_0 + z)\,z}\,\frac{(re^{-S} - 1)}{(1 - re^{-(S+z)})} + \frac{K_1(1 - re^{-S})}{z\,(1 - re^{-(S+z)})}\,\delta T^* + \frac{J(1)}{[1 - re^{-(S+z)}]} \tag{2.15}$$

Вычислив $\int_0^1 \delta a^* dx$ и подставляя в (2.13), получаем

$$\delta T^* = \left[\eta_2 + K_4(N_1 + N_2) - \frac{K_5}{\sigma_0 + z}\right]\psi^{-1} \tag{2.16}$$

Здесь

$$N_1 = \frac{K_2}{z\,(\sigma_0 + z)}\left[\frac{(1 - e^{-S})}{S} + \frac{(re^{-S} - 1)}{(1 - re^{-(S+z)})}\,\frac{(1 - e^{-(S+z)})}{(z + S)}\right]$$

$$N_2 = \int_0^1 J(x)\,dx + \frac{J(1)\,[1 - e^{-(S+z)}]}{[1 - re^{-(S+z)}]\,(S + z)}$$

$$\psi = \frac{f_1}{z\,(z + S)\,(e^z - re^{-S})}$$

$$f_1 = e^z[z^3 + \omega_3 z^2 - \omega_1 z + \omega_2] - \omega_0[z^3 + \omega_3 z^2 - \omega_1] - \omega_2 \tag{2.17}$$

$$\omega_0 = re^{-S},\ \omega_1 = -S\lambda$$

$$\omega_2 = -\sigma S^2\frac{(1 - r)}{(1 - e^{-S}r)}\left[\left(\frac{\partial\Phi}{\partial T}\right)^\circ + \left(\frac{\partial\nu}{\partial T}\right)^\circ\right] \tag{2.18}$$

$$\omega_3 = S + \lambda - \frac{\sigma(1 - r)}{(1 - e^{-S}r)}\left[\left(\frac{\partial\Phi}{\partial T}\right)^\circ + \left(\frac{\partial\nu}{\partial T}\right)^\circ\right]$$

Здесь градус обозначает величины, относящиеся к стационарному состоянию. Переход от изображения по Лапласу (2.16) к оригиналу не составляет труда, так как все особенности функции (2.16) — полюсы; точка $z = 0$ не является полюсом (2.16), потому что числитель также имеет это значение в качестве однократного корня. Величины $J(x)$, $\int_0^1 J(x)\,dx$ имеют полюсы только в плоскости z с действительной частью $\operatorname{Re} z = -S$.

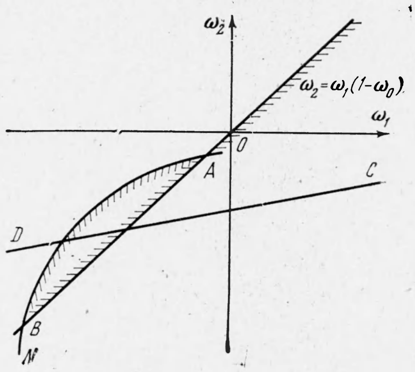
Это легко показать. Представим $\eta_1(x)$ в виде ряда Фурье, тогда

$$\eta_1(x) = \sum_{K=0}^{\infty} [a_K \sin(K\pi x) + b_K \cos(K\pi x)]$$

$$J(x) = e^{-(S+z)} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{e^{(S+z)x}}{(S+z)^2 + (K\cdot\pi)^2} \{[(z+S)\sin(K\pi x) -$$
$$- K\pi\cos(K\pi x)] - [(z+S)\cos(K\pi x) + K\pi\sin(K\pi x)]\}$$

следовательно, $z_K = -S \pm iK\pi$.

Поэтому источником неустойчивости (т. е. полюсов (2.16), лежащих правее прямой $\operatorname{Re} z = 0$) может быть только функция f_1. При исследовании положения корней этой функции будем использовать идеи метода D-разбиений, развитых Ю. Н. Неймарком [5, 6]. Так как ω_i зависят более чем от четырех параметров, можно рассматривать случаи, когда все ω_i (кроме, быть может, одного или двух) фиксированы, а остальные могут изменяться.



