

文章编号: 0253-9993(2009)12-1687-06

煤沥青最佳热处理工艺条件的研究

张中明, 吴晓苏

(杭州职业技术学院 机电工程系, 浙江 杭州 310018)

摘要: 为了在延迟焦化塔中制取高密度沥青焦, 首先需要对煤沥青进行热处理以除去不溶物质和进行组分调制. 采用管式炉、真空闪蒸塔组织沥青改性处理过程, 数字化控制系统监控整个工艺流程, 通过合适的神经网络结构和训练算法对重闪蒸油产出率及相关工艺参数之间的关系进行辨识, 并应用稳定性理论对网络误差、隐层个数以及网络收敛趋势进行讨论. 研究表明: 适当提高管式炉出口温度可以增加重闪蒸油的产量; 过高的温度控制会使物料黏度急剧上升, 导致热处理条件恶化; 有限量参数的采集和非线性曲线拟合可以弱化原始数据的随机性, 并且通过模型的不不断修正而收敛到满意的精度, 从而在较短的时间内搜索到最佳热处理条件.

关键词: 煤沥青; 热处理工艺; 沥青焦; 收敛

中图分类号: TQ522.63 文献标识码: A

Study on the condition of optimal thermal treatment technology of coal tar pitch

ZHANG Zhong-ming, WU Xiao-su

(Mechanical and Electrical Engineering Department, Hangzhou Vocational and Technical College, Hangzhou 310018, China)

Abstract: In order to produce the high density pitch coke in delayed coking tower, the coal tar pitch should be pretreated so that the insoluble matter can be eliminated and components can be modulated. The process of coal tar pitch modification was organized by means of the tube furnace and vacuum flash distillation tower, meanwhile digitalization control system was adopted to monitor all round process flow. Relationship among yield rate of heavy flash oil and other related parameters were identified by appropriate network structure and the net train algorithm, the network error and the number of ulterior layer and the convergence tendency of network were discussed applying for the stability theory at the same time. The results show that raising the outlet temperature of tube furnace properly can increase the yield of heavy flash oil, but too higher temperature can increase the viscosity of the material and lead to heat treatment condition degenerates rapidly. The limited parameters' sampling and the nonlinear curve fitting can weaken the randomization of the original data and it will converge to the satisfactory precision through model modifying uninterruptedly, in this way the optimal thermal treatment condition can be searched in a short period.

Key words: coal tar pitch; thermal treatment technology; pitch coke; convergence

煤焦油沥青是焦油蒸馏提取馏分后的残留物^[1], 其在常温下为黑色固体, 无固定的熔点, 呈玻璃相, 受热后软化继而熔化, 沥青按其软化点的高低可以分为低温、中温和高温沥青, 软化点是表示沥青质量高

低的重要参数,软化点高的沥青,其挥发分少,黏结性好,成焦率高^[2],反之亦然。目前,沥青深加工的主要方向:沥青改质和炭化,前者的目的是提高沥青中的 β 树脂成分;后者是将这些沥青在炉室内经过冶炼后使其成为固态产物,其主要产品是沥青焦、沥青针状焦等,它们是人造石墨、电解铝用阳极糊和石墨电极等的重要原料,尤其是针状焦更是生产超高功率电极的骨料,目前只有少数国家拥有这项技术。

1 工艺和控制系统的分析

沥青预处理的目的是除去原料中的杂质,制取适合于生产针状焦的精制沥青^[3],其基本工艺流程可以分为软沥青的高温加热和真空闪蒸,图1为简化后带节点的工艺流程。

从焦油蒸馏工段来的软沥青,通过PM1泵进行升压,并通过重闪换热器,物料在这里与真空闪蒸塔出来的闪蒸油气换热升温,然后进入管式炉,首先进入上部对流段,然后进入辐射段,外部煤气通过炉膛和炉管对

物料进行加热,从管式炉出来的物料进入闪蒸塔,闪蒸塔的作用是利用混合馏分中各种组分挥发性的差异,以热能为媒介,在突然减压的情况下使物质分离出来的装置,真空泵、真空罐、洗净塔和换热器等组成真空闪蒸回路并使闪蒸塔内呈现合适的负压,闪蒸塔顶部分离出3种组分:重闪蒸油、中闪蒸油和轻闪蒸油,其中重闪蒸油经过蒸汽发生器的冷却后送往油库,作为生产针状焦的原料。

