

Chemical Reaction Engineering

Proceedings of the Third European Symposium,
held in Amsterdam, 15-17 September 1964

Supplement to

CHEMICAL ENGINEERING SCIENCE

PERGAMON PRESS

OXFORD · LONDON · EDINBURGH · NEW YORK
PARIS · FRANKFURT

Pergamon Press Ltd., Headington Hill Hall, Oxford
4 & 5 Fitzroy Square, London W.1

Pergamon Press (Scotland) Ltd., 2 & 3 Teviot Place, Edinburgh 1

Pergamon Press Inc., 122 East 55th St., New York 22, N.Y.

Pergamon Press GmbH, Kaiserstrasse 75, Frankfurt-am-Main

Copyright © 1965
Pergamon Press Ltd.

First edition 1965

Library of Congress Catalog Card No. 65-17713

Set in Times New Roman by Santype Ltd. of Salisbury
and printed in Great Britain by Dawson & Goodall, Ltd. of Bath

CONTENTS

OPENING OF THE SYMPOSIUM

	PAGE
Welcome: J. HAMAKER	3
Opening Address: C. VAN HEERDEN	5

FIRST SESSION

Category A — COMMERCIAL PROCESSES

Chairman: Dr. C. VAN HEERDEN

Secretary: Ir. E. RAVOO

1.1 E. BARTHOLOMÉ und R. KRABETZ: Erfahrungen bei der Berechnung von grosstechnischen Reaktoren	11
1.2 J. E. DE GRAAF: Recent developments of the blast furnace process	23

SECOND SESSION

Category B — LABORATORY AND PILOT PLANT STUDIES

Chairman: Prof. Dr. L. KÜCHLER

Secretary: Ir. L. VAN DIERENDONCK

2.1 C. J. BAAS, F. C. A. A. VAN BERKEL, J. DE GRAAUW and J. C. VLUGTER: The dimerization of propylene to 2-methyl-1-pentene	43
2.2 P. MARS and M. J. GORGELS: Hydrogenation of acetylene; a theory of selectivity	55
2.3 W. J. BEEK and E. A. KOLDENHOF: Coagulation of viscose	67
2.4 L. H. J. WACHTERS and H. KRAMERS: The calcining of sodium bicarbonate in a rotary kiln	77

THIRD SESSION

Category C — REACTORS

Chairman: E. S. SELLERS

Secretary: Ir. A. VAN DER MEY

3.1 P. H. CALDERBANK, M. B. MOO-YOUNG and R. BIBBY: Coalescence in bubble reactors and absorbers	91
3.2 H. KÖLBEL, H. HAMMER und U. MEISL: Hydrierung und Oxydation in Gas-Flüssigphase-Reaktoren mit suspendiertem Katalysator	115
3.3 H. GEELLEN and J. B. WIFFELS: The use of a distillation column as a chemical reactor	125
3.4 G. LINDNER: Backmixing in a staged, stirred reactor (Short Communication)	137
3.5 C. G. KOEN et P. TRAMBOUZE: Élément d'optimalisation des réacteurs du type mélangeur-décanteur (Short Communication)	141

FOURTH SESSION

Category D — CHEMICAL AND PHYSICAL PHENOMENA

Chairman: Dr. W. F. GRÜTTER

Secretary: Ir. N. VAN LOOKEREN CAMPAGNE

4.1 R. A. VROOM and D. W. VAN KREVELEN: The viscose rayon spinning process; a study of its chemical reaction engineering aspects	147
4.2 D. Y. C. NG and D. W. T. RIPPIN: The effect of incomplete mixing on conversion in homogeneous reactions (Short Communication)	161
4.3 F. P. STAINTHORP and G. T. CLEGG: Fluid stirring in continuous flow systems (Short Communication)	167
4.4 A. PARATELLA und I. SORGATO: Fluodynamische Erscheinungen bei der katalytischen CO-Konvertierung	173
4.5 K. SOLYMÁR und J. ZÁMBÓ: Ueber die optimalen Verhältnisse der Präzipitation der Aluminatlaugen	185
4.6 G. ASTARITA, G. MARRUCCI and F. GIOIA: Catalysis of carbon dioxide absorption in carbonated monoethanolamine solutions by sodium arsenite (Short Communication)	195