Фиг. 2

Пусть фиксированы ω_0 и ω_3, рассмотрим плоскость $\omega_1\omega_2$ в четырехмерном пространстве (ω_0, ω_1, ω_2, ω_3). Найдем кривую, на которой (2.17) имеет чисто мнимый корень $z = iy$. Она состоит из кривой в параметрическом задании

$$N: \begin{cases} \omega_1 = -y^2 + \dfrac{\omega_3 y \sin y\,(1-\omega_0)}{(1-\omega_0 y)(1+\omega_0)} \\ \omega_2 = \omega_3 \dfrac{(1 - 2\omega_0\cos y + \omega_0^2)}{(1-\cos y)(1+\omega_0)}\, y^2 \end{cases} \tag{2.19}$$

а также из прямой

$$\left.\begin{aligned} \omega_1 &= 2\frac{\omega_3(1-\omega_0)}{(1+\omega_0)} \\ \omega_2 &= 2\frac{\omega_3(1-\omega_0)^2}{(1+\omega_0)} \end{aligned}\right\} \quad \omega_2 = \omega_1(1-\omega_0) \tag{2.20}$$

которая получается для случая $y = 0$, так как при этом уравнения

$$\operatorname{Im} f_1(iy) = 0, \quad \operatorname{Re} f_1(iy) = 0$$

совпадают.

При изменении ω_i корень может переходить из области, где $\operatorname{Re} z > 0$, в область $\operatorname{Re} z < 0$, пересекая кривую N ($\operatorname{Re} z = 0$). Штрихуем кривую N при положительном обходе y от $-\infty$ до ∞ справа, если корень переходит с правой полуплоскости z в левую, и слева в противоположном случае. Область устойчивости следует искать [4] в области

$$1 - |\omega_0| \geqslant 0 \tag{2.21}$$

т. е.

$$0 \leqslant \omega_0 \leqslant 1$$

Область устойчивости изображена на фиг. 2. В зависимости от значений ω_0 и ω_3 область устойчивости меняется от области лежащей (при фиксированном ω_0) между осью $\omega_2 = 0$; $\omega_1 < 0$ и прямой $\omega_2 = \omega_1(1 - \omega_0)$ при значении $\omega_3 = 0$, до точки

$$(2.22) \qquad \left(2\omega_3{}^* \frac{(1-\omega_0)}{(1+\omega_0)},\ 2\omega_3{}^* \frac{(1-\omega_0)^2}{(1+\omega_0)}\right)$$

при

$$\omega_3{}^* = -\frac{3\,(1-\omega_0)}{\sigma\omega_0 + (1+\omega_0)^2}$$

Вернемся теперь к параметрам (2.18). Из (2.21) следует, что параметр рецикла может изменяться от 0 до 1. Из (2.18) следует, что при $\omega_3 = \mathrm{const}$

$$(2.23) \qquad \omega_2 = \omega_1 S + S^2(\omega_3 - S)$$

Исследуя значения S, можно определить интервалы, в которых режим работы реактора устойчив; предельное значение S^* находится из (2.23) при учете (2.22). Так, при $\omega_0 = 0$, т. е. $r = 0$

$$(2.24) \qquad S^* \cong 0.7$$

Из (2.24) следует, что имеет место устойчивость, если $S \in [S_A, S_B]$, где S_A и S_B — соответственно значения параметра S при пересечении прямой DC, определяемой (2.23), с прямой $\omega_2 = \omega_1(1 - \omega_0)$ в точках A и B (см. фиг. 2).

Далее можно показать, что на границе области устойчивости режим нейтрально устойчив, причем на той части границы, которая образована поверхностью N, возмущение стационарного режима имеет характер нейтральных колебаний с ненулевой частотой.

Выяснение области устойчивости в физических переменных S, r, λ, σ, . . . сводится к переходу к параметрам ω_i и исследованию положения соответствующей точки относительно найденных границ устойчивости.

Поступила 8 XII 1972

ЛИТЕРАТУРА

1. *Гупало Ю. П., Рязанцев Ю. С.* О режимах работы химического реактора идеального вытеснения с интегральным учетом тепловыделения. ПМТФ, 1969, № 1.
2. *Нагиев М. Ф.* Теория рециркуляции и повышение оптимальности химических процессов. М., «Наука», 1970.
3. *Luss D., Amundson N. R.* Stability of loop reactors. A. I. Ch. E. Journal, 1967, vol. 13, No. 2.
4. *Гупало Ю. П., Рязанцев Ю. С.* О термомеханической неустойчивости стационарного режима работы проточного химического реактора с неподвижным слоем катализатора. Изв. АН СССР, МЖГ, 1968, № 2.
5. *Неймарк Ю. И.* Устойчивость линеаризованных систем. Л., ЛКВВИА, 1949.
6. *Неймарк Ю. И.* D-разбиение пространства квазиполиномов. (К устойчивости линеаризованных распределенных систем.) ПММ, 1949, т. 13, вып. 4.