在过程控制方面,PM1是一个变频泵,具有优良的受控特性,这样可以保证管式炉的平稳进料,正常情况时,调节阀可以完全关闭,仅通过变频来控制电机的转速,进而控制进料量;和通常的管式炉相比,其物料出口温度控制在430~450℃,而物料在管式炉的入口速度仅为1.2 m/s,这样低的流速,在临界分解区内,炉管内表面的油膜容易结焦,所以,必须向管式炉管内注入高压水蒸汽,使混合油以高速湍流状态通过临界分解区域,这是一般管式炉工艺中所没有的特点。管式炉出口温度与炉膛温度组成串级温度控制,为了防止冷却水压力过低时沥青在炉管内结焦,这里设计了一个选择控制方案:在给水压正常时采用串级控制来稳定管式炉出口温度;当给水压力偏低时,减少煤气流量,使管式炉快速降低温度,避免沥青在炉管内结焦。

2 最佳热处理条件参数的选取

2.1 主要的影响因素

最佳热处理条件的选取可以考虑以下2种因素:①管式炉的长周期安全运行问题^[4]。由于管式炉是沥青预处理中的核心设备,要严格控制温度以防止炉管结焦而威胁生产的正常运行;②重闪油的最佳收益率问题。从工艺的角度分析,在沥青的预处理过程中^[5],如何既能有效地控制反应深度,又要保证生产的连续运行是技术的关键,由于煤沥青及馏分中的芳香度高达90%以上,表现在过程控制中的可控性差:温度太低,不易发生反应,一旦到达反应温度,反应速度很快,物料黏度急剧上升,导致热处理条件恶化^[6],影响了管式炉的安全运行和产品的收益率。

为进一步研究这种反应机理的本质,提取一组“管式炉出口温度-重闪蒸油流量”数据对其进行分析,其基本现象是:在加热开始阶段,重闪蒸油的流量变化比较平坦,当管式炉的出口温度提高到一定数

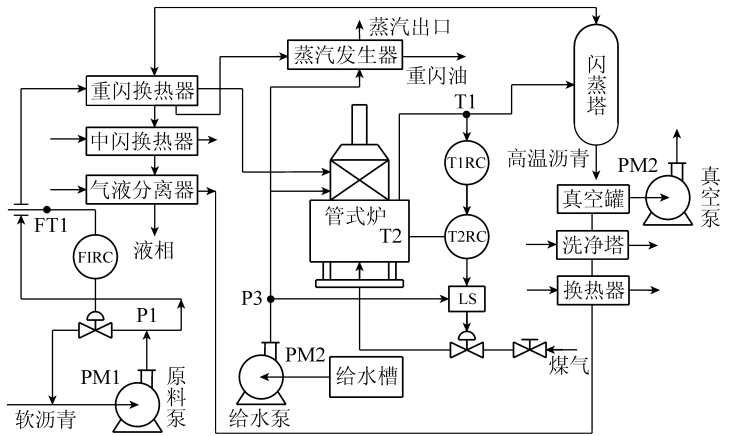


图1 煤沥青加热-真空闪蒸工艺流程

Fig. 1 Technical flow of heating coal tar pitch-vacuumed flash distillation

值时，其流量会快速增加，然后随着温度的进一步提高其流量反而下降，在图 2 中会出现一个拐点，这个拐点表征了沥青在预处理过程中一定的温度和压力条件下沥青组织所发生的突变，掌握其变化规律，定量地求出反映该规律的曲线有助于最佳热处理条件的确立。因此，可以选取管式炉出口温度和重闪蒸油收益率之间的关系为最佳热处理条件。图 2 中 A1 和 A3 区域分别表示温度过低和过高，A2 表示合适的温度控制区域。

2.2 综合因素

除管式炉出口温度这个重要参数之外，影响重闪蒸油流量的其他参数也是多样的：与原料有关的参数是待处理的沥青温度和流量；与管式炉有关的参数是注水泵出口压力、入管式煤气压力、炉膛温度、对流段温度及辐射段温度等；与换热器有关的参数是软沥青进口、出口温度以及闪蒸塔的相关参数等，其输入与输出 - 分布点关系见表 1。每个输入参数的变化都会引起输出参数即重闪蒸油流量的变化，此外，输入参数之间也存在非线性耦合关系。