FIFTH SESSION

Category A — COMMERCIAL PROCESSES

Chairman: Dr. P. TRAMBOUZE

Secretary: Ir. N. M. SPAAY

5.1	D. ADLINGTON and E. THOMPSON: Desulphurization in fixed and fluidized bed catalyst systems	203
5.2	J. J. VAN DEEMTER: Trickle hydrodesulfurization—a case history	215
5.3	A. LISTER: Engineering design and development of desulphurizer reactors	225
5.4	W. F. GRÜTTER und G. A. NUSSBERGER: Ueber die Methodik bei der Auswahl von Reaktoren für organisch-synthetische Prozesse	237
5.5	P. J. HOFTYZER, J. HOOGSCHAGEN and D. W. VAN KREVELEN: Optimization of caprolactam polymerization	247

SIXTH SESSION

Category E — MATHEMATICAL MODELS AND PROCESS OPTIMIZATION

Chairman: Prof. Dr. R. JOTTRAND

Secretary: Ir. C. A. P. BAKKER

6.1	G. K. BORESKOV and M. G. SLIN'KO: Simulation of exothermal processes	257
6.2	L. KÜCHLER und D. LANGBEIN: Die Behandlung spezieller Optimierungsprobleme bei technischen Reaktionen mit dem Analogrechner	267
6.3	F. J. KYLSTRA: Stability of continuous stirred tank reactors (Short Communication)	279
6.4	F. HORN: Attainable and non-attainable regions in chemical reaction technique	293
6.5	N. VAN LOOKEREN CAMPAGNE: The characterization of arbitrary residence time distribution curves by one parameter (Short Communication)	305
D. W. VAN KREVELEN: FINAL REVIEW		315
R. JOTTRAND: CLOSING ADDRESS		325

OPENING OF THE SYMPOSIUM

Welcome: Dr. J. HAMAKER

Opening address: Dr. C. VAN HEERDEN

Welcome

Ladies and Gentlemen,

We are now at the opening of the third symposium on Chemical Reaction Engineering in Amsterdam, organized under the auspices of the working group of that name of the European Federation of Chemical Engineering, for the responsibility of the Dutch members of this Federation, the Koninklijke Nederlandse Chemische Vereniging and the Koninklijk Instituut van Ingenieurs. I am glad to give a hearty welcome to all of you on the occasion of this opening on behalf of the mentioned organizations.

The European Federation of Chemical Engineering is now eleven years of age. During this period the work has developed from an exchange of congress data and consultation on these data, into a more active exchange of experience in around eleven working groups. These working groups have their greatest significance for the members themselves, who, by contributing their own experience, naturally acquire that of others. The number of working group members that have the benefit of this, can only be small in comparison with the large number of Chemical Engineers in Europe. It is a good thing, therefore, that now and then the working groups take the initiative for an exchange of information on a much bigger scale of European symposia.

The working group Chemical Reaction Engin-

earing, which opened the series of symposia, to-day starts the third round.

We express the hope that in order to strengthen the mutual ties in Europe, many other symposia will be held in this field and that of the other working groups.

Apart from these words of welcome I want to express my gratitude—in the expectation of a successful symposium—to all who have made it possible for us to come together. This applies first of all to the members of the symposium committee gathered here around me. They had to get through a lot of work again, mainly connected with preparing the pre-prints, which was seriously hampered by a postal strike. In their group it is in particular Prof. Dr. Ir. Froment and Prof. Dr. Jottrand from Belgium, whose names I want to mention here. It is for the first time that the organization committee for this symposium is composed of representatives of two countries. It seems to me that this is a favourable development, because the scientific responsibility for a European symposium asks for a broader basis than a country can supply by itself. So, many thanks for your part in the preparations.

I gladly express the hope that also the contributions of the lecturers will guarantee a valuable symposium to all of you.

Mesdames, Messieurs,

En ce moment, nous nous trouvons au début du 3-ième symposium sur le Génie des Réactions Chimiques à Amsterdam, organisé sous les auspices du Groupe de Travail du même nom de la Fédération Européenne du Génie Chimique, sous la responsabilité des membres néerlandais de la dite Fédération, la Koninklijke Nederlandse Chemische Vereniging et le Koninklijk Instituut van Ingenieurs.

C'est de la part des organisations que je viens de mentionner que j'ai l'honneur et le très grand plaisir de vous souhaiter la bienvenue.