3 管式炉神经网络辨识系统的建立

3.1 数据的进一步处理^[7]

通过数据采集装置得到的参数还会受到各种噪声诸如传感器、变送器和信号转换噪声等的影响，这些噪声干扰会使测量信号失真。为使神经网络辨识系统得到的样本数据具有正确性和典型性，需要对所采集的信号进行一些处理。

3.1.1 剔除跳变信号

假设某一信号的样本数据为 x_1, x_2, \dots, x_n ，平均值为 \bar{x} ，则偏差值为

$$e_i = x_i - \bar{x} \quad (i = 1, 2, \dots, n),$$

按照 Bessel 公式可以计算出标准偏差为

$$S = \sigma = \left(\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n e_i^2 \right)^{1/2} = \sqrt{\frac{1}{n-1} \left[\sum_{i=1}^n X_i^2 - \frac{1}{n} \left(\sum_{i=1}^n X_i \right)^2 \right]}.$$

如果某个样本数据 x_k 的偏差 $e_k (1 \leq k \leq n)$ 满足 $|e_k| > 3\sigma$ ，则认为 x 是跳变数据，应当剔除，这样可以避免粗大误差对样本数据正确性的影响，否则进入下一阶段的平滑滤波。

3.1.2 平滑滤波

平滑滤波的目的是减少数据采集过程中的信号失真，算法表达式为

$$x(k) = e^{T_e/T_f} x(k-1) + (1 - e^{T_e/T_f}) r(k),$$

式中， $x(k), x(k-1), r(k)$ 分别为 $k, (k-1)$ 时刻经过处理的数据信号和 k 时刻的实时采样数据； T_e, T_f 分别为数据采集周期和滤波时间常数，min。

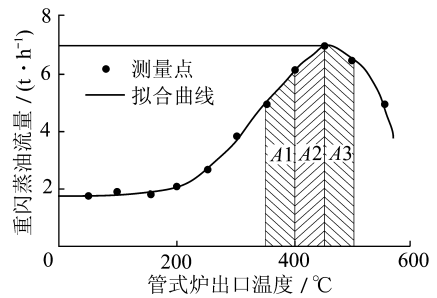


图 2 管式炉出口温度 - 重闪蒸油流量的非线性关系
Fig. 2 Nonlinear relationship between the temperature of tube furnace outlet and the flow of heavy flash oil

表 1 影响重闪蒸油流量的参数名称及分布情况
Table 1 Parameter names and distributed complexion of impact on the flow of heavy flash oil

参 数	参数名称	分布点
x_1	软沥青原料流量	原料
x_2	软沥青泵出口温度	原料
x_3	注水泵出口压力	管式炉
x_4	入管式炉煤气压力	管式炉
x_5	管式炉炉膛温度	管式炉
x_6	管式炉辐射段温度	管式炉
x_7	管式炉对流段温度	管式炉
x_8	管式炉出口温度	管式炉
x_9	重油换热器软沥青进口温度	换热器
x_{10}	重油换热器软沥青出口温度	换热器
x_{11}	重油换热器油气入口温度	换热器
x_{12}	重油换热器液相出口温度	换热器
x_{13}	闪蒸塔顶油气压力	闪蒸塔
x_{14}	入闪蒸塔软沥青温度	闪蒸塔
x_{15}	闪蒸塔底高温沥青液位	闪蒸塔
x_{16}	闪蒸塔顶油气压力	闪蒸塔
y_1	重闪蒸油流量	成品

滤波时间常数 T_f 根据参数时滞等情况灵活设置, 以减少因时滞的不同或其他干扰信号对模型造成的干扰.

3.1.3 归一化处理

经过上述处理的数据具有不同的单位和量程, 数据归一化处理的目的是将要研究的不同数量级的参数归一到同一尺度上来, 以避免在后续的数据处理中有些参数因自身的数值量级大而被突出, 另一些参数因数值量级小而受到压抑, 这可以消除数据处理后产生的失真或呈现某种倾向的特征. 输入/输出数据处理为 $[0, 1]$, 其计算公式为

$$\hat{x} = (x - x_{\min}) / (x_{\max} - x_{\min}),$$

式中, \hat{x} 为归一化以后的数据; x 为当前瞬时值; x_{\min} 为量程最小值; x_{\max} 为量程最大值.