A l'heure actuelle la Fédération Européenne du Génie Chimique est âgée de onze ans. Dans cette

période ces activités se sont développées à partir d'un simple échange de dates de Congrès et de la consultation au sujet de ces dates, jusqu'à un échange plus actif d'expériences en environ onze Groupes de Travail. Ces Groupes de Travail sont de la plus haute importance pour les membres eux-mêmes, qui—en faisant l'apport de leurs expériences—acquièrent tout naturellement celles d'autrui. Le nombre des membres de Groupes de Travail profitant de cet échange n'est que menu en comparaison avec le très grand nombre des ingénieurs chimistes en Europe. Pour cette raison, c'est une circonstance heureuse que, de temps en temps, les Groupes de Travail prennent une initiative pour organiser, au moyen de

symposia européens, sur une échelle bien plus vaste, un échange d'informations.

Le Groupe de Travail du Génie des Réactions Chimiques, qui a ouvert la série de ces symposia, en inaugure aujourd'hui la 3-ième tournée. Nous espérons qu'en vue du renforcement des liens existant entre les pays européens un grand nombre d'autres symposia suivront, tant du présent domaine que de ceux des autres Groupes de Travail.

Outre ces quelques mots de bienvenue, je voudrais, dans l'espoir d'un symposium couronné d'un beau succès, adresser à ceux qui en ont rendu possible la réalisation, des paroles de sincère reconnaissance.

En premier lieu, cela compte pour les membres de la Commission pour la Symposium que je vois ici autour de moi. Ils ont dû faire beaucoup de travail notamment par rapport à la préparation

des documents, un travail qui, aussi par une grève de postiers, a été entravé. Parmi eux je cite expressément le Professeur Dr. Ir. G. Froment et le Professeur Dr. R. Jottrand de Belgique. C'est pour la première fois que, pour un symposium, la Commission d'organisation se trouve être composée de représentants de deux pays. Cela me paraît être une évolution heureuse parce que la responsabilité scientifique d'un symposium européen exige un plan d'appui bien plus large que ne saurait le fournir un seul pays. Donc, encore une fois: Tous mes remerciements pour votre contribution à la préparation.

Pour terminer j'exprime le voeu qu'aussi la part à fournir par les orateurs puisse vous garantir un symposium dont vous garderez le meilleur des souvenirs.

Meine Damen und Herren,
Zur Eröffnung des dritten Symposiums über "Chemische Reaktions-technik" heiße ich Sie im Namen aller verantwortlichen Organisationen herzlich willkommen. Dieses dritte Symposium findet unter den Auspizien der gleichnamigen Arbeitsgruppe der Europäischen Föderation für Chemie-Ingenieur-Wesen statt, deren niederländische Mitglieder, 'Koninklijke Nederlandse Chemische Vereniging' und "Koninklijk Instituut van Ingenieurs" die vorbereitenden Arbeiten geleistet haben und für das Gelingen dieser Veranstaltung verantwortlich sind.

Die Europäische Föderation für Chemie-Ingenieur-Wesen besteht jetzt bereits 11 Jahre. In diesem Zeitraum hat sich das Arbeitsfeld vom Austausch und von der Besprechung der Kongreßergebnisse zu einem aktiveren Erfahrungsaustausch in ca. 11 Arbeitsgruppen erweitert. Diese Arbeitsgruppen sind vor allem für ihre Mitglieder von Bedeutung, die durch Einbringung ihrer eigenen Erfahrungen automatisch die anderer Mitglieder eintauschen. Die Mitgliederzahl der Arbeitsgruppen, die hiervon profitiert, ist im Vergleich zur großen Zahl der europäischen Chemie-Ingenieure nur klein. Es ist daher von großer Bedeutung, daß die Arbeitsgruppen von Zeit zu Zeit die Initiative zu einem Informationsaustausch auf breiterer Basis, und zwar auf europäischen Symposien, ergreifen.

Die Arbeitsgruppe für Chemische Reaktionstechnik, die die Reihe der Symposien eröffnete, läutet heute die dritte Runde ein. Wir hoffen, daß noch viele Symposien auf diesem Gebiet und dem anderer Arbeitsgruppen folgen werden, damit die Bande zwischen den einzelnen europäischen Ländern weiter verstärkt werden.

Darf ich nach diesen Begrüßungsworten allen, die uns dieses Treffen ermöglicht haben, meinen besonderen Dank aussprechen.