3.2 网络结构设计

系统的输入信号有 16 个, 分别来自原料、管式炉、换热器和闪蒸塔设备; 输出信号为重闪蒸油流量. 根据 Kolmogorov 定理, 设计具有 16 个元素的输入层、33 个元素的隐含层和 1 个元素的输出层的网络辨识结构, 其输入信号与网络结构映射关系如图 3 所示.

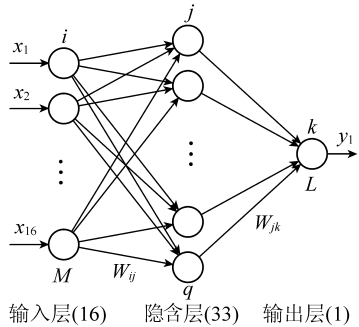


图 3 输入 - 输出信号与网络结构映射关系
Fig. 3 Mapping relationship between input-output signals and network structure

3.3 BP 学习算法的计算步骤^[8]

如图 3 所示, i, j, k 分别为输入层、隐含层和输出层的神经元序号, 同一层内各神经元之间互不连接, 相邻之间的神经元通过连接权值 W_{ij} 和 W_{jk} 互相联系, W_{ij} 为输入层与隐含层之间的连接权值, W_{jk} 为隐含层与输出层之间的连接权值, 其网络计算步骤:

- (1) 初始化. 给每个连接权值 W_{ij} , W_{jk} 和阈值 θ_j 赋予区间 $(-1, 1)$ 内较小的随机值.
- (2) 提供训练集合. 输入矢量 $\mathbf{x} = (x_1, x_2, x_3, \dots, x_n)$, 输出矢量 $\mathbf{D} = (d_1, d_2, d_3, \dots, d_n)$.
- (3) 各神经元的输入输出状况. 隐含层第 j 个神经元的输入/输出可以写成

$$\text{net}_j = \sum_{i=1}^M W_{ij} o_i, o_j = f(\text{net}_j),$$

其中, $f(\text{net}_j)$ 为激励函数; M 为输入节点数. 对于输出层而言, 第 k 个神经元的输入/输出的表达式为

$$\text{net}_k = \sum_{j=1}^q W_{jk} o_{j_i}, o_k = f(\text{net}_k),$$

式中, q 为隐含层的节点数.

- (4) 计算期望值和实际输出值的偏差. 偏差的计算是基于二次型误差函数, 其表达式为

$$e_p = \frac{1}{2} \sum_{k=1}^L (d_{pk} - o_{pk})^2,$$

式中, e_p 为期望值与实际输出值的偏差; L 为网络输出节点数.

- (5) 调整输出层和隐含层的加权系数. 网络学习的目的是调整各层的加权系数, 对于输出节点 k , 其加权系数为 $\Delta_p W_{jk} = \eta f'_k(\text{net}_{pk})(d_{pk} - o_{pk}) o_{pj}$.

对于隐含节点 j , 其加权系数为 $\Delta_p W_{ij} = \eta f'_j(\text{net}_{pj}) (\sum_{k=1}^L \delta_{pk} W_{jk}) o_{pi}$,

式中, o_{pk} 为输出节点 k 的输出; o_{pj} 为隐含节点 j 的输出; o_{pi} 为节点 i 的输出或输入.

- (6) 返回步骤 (3) 重复计算, 直到误差 e_p 满足为止.

将上述网络模型编制成 M 文件源代码并输入到 Matlab 环境中进行编辑和运行, 屏幕上会出现许多信息. 图 4 为网络误差和训练的收敛情况, 通过对网络误差的分析, 当隐含层数为 33 时, 网络的误差最小,