Er gilt vor allem den Mitgliedern des Symposium-Komitees. Sie haben wiederum besonders viel Arbeit leisten müssen, und zwar besonders bei der Fertigstellung der Vordrucke, die u.a. durch einen Poststreik erheblich erschwert wurde. Ich nenne hier nur die Herren Prof. Dr. Ir. G. Froment und Prof. Dr. R. Jottrand aus Belgien. Zum erstenmal wird die Organisationskommission aus Mitgliedern zweier Länder gebildet. Ich sehe darin eine günstige Entwicklung, denn die wissenschaftliche Verantwortlichkeit eines europäischen Symposiums erfordert eine breitere Tragfläche, als sie ein einziges Land bieten kann.

Ich möchte Ihnen daher nochmals herzlich für Ihren Beitrag danken.

Ich bin davon überzeugt, daß durch Mitwirkung aller, der Organisatoren und der Autoren, der Erfolg dieses Symposiums garantiert ist.

J. HAMAKER

Opening Address

C. VAN HEERDEN

Ladies and Gentlemen,

In my function of Chairman of the Organizing Committee of this Symposium, which, for the third time, is held under the auspices of the European Federation of Chemical Engineering and has been organized by the two Dutch member societies, I consider it a great honour to be allowed to open the discussions on our subject: Chemical Reaction Engineering.

The general theme of this Symposium is: "Confrontation of science and practice in process development", and its choice is the result of discussions at an informal meeting in Milan about two and a half years ago, of members and invited non-members of the working party "Chemical Reaction Engineering" of our federation.

This theme expresses a general feeling of uncertainty or, may be, even of doubt, about the value of scientific methods in process development in relation to the empirical approach based on common sense and practical experience.

In this context the term "science" is used in the restricted sense of chemical engineering science.

It is met with i.a. in periodicals on chemical engineering, especially in those articles which, abstracting from specific practical problems, give general experimental or theoretical or even purely mathematical studies, that claim to be helpful in the development and design of new processes, or in the operation of existing production units. Not meant here are the general sciences, but only physics, chemistry and mathematics as applied to chemical engineering problems.

Even general chemistry is not the working field of the chemical engineer. Nobody will say that Carrothers was a chemical engineer because he invented the polyamides. It almost sounds as an insult to entitle Prof. Karl Ziegler as such. Still, the chemical engineer had a terrible job to upgrade Ziegler's preserving jar to an industrial performance and it took him about ten years.

This illustrates what is exactly his task:

"to realize industrial production by means of chemical reactions, the rather well-defined reaction conditions of which are the result of the research done by the chemist".

In this task his only "leitmotiv" is the economy of the process.

The amount of published scientific information of the kind just mentioned, which pretends to be helpful in the task of the chemical engineer, is tremendous. However, the literature mentioning a fruitful application of this kind of knowledge, is very scarce, and in this respect "fruitful" can mean only one thing: improvement of the economy of some process. It is this contrast which underlies the uncertainty, or doubt, expressed in the general theme.

There are a number of possible explanations and I should like to consider a few of them. If I do that sometimes rather pronouncedly, this is primarily to stimulate the discussions.

First, an almost trivial explanation. The large majority of successful applications of scientific methods can be found only in the chemical industry, and why should the industrial chemical engineer tell the competitors how clever he is in applying general available knowledge to increase the profit of his firm. He will even be inclined to keep the results of his own general scientific studies to himself, the more so if he thinks that his own information is worth more than what is generally available. Only if it could be patented, which it can not, would it pay to be openhearted on this point.

From a scientific point of view this would be a rather pessimistic explanation and not very suitable for discussion at a scientific symposium. Still I should like to remark that by this kind of secrecy, progress in chemical engineering may be hampered more than progress in many other branches of engineering. The chemical engineer does not come into the open with the result of his efforts—the process—and the chemical made by his process does not disclose any of his skills. The most

important property of this chemical, its cost price, is even one of the most well guarded secrets of Chemical industry. A compensation for this monopolistic trend of chemical engineering development may be found in the policy of large-scale licensing.

Let us consider another possible explanation of the discrepancy between the publicity on general studies and the publicity on successful applications.

The time which elapses between the recognition of some chemical reaction as a profitable basis for an industrial process, and the realization of a production unit is very long, the market is uncertain, the combined progress made by the competitors is fast, the investment is high, and very often the margin between cost price and market price is small.