因此可以确定 BP 网络的结构：输入层 16 个节点、隐含层 33 个节点、输出层 1 个节点。经过网络学习和训练，该网络完成了对管式炉的非线性辨识。

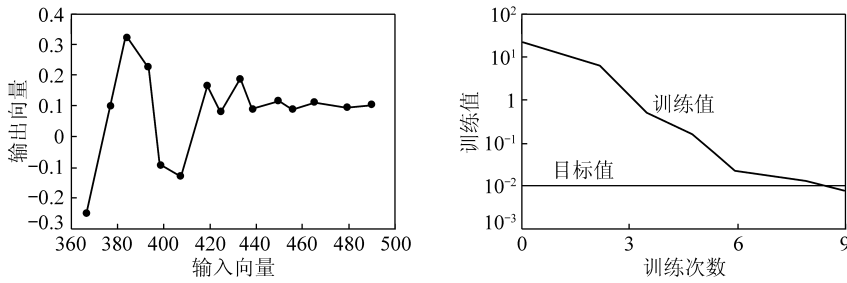


图 4 网络误差及训练收敛情况

Fig. 4 Network error and the complexion of training convergence

3.4 非线性数值解的稳定性分析

通过对管式炉出口温度和重闪油流量所测数据进行实验建模的情况发现，其数值解的收敛性、精确度和非线性拟合等都不是惟一的，那么这种模型残差的存在会多大程度上影响管式炉的模型精度呢？现通过网络稳定性理论进行分析。

把管式炉看成是一类非线性动态系统，其输入/输出状态关系^[9]可以写成

$$y(t) = f(y(t - 1), y(t - 2), \dots, y(t - n), u(t - 1), u(t - 2), \dots, u(t - m)) + \sigma(t),$$

对其进行离散化，可以得到

$$y(t + 1) = f(\varphi(t), u(t)), \tag{1}$$

其中， $u(\cdot)$ 、 $y(\cdot)$ 、 $\sigma(\cdot)$ 分别为系统的标量输入、输出和噪声； $f(\cdot)$ 为描写系统的非线性函数； $\varphi(t)$ 和 $y(t)$ 分别为系统的状态向量。对于一个 3 层神经网络模型可以表达为

$$\hat{y}(t) = \hat{f}(\hat{\varphi}(t), u(t), \theta) = \sum_{i=1}^{n_i} W_i^{(o)} H\left(\sum_{j=1}^{m+n} W_{ij}^{(h)} X_j(t) + \mu_j^{(h)}\right), \tag{2}$$

式中， $X(t) = [\hat{\varphi}(t), u(t)]$ ； $\theta = (W^{(o)}, W^{(h)}, \mu^{(h)})^t$ ； $W^{(o)}$ 、 $W^{(h)}$ 分别为 MN 从输入层到输出层和从隐含层到输出层的权向量，并且 $H(z) = 1/(1 + e^{-z})$ 。

如果式 (1) 满足如下条件：

(1) 若定义 u 的取值范围为集合 $\Omega \subset R^m$ ，那么 $\forall u \in \Omega$ ； $y(0) \in R^n$ ，对于有限的 M ，恒有 $|y(M)| < \infty$ ，则系统是稳定的。

(2) 对于函数 $f: R^{m+n} \rightarrow R^n$ 是连续的，且 $f(\cdot)$ 满足 Lipschitz 条件， $|f(\varphi_1, u) - f(\varphi_2, u)| \leq \rho |\varphi_1 - \varphi_2|$ ， $\forall |\varphi_i - \bar{\varphi}| < \rho$ ， ρ 为 Lipschitz 常数。

(3) 如果式 (2) 满足 $\forall \varepsilon > 0$ ，对于任意的连续函数 $f: C \rightarrow R^q$ （其中 $C \subset R^q$ 为闭集），均存在参数 θ^* ，使网络的输出 $\hat{f}(\varphi(t), \theta^*)$ 满足 $\max \|\hat{f}(\varphi(t), \theta^*) - f(\varphi(t))\| < \varepsilon$ 。

若 $\hat{\varphi}(0) = \varphi(0) = \varphi_0 \subset R^n$ ， $u \in \Omega \subset R^m$ ， Ω 为闭集，那么对于 $\forall \varepsilon > 0$ ，必存在网络参数 θ^* ，使得 $\forall u \in \Omega$ ，均有与满足条件 (1) 和 (2) 的式 (1) 所示系统充分接近的输出，即

$$\max \|y(t) - \hat{y}(t)\| < \varepsilon.$$

这说明多层前向 BP 网络构成的动态系统经过学习和训练后能够得到网络权值 θ^* ，并且所得解是稳定的，适当地增加样本数据和非线性拟合可以弱化原始数据的随机性，并减少模型残差，以达到满意的收敛精度。

4 结 语

预处理的方法是根据软沥青的质量指标、软化点、康拉顿残碳和黏度等要求来确定管式炉出口控制温

度,在保证设备安全运行的前提下获得最大的重闪蒸油产量. 本研究的目的是在有限样本参数的情况下,在全数字化监控的工业化生产条件下,以最快的速度搜索到最佳热处理条件,寻找原料流量、煤气压力和闪蒸塔负压等 16 个参数对合格重闪蒸油流量指标影响的内在联系,减少工艺摸索所需要的大量原料和宝贵时间. 图 5 为从现场提取的 2 h 管式炉出口温度变化曲线,其拐点温度值由图中水平直线所示,由于输入参数的波动,神经网络辨识系统的预测值也是在变化的,但是预测值和实际值是非常接近的. 这个结果也与基于实验室方法得出的结论^[10]相吻合.

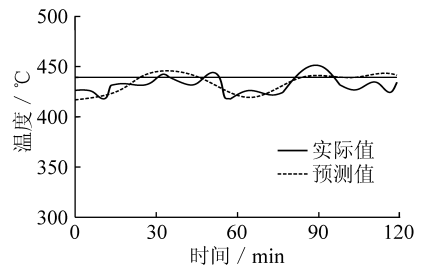


图 5 神经网络的预测结果

Fig. 5 Forecast results of neural network

参考文献:

- [1] 肖瑞华. 煤焦油化工学 [M]. 北京: 冶金工业出版社, 2002: 240-273.
Xiao Ruihua. Chemical engineering of coal tar [M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2002: 240-273.
- [2] 杨 琴, 李铁虎, 邢远清, 等. 对苯二甲醛改性煤沥青的流变性能研究 [J]. 煤炭学报, 2006, 31 (4): 511-514.
Yang Qin, Li Tiehu, Xing Yuanqing, et al. Study on rheological properties of coal tar pitch modified with terephthalic aldehyde [J]. Journal of China Coal Society, 2006, 31 (4): 511-514.
- [3] 张怀平, 吕春祥, 李开喜, 等. 针状焦的结构和原料 [J]. 煤炭转化, 2001 (4): 22-26.
Zhang Huaiping, Lü Chunxiang, Li Kaixi, et al. The structure and feed stocks of needle coke [J]. Coal Conversion, 2001 (4): 22-26.
- [4] 陶春风. 延迟焦化装置长周期生产中存在的问题及解决措施 [J]. 石油炼制与化工, 2002 (2): 17-21.
Tao Chunfeng. Problem and solution on long term running of delayed coker [J]. Petroleum Processing and Petrochemicals, 2000 (2): 17-22.
- [5] 贾昌涛, 王素秋, 王恩阁. 煤系针状焦生产工艺浅谈 [J]. 炭素技术, 2000 (2): 30-32.
Jia Changtao, Wang Suqiu, Wang Enge. Discussion on the technology of coal-based needle coke [J]. Carbon Techniques, 2000 (2): 30-32.
- [6] 郁 健, 张德祥, 高晋生. 煤沥青热聚合改质研究 [J]. 煤炭转化, 2005 (1): 6-10.
Yu Jian, Zhang Dexiang, Gao Jinsheng. Study on the thermal polymerization modification of coal tar pitch [J]. Coal Conversion, 2005 (1): 6-10.
- [7] 王树青, 金晓明. 先进控制技术应用实例 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2005: 25-28.
Wang Shuqing, Jin Xiaoming. Application examples of advanced control technology [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2005: 25-28.
- [8] 王顺晃, 舒迪前. 智能控制系统及其应用 [M]. 北京: 机械工业出版社, 2005: 275-283.
Wang Shunhuang, Shu Diqian. Intelligent control system and application [M]. Beijing: Mechanical Industrial Press, 2005: 275-283.
- [9] 王耀南. 智能控制系统 [M]. 长沙: 湖南大学出版社, 2006: 143-145.
Wang Yaonan. Intelligent control system [M]. Changsha: Hunan University Press, 2006: 143-145.
- [10] 王晓瑞, 金鸣林, 郑玉丽, 等. 煤沥青预处理工艺对活性炭孔结构的影响 [J]. 煤炭转化, 2004 (10): 5-9.
Wang Xiaorui, Jin Minglin, Zheng Yuli, et al. Effects of pretreatment processes of coal pitch on pore structure of active carbon [J]. Coal Conversion, 2004 (10): 5-9.