Hence during development and design one is permanently worried by the cost price which can be calculated more accurately as the design of the process has proceeded further. The chemical engineer who is responsible for the design knows one great fear: that the performance of one of the essential parts of the process will fall short of the expectations to such a degree that the cost price becomes unacceptably high. Every large industrial firm which has developed a number of new processes, knows the painful experience of having to close down a new plant for that reason. Therefore, while economics is the "leitmotiv" of the chemical engineer, practical experience is his principal guide. The pilot plant, this essential and expensive phase in process development, is the most characteristic manifestation of this fundamental need of practical experience.

This strong need to base his design on practical experience, if possible experience on an industrial scale, is by its nature antagonistic to scientific methods. Scientific methods in general express a belief as to how something will behave, the designer wants to know how something actually behaves. A scientific approach concentrates on one of the details of the performance of a part of the process. In the design a number of aspects are at the same time equally important, and very often some of these aspects, like mechanical construction, fouling, corrosion, life time of catalysts, and many others, can only be evaluated by practical tests.

Indeed, many of the more scientific studies on chemical engineering problems, show inadequate feeling for the actual significance in development and design of the problems studied. Especially the research done at universities runs this risk, be it that in these institutes the value of research may also be judged by its educational merits.

On the other hand, I believe that also in all large industries having large research institutes, the dialogue between, say scientific and practical chemical engineers must be a point of permanent concern. This second explanation expresses some doubt as to the practical value of at least many of the more basic studies in chemical engineering.

Finally I should like to say a few words about a third possible reason. I am thinking here more specifically of the many theoretical or mathematical studies on problems of optimization.

Indeed, the activity in development and design is optimization, however, not only in the sense of maximization of the profit, but also of minimization of the uncertainty about the future performance of the process. In these studies there appear two kinds of data, economical data and physical or chemical data, which because the study is general, are assumed to be known. Economical data are often presented in the form of a so-called "profit function", the physical and chemical data in the form of reaction rate equations, transfer relations, and so on. About the economical data I will be short. These are in general rather accurately known, with only one important restriction. The economic value of the degree of certainty about the performance of a plant to be built, cannot be expressed numerically.

Let me say a little bit more about the physico-chemical data, and, because this is a symposium on chemical reaction engineering, more specifically about reaction rate data. For all reactions studied on laboratory- or pilot-plant scale the order of magnitude of the reaction rate is known, as it can be calculated simply from the residence time in the reactor. During development and design of new processes the knowledge of reaction kinetics is very often not so very much greater than that. Sometimes a rough estimate can be made of the energy of activation and some idea can be formed about the order of the reaction for the different

components. This lack of accurate data is felt especially in the case of those reaction systems where parallel or consecutive reactions determine the selectivity and, thus to a high degree, the economy of the process. The reason is not that in haste one forgets to determine the reaction kinetics, but that a reasonably accurate determination of reaction kinetics is a very difficult and time-consuming job, which requires much skill, highly developed analytical techniques and much experience with the many pitfalls in this kind of research. Moreover, these refined experiments can only be done on a laboratory scale, where the reaction conditions found in a large scale reactor, can very often not be simulated. For older, well-established processes in chemical industry, the latest design is based on years of industrial experience. Further optimization of for example the reactor design by the scientific methods mentioned, asks in this case even for very accurate kinetic data, because one has to compete with this practical experience obtained over a long period.

It is my personal belief that this lack of kinetic data will be chronic, that it is an illusion to think

that in the future reliable kinetic data on many industrial processes will be available. In view of the time-consuming and difficult experimental techniques and the ever increasing number of new processes this seems practically impossible. One might even ask whether this information would deserve such of an intellectual effort.

Ladies and gentlemen, I have made some suggestions about possible causes of the uncertainty and doubt expressed in the general theme of our symposium. This theme was chosen to stimulate discussions about the actual value of scientific methods in process development, to provoke openheartedness, to urge chemical industry to confront science with practice not only within the gates of their works and research institutes, but also in literature.

An answer to the question whether this symposium succeeds in its aims, must be left to Prof. van Krevelen in his final review. And if it should appear that the information from the twenty-seven papers and the discussions here on the platform are disappointing, I still cherish the hope that the discussions in the lobby were highly instructive.

FIRST SESSION

Category A — COMMERCIAL PROCESSES

Chairman: Dr. C. VAN HEERDEN

Secretary: Ir. E. RAVOO

Erfahrungen bei der Berechnung von großtechnischen Reaktoren

E. BARTHOLOMÉ und R. KRABETZ

Ammoniaklaboratorium der Badischen Anilin- & Soda-Fabrik AG, Ludwigshafen/Rhein

Zusammenfassung—Die Grundlage einer Prozessanalyse bildet ein mathematisches Modell der chemischen Reaktionsgeschwindigkeit. Bei komplexen Reaktionen muß man auf Korrelationsbeziehungen zurückgreifen. Dieser Weg wurde für die Berechnung von Reaktoren für die Oxosynthese und für die Luftoxydation von Cyclohexan eingeschlagen. Bei einfacheren heterogen katalysierten Gasreaktionen haben sich durch physikalisch chemische Betrachtungen nahegelegte Ausdrücke bewährt. Solche Ausdrücke wurden verwendet bei den Berechnungen für Reaktoren für die Kohlenoxyd-Konvertierung, die Methanol- und die Ammoniaksynthese. Vorund Nachteile der beiden Wege werden diskutiert.

1. MÖGLICHKEITEN ZUR AUFSTELLUNG VON VERFAHRENSMODELLEN

Eine mathematische Behandlung von Problemen der chemischen Verfahrenstechnik wie der Auswahl des wirtschaftlichsten Verfahrens, der Übertragung eines Verfahrens in größeren Maßstab oder der optimierenden Steuerung von Produktionsanlagen setzt voraus, daß der Zusammenhang zwischen der Zielgröße und den Betriebsvariablen quantitativ bekannt ist. Die Untersuchung von chemischen Verfahren mit dem Ziel, ein mathematisches Modell des Verfahrens aufzustellen — die sog. Prozeßanalyse — kann auf zwei hinsichtlich der Methodik verschiedenen Wegen durchgeführt werden.

Der erste Weg geht im allgemeinen direkt von Versuchen an Produktionsanlagen aus, die mit Hilfe einer Regressionsanalyse statistisch ausgewertet werden. Gesucht wird der funktionale Zusammenhang zwischen einer integralen Größe wie dem Endumsatz oder von Ausbeuten als den abhängigen Variablen und den unabhängigen Betriebsvariablen. Als Formelausdruck für die Anpassung der Versuchsdaten werden durchweg einfache Ansätze gewählt. Auf detaillierte physikalisch-chemische Vorstellungen wird bewußt verzichtet. Die so gewonnenen Ausdrücke haben daher auch keine unmittelbare physikalisch chemische Bedeutung. Der funktionale Aufbau der Formel hängt stark

von der geeigneten Auswahl der "unabhängigen" Variablen ab.

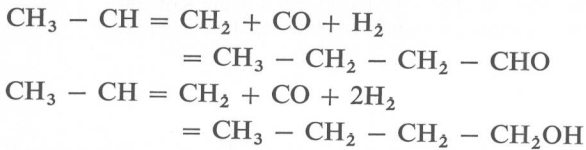
Der zweite Weg geht aus von experimentellen Untersuchungen der Teilreaktionen, die oft auch an Modellreaktoren durchgeführt werden können. Gesucht wird das Zeitgesetz für den Ablauf der chemische Reaktion unter technischen Bedingungen. Wegen des komplexen Zusammenwirkens von chemischer Reaktion, Stoff- und Wärmetransport sind im allgemeinen nur Näherungsgleichungen zur Beschreibung des tatsächlichen Prozeßablaufes erreichbar. Es werden aber soweit wie möglich die physikalisch chemischen Gesetzmäßigkeiten benutzt oder zumindest als Anleitung für das Aufsuchen eines vernünftigen funktionalen Zusammenhanges verwendet, so daß später nur die Koeffizienten dieser Funktion an ein Versuchsfeld angeglichen werden müssen. Physikalisch chemische Bedeutung im strengen Sinne haben so abgeleitete Ausdrücke natürlich ebensowenig wie die nach der ersten Methode gefundenen Ausdrücke.

Der zweite Weg erfordert sicherlich einen größeren Aufwand in jeder Hinsicht und es ist eine Frage von praktischer Bedeutung, bei welchen Fragestellungen dieser Aufwand gerechtfertigt ist und bei welchen nicht. Er verspricht aber den Vorteil, daß über den Umweg über physikalisch chemische Gesetze eine größere "Erfahrungsmenge" als die unmittelbaren Versuchspunkte liefern können, in das mathematische Modell eingehen.

2. IN DER BASF BEARBEITETE BEISPIELE

a. Oxosynthese [1]

Als Studienobjekt für die Steuerung eines chemischen Verfahrens mit einem Prozeßrechner wurde die großtechnische Synthese von Butyraldehyd und Butanol nach dem Oxoverfahren ausgewählt. Bei dieser Reaktion werden Propylen, Kohlenoxyd und Wasserstoff bei 300 atü und 140 bis 180°C mit Cobaltkatalysatoren umgesetzt. Es entstehen nebeneinander die isomeren Butyraldehyde und Butanole nach den Grundgleichungen



daneben in geringer Menge ein komplexes Gemisch von Nebenprodukten, der sog. Rückstand. Das Propylen enthält als Verunreinigungen Propan und Schwefel. Das Oxogas enthält in kleinen Mengen Schwefel, Kohlensäure und Stickstoff. Diese Verunreinigungen beeinflussen zum Teil als Katalysatorgifte die Reaktion. Die Schwankungsfrequenzen dieser Störvariablen liegen zum Teil im Bereich von Minuten, zum Teil im Bereich von Stunden. Die Mengen der aus dem Synthesegemisch nach Aufbereitung erhaltenen Reinprodukte, normal und iso-Butyraldehyd, normal und iso-Butanol mit verschiedenen Marktpreisen und Bedarf sowie der wertlose Rückstand werden von den Größen der

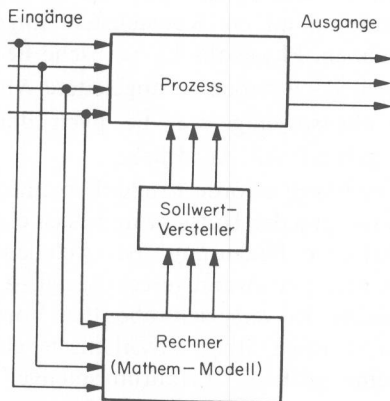


ABB. 1. Schema der Feed-forward Steuerung.

Eingangsvariablen und Störvariablen in verschiedener Weise beeinflusst, so daß das wirtschaftliche Optimum des Verfahrens nicht mehr unmittelbar überschaubar ist.

Eine Steuerung des Verfahrens mit einem Prozeßrechner erfordert wegen der langen Verweilzeit des Reaktionsproduktes im Reaktor und wegen der schnellen Schwankungen der Eingangsgrößen eine reine *Feed-forward*-Steuerung. Abbildung 1 zeigt das Schema einer solchen Steuerung, bei der die optimalen Sollwerte der Regler aus den Meß- und Analysenwerten der Eingangsgrößen mit Hilfe eines mathematischen Modells des Prozesses berechnet werden.

Der Kern des mathematischen Modells sind die Prozeßgleichungen, welche die funktionale Beziehung zwischen den abhängigen Variablen, z. B. den Ausbeuten an normal- und iso-Butyraldehyden und Butanolen und den unabhängigen Variablen bilden. Zur Festlegung dieser Gleichungen wurden gesonderte Versuche an der Produktionsanlage durchgeführt. Um diese Versuche nach statistischen Methoden auswerten zu können, wurde dabei für eine gute Verteilung der Werte der unabhängigen Variablen gesorgt. Der Gesamtbereich jeder Variablen wurde in drei Teilbereiche geteilt. Bei vollständiger Belegung aller Bereiche ergeben sich bei 8 Variablen $3^8 = 6561$ verschiedene mögliche Versuchskombinationen. Soviele Einstellungen sind natürlich nicht zu realisieren. Um bei einer beschränkten Anzahl von Versuchen dennoch eine statistische Streuung der Versuchsbedingungen zu erhalten, wurden über Lochkarten aus der Gesamtzahl der möglichen Versuchskombinationen mit Zufallszahlen etwa 100 Versuche ausgesucht, wobei einige, die sich aus betrieblichen Gründen nicht durchführen ließen, ausgeschieden wurden. Bei der Durchführung der Versuche war zu beachten, daß alle unabhängigen Variablen nur innerhalb gewisser Toleranzgrenzen um den ausgesuchten Wert schwanken dürfen und daß die Versuchsdauer ein bestimmtes Minimum nicht unterschreiten darf. 76 der insgesamt durchgeführten 100 Versuche wurden schließlich für die statistische Versuchsauswertung herangezogen.

Als Formelausdruck für die Anpassung der Versuchsdaten wurden die Anfangsglieder einer Taylorreihe gewählt: