REINALDO APARECIDO TEIXEIRA

ESTUDO EXPERIMENTAL DO CONTROLE DE UM REATOR
DE POLICONDENSAÇÃO

Tese apresentada à Escola
Politécnica da Universidade de
São Paulo para obtenção do
Título de Doutor em Engenharia.

São Paulo
2008

REINALDO APARECIDO TEIXEIRA

ESTUDO EXPERIMENTAL DO CONTROLE DE UM REATOR
DE POLICONDENSAÇÃO

Tese apresentada à Escola
Politécnica da Universidade de
São Paulo para obtenção do
Título de Doutor em Engenharia.

Área de Concentração:
Engenharia Química

Orientador:
Prof. Dr. Galo A. Carrillo Le Roux

São Paulo
2008

Este exemplar foi revisado e alterado em relação à versão original, sob responsabilidade única do autor e com a anuência de seu orientador.

São Paulo, de outubro de 2008.

Assinatura do autor _____

Assinatura do orientador _____

FICHA CATALOGRÁFICA

Teixeira, Reinaldo Aparecido

**Estudo experimental do controle de um reator de policondensação / R.A. Teixeira. – ed. rev. – São Paulo, 2008.
128 p.**

Tese (Doutorado) - Escola Politécnica da Universidade de São Paulo. Departamento de Engenharia Química.

**1.Controle preditivo 2.Destilação 3.Reatores químicos 4.Poli-
merização I.Universidade de São Paulo. Escola Politécnica.
Departamento de Engenharia Química II.t.**

DEDICATÓRIA

À minha esposa Denise
e meu filho Denis.

AGRADECIMENTOS

A Deus em primeiro lugar, pela motivação e por me guiar até a conclusão deste trabalho.

Ao Prof. Dr. Galo A. Carrillo Le Roux, pela orientação deste trabalho, pela paciência e, sobretudo pela amizade.

Aos professores Dr. Darci Odloak e Dr. Reinaldo Giudici pelas discussões e sugestões que contribuíram para aperfeiçoamento desta Tese.

À minha esposa Denise e ao meu filhinho Denis pelo amor de vocês que é incondicional. Vocês são importantes para mim em todos os sentidos da minha vida.

Aos meus pais, Geraldo e Iria, meus irmãos, Ronildo, Rosilene e Rosemeire por me apoiarem.

Aos meus cunhados Carlos Alberto, Carmen, Áurea e Rodolfo e co-cunhados, Patrícia, Eden, Roberto e meu sogro Sr. João (em memória), pela motivação e apoio desta jornada.

Aos meus sobrinhos Carolina, Mariana, Cauê, Fernanda e Roberto, pelas brincadeiras e momentos de descontração.

Aos colegas Moisés, Dennis, Patrícia Pantoja, Maria Veronica, Fulvia, Murilo, Wilson Hirota, Wilson Lellis, Deusanilde, Claudia Larini, Marilda, Oscar Sotomayor, Paulo Moreira, Rita, Sílvia Baeder, Carminha, Teresinha, Francisco, Elsa, Antonio Sallares, Juliana, Glauce, Fernando Vines, João Mauricio, Rubens Rejowski, Alessandro Alle, Carlos Arturo, Galo Noriega, Rosana Tomita, Renata Pimentel, Marco Antônio, Sérgio Neiro, Jorge Lisa, Jorge Gut, Maria Cristina, Marcelo Leonardo, Marcelo Mendonça, Neander, Jeanne, Marlon, José Ermírio, Gustavo Matheus, Antonio Carlos, Maria Cristina, Alexandre, Graça e Maria Elisete pela amizade e convivência agradável nestes anos.

À CAPES, pela concessão da bolsa de doutorado.

RESUMO

Em geral, nos processos de policondensação há formação de um produto volátil, conhecido como condensado. A remoção deste produto é necessária a fim de favorecer o crescimento das cadeias poliméricas. O controle da temperatura do reator deve ser implementado de modo a favorecer a remoção do condensado e de manter a qualidade do produto. A aplicação experimental do controlador preditivo não linear (NMPC) a um reator de policondensação é apresentada neste trabalho. Devido às restrições de tempo de processamento, foi proposto um modelo simplificado, denominado Modelo A, obtido considerando o reator como sendo bem misturado acoplado a um tanque de condensado em que Etilenoglicol é acumulado. Supõe-se também que o metanol que deixa o reator é removido completamente do sistema, como se houvesse uma separação perfeita. O modelo A foi ajustado a dados experimentais obtidos a partir de ensaios com perturbação degrau e PRBS (Pseudo Random Binary Sequence). Em conclusão dos experimentos em malha fechada verificou-se que o controlador NMPC com o modelo A apresenta dificuldades de controle quando há reações químicas no sistema. Sendo assim, foi proposto um novo modelo, denominado modelo B, em que assume-se que os componentes voláteis, etilenoglicol e metanol, acumulam-se ambos em um tanque de condensado, podendo retornar ao reator. Foram realizados estudos de simulação para verificar como os modelos A e B interferem na viabilidade das trajetórias de temperatura. Os estudos mostraram que a presença de Metanol no reator, mesmo em pequenas quantidades, tem um efeito mais acentuado na temperatura do que a presença de Etilenoglicol. No entanto, o desempenho do controlador NMPC não foi muito bom quando comparado ao desempenho de um controlador PID. Foi proposta uma nova estratégia, com retroalimentação simples de estado. Nesta estratégia, a temperatura inicial do reator no modelo de referência é atualizada com o valor medido desta temperatura. O controlador NMPC com retroalimentação de estado apresentou um desempenho superior aos controladores NMPC anteriores e PID. O controlador NMPC com retroalimentação de estado mostrou-se mais robusto que o PID porque tem um desempenho equivalente para diferentes trajetórias, sem para isto ter que sofrer alterações nos seus parâmetros de sintonia. O controlador PID sofre uma degradação do seu desempenho, dependendo da trajetória a ser seguida. Isto torna o controlador NMPC com retroalimentação simples de estado mais flexível, pois evitam-se correções no modelo ou nos parâmetros de sintonia para diferentes bateladas. Esta flexibilidade é importante para a indústria de polímeros, que muitas vezes trabalha com reatores multiproduto em batelada.

Palavras-chave: Controle preditivo, Destilação, Reatores Químicos e Polimerização.

ABSTRACT

In general, in polycondensation processes there is formation of a volatile product known as condensate. The removal of this product is necessary in order to favor the growth of the polymer chains. The reactor temperature control should be implemented in order to favor condensate removal and to keep product quality. The experimental application of nonlinear predictive controller (NMPC) to a polycondensation reactor is presented in this work. Due to processing time requirements, a simplified model of the system, called model A, obtained by supposing the reactor is a perfect stirred tank coupled to a condensate tank, where the ethyleneglycol that exits the system is accumulated. It is supposed also that the entire methanol that leaves the reactor leaves the system too, as if there was a perfect separation column. Model A was adjusted to experimental data obtained from step response and PRBS (Pseudo Random Binary Sequence) disturbance experiments. In conclusion of the closed loop experiments, it was verified that the NMPC controller with model A presents difficulties when chemical reactions take place in the system. Therefore, a new model, called model B, was proposed, in which it is assumed that both methanol and ethylene glycol are accumulated in a condensate tank, and are allowed to return to the reactor. Simulation studies were carried out in order to verify how models A and B interfere in the feasibility of trajectories. The studies showed that the presence of Methanol, even in small amounts, has a very large effect in temperature, when compared to Ethyleneglycol. However, the NMPC controller performance was not very better than that of a PID. A strategy implementing a simple state feedback was proposed. In this strategy, the initial reactor temperature in the reference model is replaced by its measured value. NMPC with state feedback has a performance better than that of the previous NMPC and PID controllers. NMPC with state feedback appears to be more robust than PID because it has a constant performance for different temperature trajectories, without need of changing its tuning parameters. PID controller instead, shows a degradation of its performance, depending on the trajectory to be followed. This makes the NMPC controller with state feedback more flexible because there is no need to correct the model or the tuning parameters for different batches. This flexibility is important for the polymer industry, that often works with multiproduct batch reactors.

Keywords: Predictive Control, Distillation, Chemicals Reactors and Polymerization.

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 2.1 - Estrutura de repetição molecular do PET.....	05
Figura 2.2 - Equação da reação do DMT e EG para produção de M, BHET e seus oligômeros.....	06
Figura 2.3 - Equação da reação do TPA e EG para produção de Água, BHET e seus oligômeros.....	06
Figura 2.4 - Equação de formação do PET e Etilenoglicol.....	08
Figura 2.5 - Esquema da reação de transesterificação para obtenção do BHET (Gupta e kumar,1987).....	09
Figura 3.1 - Esquema do reator e seus periféricos.....	23
Figura 3.2 - Vista completa do reator batelada e seus periféricos.....	24
Figura 3.3 - Esquema do reator acoplado a um condensador parcial.....	27
Figura 3.4 - Esquema do reator e seus diferentes componentes.....	31
Figura 3.5 - Estrutura do Controlador NMPC com realimentação.....	38
Figura 3.6 - Esquema de predições do controlador NMPC (Gil, Ramos e Correa, 1998).....	39
Figura 3.7 - Tela principal do programa supervisorio IFIX.....	44
Figura 3.8 - Tela específica do controle de temperatura do reator.....	44
Figura 3.9 – Fluxograma da operação do controlador NMPC no processo.....	45
Figura 4.1 - Esquema do Reator acoplado a um reservatório EG.....	47
Figura 4.2 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a temperatura do reator.....	52
Figura 4.3 - Efeitos do parâmetro Beta sobre os grupos funcionais Em, Eg, Z, EG e M.....	53
Figura 4.4 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a conversão, retenção molar total, as vazões Fv, L e as frações molares dos componentes voláteis EG e M.....	53
Figura 4.5 - Resultados de temperatura do modelo A comparado à do reator experimental.....	55
Figura 4.6 - Esquema do reator experimental em malha fechada (sistema SISO).....	56
Figura 4.7 - Resultado do 1º caso da aplicação do controlador NMPC a um reator experimental.....	57

Figura 4.8 - Esquema do reator experimental em malha fechada em modo “split-range”	57
Figura 4.9 - Resultados do 2° caso de aplicação do NMPC incorporando resfriamento no processo e no modelo A.....	59
Figura 4.10 - Experimento com perturbação PRBS e Modelo A calculado usando 1° ajuste.....	61
Figura 4.11 - Experimento com perturbação PRBS e Modelo A calculado usando 2° ajuste.....	61
Figura 4.12 - Controle da temperatura do reator de laboratório aplicando NMPC.....	64
Figura 4.13 - Controle NMPC da temperatura do reator experimental usando o modelo A com 3° ajuste (via estimação).....	67
Figura 4.14 - Modelo A com 3° ajuste com atraso de 3 min.....	68
Figura 4.15 - Simulação com atraso de 3 min no Modelo A com 3° ajuste.....	68
Figura 4.16 - Resposta em malha aberta com degrau de +30% na potência de aquecimento.....	71
Figura 4.17 - Resposta em malha aberta com degrau de -30% na potência de aquecimento.....	72
Figura 4.18 - Resposta em malha aberta com degrau de 2% para 7,8% na variável Q_w	73
Figura 4.19 - Esquema de representação dos controles de temperatura T_r e T_{cp} em um reator experimental.....	75
Figura 4.20 - Aplicação do NMPC ao reator experimental usando modelo A com 3° ajuste.....	76
Figura 4.21 - Resultados da simulação com diferentes Beta no modelo A com 3° ajuste.....	77
Figura 4.22 - Resultados da retenção com diferentes Beta aplicado ao modelo A com 3° ajuste.....	78
Figura 4.23 - Esquema do Modelo B com reservatório de EG e M.....	79
Figura 4.24 - Resultados da simulação com Beta = 0,02 no modelo B.....	79
Figura 4.25 - Resultados da retenção com Beta = 0,02 aplicado no Modelo B.....	80
Figura 4.26 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a temperatura do reator no Modelo A.....	82

Figura 4.27 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a temperatura do reator no Modelo B.....	82
Figura 4.28 - Efeitos do parâmetro Beta sobre os grupos funcionais Em, Eg, Z, EG e M para o Modelo A.....	83
Figura 4.29 - Efeitos do parâmetro Beta sobre os grupos funcionais Em, Eg, Z, EG e M para o Modelo B.....	83
Figura 4.30 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a conversão, retenção, nas vazões Fv, L, nas frações molares dos comp. voláteis EG e M para o Modelo A.	84
Figura 4.31 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a conversão, retenção, nas vazões Fv, L e nas frações molares dos componentes voláteis EG e M para o Modelo B.....	84
Figura 4.32 - Aplicação do NMPC no reator experimental usando o modelo B.....	87
Figura 4.33 - Resultados dos controladores PID e PI aplicado no reator experimental.....	89
Figura 5.1 - Resultados em malha fechada com NMPC para o 1° caso.....	92
Figura 5.2 - Resultados em malha fechada com NMPC para o 2° caso.....	92
Figura 5.3 - Resultados em malha fechada com NMPC para o 3° caso.....	93
Figura 5.4 - Resultados em malha fechada com NMPC para o 4° caso.....	93
Figura 5.5 - Resultados em malha fechada com NMPC para o 5° caso.....	94
Figura 5.6 - Resultados em malha fechada com NMPC simples para o 3° caso...	96
Figura 5.7 - Resultados do NMPC com retroalimentação de estado para o 3° caso.....	96
Figura 5.8 - Resultados em malha fechada com NMPC simples para o 5° caso.....	96
Figura 5.9 - Resultados do NMPC com retroalimentação de estado para o 5° caso.....	96
Figura 5.10 - Resultados do NMPC com retroalimentação de estado aplicado no reator experimental.....	99
Figura 5.11 - Resultados do NMPC com retroalimentação de estado aplicado no reator experimental para a 2° trajetória.....	101
Figura 5.12 - Resultados do controlador PID aplicado no reator experimental para a 2° trajetória.....	101

LISTA DE TABELAS

Tabela 2.1 - Representação das espécies químicas e estrutura molecular.....	12
Tabela 4.1 - Números de EDAs para os modelos complexo (M.C.) e Modelo A (M.A).....	48
Tabela 4.2 - Parâmetros do modelo com 1° ajuste (ao degrau).....	62
Tabela 4.3 - Parâmetros alterados no modelo com 2° ajuste (PRBS).....	62
Tabela 4.4 - Parâmetros obtidos para o modelo A com 3° ajuste (via estimação).....	66
Tabela 4.5 - Valores de DMQ's obtidos para o modelo A com 3° ajuste introduzindo atraso de 3 min.....	67
Tabela 4.6 - Valores de ISE e IAE obtidos do controlador NMPC com modelo A e B.....	87
Tabela 4.7 - Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC e PID.....	89
Tabela 5.1 - Casos com diferentes condições iniciais utilizados no modelo.....	91
Tabela 5.2 - Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC simples.....	94
Tabela 5.3 - Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC simples e NMPC com retroalimentação de estado.....	96
Tabela 5.4 - Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC simples, NMPC com retroalimentação de estado e PID.....	99
Tabela 5.5 - Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC com retroalimentação de estado e PID.....	102

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

ARMA	- Auto Regressive Moving Average Model
BHET	- Bi-hidroxietil tereftalato
CLP	- Controlador lógico programável
CSTR	- Reator contínuo de tanque agitado
DMQ	- Desvios médios quadrático
DMT	- Tereftalato de dimetila
DP	- Grau de polimerização
EDA	- Equações diferenciais e algébricas
ELV	- Equilíbrio líquido vapor
FANN	- Feedforward Model Artificial Neural Network
GPC	- Controle preditivo generalizado
I/O	- Entrada/saída
IAE	- Integral dos erros absolutos
ISE	- Integral dos erros ao quadrado
LMPC	- Controlador preditivo linear
MIMO	- Múltiplas entradas e múltiplas saída
MINLP	- Programação mista inteira não linear
MPC	- Modelo de controle preditivo
NARMAX	- Nonlinear autoregressive moving average with exogenous inputs
NARX	- Nonlinear Autoregressive exogenous
NLP	- Programação não linear
NMPC	- Controlador preditivo não linear
PET	- Poli(tereftalato de etileno)
PI	- Proporcional integral
PID	- Proporcional integral derivativo
PRBS	- Pseudo Random Binary Sequence
RAM	- Random Access Memory
RBF	- Radial Basis Function
rpm	- Rotações por minuto
SISO	- Uma entrada e uma saída
SQP	- Programação não linear seqüencial

SSP	- Polimerização em estado sólido
TPA	- Ácido tereftálico
VBA	- Visual Basic for Application
VM	- Variável manipulada

LISTA DE SÍMBOLOS

A	- Área da coluna de recheio (m)
A_{Cu}	- Área da resistência de cobre do reator (m ²).
$A_{inoxacima}$	- Área do inox da parte de cima do reator (m ²).
$A_{inoxbase}$	- Área da base de inox do reator (m ²).
$A_{inoxlateral}$	- Área do inox da parte lateral do reator (m ²).
a	- Área específica do recheio por volume de recheio (m ² /m ³)
ah	- Área hidráulica do recheio (m ²)
Beta	- Parâmetro da equação de Billet (min ⁻¹ . mol ⁻²)
Cp_{EG}	- Calor específico do componente EG (J/mol.K)
Cp_M	- Calor específico do componente M (J/mol.K)
Cp_{AC}	- Calor específico do ar da camisa (J/kg. K).
Cp_{Al}	- Calor específico do Alumínio (J/kg.K).
Cp_{Cu}	- Calor específico do cobre (J/kg.K).
$Cp_{EG,j}$	- Calor específico do EG da seção j da coluna de recheio (J/mol.K)
Cp_{inox}	- Calor específico do inox (J/kg.K).
$Cp_{M,j}$	- Calor específico do Metanol na seção j da coluna de recheio (J/mol.K)
Cp_r	- Calor específico da massa reacional (J/g.K)
$Cp_{re,j}$	- Calor específico do recheio na seção j da coluna de recheio (J/kg.K)
Cp_{agua}	- Calor específico da água de resfriamento da camisa do condensador parcial (J/g.K)
$\hat{d}(k)$	- Erro calculado como diferença entre as saídas do processo e do modelo interno no k .
d	- Diâmetro da coluna de recheio (m).
$e(k)$	- Vetor de erros entre as variáveis de saída e o “setpoint” nos instantes (k) .
$e(k-1)$	- Vetor de erros entre as variáveis de saída e o “setpoint” nos instantes $(k-1)$.
$e(k-2)$	- Vetor de erros entre as variáveis de saída e o “setpoint” nos instantes $(k-2)$.

$e_{(k-3)}$	- Vetor de erros entre as variáveis de saída e o “setpoint” nos instantes $(k-3)$.
EG	- Etilenoglicol.
E_g	- Grupos funcionais hidroxietil éster.
EG_j	- Número de moles de EG na seção j da coluna de recheio (mol/min).
EG_o	- Número de moles iniciais de Etilenoglicol .
EG_b	- Número de moles de Etilenoglicol que deixam o reator no instante t (mol).
E_m	- Grupos funcionais metil éster
$E_{m,o}$	- Número de moles iniciais de Tereftalato de Dimetila (mol).
e_{Al}	- Espessura da placa de Alumínio.
$e_{inoxbase}$	- Espessura do inox (base).
F_v	- Vazão molar de saída de vapor do reator (mol/min).
g	- Aceleração da gravidade (m/s^2)
h_{AC}	- Coeficiente de película do ar da camisa de resfriamento do reator ($W/m^2.K$).
h_{ar}	- Coeficiente de película do ar externo do reator ($W/m^2.K$).
$h_{EG,M}$	- Coeficiente de película da mistura EG e M na fase vapor ($W/m^2.K$)
$h_{m.r.}$	- Coeficiente de película da massa reacional ($W/m^2.K$).
H_{j-1}^l	- Entalpia na fase líquida na seção $j-1$ da coluna de recheio (J/mol).
H_j^v	- Entalpia na fase líquida na seção j da coluna de recheio (J/mol).
H_{j+1}^v	- Entalpia na fase vapor na seção $j+1$ da coluna de recheio (J/mol).
H_R^v	- Entalpia molar do vapor no reator (J/mol)
K_{EG}	- Constantes de equilíbrio líquido-vapor do EG
$K_{EG,j}$	- Constante de equilíbrio líquido-vapor do EG na seção j da coluna de recheio.
K_i	- Constantes das velocidades de reação (L/mol.min).
K_M	- Constantes de equilíbrio líquido-vapor do M.
$K_{M,j}$	- Constante de equilíbrio líquido-vapor do M na seção j da coluna de recheio.
k_{Al}	- Condutividade térmica do alumínio ($W/m.K$)
k_i	- Constantes de velocidade das reações.
k_{inox}	- Condutividade térmica do inox ($W/m.K$).

L	- Vazão molar de EG líquido da saída do reservatório (mol/min).
L_j	- Fluxo molar de líquido que deixa a seção j da coluna de recheio (mol/min).
L_{j-1}	- Fluxo molar de líquido que deixa a seção $j-1$ da coluna de recheio (mol/min).
L_N	- Fluxo molar de líquido da última seção da coluna de recheio (mol/min).
M	- Metanol
M	- Horizonte de controle.
M_j	- Número de moles de M na seção j da coluna de recheio (mol/min).
M_{Al}	- Massa do alumínio (kg).
M_b	- Número de moles do metanol que deixam o reator (mol).
M_{Cu}	- Massa do cobre (kg).
$M_{inoxcima,}$	- Massa do inox do compartimento de cima do reator (kg)
$M_{inoxlateral}$	- Massa do inox do compartimento base do reator (kg)
M_r	- Massa reacional (g).
$M_{re,j}$	- Massa do recheio em cada seção j da coluna de recheio (kg)
P	- Horizonte de Predição.
PM_{EG}	- Peso molecular do Etilenoglicol (g/mol).
PM_M	- Peso molecular do Metanol (g/mol).
$\overline{PM}_{m,j}$	- Peso molecular médio da mistura líquida calculada em cada seção j da coluna de recheio (g/mol)
Q	- Matriz de ponderação positiva definida da variável y .
$Q_{C,j}$	- Fluxo de calor na seção j da coluna de recheio (W/m ² .K).
$Q_{C,j}$	- Fluxo de retirada de calor na seção 1 da coluna de recheio (W)
Q_r	- Potência de aquecimento da resistência do reator (W)
Q_{AC}	- Vazão do ar da camisa do reator (l/min).
Q_w	- Vazão de água de resfriamento da camisa do condensador parcial (cm ³ /min).
R	- Matriz de ponderação positiva definida da variável u
S	- Matriz de ponderação positiva definida da variável Δu .
T_{AC}	- Temperatura do ar da camisa (K).
T_{Al}	- Temperatura do alumínio (K).
$T_{ar.ext}$	- Temperatura do ar externo (ambiente) (W/m ² .K).

T_{Cu}	- Temperatura do cobre (K).
T_d	- Constante derivativa (min).
T_I	- Constante de tempo integral (min/repetição).
$T_{inoxlateral}$	- Temperatura do inox na parede lateral do reator (m ²).
T_j	- Temperatura da seção j da coluna de recheio (K).
$T_{inoxbase}$	- Temperatura do inoxbase (K).
T_{ma}	- Temperatura do reator do modelo A (°C).
T_{ma-res}	- Temperatura da resistência do modelo A (°C).
T_{mb}	- Temperatura do reator do modelo B (°C).
T_{mb-res}	- Temperatura da resistência do modelo B (°C).
T_r	- Temperatura da massa reacional (reator) (K).
T_{ref}	- Temperatura de referência (K).
T_s	- Período de amostragem, em min;
T_{cp}	- Temperatura da camisa do condensador parcial (K).
T_{agua}	- Temperatura da água de resfriamento da camisa do condensador parcial (K).
u	- Vetor de variáveis de entrada (manipuladas) .
$u_{(k)}$	- Vetor de variável de entrada (manipulada) no tempo k .
$u_{(k+j k)}$	- Entrada $u_{(k+j)}$ calculada a partir das informações disponível no tempo k .
$u_{(k-1)}$	- Variável de entrada (manipulada) no instante $(k-1)$.
U_{EG}	- Retenção molar somente do EG (mol);
U_{g-A}	- Coeficiente global x área de troca térmica (W/K)
U_j	- Retenção molar na fase líquida da mistura de EG e M na seção j (mol).
U_M	- Retenção molar de metanol (mol).
u_{max}	- Vetor limite máximo das entradas.
u_{min}	- Vetor limite mínimo das entradas.
$u_{s(k)}$	- Trajetória de referência da variável u .
V	- Volume da massa reacional do reator (L).
V_{cp}	- Volume da camisa do condensador parcial (cm ³).
V_M	- Volume molar do Metanol (l/mol).
V_{E_m}	- Volume molar do Tereftalato de dimetila (l/mol).
V_{AC}	- Volume de ar da camisa do reator (L).

V_j	- Fluxo molar de vapor que deixa a seção j da coluna de recheio (mol/min).
V_{j+1}	- Fluxo molar de vapor que deixa a seção $j+1$ da coluna de recheio (mol/min).
x	- Vetor de variáveis de estado.
$x_{(k)}$	- Vetor de variáveis de estado no tempo k .
$x_{(k+1)}$	- Vetor de variáveis de estado no tempo $k+1$.
$x_{EG,j}$	- Fração molar de EG na fase líquida da seção j da coluna de recheio.
$x_{EG,j-1}$	- Fração molar de EG na fase líquida da seção $j-1$ da coluna de recheio.
$x_{EG,N}$	- Fração molar do EG na fase líquida da última seção da coluna de recheio.
$x_{M,j}$	- Fração molar de M na fase líquida da seção j da coluna de recheio.
$x_{M,j-1}$	- Fração molar de M na fase líquida da seção $j-1$ da coluna de recheio.
$x_{M,N}$	- Fração molar do M na fase líquida da última seção da coluna de recheio.
y	- Vetor de variáveis de saídas (controladas).
$y_{(k)}$	- Vetor de saídas (controladas) no tempo k .
$y_{(k+j k)}$	- Saída $y_{(k+j)}$ também no tempo k .
$y_{(k k)}$	- Vetor de saídas estimadas do modelo não linear.
y_{EG}	- Fração molar do EG na fase vapor do reator.
$y_{EG,j}$	- Fração molar de EG na fase vapor da seção j da coluna de recheio.
$y_{EG,j+1}$	- Fração molar de EG na fase vapor da seção $j+1$ da coluna de recheio.
y_M	- Fração molar do M na fase vapor do reator.
$y_{M,j}$	- Fração molar de M na fase vapor da seção j da coluna de recheio.
$y_{M,j+1}$	- Fração molar de M na fase vapor da seção $j+1$ da coluna de recheio.
y_{max}	- Vetor de limite máximo das variáveis de saída.
y_{min}	- Vetor de limite mínimo das variáveis de saída.
$y_{s(k)}$	- Trajetória de referência da variável y .
y_{sp}	- "Setpoint" das variáveis de saída;
$y_{EG,j}^*$	- Fração molar (fase vapor) de EG em equilíbrio da seção j da coluna de recheio.
$y_{M,j}^*$	- Fração molar (fase vapor) de Metanol em equilíbrio da seção j da coluna de recheio.
Z	- Grupos funcionais ligações diésteres

Z_a - Altura de cada estágio da coluna de recheio (m).

Símbolos Gregos

ΔH_{EG}^{vap} - Calor de vaporização do EG (J/mol)

ΔH_M^{vap} - Calor de vaporização do M (J/mol)

$\Delta H_{r,j}$ - Calor de reação para cada reação j (cal/mol).

$\Delta u_{(k+j|k)}$ - Vetor de incremento das variáveis manipuladas nos instantes $(k+j)$.

Δu_{max} - Vetor de incremento máximo das entradas.

Δu_{min} - Vetor de incremento mínimo das entradas.

η_j^ℓ - Viscosidade da mistura líquida na seção j da coluna de recheio (kg/m.s)

ρ_j^ℓ - Densidade da mistura líquida na seção j da coluna de recheio (kg/m³)

ρ_{AC} - Densidade do ar da camisa do reator (kg/m³).

ρ_r - Densidade do recheio (kg/m³).

ρ_{agua} - Densidade da água de resfriamento da camisa do condensador parcial (g/cm³)

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO.....	1
1.1	Motivação.....	1
1.2	Objetivo.....	3
1.3	Apresentação da estrutura da tese.....	3
2.1	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA.....	5
2.2	Processo de obtenção do PET.....	5
2.2.1	Introdução.....	5
2.2.2	Processo industrial da obtenção do pré-polímero BHET.....	8
2.3	Modelagem cinética das reações de policondensação e simplificações.....	10
2.4	Viabilidade das trajetórias em processos de policondensação.....	13
2.5	Problemas de controle frente às limitações de transferência de calor....	14
2.6	Controle preditivo não linear (NMPC).....	15
2.6.1	Introdução.....	15
2.6.2	Modelagem do processo.....	18
2.7	Aplicação experimental usando controlador NMPC em reatores.....	20
3	DETALHES DO REATOR EXPERIMENTAL E IMPLEMEN- TAÇÃO DO CONTROLADOR NMPC.....	23
3.1	Apresentação do reator experimental e seus periféricos.....	23
3.2	Apresentação do Modelo Dinâmico de policondensação do processo PET.....	26
3.3	Apresentação do controlador preditivo não linear com realimentação envolvendo restrições.....	37
3.3.1	Introdução.....	37
3.3.2	Restrições na formulação NMPC.....	41
3.4	Implementação do controlador NMPC no reator experimental.....	42
3.4.1	Sistema de aquisição de dados.....	42
4	PROPOSIÇÃO DE MODELOS SIMPLIFICADOS, ESTUDO DE VIABILIDADE DE TRAJETÓRIAS E APLICAÇÃO DO CONTROLADOR NMPC AO REATOR EXPERIMENTAL.....	46

4.1	Proposta do Modelo A.....	46
4.1.1	Modelagem do reator.....	47
4.1.2	Modelagem do reservatório.....	49
4.2	Estudos da não viabilidade de trajetórias em simulação usando o modelo simplificado em malha fechada.....	50
4.2.1	Objetivo.....	50
4.2.2	Efeitos do parâmetro Beta.....	51
4.3	Apresentação das estratégias de modelagem e implementação do NMPC em um reator experimental sem reação química.....	54
4.3.1	Introdução.....	54
4.3.2	Ajuste do modelo A com os dados do reator de laboratório.....	54
4.3.3	1° caso de implementação do NMPC no reator experimental usando modelo ajustado (1° ajuste do modelo A).....	55
4.3.4	2° caso de implementação do controlador NMPC.....	57
4.4	Ajuste do Modelo A aplicando uma perturbação PRBS na variável Q_r do reator experimental.....	59
4.5	Abordagem do controlador NMPC usando programação MINLP.....	63
4.5.1	Aplicação do controlador NMPC com programação MINLP ao reator experimental.....	63
4.5.1.1	Modelo com 2° ajuste.....	63
4.5.1.2	Modelo com 3° ajuste (via estimação).....	64
4.6	Aplicação do controlador NMPC com programação MINLP ao reator experimental com reação química.....	69
4.6.1	Estudo do reator experimental em malha aberta com reação química.....	69
4.6.1.1	Introdução à operação do reator.....	69
4.6.2	Estudo experimental em malha aberta do reator experimental com reação química.....	70
4.6.2.1	Ensaio para diferentes valores de Q_r	70
4.6.2.2	Ensaio para diferentes valores de Q_w	72
4.6.3	Aplicação do controlador NMPC com programação MINLP (item 4.5) ao reator experimental com reação química.....	74
4.6.3.1	Controlador NMPC usando o modelo A com 3° ajuste	75

4.7	Proposição de um novo modelo sem saída de metanol: O modelo B.....	78
4.8	Reavaliação dos estudos de viabilidade de trajetória comparando os modelos A e B em malha fechada.....	80
4.9	Controlador NMPC com o modelo B.....	86
4.91	Comparação do controlador NMPC com controlador PID do IFIX aplicado a um reator experimental.....	87
5	ESTUDO COM PERTURBAÇÃO NOS ESTADOS INICIAIS DO MODELO B E APLICAÇÃO EXPERIMENTAL DO CONTROLADOR NMPC COM RETROLIMENTAÇÃO DE ESTADO.....	90
5.1	Perturbação nos estados iniciais do modelo B.....	90
5.2	Simulação usando o controlador NMPC com retroalimentação de estado.....	95
5.3	Validação do controlador NMPC com retroalimentação de estado ao reator experimental.....	97
5.3.1	Reator experimental em malha fechada com a 1° Trajetória.....	97
5.3.2	Reator experimental em malha fechada com a 2° trajetória.....	100
5.4	Conclusões.....	102
6	CONCLUSÕES E PROPOSTAS PARA CONTINUAÇÃO DO TRABALHO.....	103
6.1	Conclusões finais.....	103
6.2	Propostas para continuação do trabalho.....	106
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	108
	ANEXO A: DEDUÇÃO DA EQUAÇÃO PARA CÁLCULO DA VAZÃO DE VAPOR, F_v NA SAÍDA DO REATOR.....	118
	ANEXO B: DEDUÇÃO DA EQUAÇÃO DE BALANÇO DE ENERGIA DO REATOR.....	119
	ANEXO C: DEDUÇÃO DA EQUAÇÃO PARA O CÁLCULO DA VAZÃO DE VAPOR V_j PARA CADA SEÇÃO J DA COLUNA DE	

RECHEIO.....	123
ANEXO D: DEDUÇÃO DA EQUAÇÃO DE BALANÇO DE ENERGIA DA COLUNA DE RECHEIO.....	124
ANEXO E: TABELA DE PARÂMETRO DO MODELO.....	126

CAPÍTULO 1

1 INTRODUÇÃO

1.1 Motivação

O Politereftalato de etileno (PET) é um poliéster obtido através de reação de condensação, sendo um polímero largamente empregado na indústria têxtil, de embalagens alimentícias e revestimentos. Por ter uma excelente resistência mecânica, as aplicações do PET estendem-se também ao campo da engenharia. O consumo deste polímero tem aumentado para a produção de garrafas de refrigerantes através de novas tecnologias de produção. Ele representa praticamente a metade da produção total de fibras sintéticas, sendo a segunda fibra mais produzida no mundo, ficando atrás apenas do algodão (Giordano e Campos, 2006). O consumo deste polímero está em forte ascensão, atingiu-se na última década um índice de crescimento acima de 2.200% (Oliveira, 2006).

O processo de policondensação em batelada utilizado nesta tese é a reação do Tereftalato de dimetila (DMT) e Etileno glicol (EG), produzindo metanol (M) e um pré-polímero éster conhecido como Tereftalato de dihidroxietila (BHET). A remoção do metanol favorece o avanço da reação para obter um alto grau de conversão. Reatores que operam neste regime são conhecidos como semibatelada. A operação de reatores no modo semibatelada é muito comum na prática da engenharia da reação de polímeros (Richards e Congalidis, 2006). Para alguns autores, os processos que envolvem reação e separação em um único sistema podem ser classificados também como coluna de destilação reativa (Kumar e Daoutidis, 1999; Bisowarno et al., 2003; Kawathekar e Riggs, 2007).

Em determinadas etapas, a reação e a separação dos produtos voláteis ocorrem de forma simultânea, ocasionando interações importante entre as variáveis de processo. Estas interações fazem com que certos controladores tradicionais, do tipo PI e PID, possam apresentar um baixo desempenho, devido à alta não linearidade deste tipo de

processo. Como consequência, o crescimento do polímero é afetado comprometendo a qualidade final do produto.

Os requisitos importantes para um processo de controle segundo diversos autores (Friedrich e Perne, 1995; Ogunnaike, 1996; Bonvin 1998 e Bonvin et al. 2006) são: a segurança, a qualidade do produto, a produtividade e a facilidade de aumento de escala (“scale-up”). Para atingir estes objetivos, a supervisão e o controle da operação do processo em batelada são de grande importância (Ruppen et al, 1997).

As dificuldades de controle encontradas no processo de policondensação fazem com que a operação torne-se semi-artesanal, sendo que as principais decisões são deixadas a cargo do operador, sujeito a um risco operacional.

Dificuldades de controle foram observadas por Noriega (2001) em seus experimentos. Outras dificuldades encontradas nos processos em batelada são a ausência de estados estacionários (característica natural de um reator em batelada) e a incerteza do modelo matemático, o que faz com que o controle de reatores de polimerização seja um desafio interessante (Rho et al, 1998).

A construção do modelo matemático é um problema importante, pois do ponto de vista prático, o modelo está sempre sujeito a erros de predição devido a várias fontes de variação tais como impurezas na matéria prima, comprometendo a qualidade do produto final (Kaistha et al, 2003). Certas informações importantes do processo, que permitem avaliar parâmetros de modelo, nem sempre estão disponíveis na literatura, o que torna um desafio obter um modelo fenomenológico representativo do processo.

Processos de policondensação que envolvem a separação do condensado (são pequenas moléculas produzidas na reação de policondensação do PET, ex: água ou metanol) apresentam um maior grau de não-linearidade quando atingem o equilíbrio líquido-vapor e surgem as interações entre as variáveis manipuladas causando problemas de controle. Portanto, para este tipo de processo os controladores preditivos lineares (LMPC) e os tradicionais PI, PID podem apresentar um desempenho pobre (Pottmann e Seborg, 1996). Em função das dificuldades citadas, justificam-se os estudos

com aplicações experimentais de NMPC (Henson, 1998; Xaumier et al., 2002; Nagy et al., 2007).

1.2 Objetivo

Este trabalho tem como objetivo a proposição, implementação e validação de estratégias avançadas de controle aplicadas a um reator de policondensação operando em batelada e em escala laboratorial. Nesta proposição são levadas em conta a segurança, a qualidade do produto, a facilidade de aumento de escala e a produtividade. É também objetivo desta tese, o estudo de viabilidade de trajetória, buscando entender algumas dificuldades encontradas no controle do reator em particular.

1.3 Apresentação da estrutura da tese.

Além deste capítulo, as propostas nesta tese são apresentadas a seguir:

Capítulo 2: Neste capítulo, apresenta-se uma revisão bibliográfica dos assuntos abordados nesta tese. Primeiramente, são apresentados: o processo de obtenção do PET, a obtenção industrial do polímero BHET e a modelagem cinética das reações de policondensação. São discutidos a viabilidade de trajetórias e os problemas de controle frente a limitações de transferência de calor. Por último, são apresentados o controle preditivo não linear, as estratégias de modelagem e as aplicações experimentais usando o controlador NMPC em reatores.

Capítulo 3: Neste capítulo é apresentada em detalhes a unidade experimental e seus periféricos. É descrito o modelo complexo de policondensação de PET obtido por Teixeira (2003). Em seguida, são apresentadas a abordagem e a implementação do controlador NMPC a um reator experimental através de um “software” SCADA IFIX 2.20.

Capítulo 4: Neste capítulo são propostos dois modelos simplificados para o sistema de policondensação PET (Politereftalato de etileno). No início pretendia-se propor apenas um modelo simplificado, mas no decorrer dos experimentos verificou-se a sua limitação na capacidade de fazer previsões quando se envolvem reações químicas. Portanto, este primeiro modelo foi denominado de modelo A e o modelo que será apresentado posteriormente será denominado de B. Cada modelo serviu separadamente de modelo interno para o controlador NMPC.

Os estudos de viabilidade foram realizados usando o modelo A (teórico) proposto e depois foi ajustado com os dados experimentais com perturbação ao degrau e PRBS.

São apresentadas as implementações do controlador NMPC e a proposta de NMPC com MINLP. As estratégias propostas para o controlador NMPC foram aplicadas ao reator experimental e foram comparados com um controlador PID. Por último, após os ajustes nos modelos no decorrer dos experimentos, os estudos de viabilidade de trajetórias foram reavaliados para cada modelo e são comparados com os estudos de viabilidade do modelo A (teórico) no início deste capítulo (item 4.2).

Capítulo 5: São apresentados os resultados de estudos em malha fechada com diferentes perturbações nos estados iniciais do modelo B. Para fechar a malha, foi usado o controlador NMPC do capítulo 4 (denominado de controlador NMPC simples) e o seu desempenho foi comparado com outros controladores NMPC com retroalimentação de estado e PID. Depois, foram realizadas as aplicações experimentais com trajetórias diferentes usando o controlador NMPC com retroalimentação de estado e o seu desempenho foi comparado com o controlador PID.

Capítulo 6: Neste capítulo são apresentadas as conclusões e propostas para a continuação do trabalho.

CAPÍTULO 2

2.1 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Neste capítulo, apresenta-se uma revisão bibliográfica dos assuntos abordados nesta tese. Primeiramente, é apresentado o processo de obtenção do PET, a obtenção industrial do polímero BHET e a modelagem cinética das reações de policondensação. São discutidos a viabilidade de trajetórias e os problemas de controle frente a limitações de transferência de calor. Por último, são apresentados o controle preditivo não linear, as estratégias de modelagem e as aplicações experimentais usando o controlador NMPC em reatores.

2.2 Processo de obtenção do PET.

2.2.1 Introdução

O Poli(tereftalato de etileno), conhecido no mercado pela sigla PET (de “PolyEthylene Terephthalate”), é classificado como um polímero de policondensação. A sua estrutura molecular de repetição é dada pela figura 2.1:

Figura 2.1 – Estrutura de repetição molecular do PET.

O PET é obtido em 4 estágios: (1°) transesterificação ou esterificação direta, (2°) a pré-polimerização, (3°) polimerização em estado fundido e (4°) policondensação no estado sólido (SSP) (Ravindranath e Mashelkar, 1986). Vários autores denominam o processo de obtenção do PET em três estágios (Jacobsen e Ray, 1992; Samant e Ng, 1999; Weitão et al., 2001; Bhaskar et al., 2001).

No primeiro estágio, há duas rotas de reação para obtenção do bis-hidroxietil tereftalato (BHET) e seus oligômeros: (a) transesterificação do dimetil tereftalato (DMT) e (b) esterificação direta do ácido tereftálico (TPA).

A transesterificação do dimetil tereftalato (DMT) é realizada com etilenoglicol (EG), produzindo metanol (M), BHET e seus oligômeros, conforme a figura 2.2.

Figura 2.2 - Equação da reação do DMT e EG para produção de M, BHET e seus oligômeros.

Na segunda rota, o bi-hidroxietil tereftalato (BHET) é obtido através da reação do ácido tereftálico (TPA) com etilenoglicol, produzindo água como condensado e está representada na figura 2.3.

Figura 2.3 - Equação da reação do TPA e EG para produção de Água, BHET e seus oligômeros.

Comparando as duas rotas, a esterificação direta do TPA apresenta vantagens e desvantagens sobre a rota de transesterificação do DMT. Os autores Gupta e Kumar (1987) relatam dificuldades de purificação do TPA devido à sua solubilidade ser muito

limitada em solventes industriais. No entanto, com a tecnologia moderna, esta rota tem ganhado importância (Gupta e Kumar, 1987) chegando a atingir uma pureza de 99,9 % com a técnica de cristalização fracionada (Chenier, 1992). Na rota de síntese baseada no TPA consegue-se uma alta produtividade, consumindo uma quantidade menor de catalisador, com a vantagem de obter um polímero final mais puro. Na esterificação do TPA, é necessária alta temperatura (240 a 260°C) a pressões de 3 a 5 atm. Enquanto no processo de transesterificação do DMT a temperatura é de 140 a 220 °C, com pressão de 1 atm, sem a necessidade de operar em condições de elevadas temperatura e pressão. Para operar em pressão atmosférica é necessário utilizar catalisador, enquanto que na rota de esterificação direta, devidos às temperatura e pressão elevadas que são necessárias fazem com que o ácido tereftálico (TPA) ionize e catalise ele mesmo para a formação do BHET.

No primeiro estágio, o grau de polimerização (DP) obtido é de 1,5 a 4,0 nas duas rotas de reação (Ravindranath e Mashelkar, 1986).

No segundo estágio, o pré-polímero BHET e seus oligômeros são submetidos a temperaturas altas na faixa de 250 a 280 °C, atingindo um grau de polimerização de 20 a 30 com viscosidade de até 5 Pa.s.

No terceiro estágio, conhecido como estágio da *policondensação em estado fundido*, o pré-polímero obtido do segundo estágio é polimerizado a temperatura mais alta na faixa de 280 a 290 °C, sob vácuo de 0,5 a 1 torr. Este processo é realizado em reator de disco rotativo, onde o EG e o condensado (água ou metanol) são removidos continuamente (Ravindranath e Mashelkar, 1986, Gupta e Kumar, 1987; Weitao et al., 2001) para favorecer o crescimento da cadeia polimérica do PET. A figura 2.4 mostra a equação de formação do PET.

Figura 2.4 - Equação de formação do PET e Etilenoglicol.

O grau de polimerização nesta fase é de 70 a 100 com uma viscosidade de até 1000 Pa.s e o peso molecular numérico médio fica em torno de 22000 g/mol. Com estas características, o polímero PET é matéria-prima na fabricação de fios têxteis.

O último estágio é denominado de policondensação em estado sólido (SSP), o PET do 3º estágio (fundido) é solidificado. Nesta fase o polímero é obtido na forma de chips ou pequenas partículas chamadas de “pellets” que são destinados para moldagem.

2.2.2 Processo industrial da obtenção do pré polímero BHET

A obtenção do BHET ocorre segundo as duas rotas que foram apresentadas. Industrialmente, o BHET é produzido em reatores de batelada ou em reatores de tanque agitado de fluxo contínuo (CSTR). A vantagem do processo contínuo é a economia de energia, mas por outro lado o processo semibatelada oferece uma vantagem da flexibilidade ao operar em pequenas escalas (Gupta e Kumar, 1987; Richards e Congalidis, 2006). Por motivos de segurança, foi escolhida a rota de transesterificação para estudo experimental, pois é possível alcançar alta conversão à temperatura de 200°C a pressão atmosférica, oferecendo nestas condições menos risco na operação.

O processo de esterificação exige operar em alta temperatura e pressão. Estas condições favorecem a solubilidade do ácido tereftálico (TPA) no EG. Abaixo destas condições, a solubilidade do TPA é muito limitada tornando-se um grande problema operacional (Noriega, 2001).

A figura 2.5 mostra um esquema de reação de transesterificação para obtenção do BHET. O DMT é fundido em um tanque (H), como mostrado na figura 2.5, e misturado no reator em batelada com EG na proporção de 1:2 (M), (Gupta e Kumar, 1987; Shin et al., 1999). A reação é conduzida à temperatura de 140°C a 200°C a pressão atmosférica (E). Durante a reação do DMT com o EG, formam-se como produtos oligômeros, dentre os quais o BHET, e metanol. O metanol é produzido continuamente e evaporado junto com o EG. A separação da mistura de M e EG é realizada em uma coluna de destilação (D), de onde o EG é reciclado para o reator.

Figura 2.5 – Esquema da reação de transesterificação para obtenção do BHET (Gupta e Kumar, 1987)

O uso do catalisador é muito comum na reação de transesterificação. O acetato de zinco é muito usado na indústria e é o mais eficiente (Gupta e Kumar, 1987; Choi e Khan, 1988; Lei e Choi, 1993; Shin et al., 1999). Os autores Gupta e Kumar (1986) descreveram uma relação de vários catalisadores, começando pelo mais eficiente nas taxas de formação de metanol: acetato de zinco, acetato de chumbo, acetato de cádmio, óxido de chumbo, sulfato de zinco e acetato de cálcio. A opção pelo acetato de zinco foi devido à boa solubilidade e também pela eficiência catalítica nas reações de transesterificação.

2.3 Modelagem cinética das reações de policondensação e simplificações.

São muitos os trabalhos publicados sobre a modelagem de reatores de policondensação. Na literatura são encontradas duas formas de modelagem cinéticas de policondensação, a modelagem *por grupos funcionais* e a modelagem *por espécies moleculares*. A primeira leva em conta as reações, considerando apenas os grupos funcionais terminais de cada espécie química, enquanto na segunda, todas as espécies são consideradas, isto é, os monômeros, os polímeros, os oligômeros e o componente volátil. Esta última apresenta a vantagem de calcular a distribuição da composição do produto da reação (monômeros não reagidos, oligômeros e polímeros) (Lei e Choi, 1993; Casas Liza, 2000). Por outro lado, a vantagem da *modelagem por grupos funcionais* é que pode ser representada por um número limitado de equações diferenciais, que em geral são de fácil resolução (Casas Liza, 2000).

A maioria dos trabalhos concentra-se na *modelagem cinética por grupos funcionais* (Ravindranath e Mashelkar 1981 e 1982; Gupta e Kumar, 1987; Choi e Khan, 1988; Jacobsen e Ray, 1992; Shin et al., 1999; Bhaskar et al., 2001). Nestes trabalhos, além das reações principais, também são consideradas as reações secundárias que são a formação de acetaldeídos (A), dietilenoglicol (D), grupos ésteres vinílicos e água.

A modelagem cinética por grupos funcionais que descreve a fase da transesterificação (Guptar e Kumar, 1987) é representada por:

a) Reações principais:

Intercâmbio de éster

Transesterificação

Policondensação

b) Reações secundárias:

Formação de acetaldeído.

Formação do dietilenoglicol

Formação de água

Formação de grupo diéster

Onde cada espécie químicas e estrutura molecular estão representadas na tabela

Tabela 2.1 – Representação das espécies químicas e estrutura molecular

Espécies químicas	Estrutura molecular
E_m
E_g
E_c
E_v
E_D
Z
A	CH_3CHO
D	$OHCH_2CH_2OCH_2CH_2OH$
M	CH_3OH
W	H_2O
EG	$OHCH_2CH_2OH$

Nas reações principais, na primeira reação ocorre a formação de grupos hidroxietil (E_g) e Metanol (M). Na segunda, há formação de grupo diésteres (Z) e (M). Na terceira, os grupos hidroxietil se juntam para a formação dos grupos diésteres e etilenoglicol (EG).

Visando simplificar o modelo cinético das reações representado acima, alguns autores (Samant e Ng, 1999; Teixeira, 2003), levaram em conta apenas as reações principais (intercâmbio de éster, transesterificação e policondensação).

Samant e Ng (1999) não consideraram as reações secundárias em seus estudos de projeto de reatores, porque não há informações confiáveis sobre a velocidade destas reações e dos parâmetros cinéticos. No estudo de simulação e controle de um modelo de reator de policondensação, Teixeira (2003) assume que as reações secundárias não têm efeito significativo do ponto de vista macroscópico.

2.4 Viabilidade das trajetórias em processos de policondensação.

Há vários trabalhos em que se aplicam técnicas de otimização e controle a reatores de policondensação. No entanto, são poucos os trabalhos sobre a viabilidade de trajetórias. Casas Liza (2000) desenvolveu um modelo matemático de um reator de policondensação a fim determinar as trajetórias viáveis para as variáveis manipuladas. Neste trabalho, ele utilizou o projeto dinâmico (Pantelides, 1988) que permite calcular valores das variáveis manipuladas necessários para obter uma determinada trajetória das variáveis controladas. Nos seus estudos de sensibilidade sobre a variável de aquecimento usando o projeto dinâmico, não obteve registro de trajetórias inviáveis.

Carrillo Le Roux (2001) desenvolveu metodologias para projetos de processos de policondensação em batelada, que permitem gerar processos viáveis. O trabalho foi executado em um reator experimental de 1,25 litro e foram encontrados vários problemas de reprodutibilidade decorrente da aplicação de trajetórias inviáveis e que a inviabilidade de trajetórias depende do equipamento em particular onde se processa a batelada. Estes problemas causam dificuldade no controle das temperaturas do reator e do condensador parcial (Carrillo Le Roux e Casas Liza, 2001).

Shin et al. (1999) apresentaram um modelo de reação de DMT e EG com separação em Flash, para gerar trajetórias ótimas de temperaturas. São consideradas três restrições no projeto de trajetória ótima: a derivada da temperatura; a concentração máxima de dietilenoglicol (indesejado); e o indicador do fenômeno “flooding”

(afogamento). O fenômeno de “flooding” ocorre quando o reagente DMT se solidifica na coluna. O DMT por ter baixa volatilidade, pode ser arrastado pelos componentes voláteis para a coluna, inviabilizando o processo de transesterificação. No trabalho de Shin et al. (1999) considera-se que a separação dos componentes voláteis é ideal e assume-se que toda água, metanol e acetaldeído são removidos, sendo que apenas o EG retorna para o reator. Shin et al. (1999) realizaram os experimentos com as trajetórias ótimas e constataram problema no controle de temperatura da coluna que variou de 70 a 100 °C. As trajetórias ótimas de Shin et al. (1999) foram testadas por Carrillo Le Roux e Casas Liza (2001), em seus ensaios elas foram consideradas inviáveis.

2.5 Problemas de controle frente às limitações de transferência de calor

Os trabalhos que abordam os problemas de controle devido a limitações de transferência de calor não são muitos. Erdogan et al. (2002) estudaram experimentalmente o efeito das condições operacionais em um reator de polimerização controlado. O sistema estudado foi um reator semibatelada de estireno, onde a temperatura foi controlada por um PID que manipulou o aquecimento do reator.

Eles realizaram diversos estudos envolvendo a conversão da reação em função de diferentes velocidades de agitação (rpm), viscosidade e coeficientes de transferência de calor e constataram que há dificuldade no controle de temperatura devido aos efeitos da resistência à transferência de calor, o que pode influenciar consideravelmente a qualidade do polímero. Eles concluíram que o aumento da agitação melhora a transferência de calor entre a camisa de aquecimento e o reator obtendo um controle mais eficiente do processo.

Nos estudos realizados em reatores de policondensação em batelada, Carrillo Le Roux (2001) menciona os problemas de controle com aquecimento por resistência elétrica. Nesse trabalho, há relatos de que uma das principais dificuldades é de ordem técnica e tem consequências importantes na velocidade de transferência de calor entre a resistência e o meio reacional. Foi realizada uma perturbação ao degrau de 10% na potência de aquecimento e constatou-se uma resposta extremante lenta. Processos com

este comportamento comprometem o desempenho do controlador do tipo PID e conseqüentemente a qualidade do produto final.

Crowley e Choi (1996) realizaram um estudo experimental e teórico em um reator de batelada de polimerização de metacrilato de metila em solução. Nesse estudo o objetivo foi controlar a temperatura do reator com o mínimo sobre-sinal (“overshoot”) do valor objetivo (“setpoint”), minimizando o tempo de batelada. O sobre-sinal da temperatura é indesejável neste tipo de processo, porque pode-se obter polímeros indesejáveis, o que incide na qualidade do produto final. Eles utilizaram um controlador PI para controlar a temperatura da reação e, posteriormente, um PID para estimar o coeficiente global de transferência de calor por meio de um filtro de Kalman. As dificuldades encontradas no controle de temperatura neste trabalho são devidas ao fato da reação de polimerização ser altamente não linear e exotérmica e também devido à necessidade de utilização do aquecimento rápido para minimizar o tempo de batelada, o que acaba produzindo um sobre-sinal indesejável e oscilações na temperatura do processo. Crowley e Choi (1996) sugerem o uso de um controlador preditivo (QMDC) como estratégia segura no controle de temperatura.

2.6 Controle preditivo não linear (NMPC).

2.6.1 Introdução

Os processos em batelada são comuns na indústria química (Loeblein et al., 1997; Bonvin, 1998; Nagy e Braatz, 2003, Cerrillo e MacGregor, 2004; Bonvin, Srinivasan e Hunkeler, 2006). As vantagens dos processos em batelada são a capacidade de produzir diversos produtos em pequenos volumes e com altos valores agregados. Por motivos econômicos e ambientais, a necessidade de otimização e controle tem ganhado importância nos processos químicos (Bequette, 1991; Dittmar, Ogonowski e Damert, 1991; Henson, 1998; Morari e Lee, 1999). Porém, as deficiências no controle por controladores convencionais do tipo PI e PID, comprometem a operação dos reatores em batelada, sendo muitas vezes as principais decisões deixadas a cargo de um operador (Bonvin, 1998).

Estas dificuldades fazem parte da natureza dos reatores em batelada que são, por exemplo:

-*Sistema multivariável*, quando o sistema opera com múltiplas variáveis de entrada e de saída (MIMO). Caso o sistema entre em regime de equilíbrio líquido-vapor (ELV), há fortes interações entre as variáveis manipuladas, que é muito comum em reatores de policondensação. Um exemplo de processo de produção de Nylon 6,6 é apresentado por Russell et al. (1998) em que surgem dificuldades na aplicação do controlador PID para acompanhamento (“tracking”), devido a que várias etapas distintas de operação se sucedem. Neste processo, o sistema passa por uma etapa em que é fechado, depois por uma etapa em que há equilíbrio líquido vapor e, finalmente, por uma etapa controlada pela transferência de massa.

-*Não Linearidade*: muitos processos industriais importantes apresentam um elevado grau de não-linearidade, por exemplo, colunas de destilação de alta pureza, reações químicas altamente exotérmicas, neutralização de pH, processos de polimerização e reatores em batelada. Nestes processos, a aplicação do algoritmo LMPC (MPC baseado em modelo linear) pode apresentar um desempenho limitado (Wright e Edgar, 1994; Ogunnaike, 1996, Seki et al., 2001).

-*Pares variável controlada/manipulada*: outra dificuldade surge em sistemas com várias configurações de aquecimento-resfriamento, que é muito comum na indústria (Louleh et al., 1999). Por exemplo, no trabalho de Louleh et al. (1999) o processo de aquecimento consistiu de dois fluidos (vapor ou etilenoglicol/Água) e o de resfriamento de duas possibilidades também (Água fria ou ar). A flexibilidade na escolha do sistema de aquecimento/resfriamento para reatores de batelada multiproduto são obstáculos para um controlador convencional PID. Geralmente, o reator é projetado para operar com várias reações e com diferentes operações, o que exige frequentes re-sintonias do PID (Louleh et al., 1999). Estas dificuldades estão associadas à escolha dos pares variável controlada/manipulada (Sorensen e Skogestad, 1994; Sorensen et al., 1996; Russel et al., 1998).

-Restrições de processo: operar perto das restrições oferece vantagens econômicas para o processo. Alguns autores relatam a dificuldade do controlador PID em operar nestas condições. Lee et al. (1996) relatam em seu trabalho os excessos de movimentos da variável manipulada (VM) que são provocados pelo controlador PID sintonizado, ocasionando sobre-sinais no processo.

O controle preditivo tem a capacidade de prevenir a violação das entradas e saídas com restrições no processo (Qin e Badgwell, 2003).

Portanto, a técnica NMPC pode ser considerada uma estratégia adaptada às condições acima. A abordagem e os detalhes de implementação da técnica NMPC com restrições encontram-se no capítulo 3 desta tese.

2.6.2 Modelagem do processo

Na implementação do controle preditivo é necessário um modelo que represente o processo, ou parte. No entanto para que o controlador NMPC tenha um bom desempenho, o modelo deve ser compatível com o processo (Kiparissides, 1996; Nagy et al., 2007). Obter um modelo de processo torna-se um desafio complexo (Zhan e Ishida, 1997), porque as soluções de modelagem não são padronizadas devido à diversidade de processos, produtos e tipos de equipamentos (Dittmar, Ogonowski e Damert, 1991). Neste caso, são apresentados três tipos de modelos usados na formulação do controlador NMPC:

-Modelos empíricos: que são obtidos de dados reais do processo (planta) e são representados na forma de entradas e saídas como, por exemplo, o NARX, modelos de Volterra, Hammerstein e redes neurais e os não lineares que são representados em espaço de estado. Diversos artigos com aplicação de NMPC com modelos empíricos aparecem na literatura: polinomial NARMAX (Srinivas e Arkun, 1997; Rho et al., 1998; Ozkan et al., 2001), Volterra (Maner et al., 1996), redes neurais (Su e MacAvoy, 1997; Krothapally et al., 1999; Akeşson e Toivonem, 2006), Hammerstein (Fruzzetti et al., 1997), Wiener (Chu e Seborg, 1994; Cervantes et al., 2003) e em espaço de estado (Balasubramhanya e Doyle III, 2000; Na e Rhee, 2002). Como foi visto, os modelos empíricos são baseados exclusivamente em dados obtidos do processo e geralmente são ajustados entre os pontos de um conjunto de dados de forma que não se pode esperar uma precisão em suas previsões (Qin e Badgwell, 2003).

-Modelos fundamentais: são constituídos de equações de balanço. As equações são obtidas com base no conhecimento do processo e correspondem a balanços de massa, energia e momento. As aplicações de NMPC usando o modelo fundamental aparecem em vários trabalhos (Patwardhan e Edgar, 1993; Wright e Edgar, 1994; Santos et al., 2001; Biagiola e Figueroa, 2004; Carrilo Le Roux e Teixeira, 2004; DeHaan e Guay, 2006; Kawathekar e Riggs, 2007).

A predição deste tipo de modelo consiste na simulação matemática das equações que descrevem a dinâmica do processo. A modelagem fundamental para processos industriais complexos é difícil e a sua construção muito onerosa, pois necessita de

conhecimento profundo e detalhado do processo (Qin e Badgwell, 2003). Por outro lado, ela acarreta uma grande carga computacional como, por exemplo, na modelagem de um processo de destilação reativa em batelada (reator + coluna de vários estágios) que se torna mais complexa com um número de equações elevado, tornando a carga computacional elevada e limitando as aplicações “on line” do NMPC. Para contornar estes problemas, existem várias soluções que consistem na (a) *linearização do modelo* e (b) *simplificação do modelo*:

a) *Linearização do modelo*. Esta é a abordagem mais comum e aparece em grande número na literatura (Patwardhan e Edgar, 1993). A desvantagem é que em algumas situações, como em processos de polimerização, o controle linear não é eficiente quando opera em amplas condições de operação (Prasad et al., 2002) ou quando há forte não linearidades (Xaumier et al. 2002). Na ausência dessas condições a técnica de linearização dá bons resultados (Ricker e Lee, 1995).

b) *Simplificação do modelo*. Aparece em vários artigos (Partwardhan e Edgar, 1993; Balasubramhanya e Doyle III, 2000; Peng et al., 2003). A simplificação do modelo é uma estratégia que se torna necessária devido à carga computacional elevada de modelos mais complexos. Sendo assim, a aplicação de modelos simplificados em controle ou otimização de processos torna-se mais viável em tempo real (Nagy et al., 2007).

Balasubramhanya e Doyle III (2000) apresentaram um modelo simplificado de um processo de destilação reativa em batelada por multicomponentes, sendo que o modelo completo apresentava 31 equações diferenciais e 10 algébricas. A simplificação proposta concentrou-se na coluna de destilação, onde há um maior número de equações diferenciais e algébricas. O modelo simplificado constituiu-se de 5 equações diferenciais e 6 algébricas apenas. Neste caso o esforço computacional em simulação em malha fechada usando NMPC foi reduzido de 225,39 s para 34,34 s.

Patwardhan e Edgar (1993) apresentaram um modelo rigoroso de uma coluna de recheio para a separação da mistura de ciclohexano e n-heptano. Com o modelo rigoroso não foi possível calcular as previsões devido a limitações computacionais. Eles

propuseram um modelo simplificado que consistiu na omissão dos balanços de energia do reservatório e do reator. A implementação do NMPC foi considerada satisfatória com o modelo simplificado.

A simplificação de um modelo mais complexo ou rigoroso apresenta-se como uma boa solução na resolução de equações em tempo real para aplicações em malha fechada de um controlador não linear (NMPC). A simplificação demasiada do modelo pode levar o modelo simplificado a realizar previsões inadequadas em algumas etapas de operação de um processo, o que torna difícil a captura da dinâmica pelo controlador NMPC do processo, levando a um baixo desempenho. Prasad et al. (2002) propuseram um modelo simplificado de polimerização de estireno, desprezando as constantes cinéticas da reação e o efeito “gel”. Trata-se de um processo de polimerização altamente não linear e, segundo os autores, afetou o desempenho do controlador NMPC nas primeiras simulações, o que foi melhorado posteriormente com o uso do filtro de Kalman não linear.

2.7 Aplicação experimental do controlador NMPC em reatores.

Henson (1998) registra apenas duas aplicações experimentais com NMPC. Mesmo hoje em dia, há ainda poucos trabalhos na literatura de aplicação do controle NMPC em processos experimentais (Ozkan et al., 2001; Santos et al., 2001; Xaumier et al., 2002; Nagy et al., 2007).

Wright e Edgar (1994) implementaram o NMPC em um reator de leito fixo para um processo de reação Shift água-gás. Em seus estudos experimentais em malha fechada para o controle da temperatura, foi escolhido um período de amostragem de 5 minutos, que eles consideraram suficiente, levando em conta o esforço computacional por parte da programação NLP. Eles utilizaram um modelo simplificado do processo para aplicação em malha fechada com NMPC. O modelo diverge em vários pontos do processo, mas o controlador NMPC mostrou-se robusto no controle da temperatura do reator e teve um desempenho superior quando comparado com a técnica de controle GPC (controle preditivo generalizado).

Xaumier et al. (2002) implementaram um controlador NMPC com restrições em um reator piloto em semibatelada. Trata-se de um sistema “split range”, onde apenas a temperatura do reator é controlada, manipulando-se cada variável por vez (vazão de vapor e água fria, vazão de água/glicol para resfriamento mais acentuado). As sintonias usadas no NMPC são $M = 2$ (horizonte de controle) e $P = 9$ (horizonte de predição) e um período de amostragem de 20s, o que foi considerado suficiente para convergência do problema de otimização. O controlador NMPC apresentou dois sobre-sinais, no entanto, os autores afirmam que a técnica NMPC foi implementada com sucesso, mas não traçam nenhuma comparação com um PID tradicional, a fim de verificar a eficiência do NMPC.

Nagy et al. (2007) em estudos experimentais, utilizaram um reator piloto industrial de polimerização em batelada. Para melhorar o desempenho do controlador NMPC, eles utilizaram um filtro de Kalman para estimar os estados e os parâmetros do modelo. A temperatura do reator foi controlada manipulando-se as variáveis de aquecimento e resfriamento. Nos seus estudos experimentais concluíram que o controlador NMPC foi mais eficiente que os controladores PI e MPC linear. Eles concluíram que devido aos esforços de implementação do NMPC torna-se economicamente questionável, quando um PID tem um desempenho aceitável.

Santos et. al. (2001) implementaram o NMPC em um reator do tipo CSTR com um volume de 55 litros. As variáveis controladas foram o nível e a temperatura do reator. O controlador NMPC foi do tipo Newton, que calcula as saídas que servem como “setpoints” para os dois controladores PI. Sendo assim, as vazões de saída (aquecimento e resfriamentos) foram enviadas para o processo (planta). Eles realizaram dois experimentos: o primeiro com parâmetros de sintonia do controlador NMPC com horizontes de controle e predição iguais a 5 e 20, respectivamente, e com período de amostragem de 30 s. No segundo, devido à carga computacional, foi feito um ensaio com os horizontes de controle e predição respectivamente de 2 e 10 e o período de amostragem de 15 s. Alguns ensaios de perturbação ao degrau nos “setpoint” foram realizados. O controlador NMPC apresentou um desempenho bastante satisfatório diante das perturbações para diferentes parâmetros de sintonia.

A técnica de modelagem por redes neurais (RN) em reatores aparece em poucos trabalhos experimentais com NMPC (Pottmann e Seborg, 1997; Marcolla et al.2006).

Pottmann e Seborg, (1997), implementaram um controlador NMPC baseado em rede neural, conhecida como modelo RBF (Radial Basis Function) para um reator CSTR de neutralização de pH. Eles usaram como comparativo um controlador PI. O NMPC foi mais robusto no controle de pH, mesmo com horizonte de controle igual a 1 e horizonte de predição igual a 10. Segundo os autores, o desempenho poderia ser melhor com horizonte de controle maior que 1, mas não foi possível pelo consumo excessivo de tempo durante o processo de otimização.

Nesta linha de trabalho, Marcolla et al.(2006), implementaram um controlador NMPC para um reator de estireno em suspensão usando um modelo baseado em Redes Neurais Artificiais do tipo “Feedforward” (FANN), em três camadas. Foi apresentada uma estratégia “split-range” onde a temperatura do reator foi controlada manipulando-se uma variável por vez (aquece ou resfria). Em seus estudos, o controlador NMPC demonstrou superioridade quando comparado ao controlador PID, mas o seu desempenho não foi satisfatório devido à não linearidade, ao tempo morto e a perturbações não modeladas.

Outro trabalho experimental com NMPC usando modelagem empírica foi apresentado por Na e Rhee, (2001). A identificação do processo foi feita com um modelo polinomial ARMA (Auto Regressive Moving Average Model) para um reator contínuo de polimerização de estireno. O problema resultou num sistema 2×2 , onde o peso molecular numérico médio e a conversão foram controlados. O NMPC trabalhou com horizonte de predição igual a 40 e de controle igual a 3 e o período de amostragem de 3 min. O emprego do filtro de Kalman não linear foi necessário o que levou o controlador NMPC a ter um desempenho satisfatório.

CAPÍTULO 3

3 DETALHES DO REATOR EXPERIMENTAL E IMPLEMENTAÇÃO DO CONTROLADOR NMPC

Neste capítulo é apresentada em detalhe a unidade experimental e seus periféricos. É descrito o modelo complexo de policondensação de PET obtido por Teixeira (2003). Em seguida, são apresentadas a abordagem e a implementação do controlador NMPC a um reator experimental através de um “software” SCADA IFIX 2.21.

3.1 Apresentação do reator experimental e seus periféricos

O equipamento que está instalado no Laboratório de Simulação e Controle de Processos foi utilizado para estudos experimentais em malha aberta e fechada. A figura 3.1 mostra detalhes do reator experimental.

Figura 3.1 - Esquema do reator e seus periféricos.

A figura 3.2 mostra uma foto completa do reator experimental.

Figura 3.2 – Vista completa do reator batelada e seus periféricos

Trata-se de um reator em batelada em aço inoxidável com capacidade de 1,25 litro, que possui um agitador (CAT modelo R100C) do tipo âncora (6), impulsionado por um motor com leitura de torque e controle de velocidade de rotação (faixa de 0 à 1000 rpm) supervisionado através de um CLP (controlador lógico programável).

O reator é encamisado lateralmente e possui uma grossa camada de lã de rocha de aproximadamente 10 centímetros. Por esta camisa o ar do ambiente é soprado para o resfriamento do meio reacional (2), o resfriamento é acionado através do CLP.

O aquecimento é efetuado por uma resistência que está incrustada em alumínio fundido e soldada no fundo do reator para permitir uma boa transferência de calor (1). As medições de temperatura são feitas através de termo-resistências. Dentro da base de alumínio fundido no fundo do reator há uma termo-resistência para a medição da temperatura das resistências de aquecimento (12). Existe uma segunda termo-resistência

que está inserida em um poço dentro do reator (13), que mede a temperatura do meio reacional (temperatura do reator). A terceira está inserida num poço na saída do condensador parcial (14) e mede a temperatura na qual os vapores dos produtos voláteis são condensados (temperatura do condensado).

O reator possui no topo duas entradas para nitrogênio (3), uma para borbulhamento dentro do meio reacional e a outra para inertização do topo do reator (fase gasosa). Há um funil de adição para alimentação de reagentes líquidos (4) e um visor com rosca por onde podem ser introduzidos reagentes sólidos ou líquidos. Também no topo há uma saída conectada a uma coluna de recheio (5). A parte interna do reator é iluminada a fim de permitir uma visibilidade adequada.

No topo da coluna está conectado um condensador parcial (7), composto por um feixe de tubos verticais por onde passa o vapor que deixa a coluna. Os tubos verticais estão inseridos no interior de um casco, por onde circula água de resfriamento. A vazão de água (8) utilizada para resfriamento no condensador parcial é manipulada através de uma bomba peristáltica (ISMATEC modelo Reglo-Z) com vazão controlada, também conectada ao CLP. Depois do condensador parcial, há um condensador, do tipo casco-tubo, ligeiramente inclinado (9), em que se condensa totalmente o vapor que deixa o sistema. O líquido condensado passa para um vaso dito “separador de fases” (10). Este condensado pode ser reciclado para o reator através de uma linha ou ser recolhido em outro vaso chamado de “receptor de condensado” (11).

Há três tomadas de vácuo: uma na saída do condensador, uma no vaso “separador de fases” e outra no vaso “receptor de condensado”, além de um sistema de válvulas de esfera que permite que o vácuo seja quebrado de forma independente em diferentes regiões do sistema. Todas as vedações do sistema são previstas para vácuo. A linha de vácuo é dotada de um sensor de pressão (transdutor de pressão SMAR modelo LD301) e está conectado a uma bomba de vácuo (bomba rotativa Edwards modelo Speedivac 2). Uma linha de nitrogênio com pressão regulada é utilizada para o controle de vácuo através de uma válvula eletropneumática (SPIRAX SARCO modelo 5123).

Os controles das temperaturas e pressão são comandados através de um CLP Allen-Bradley modelo SLC5/03.

O processo é supervisionado através do software SCADA[®] (Supervisory Control And Data Acquisition) IFIX[®] versão 2.20 da Intellution. O IFIX é um programa para

supervisão e controle amplamente utilizado no meio industrial, possuindo algumas características importantes a serem consideradas:

- Fornecer dados para monitoramento em tempo real;
- Permite programar em VBA (Visual Basic for Application), o que facilita a implementação de programas externos;
- Aquisição de dados: habilidade de buscar dados no “chão” de fábrica e comunicação direta com os dispositivos I/O da planta;
- Monitoramento de processo (tela gráfica), Alarme, relatório e armazenamento de dados.

3.2 Apresentação do Modelo Dinâmico de policondensação do processo PET

O objetivo deste item é descrever o modelo dinâmico de policondensação do processo PET desenvolvido por Teixeira (2003).

O modelo representa um reator acoplado a uma coluna de recheio com condensador parcial o que servirá como base para a proposição de um modelo simplificado no próximo capítulo. A figura 3.3 mostra o esquema dos compartimentos considerados no modelo de policondensação.

O modelo permite representar diversas etapas de operação: o reator inicialmente opera em batelada, mas à medida em que a reação avança, os voláteis formados são eliminados e a operação entra em regime semibatelada.

Figura 3.3 – Esquema do reator acoplado a um condensador parcial

A reação de policondensação corresponde à produção de Politereftalato de etileno. Nesta reação, Tereftalato de dimetila (DMT) e Etilenoglicol (EG) geram como produtos ésteres e metanol (M).

O mecanismo de reação foi obtido de um modelo apresentado na literatura por Shin et al.(1999). As três reações principais foram consideradas e as reações secundárias são omitidas, pois foram levados em conta apenas efeitos macroscópicos das variáveis de processo.

As equações 3.1, 3.2 e 3.3 descrevem as etapas do mecanismo de reação consideradas e são: intercâmbio de éster, transesterificação e policondensação:

Intercâmbio de éster

Transesterificação

Policondensação

Onde E_m , E_g , Z , EG e M são respectivamente os grupos funcionais metil éster, hidroxietil éster, ligações diésteres, etilenoglicol e metanol. O EG e M são considerados espécies voláteis.

O modelo do reator consiste de balanços parciais de massa para cada componente presente nas reações acima. A seguir, os balanços são apresentados:

$$\frac{dE_m}{dt} = V \left[-k_1 \left(2[E_m][EG] - \frac{[E_g][M]}{K_1} \right) - k_2 \left([E_m][E_g] - \frac{2[Z][M]}{K_2} \right) \right] \quad (3.4)$$

$$\frac{dE_g}{dt} = V \left[k_1 \left(2[E_m][EG] - \frac{[E_g][M]}{K_1} \right) - k_2 \left([E_m][E_g] - \frac{2[Z][M]}{K_2} \right) - 2k_3 \left([E_g]^2 - \frac{4[Z][EG]}{K_3} \right) \right] \quad (3.5)$$

$$\frac{dZ}{dt} = V \left[k_2 \left([E_m][E_g] - \frac{2[Z][M]}{K_2} \right) + k_3 \left([E_g]^2 - \frac{4[Z][EG]}{K_3} \right) \right] \quad (3.6)$$

$$\frac{dEG}{dt} = -y_{EG}F_V + x_{EG,N}L_N + V \left[-k_1 \left(2[E_m][EG] - \frac{[E_g][M]}{K_1} \right) + k_3 \left([E_g]^2 - \frac{4[Z][EG]}{K_3} \right) \right] \quad (3.7)$$

$$\frac{dM}{dt} = -y_M F_V + x_{M,N} L_N + V \left[k_1 \left(2[E_m][EG] - \frac{[E_g][M]}{K_1} \right) + k_2 \left([E_m][E_g] - \frac{2[Z][M]}{K_2} \right) \right] \quad (3.8)$$

Onde k_1 , k_2 e k_3 são as constantes de velocidade das reações. Os y_{EG} e y_M ¹ são as “frações molares” dos componentes voláteis EG e M na fase vapor do reator, respectivamente. $x_{EG,N}$ e $x_{M,N}$ são as frações molares dos componentes EG e M na fase líquida da última seção da coluna de recheio (representado pela letra N) e o L_N a vazão molar.

¹ Na verdade é inadequado chamar y_M e y_{EG} de frações molares enquanto o seu somatório não for igual a um, por isso foi colocado o termo “frações molares” entre aspas

O equilíbrio líquido-vapor não ocorre no sistema desde o início e quando se estabelece não se mantém até o fim. Portanto, existe uma transição de operação a ser verificada. Durante toda a operação calculam-se as “frações molares” na fase vapor do *EG* e *M*, através das equações descritas abaixo, as quais são oriundas da combinação das leis de Raoult e Dalton:

$$y_{EG} = K_{EG} \frac{EG}{N_t} \quad ; \quad y_M = K_M \frac{M}{N_t} \quad (3.9)$$

onde K_{EG} e K_M são as constantes de equilíbrio líquido-vapor do *EG* e *M* respectivamente. Se a soma das pressões parciais do etilenoglicol e metanol for menor que a pressão total do sistema, não haverá equilíbrio de fases. Isto é traduzido também pela soma das “frações molares”:

$$y_{EG} + y_M < 1 \quad (3.10)$$

que quando é menor que um, indica que não há equilíbrio líquido vapor, portanto a saída de vapor é nula, $F_v = 0$. Caso haja equilíbrio líquido-vapor no sistema:

$$y_{EG} + y_M = 1 \quad (3.11)$$

e a vazão molar de vapor é não nula, $F_v > 0$. Neste caso, F_v é dado por :

$$\begin{aligned} F_v = & V(R_1 K_M + R_2 K_M - R_1 K_{EG} + R_3 K_{EG}) - L_N \left[(1 - K_m) x_{M,N} + (1 - K_{EG}) x_{EG,N} \right] - \\ & L_N \left[\frac{(H_R^\ell - h_R^\ell)}{M_r C_{p_r}} \left(\frac{dK_{EG}}{dT_r} EG + \frac{dK_M}{dT_r} M \right) \right] + \frac{1}{M_r C_{p_r}} \left[(Q_4 - Q_5 - Q_{11}) + V \sum_{j=1}^m (-\Delta H_j) R_j \right] \\ & \left(\frac{dK_{EG}}{dT_r} EG + \frac{dK_M}{dT_r} M \right) \left/ \left[\frac{(H_R^V - h_R^V)}{M_r C_{p_r}} \left(\frac{dK_{EG}}{dT_r} EG + \frac{dK_M}{dT_r} M \right) - y_{EG}(1 - K_{EG}) + y_M(1 - K_M) \right] \right. \end{aligned}$$

cuja a dedução encontra-se no anexo A.

O volume da massa reacional do reator pode ser aproximado por (Shin et. al., 1999):

$$V = V_{E_m} E_{m,o} + V_{EG} (EG_o - EG_b) - V_M (M_b - M) \quad (3.12)$$

onde $E_{m,o}$, EG_o e M representam os números de moles iniciais do Tereftalato de metila, do Etilenoglicol e Metanol, respectivamente. EG_b e M_b são respectivamente os números de moles de etileno glicol e metanol que deixaram o reator até o instante t . Estes são definidos por:

$$EG_b = \int_0^t (F_v y_{EG} - L_N x_{EG,N}) dt \quad (3.13)$$

$$M_b = \int_0^t (F_v y_M - L_N x_{M,N}) dt \quad (3.14)$$

Os termos da V_{E_m} , V_{EG} e V_M são os volumes molares do Tereftalato de dimetila, Etilenoglicol e Metanol respectivamente, cujas unidades estão em l/mol (Fontana, 1968, Gupta ; Kumar, 1987, Samant; Ng, 1999):

$$V_{E_m} = 0,1915 [1 + 0,0014 (T_r - 413)] \quad (3.15)$$

$$V_M = 0,0435 [1 + 0,0014 (T_r - 413)] \quad (3.16)$$

$$V_{EG} = 0,0606 [1 + 0,0014 (T_r - 413)] \quad (3.17)$$

onde T_r é a temperatura do reator.

O balanço de massa total, em base mássica, é dado por:

$$\frac{dM_r}{dt} = -F_V (y_{EG} PM_{EG} + y_M PM_M) + L_N (x_{EG,N} PM_{EG} + x_{M,N} PM_M) \quad (3.18)$$

onde PM_{EG} e PM_M são as massas molares dos componentes EG e M respectivamente. O número de moles total, N_t , da massa reacional é dado por:

$$N_t = EG + M + \frac{E_g + E_m}{2} \quad (3.19)$$

No balanço de energia, leva-se em conta a inércia térmica dos diferentes compartimentos físicos do reator e da resistência, e as transferências de calor entre eles, conforme segue:

$$\frac{dT_r}{dt} = \frac{1}{M_r C_{p_r}} \left[(Q_4 - Q_5 - Q_{11}) - \left(V \sum_{j=1}^m (-\Delta H_{r_j}) r_j \right) - F_v (H_R^V - h_R^V) + L_N (H_N^\ell - h_N^\ell) \right] \quad (3.20)$$

cuja a dedução encontra-se no anexo B.

Supõe que os compartimentos do reator estão reagrupados conforme mostra a figura 3.4.

Figura 3.4 - Esquema do reator e seus diferentes componentes.

Os calores das reações são denominados ΔH_r , ΔH_{EG}^{vap} e ΔH_M^{vap} são respectivamente os calores de vaporização de EG e M . Os termos das entalpias H_R^V , h_R^V , H_N^ℓ , h_N^ℓ , h_R^ℓ e h_N^ℓ que aparecem no balanço de energia do reator estão explicados em detalhes no anexo B.

Os Q 's são fluxos de calor numerados de 1 até 11, para cada compartimento do reator conforme segue:

$$\text{Cobre para Alumínio : } Q_1 = k_{Al} A_{Cu} (T_{Cu} - T_{AL}) / e_{Al} \quad (3.21)$$

$$\text{Alumínio para Inox(Base) : } Q_2 = k_{inox} A_{inoxbase} (T_{Al} - T_{inoxbase}) / e_{inoxbase} \quad (3.22)$$

$$\text{Alumínio para Ar da Camisa de resfriamento(AC) : } Q_3 = h_{AC} A_{AL} (T_{AL} - T_{AC}) \quad (3.23)$$

$$\text{Inox(base) para massa reacional(reator) : } Q_4 = h_{m.r} A_{inoxbase} (T_{inoxbase} - T_r) \quad (3.24)$$

$$\text{Massa reacional(reator) para Inox(lateral): } Q_5 = h_{m.r} A_{inoxlateral} (T_r - T_{inoxlateral}) \quad (3.25)$$

$$\text{Inox(lateral) para Camisa de resfriamento: } Q_6 = h_{AC} A_{inoxlateral} (T_{inoxlateral} - T_{AC}) \quad (3.26)$$

$$\text{Ar da Camisa de resfriamento para Inox(acima): } Q_7 = h_{AC} A_{inoxacima} (T_{AC} - T_{inoxacima}) \quad (3.27)$$

$$\text{Inox(acima) para Ar externo: } Q_8 = h_{ar} A_{inoxacima} (T_{inoxacima} - T_{ar.ext}) \quad (3.28)$$

$$\text{Ar da Camisa de resfriamento para Ar externo: } Q_9 = h_{ar} A_{inoxcamisa} (T_{A.C} - T_{ar.ext}) \quad (3.29)$$

$$\text{Alumínio para Ar externo: } Q_{10} = h_{ar} A_{Al} (T_{Al} - T_{ar.ext}) \quad (3.30)$$

$$\text{Massa reacional(reator) para Inox(acima): } Q_{11} = h_{EG,M} A_{inoxacima} (T_r - T_{inoxacima}) \quad (3.31)$$

O balanço de energia para cada compartimento é dado por:

$$\frac{dT_{Cu}}{dt} = \frac{(Q_r - Q_1)}{M_{Cu} Cp_{Cu}} \quad (3.32)$$

$$\frac{dT_{Al}}{dt} = \frac{(Q_1 - Q_2 - Q_3 - Q_{10})}{M_{Al} Cp_{Al}} \quad (3.33)$$

$$\frac{dT_{Inoxbase}}{dt} = \frac{(Q_2 - Q_4)}{M_{Inoxbase} Cp_{Inox}} \quad (3.34)$$

$$\frac{dT_{Inoxlateral}}{dt} = \frac{(Q_5 - Q_6)}{M_{Inoxlateral} Cp_{Inox}} \quad (3.35)$$

$$\frac{dT_{AC}}{dt} = \frac{1}{\rho_{AC} V_{AC} Cp_{AC}} \left[(Q_3 + Q_6 - Q_7 - Q_9) - \rho_{AC} Q_{AC} Cp_{AC} (T_{AC} - T_{ar.ext}) \right] \quad (3.36)$$

$$\frac{dT_{Inoxcima}}{dt} = \frac{(Q_7 - Q_8)}{M_{Inoxcima} Cp_{Inox}} \quad (3.37)$$

onde, Q_r é a potência de aquecimento do reator e T_{Cu} , T_{Al} , $T_{Inoxbase}$, T_{AC} , T_r , $T_{Inoxlateral}$, $T_{Inoxcima}$, $T_{ar.ext}$ e T_{ref} são as temperaturas do cobre, alumínio, inox da base, ar da camisa, massa reacional (reator), inox (lateral), inox de cima, ar externo e de referência respectivamente. Os calores específicos são: Cp_{Cu} , Cp_{Al} , Cp_{Inox} , Cp_{AC} , Cp_r os quais respectivamente correspondem ao cobre, Alumínio, inox, ar da camisa e massa reacional no reator. As massas M_{Cu} , M_{Al} , M_{Inox} , M_r , $M_{Inoxcima}$, $M_{Inoxbase}$ são correspondentes ao cobre, alumínio, inox, massa reacional, inox de cima e inox da base.

A densidade, vazão e o volume do ar na camisa são respectivamente, ρ_{AC} , Q_{AC} e V_{AC} , e as áreas de cada compartimentos são: A_{Cu} , A_{Al} , $A_{Inoxlateral}$, $A_{Inoxcima}$, $A_{Inoxbase}$ o que corresponde respectivamente, à área do cobre, alumínio, inox lateral, inox acima e inox da base.

As condutividades térmicas do cobre e alumínio são k_{Cu} , k_{Al} . h_{AC} , h_{ar} , $h_{m.r.}$ e $h_{EG,M}$ são os coeficientes de película correspondentes ao ar da camisa de resfriamento, ar externo, massa reacional e do vapor de EG e M.

A modelagem da coluna de recheio é composta por balanços de energia e de massa para os componentes voláteis, EG e M , bem como as equações de equilíbrio líquido-vapor e de somatória das frações molares para cada seção j (com $j = 1, 2, \dots, N$) da coluna que são:

$$\frac{dEG_j}{dt} = x_{EG,j-1}L_{j-1} + y_{EG,j+1}V_{j+1} - x_{EG,j}L_j - y_{EG,j}V_j \quad (3.38)$$

$$\frac{dM_j}{dt} = x_{M,j-1}L_{j-1} + y_{M,j+1}V_{j+1} - x_{M,j}L_j - y_{M,j}V_j \quad (3.39)$$

Nestes balanços (equações 3.38 e 3.39) são utilizadas as frações molares dos componentes voláteis e as vazões molares V_j e L_j do vapor e do líquido respectivamente que deixam a seção j da coluna de recheio. Assume-se que $V_{N+1} = F_v$, $y_{EG,N+1} = y_{EG}$, $y_{M,N+1} = y_M$, $L_0 = 0$, $x_{M,0} = 0$ e $x_{EG,0} = 0$.

O balanço de massa total na seção j da coluna de recheio é dado por:

$$\frac{dU_j}{dt} = L_{j-1} + V_{j+1} - L_j - V_j \quad (3.40)$$

As relações de equilíbrio na seção j da coluna de recheio são descritas por:

$$y_{EG,j}^* = K_{EG,j} x_{EG,j} \quad (3.41)$$

$$y_{M,j}^* = K_{M,j} x_{M,j} \quad (3.42)$$

onde $y_{EG,j}^*$ e $y_{M,j}^*$ são as “frações molares” de EG e M na seção j da coluna de recheio, $K_{EG,j}$ e $K_{M,j}$ são as constantes de equilíbrio de EG e M respectivamente na seção j da coluna. As frações molares do EG e M na fase líquida, estão relacionados com a retenção molar U_j através de:

$$x_{EG,j} = \frac{EG}{U_j^\ell} ; x_{M,j} = \frac{M}{U_j^\ell} \quad (3.43)$$

A verificação da existência de equilíbrio líquido-vapor, para cada seção j da coluna de recheio, é implementada de maneira análoga ao reator. Se não há equilíbrio líquido-vapor na seção j da coluna então, $V_j = 0$. Esta condição é verificada pela seguinte equação:

$$K_{EG,j}x_{EG,j} + K_{M,j}(1 - x_{EG,j}) < 1 \quad (3.44)$$

No momento em que se atingir o equilíbrio líquido-vapor, esta condição é verificado pela seguinte equação:

$$K_{EG,j}x_{EG,j} + K_{M,j}(1 - x_{EG,j}) = 1 \quad (3.45)$$

Então $V_j > 0$, neste caso o V_j é dada por:

$$V_j = \left[\frac{V_{j+1}H_{j+1}^V + L_{j-1}H_{j-1}^L + Q_{e,j}}{M_{re,j}Cp_{re,j} + EG_jCp_{EG,j} + M_jCp_{M,j}} \left(\frac{dK_{EG}}{dT_j}EG + \frac{dK_M}{dT_j}(U_j^\ell - EG) \right) + L_{j-1}(K_{EG}x_{EG,j-1} - K_Mx_{EG,j-1} + K_M - 1) + \right. \\ \left. V_{j+1}(K_{EG}y_{EG,j+1} - K_My_{EG,j+1} + K_M - 1) \right] / \left[\frac{H_j^V}{M_{re,j}Cp_{re,j} + EG_jCp_{EG,j} + M_jCp_{M,j}} \cdot \left(\frac{dK_{EG}}{dT_j}EG + \frac{dK_M}{dT_j}(U_j^\ell - EG) \right) + (K_{EG}x_{EG,j} - K_Mx_{EG,j} + K_M - 1) - L_j(K_{EG}x_{EG,j} - K_Mx_{EG,j} + K_M - 1) \right] \quad (3.46)$$

Cuja dedução encontra-se no anexo C.

O balanço de energia na seção j (com $j=1,2,...,N$) da coluna de recheio é dado por:

$$\frac{dT_j}{dt} = \frac{1}{\left(M_{re,j}Cp_{re,j} + EG_jCp_{EG,j} + M_jCp_{M,j}\right)} \left(V_{j+1}H_{j+1}^V + L_{j-1}H_{j-1}^L - V_jH_j^V + Q_{c,j}\right) \quad (3.47)$$

$$(j=1,2,...,N), \text{ e } Q_{c,j} : \begin{cases} =0, & \text{se } j > 1, \\ \neq 0, & \text{se } j = 1, \end{cases}$$

$$Q_{c,j} = U_g A (T_j - T_{cp}) \quad (3.48)$$

A dedução e os termos das entalpias que aparecem no balanço de energia encontram-se no anexo D.

$Q_{c,j}$, para j igual a um corresponde ao condensador parcial, para o qual U_g e A são respectivamente, o coeficiente global de transferência de calor e a sua área de troca térmica. A coluna é suposta adiabática. T_j , $Cp_{re,j}$, $Cp_{EG,j}$ e $Cp_{M,j}$ são respectivamente a temperatura, a capacidade calorífica do recheio do EG e M da seção j da coluna de recheio. Os valores de $H_{N+1}^V = H_R^V$ e $H_0^L = 0$.

O condensador parcial é composto por um feixe de tubos verticais encamisado por uma camisa por onde flui água à temperatura ambiente, para refrigeração. O balanço de energia para a camisa do condensador parcial é dado por:

$$\frac{dT_{cp}}{dt} = \frac{Q_w (T_{agua} - T_{cp})}{V_{cp}} + \frac{Q_{c,j}}{\rho_{agua} V_{cp} Cp_{agua}} \quad (3.49)$$

onde Q_w , V_{cp} , Cp_{agua} , ρ_{agua} e T_{cp} são respectivamente a vazão de água de resfriamento, o volume da camisa, o calor específico, a densidade e a temperatura da água no condensador parcial. Na seção j (com $j=1, 2,...,N$) da coluna de recheio, o cálculo da vazão molar L_j foi baseada na correlação hidrodinâmica de Billet (1995), dada por:

$$L_j = \frac{6 \cdot 10^{-5} PM_{m,j}^2 g}{12 \eta_j^\ell a^2 Z a^3 A^2 \rho_j^\ell (ah/a)^2} U_j^3 \quad (j = 1, 2, \dots, N), \quad (3.50)$$

onde η_j^ℓ , ρ_j^ℓ , $PM_{m,j}$ representam a viscosidade, a densidade e o peso molecular da mistura líquida respectivamente, na seção j da coluna de recheio. g é a aceleração da gravidade, a a área específica do recheio, ah a área hidráulica e Za a altura da seção j e a relação (ah/a) é adotada igual a 1. A área é $A = \pi d^2/4$, onde d é o diâmetro da coluna de recheio.

3.3 Apresentação do controlador preditivo não linear com realimentação envolvendo restrições.

3.3.1 Introdução

O objetivo maior nos processos de polimerização é produzir produtos com uma qualidade dentro das especificações exigidas. Para atingir estes requisitos, o controle deve ser preciso para as variáveis de saída, tais como, temperatura e concentração de reagente (Richards e Congalidis, 2006).

O controlador LMPC que utiliza o modelo de processo linear para predições e otimização, torna-se ineficiente e muito limitado quando aplicado a processos altamente não lineares como no caso de reatores de polimerização (Seki et al. 2001).

Entre os tipos de reatores encontrados nas indústrias, o reator semibatelada é o mais comum por ser de amplo uso na produção de polímero de alto valor agregado em pequenos volumes. Por isso, o controlador deve ter um potencial para garantir a operação nos diferentes pontos de operação e lidar com a não linearidade do processo de reação de polimerização (Soroush e Kravaris, 1992). Portanto o controlador NMPC oferece um bom potencial no controle e operação de processos não lineares. A figura 3.5 ilustra a estrutura do algoritmo de controle preditivo não linear.

Figura 3.5 – Estrutura do Controlador NMPC com realimentação.

Para que o controlador NMPC realize as operações de otimização, é necessário um *modelo interno* que pode ser derivado a partir de equações fundamentais, que corresponde a balanços transientes de massa, energia e momento para o processo (Ogunnaike e Ray, 1994) e são representados na seguinte forma geral:

$$\dot{x} = f(x, u) \quad (3.51)$$

$$0 = g(x, u) \quad (3.52)$$

$$y = h(x, u) \quad (3.53)$$

Onde:

x - vetor de variáveis de estado;

u - vetor de variáveis de entrada (manipuladas) ;

y - vetor de variáveis de saídas (controladas).

A equação (3.51) corresponde ao vetor de equações diferenciais ordinárias. A equação (3.52) representa o vetor de equações algébricas e a equação (3.53) corresponde ao vetor de equações algébricas que representam a medição. O algoritmo NMPC é mais naturalmente formulado em tempo discreto, sendo necessário discretizar as equações diferenciais.

O modelo de processo não linear, na forma discreta, tem a seguinte representação em tempo discreto:

$$x(k+1) = F[x(k), u(k)] \quad (3.54)$$

$$y(k) = h[x(k)] \quad (3.55)$$

onde:

$x(k)$ - vetor de variáveis de estado no tempo k ;

$x(k+1)$ - vetor de variáveis de estado no tempo $k+1$;

$u(k)$ - vetor de variável de entrada (manipulada) ;

$y(k)$ - vetor de saídas (controladas).

A estratégia de controle do NMPC consiste na utilização de um modelo de processo capaz de gerar previsões ao longo de um período de tempo, denominadas horizonte de previsão (P). A figura 3.6 mostra o esquema básico do controlador NMPC.

Figura 3.6 – Esquema de previsões do controlador NMPC (Gil, Ramos e Correa, 1998).

As ações das variáveis manipuladas ou de decisão minimizam uma função, chamada *função objetivo*, sujeita, ou não, a restrições nas entradas/saídas conforme a equação abaixo:

$$\begin{aligned}
\min_{u(k|k), u(k+1|k), \dots, u(k+m-1|k)} J = & \\
& \sum_{j=0}^{P-1} \left[y(k+j|k) - y_{sp}(k) + \hat{d}(k) \right]^T Q \left[y(k+j|k) - y_{sp}(k) + \hat{d}(k) \right] + \\
& \left[u(k+j|k) - u_{sp}(k) \right]^T R \left[u(k+j|k) - u_{sp}(k) \right] + \\
& \Delta u^T(k+j|k) S \Delta u(k+j|k) \quad (3.56)
\end{aligned}$$

onde :

$y(k+j|k)$ são as saídas previstas do modelo;

$y_{sp}(k)$, $u_{sp}(k)$ são as trajetórias de referência das variáveis controladas e manipuladas respectivamente;

$\Delta u(k+j|k)$ são os incrementos das variáveis manipuladas $u(k+j|k)$;

Q é a matriz simétrica positiva definida que penaliza os estados (saídas);

R é a matriz simétrica positiva definida que penaliza as entradas (manipuladas);

S é a matriz simétrica positiva definida que penaliza os incrementos das variáveis manipuladas;

As matrizes Q, R, S, os horizontes M e P e o período de amostragem Δt são chamados de parâmetros de sintonia. Estes parâmetros são importantes para o controlador NMPC capturar a dinâmica do processo.

$\hat{d}(k)$ é o erro calculado como a diferença entre as saídas do processo $y_p(k)$ e do modelo interno $y(k|k)$. Nesta formulação, o algoritmo NMPC leva em conta as perturbações não medida e ou erros de modelagem, caso contrário o NMPC pode exibir um “off-set” (Meadows e Rawlings, 1997).

As saídas previstas são obtidas a partir das equações do modelo não linear [(3.4) e (3.5)] são calculadas sequencialmente através de:

$$y(k+1|k) = h \left[F \left[x(k|k), u(k|k) \right] \right] \equiv G_1 \left[x(k), u(k|k) \right],$$

$$y(k+2|k) = G_1 \left[x(k+1|k), u(k+1|k) \right] = G_1 \left[F \left[x(k|k), u(k|k) \right], u(k+1|k) \right],$$

$$\begin{aligned}
&\equiv G_2 [x(k), u(k|k), u(k+1|k)] \\
&\vdots \quad \quad \quad \vdots \\
y(k+j|k) &= G_j [x(k), u(k|k), u(k+1|k), \dots, u(k+j|k)],
\end{aligned}$$

A solução do controlador NMPC produz uma seqüência de entradas $u(k|k)$, $u(k+1|k)$, ..., $u(k+M-1|k)$ dentro de um horizonte $M < P$. Somente o primeiro vetor de entrada $u(k) = u(k|k)$ da seqüência é implementado no processo. No instante $k+1$, obtém-se uma nova medição da saída da planta e o problema de otimização é resolvido pela rotina SQP (programação quadrática seqüencial), gerando um “feedback” no controlador, sendo o horizonte movido adiante em um período de amostragem (Δt). Devido a estas características, esta técnica de controle em que o horizonte de predição vai sendo movido a cada período de amostragem, ficou conhecida como de horizonte móvel, ou em inglês: “*receding horizon control*” (Mayne et al., 2000). Uma abordagem mais ampla sobre NMPC, pode ser vista em Henson (1998) e alguns exemplos de aplicação em Teixeira (2003).

3.3.2 Restrições na formulação NMPC

Os processos químicos estão sempre sujeitos a restrições nas variáveis manipuladas e controladas. Estas restrições são impostas nas variáveis de entrada (manipuladas) e nas saídas (controladas). As restrições nas variáveis manipuladas estão sempre relacionadas com limites de operação dos equipamentos, especificações de qualidade de um produto e condições de segurança. O controlador NMPC permite incluir as restrições na seguinte forma:

$$u_{min} \leq u(k+j|k) \leq u_{max} \quad 0 \leq j \leq M-1 \quad (3.52)$$

$$\Delta u_{min} \leq \Delta u(k+j|k) \leq \Delta u_{max} \quad 0 \leq j \leq M-1 \quad (3.53)$$

onde :

u_{min} e u_{max} - são valores mínimos e máximos de entrada;

Δu_{min} e Δu_{max} - são os incrementos mínimos e máximos da entrada, respectivamente.

As restrições de saída (variáveis controladas) são usualmente associadas às condições de segurança (ex: temperatura máxima de operação, pressão máxima, etc) e qualidade do produto (ex: concentração máxima do produto, teor mínimo de reagente no produto, etc). Estas restrições podem ser colocadas como:

$$y_{min} \leq y(k+j | k) \leq y_{max} \quad 1 \leq j \leq P \quad (3.54)$$

onde

y_{min} e y_{max} - são os valores mínimo e máximo de saída, respectivamente.

3.4 Implementação do controlador NMPC no reator experimental.

3.4.1 Sistema de aquisição de dados

A arquitetura usada para aquisição de dados consiste de um computador Pentium 1.8 GHZ com 1GB de memória RAM conectado via serial ao controlador lógico programável (CLP) do reator experimental. O CLP faz a conversão do sinal digital para analógico e vice-versa. As entradas analógicas são: as temperaturas da massa reacional (reator), da resistência e do condensador parcial, o torque do agitador e pressão do sistema. As saídas analógicas são: a potência de aquecimento, setpoint da bomba de engrenagens que é utilizada para manipular a vazão de resfriamento do condensador parcial, velocidade de rotação do agitador e válvula de controle de pressão. As saídas digitais são: iluminação, ventilação do reator e bomba de vácuo.

A função do programa IFIX 2.20 é comunicar-se com os “drivers” I/O do “hardware” do processo (CLP) e gerenciar a base de dados do reator experimental em tempo real. A área de trabalho do IFIX (Workspace) é o ponto inicial para a elaboração de telas, o que permite programar e tornar a interface mais fácil para o usuário poder visualizar todas as informações em tempo real no reator experimental (ver figura 3.7 e 3.8).

O programa IFIX 2.20 tem integrado o “Visual Basic for Applications” (VBA), o que facilita muito a programação e permite interagir com programas externos (por exemplo, o controlador NMPC). Aqui usou-se a linguagem de programação MATLAB 7.2 para desenvolver o controlador NMPC. Para produzir o controlador NMPC na forma de um programa executável utilizou-se uma rotina “mcc” do MatLab. Esta rotina tem a função de juntar vários programas escritos em extensão (.m) do MatLab e converter-los em um só programa que pode ser um executável (.exe) ou uma biblioteca de ligação dinâmica (.dll). É necessário ter um compilador do Visual C/C++ da Microsoft instalado.

O controlador NMPC é um executável que permite trocar dados com o reator por meio do programa em VBA do IFIX. A figura 3.8 mostra um botão chamado “NMPC”, este só é acionado quando deseja-se que o controlador NMPC realize o controle do reator experimental. A figura 3.9 mostra o fluxograma de operação do controlador NMPC no processo.

Na figura 3.9, observe-se que a cada período de amostragem, o programa VBA do IFIX faz a leitura da temperatura do reator e escreve em um arquivo de texto (ex: saída.txt) e chama o controlador NMPC. O controlador NMPC faz a leitura do valor da temperatura armazenado no arquivo “saida.txt” e então realiza-se o processo de predição e otimização produzindo um valor de entrada que é escrito em outro arquivo de texto (entrada.txt). O programa VB do IFIX lê a informação do arquivo “entrada.txt” e escreve no bloco de saída da potência de aquecimento (variável manipulada). Os blocos de comunicação do IFIX são os que fazem a interface com o CLP. Eles consistem de uma unidade individual de instrução capaz de receber, verificar, manipular e enviar dados para o processo. Cada bloco tem o endereço de cada variável registrada na estrutura do CLP.

O controlador NMPC manipula não só a potência de aquecimento, mas também a vazão de resfriamento do processo (reator), este último é registrado no arquivo “entrada2.txt” na seguinte forma: se for um, então o resfriamento fica na posição ligado, se for zero é desligado. A vazão de resfriamento é uma variável binária e o controlador NMPC com este tipo de implementação resolve um problema de otimização do tipo MINLP (programação mista inteira não linear). Esta abordagem será apresentada no capítulo 4, quando for aplicar NMPC ao reator experimental usando um modelo simplificado.

Figura 3.7 – Tela principal do programa supervisorio IFIX

Figura 3.8 – Tela específica do controle de temperatura do reator.

Figura 3.9 – Fluxograma da operação do controlador NMPC no processo

CAPÍTULO 4

4 PROPOSIÇÃO DE MODELOS SIMPLIFICADOS, ESTUDO DA VIABILIDADE DE TRAJETÓRIAS E APLICAÇÃO DO CONTROLADOR NMPC AO REATOR EXPERIMENTAL.

Neste capítulo são propostos dois modelos simplificados para o sistema de policondensação PET Poli(tereftalato de etileno). No início, foi proposto apenas um modelo simplificado, mas no decorrer dos experimentos verificou-se a sua limitação na capacidade de fazer previsões quando se envolvem reações químicas. Portanto, este primeiro modelo foi denominado de modelo A e o modelo que será apresentado posteriormente foi denominado de B. Cada modelo serviu separadamente de modelo interno para o controlador NMPC.

Os estudos de viabilidade foram realizados usando o modelo A (teórico) proposto e depois foi ajustado com os dados experimentais com perturbação ao degrau e PRBS.

São apresentadas as implementações do controlador NMPC e a proposta de NMPC com MINLP. As estratégias propostas para o controlador NMPC foram aplicadas ao reator experimental e foram comparados com um controlador PID. Por último, após os ajustes nos modelos no decorrer dos experimentos, os estudos de viabilidade de trajetórias foram reavaliados para cada modelo e são comparados com os estudos de viabilidade do modelo A (teórico) no início deste capítulo (item 4.2).

4.1 Proposta do Modelo A.

O modelo A foi derivado do modelo mais complexo apresentado no capítulo 3. No modelo mais complexo, o sistema é dotado de um reator e uma coluna de recheio com um condensador parcial no topo da coluna. No modelo A, foi suposto um reator e, no lugar da coluna, considerou-se apenas um reservatório externo (conforme figura 4.1).

Figura 4.1 – Esquema do reator acoplado a um reservatório EG.

4.1.1 Modelagem do reator

É possível observar na tabela 4.1, no campo denominado “reator”, que o número de equações diferenciais e algébricas (EDA) são iguais para os dois modelos (A e complexo). Nota-se que a simplificação do modelo complexo concentra-se na coluna, considerando-a como um reservatório. Assim, o número de equações EDA fica bastante reduzido para o modelo A.

A coluna de recheio do modelo complexo é dividida em 5 seções, cada seção é numerada do topo ao fundo, sendo que a seção igual a 1 corresponde ao condensador parcial.

Tabela 4.1 – Números de EDAs para os modelos complexo (M.C.) e Modelo A (M. A)

Equações	Número de equações diferenciais		Número de equações algébricas	
	M. C.	M. A	M. C.	M. A
No reator				
Balanço de massa das espécies poliméricas E_m , E_g e Z .	3	3	-	-
Balanço de massa para os componentes voláteis EG e M .	2	2	-	-
Balanço de massa total	1	1	-	-
Relações de equilíbrio líquido-vapor.	-	-	2	2
Somatório das frações molares.	-	-	1	1
Balanço de energia (compartimentos e massa reacional do reator)	7	7	-	-
Na coluna de recheio (Número total de seções = 5)				
Balanço de massa para os componentes voláteis EG e M .	10	-	-	-
Balanço de massa total.	5	-	-	-
Relações de equilíbrio líquido-vapor.	-	-	5	-
Somatório das frações molares.	-	-	5	-
Balanço de energia	5	-	-	-
Relações Hidráulicas.	-	-	5	-
Balanço de energia na camisa do condensador parcial (seção = 1)	1	-	-	-
No reservatório				
Balanço de massa para o componente volátil EG .	-	1	-	-
Relação Hidráulica	-	-	-	1
Total	34	14	18	4

4.1.2 Modelagem do reservatório

Como já foi dito, na simplificação do modelo complexo, a coluna de recheio é considerada como um reservatório de etilenoglicol. Assim, o modelo é simplificado de acordo com algumas hipóteses adotadas:

-A coluna comporta-se como um reservatório de etilenoglicol (EG) apenas. Esta hipótese pode ser verificada caso a coluna fosse ideal, isto é, fosse capaz de separar completamente o etilenoglicol do metanol. Outro detalhe é que a temperatura depende da composição, ou seja, a temperatura do reator só altera se as composições mudarem.

-Todo metanol (M) que sai do reator, também sai do reservatório portanto:

$$\frac{dU_M}{dt} = 0. \quad (4.1)$$

-A retenção na fase vapor do reservatório é desprezível;

-A perda de calor pelas paredes do reservatório é desprezível;

-O reservatório se comporta de acordo com o comportamento hidrodinâmico de uma coluna de recheio baseada na correlação de Billet (1995):

$$U = f(L)^{1/3} \quad (4.2)$$

Onde:

U é a retenção molar somente do EG;

L é a vazão molar de EG líquido do reservatório (figura 4.1).

A retenção molar (U) do reservatório varia de acordo com a vazão L .

O balanço de massa para o componente volátil EG no reservatório é dado por:

$$\frac{dEG}{dt} = \frac{dU_{EG}}{dt} = y_{EG}F_v - L_{EG} \quad (4.3)$$

No balanço acima, y_{EG} é a fração molar na fase vapor do componente volátil EG.

O cálculo da vazão molar L do líquido que deixa o reservatório é dado por:

$$L_{EG} = Beta U_{EG}^3 \quad (4.4)$$

Onde Beta é uma constante. O parâmetro Beta concentra um conjunto de parâmetros tais como: aceleração da gravidade, viscosidade, a densidade e o peso molecular do líquido EG, diâmetro e área específica na coluna de recheio.

No modelo A são consideradas apenas duas etapas de operação. No início, o reator opera em batelada, mas à medida em que a reação avança, os voláteis formados são eliminados e a operação entra em regime semibatelada. No reator, leva-se em conta a inércia térmica das paredes do reator e as interações com o reservatório.

4.2 Estudo da não viabilidade de trajetória em simulação usando o modelo A em malha fechada.

4.2.1 Objetivo

O objetivo deste estudo foi verificar se uma determinada trajetória de temperatura é viável através da variação do parâmetro Beta.

O que caracteriza a inviabilidade de trajetórias é quando a variável potência de aquecimento do reator (Q_r) atinge um valor máximo da capacidade física do reator para diferentes valores de Beta. Neste estudo, verificou-se o efeito também sobre as concentrações de cada grupo funcional como Em, Eg, Z, EG e M no reator e no reservatório de EG.

As simulações foram realizadas utilizando um programa implementado em MATLAB (Mathworks®) e admitindo uma trajetória que parte de 140 a 235°C à taxa de aquecimento 0.95 °C/min. A resolução do modelo foi feita através da rotina ODE15S que usa o método “stiff” para a resolução do sistema de equações e possui a funcionalidade de detecção de evento no tempo. Esta funcionalidade consiste em verificar o advento do equilíbrio líquido-vapor no reator. Usou-se o algoritmo PID equivalente ao do programa supervisor IFIX 2.20 para fechar a malha, sendo dado por:

$$u_{(k)} = u_{(k-1)} + K_p (e_{(k)} - e_{(k-1)}) + K_p \frac{T_s}{T_I} e_{(k)} + K_p \frac{T_d (e_{(k)} + 3e_{(k-1)} - 3e_{(k-2)} - e_{(k-3)})}{6T_s} \quad (4.5)$$

onde:

$$e = y_{sp} - y \quad (4.6)$$

$u_{(k)}$, $u_{(k-1)}$ – são variáveis de entradas (manipuladas) nos instantes (k) e $(k-1)$;

$e_{(k)}$, $e_{(k-1)}$, $e_{(k-2)}$, $e_{(k-3)}$ – são os erros calculados entre as variáveis de saída (y) e o valor objetivo (y_{sp}) nos instantes (k) , $(k-1)$, $(k-2)$ e $(k-3)$;

K_p - constante proporcional, em %/°C;

T_I - constante de tempo integral, em min/repetição;

T_d - constante derivativa, em min;

T_s - período de amostragem, em min;

Os parâmetros de sintonias utilizados no controlador PID foram: $K_p = 1,45$ %/°C; $T_i = 0,28$ min/repetições; $T_d = 1,4$ min, período de amostragem de 0,1 minuto.

4.2.2 Efeitos do parâmetro Beta

Nesta etapa de estudo foi analisada a influência do parâmetro Beta sobre a temperatura do reator, bem como as composições químicas, conversão e retenção no reservatório de EG. A simulação foi realizada variando Beta de 0,1 a 1000. Os resultados estão apresentados nas figuras 4.2, 4.3 e 4.4. Na figura 4.2, nota-se que quando Beta aumenta, ocorre uma queda na temperatura do reator nos instantes entre 100 a 120 minutos, devido à quantidade de etilenoglicol (EG) que se acumula no reator (ver figura 4.3), o que faz com a trajetória se torne inviável. Portanto mesmo com a variável Q_r atingindo valores máximos da capacidade física do reator, ela não contribui para o aumento da temperatura do reator. O efeito do aumento do parâmetro Beta pode ser observado na figura 4.3, há um consumo maior do grupo funcional Em favorecendo o aumento da conversão da reação (ver figura 4.4), devido ao acúmulo de EG no reator e conseqüente aumento na produção de metanol total (Mt). Para o acúmulo de metanol (M) no reator, a diferença não é significativa (figura 4.3).

Observando-se a figura 4.4, o aumento do parâmetro Beta produz uma forte redução na quantidade de EG no reservatório, aumento na fração de EG na fase vapor, redução de M (fase vapor) e nas vazões molares de Fv e L que também são reduzidos devido à queda da temperatura do reator.

Nesta fase de estudo com o modelo A, verificou-se que o parâmetro Beta tem um efeito significativo sobre os grupos funcionais Em, Eg, Z, EG, M e também sobre a temperatura do reator, na retenção molar de EG do reservatório e as vazões Fv e L. Para maiores valores de Beta, a trajetória torna-se inviável, por causa da impossibilidade de manter o EG dentro do reator. No entanto, quanto menor for o valor de Beta mais difícil é o EG retornar ao reator.

Figura 4.2- Efeitos do parâmetro Beta sobre a temperatura do reator

Figura 4.3 - Efeitos do parâmetro Beta sobre os grupos funcionais Em, Eg, Z, EG e M

Figura 4.4 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a conversão, retenção molar total, as vazões Fv, L e as frações molares dos componentes voláteis EG e M.

4.3 Apresentação das estratégias de modelagem e implementação do NMPC a um reator experimental sem reação química.

4.3.1 Introdução

Para que o comportamento do modelo A se assemelhe ao do reator experimental, é interessante realizar alterações nos parâmetros com o objetivo de aproximá-lo aos dados experimentais. Isto é fundamental para um bom desempenho do controlador NMPC.

4.3.2 Ajuste do modelo A com os dados do reator de laboratório.

Nesta etapa, para ajustar o modelo A, o reator foi carregado com 8 mols de EG (etilenoglicol) à temperatura de 25 °C. O reator foi aquecido até atingir uma temperatura constante de 140 °C com agitação de 150 rpm. Quando o reator atingiu o estado estacionário, a potência de aquecimento ficou em 8,5 %. Em seguida foi dado um degrau para 17% e o reator alcançou um novo estado estacionário a 192,93 °C, após cerca de 120 minutos, e permaneceu assim até 134 minutos, quando então a potência de aquecimento do reator foi reduzida a zero. Em seguida, ligou-se o resfriamento até a temperatura do reator atingir aproximadamente a 140 °C.

O modelo A foi ajustado com os dados de temperatura do reator experimental conforme a figura 4.5. Os parâmetros foram alterados por tentativa até que o modelo representasse melhor aos dados de temperatura do reator experimental. Os seguintes parâmetros foram alterados:

- Coeficiente de película da massa reacional ($h_{m,r} = 16 \text{ W/m}^2\cdot\text{K}$);
- Massa da placa de alumínio ($m_{Al} = 0,80 \text{ kg}$);
- Coeficiente de convecção do ar externo. ($h_{ar} = 12 \text{ W/m}^2\cdot\text{K}$);
- Vazão de resfriamento do reator ($Q_{ac} = 400 \text{ L/min}$).

Figura 4.5 – Resultados de temperatura do modelo A comparado à do reator experimental.

4.3.3 1º caso de implementação do NMPC ao reator experimental usando o modelo ajustado (1º ajuste do modelo A).

Objetivo de controlar a temperatura do reator em batelada experimental (T_r) manipulando-se a potência de aquecimento (Q_r) foi o 1º caso de implementação do controlador NMPC para um sistema SISO (uma entrada e uma saída). Em seguida, foram definidas estratégias de controle NMPC para outras aplicações experimentais, todas com estratégia “split-range” (ver item 4.3.4 para mais detalhes). A figura 4.6 mostra os detalhes da implementação do NMPC no reator para o sistema SISO.

Figura 4.6 – Esquema do reator experimental em malha fechada (sistema SISO)

Os detalhes técnicos da implementação do NMPC no programa supervisor IFIX 2.20 podem ser vistos no capítulo 3. Para o 1º caso de implementação no reator experimental, os resultados experimentais são apresentados na figura 4.7.

Nota-se que o controlador NMPC apresenta um sobre sinal na temperatura do reator e um baixo desempenho ao longo do tempo do processo. Nos instantes 11 a 18 min, mesmo a potência de aquecimento (Q_r) na posição zero não foi suficiente para diminuir a temperatura do reator, devido à inércia térmica dos diferentes componentes físicos que compõem o sistema de aquecimento. O modelo A por sua vez apresentou previsões de temperatura inadequadas (ver T_{ma}), ficando a maior parte do tempo do processo em “off-set”, o que levou o controlador NMPC a ter um desempenho pobre. Posteriormente foram introduzidas modificações para que o resfriamento da camisa fosse utilizado no reator experimental e no modelo.

Figura 4.7 – Resultado do 1º caso da aplicação do controlador NMPC a um reator experimental.

4.3.4 2º caso de implementação do controlador NMPC.

A modificação nesta etapa foi incorporar o resfriamento na saída do controlador NMPC conforme a seguinte estratégia: quando a potência de aquecimento (Q_r) atinge um valor zero, aciona-se um ventilador que atua na camisa do reator (ver figura 4.8). Esta estratégia de controle é denominada “Split Range” (Carrillo Le Roux, 2001) e é muito comum em processos que exigem aquecimento e resfriamento para controle de temperatura. Neste caso, a saída do controlador NMPC varia de 0 à 100% e apenas uma variável é manipulada por vez (aquece ou resfria). A vazão de resfriamento do reator é representada pela variável Q_{ac} que é uma variável binária (0-1). Na figura 4.9, nota-se que quando o Q_{ac} está na posição (1) significa que foi acionada e na posição (0) está desligada. Os resultados mostram que o NMPC apresentou um baixo desempenho no controle de temperatura do reator, de acordo com a figura 4.9. Nota-se que o controlador NMPC não consegue estabilizar a temperatura do reator, tendo um

desempenho pobre por causa do modelo (ver Tma) e da estratégia de controle implementada. Por este motivo sentiu-se a necessidade de melhorar o modelo com o uso de uma perturbação PRBS (Pseudo Random Binary Sequence) na potência de aquecimento do reator experimental. Além disto, uma nova proposta de formulação de NMPC com programação MINLP foi implementada e será abordada no item 4.5.

Figura 4.8 – Esquema do reator experimental em malha fechada em modo “split-range”.

Figura 4.9 – Resultados do 2º caso de aplicação do NMPC incorporando resfriamento no processo e no modelo A.

4.4 Ajuste do Modelo A aplicando uma perturbação PRBS na variável Q_r do reator experimental.

O objetivo desta etapa foi fazer com que o modelo se ajuste melhor aos dados do reator experimental. Para realizar a perturbação PRBS no reator experimental, foram obtidos valores aleatórios entre 0 e 1 através de um sorteio utilizando a função “rand” do programa MATLAB®. O reator experimental foi operado em modo manual de acordo com as condições abaixo:

1º - Para um valor randômico inferior a 1/3, o reator foi aquecido com Q_r na posição de 100%.

2º - Para um valor randômico superior a 1/3 e inferior a 2/3, o reator não foi aquecido e nem resfriado.

3° - Para um valor randômico inferior a $2/3$ e inferior a 1, o reator foi só resfriado.

Estabelecida às condições acima, os sorteios foram realizados para cada minuto até 40 minutos e foram implementados no reator experimental de laboratório. O modelo do 1° ajuste (ao degrau) foi simulado usando as ações (“aquece”, “não faz nada” e “resfria”) obtidas do sorteio e os resultados foram comparados com os dados obtidos do reator experimental (ver figura 4.10).

A figura 4.11 mostra o modelo A ajustado aos novos dados. Este modelo foi denominado de modelo A com 2° ajuste (ajustado com os dados da perturbação PRBS). Portanto, alguns parâmetros foram alterados, tais como: a massa do compartimento da resistência do cobre (m_{Cu}) e do Alumínio (m_{Al}) e os coeficientes de películas h_{mr} , $h_{inox-ar}$, $h_{inox1-ar}$, $h_{ar-inox2}$. Para quantificar a comparação entre os modelos, foram calculados os desvios médios quadrático (DMQ) de cada temperatura para cada modelo. Nas tabelas 4.2 e 4.3 estão apresentados os valores dos DMQ's e os respectivos parâmetros alterados. As figuras 4.10 e 4.11, mostram as temperaturas da massa reacional do reator experimental (T_r), da massa da resistência do cobre (T_{Cu}), do modelo A (T_{ma}) e do Alumínio (T_{r-res}) e a calculada pelo modelo A (T_{ma-res}).

Analisando as figuras 4.10 e 4.11 e os resultados de DMQ's nas tabelas 4.2 e 4.3, conclui-se que o modelo A com 2° ajuste apresenta um comportamento mais próximo dos dados do reator experimental do que o modelo A com 1° ajuste (ao degrau).

Figura 4.10 – Experimento com perturbação PRBS e Modelo A calculado usando 1^o ajuste.

Figura 4.11 - Experimento com perturbação PRBS e Modelo A calculado usando 2^o

ajuste.

Tabela 4.2 - Parâmetros do modelo com 1° ajuste (ao degrau).

Parâmetros	DMQ para as temperaturas
$h_{mr} = 16 \text{ W/m}^2.\text{K}$	Temp. da massa reacional (T_r) = 16
$m_{Cu} = 0,031 \text{ kg}$	Temp. da resistência (T_{Cu}) = 131
$m_{Al} = 0,8 \text{ kg}$	Temp. do Alumínio (T_{Al}) = 21
$h_{AC} = 10 \text{ W/m}^2.\text{K}$ do compartimento (3) conforme anexo E.	-
$h_{AC} = 10 \text{ W/m}^2.\text{K}$ do compartimento (6) conforme anexo E.	-
$h_{AC} = 10 \text{ W/m}^2.\text{K}$ do compartimento (7) conforme anexo E.	-
$Q_{ac} = 150 \text{ L/min.}$	-
$Beta = 1 \text{ min}^{-1}.\text{mol}^{-2}$	-

Tabela 4.3 - Parâmetros alterados no modelo com 2° ajuste (PRBS).

Parâmetros alterados	DMQ para as temperaturas
$h_{mr} = 73 \text{ W/m}^2.\text{K.}$	Temp. da massa reacional (T_r) = 3,6
$m_{Cu} = 6,6 \text{ kg}$	Temp. da resistência (T_{Cu}) = 13
$m_{Al} = 0,8 \text{ kg}$	Temp. do Alumínio (T_{Al}) = 11
* $h_{AC} = 100 \text{ W/m}^2.\text{K}$ do compartimento (3) conforme anexo E.	-
* $h_{AC} = 3000 \text{ W/m}^2.\text{K}$ do compartimento (6) conforme anexo E.	-
* $h_{AC} = 20 \text{ W/m}^2.\text{K}$ do compartimento (7) conforme anexo E.	-
$Q_{ac} = 150 \text{ L/min.}$	-
$Beta = 1 \text{ min}^{-1}.\text{mol}^{-2}$	-

*Os h 's passam a ter esses valores, quando a vazão Q_{ac} for acionada, caso contrário prevalece os valores que estão na tabela 4.2.

4.5 Abordagem do controlador NMPC usando programação MINLP.

Nesta etapa de implementação, o resfriamento do reator foi considerado como uma variável binária e foi introduzido no controlador NMPC. A implementação do NMPC com programação MINLP, consistiu em realizar combinações da variável potência de aquecimento (Q_r) e da variável binária resfriamento (Q_{ac}). Neste caso, quatro combinações foram possíveis, com um horizonte de controle de 2. As seguintes situações foram comparadas:

- 1-Aquecimento nos dois horizontes de controle;
- 2-Aquecimento apenas no primeiro horizonte de controle e resfriamento no segundo;
- 3-Resfriamento apenas no primeiro horizonte de controle e aquecimento no segundo;
- 4-Resfriamento nos dois horizontes; neste caso, não há variável de otimização, apenas calcula-se o valor da função objetivo.

As soluções para cada um dos três problemas de otimização foram obtidas através da rotina “fmin” do Matlab. As quatro soluções foram comparadas e foi adotada aquela correspondente ao menor valor para as quatro situações. A ação de controle correspondente ao menor valor objetivo para as quatro soluções foi implementada no reator experimental. Lembrando que de acordo ao algoritmo NMPC apenas a primeira ação é implementada.

4.5.1 Aplicação do controlador NMPC com programação MINLP ao reator experimental.

4.5.1.1 Modelo A com 2° ajuste

Nesta etapa, foi implementado o controlador NMPC usando como referência o modelo A com 2° ajuste, estando os resultados apresentados na figura 4.12. Pode-se

observar na figura 4.12 que ainda há um sobre sinal nos instantes de 09 a 16 min. Nota-se que mesmo com a vazão Q_{ac} ligado, a temperatura se elevou, devido o acúmulo de calor entre os compartimentos do reator.

O NMPC teve um desempenho melhor do que as implementações testadas anteriormente. Para quantificar o desempenho do NMPC, foram calculados os valores de ISE (integral dos erros ao quadrado) e IAE (integral dos erros absolutos) cujos valores foram respectivamente 1493 e 229.

A seguir, é apresentado um estudo em que o modelo foi ajustado aos dados experimentais através da estimação.

Figura 4.12 – Controle da temperatura do reator de laboratório aplicando NMPC.

4.5.1.2 Modelo A com 3° ajuste (via estimação)

Nesta fase, o modelo A com 2° ajuste foi submetido ao processo de estimação usando programação não linear (SQP). O objetivo foi minimizar o DMQ para

temperatura da massa reacional com a medida experimentalmente (obtido com ensaio de perturbação PRBS) para estimar o coeficiente de película da massa reacional, massas de cobre e alumínio. Comparado com os valores do DMQ's do modelo A com 2° ajuste (ver tabela 4.3), o modelo com 3° ajuste (tabela 4.4) apresenta-se melhor ajustado com os dados experimentais. Este modelo foi utilizado como modelo de referência no controlador NMPC para controlar a temperatura do reator experimental. Os resultados são apresentados na figura 4.13.

Nota-se que o NMPC teve um desempenho melhor que quando comparado com a implementação usando o modelo A com 2° ajuste. Observa-se na figura 4.13 que o sobre sinal é mais suave nos instantes de 9 a 13 min. O desempenho do controlador NMPC com este modelo apresentou um $ISE = 919$ e $IAE = 173$ e foi melhor que do NMPC com o modelo A com 2° ajuste ($ISE = 1493$ e $IAE = 229$). Nota-se que nos instantes de 0 a 10 min, o modelo responde mais rápido em comparação ao processo. O reator do processo leva aproximadamente 3 minutos para acusar um aumento de temperatura. Diante disto, foi realizada uma simulação em malha aberta usando o modelo A com 3° ajuste, introduzindo um atraso de 3 minutos e comparando-se os resultados com os dos ensaios com perturbação PRBS. A tabela 4.5 e a figura 4.14 mostram que o modelo se distanciou dos resultados experimentais significativamente. Para confirmar, foi realizada uma simulação em malha fechada usando o controlador NMPC com um atraso de 3 minutos na variável de entrada Q_r do modelo com 3° ajuste. Os resultados encontram-se na figura 4.15. A figura 4.15 mostra que o atraso de 3 minutos no modelo afeta diretamente o controlador NMPC piorando o seu desempenho.

Conclui-se que, adicionar um atraso de 3 minutos faz o modelo produzir previsões ruins e conseqüentemente o controlador NMPC teve um desempenho pobre no controle da temperatura do reator.

Tabela 4.4 - Parâmetros obtidos para o modelo A com 3° ajuste (via estimação).

DMQ para as temperaturas	Parâmetros obtidos
Temp. da massa reacional (T_r) = 3,5	$h_{mr} = 65,5 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}.$
Temp. da resistência (T_{Cu}) = 11	$m_{Cu} = 0,5 \text{ kg}$
Temp. do Alumínio (T_{Al}) = 11	$m_{Al} = 3,5 \text{ kg}$
* $h_{AC} = 100 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}$ do compartimento (3) conforme anexo E.	-
* $h_{AC} = 3000 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}$ do compartimento (6) conforme anexo E.	-
* $h_{AC} = 20 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}$ do compartimento (7) conforme anexo E.	-
$Q_{ac} = 150 \text{ L/min}.$	-
$\text{Beta} = 1 \text{ min}^{-1} \cdot \text{mol}^{-2}$	-

*Os h 's passam a ter esses valores, quando a vazão Q_{ac} for acionada, caso contrário prevalece os valores que estão na tabela 4.2. A tabela com todos os parâmetros do modelo A encontra-se no anexo E.

Figura 4.13 – Controle NMPC da temperatura do reator experimental usando o modelo A com 3° ajuste (via estimação).

Tabela 4.5 – Valores de DMQ's obtidos para o modelo A com 3° ajuste introduzindo atraso de 3 min.

DMQ para as temperaturas	Parâmetros usados
Temp. da massa reacional (T_r) = 14	$h_{mr} = 65,5 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}$.
Temp. da resistência (T_{Cu}) = 27	$m_{Cu} = 0,5 \text{ kg}$
Temp. do Alumínio (T_{Al}) = 28	$m_{Al} = 3,5 \text{ kg}$

Figura 4.14 – Modelo A com 3° ajuste com atraso de 3 min.

Figura 4.15 – Simulação com atraso de 3 min no Modelo A com 3° ajuste.

4.6 Aplicação do controlador NMPC com programação MINLP ao reator experimental com reação química.

4.6.1 Estudo do reator experimental em malha aberta com reação química

4.6.1.1 Introdução à operação do reator

A operação do reator experimental necessita de um procedimento adequado de modo a garantir um bom funcionamento e evitar alguns problemas tais como: vazamento de reagentes ou produtos, “Flooding” da coluna de recheio pelo DMT, endurecimento da massa reacional após o termino da reação, dentre outros. Antes de iniciar a reação apresentamos uma lista de procedimentos:

- Verificar vazamentos no sistema com testes de ar comprimido.
- Utilizar ar comprimido quente para secar e eliminar toda a presença de umidade no sistema;
- Checar se as leituras dos medidores de temperaturas estão coerentes;
- Carregar o reator com DMT;
- Aquecer o DMT até a fusão (139-141°C) com agitação inicial de 50 rpm;
- Depois de fundido o DMT, carregar o reator com EG quente a 140 °C mantendo a agitação em 50 rpm. Reservar aproximadamente 20 ml de EG e adicionar o catalisador acetato de zinco;
- Aquecer o reator no modo manual até atingir uma temperatura de 140 °C e ajustar a potência de aquecimento até atingir um estado estacionário na mesma temperatura. Por último adicionar os 5 ml de EG com catalisador a 140 °C;
- Realizar o ensaio experimental;
- Quando atingir o tempo final, desligar o sistema de aquecimento e ligar o resfriamento;
- Quando atingir uma temperatura de 150-160°C, desmontar o reator para evitar que a massa reacional endureça.

4.6.2 Estudo experimental em malha aberta do reator experimental com reação química.

O objetivo foi verificar os efeitos das variáveis independentes potência de aquecimento do reator (Q_r) e resfriamento da camisa do condensador parcial (Q_w) para diferentes velocidades de agitação, sobre as temperaturas do reator e do condensador parcial.

Primeiramente, o reator foi carregado com 1,5 mol de DMT (Tereftalato de dimetila) e 3 mols de Etileno glicol (EG) à temperatura de 140 °C, com agitação constante de 150 rpm. O reator foi aquecido no modo manual até atingir uma temperatura constante de 180°C para realizar ensaios para diferentes valores de Q_r para diferentes valores de Q_w .

4.6.2.1 Ensaio para diferentes valores de Q_r

Este ensaio tem por finalidade conhecer os efeitos da potência de aquecimento do reator (Q_r) sobre as temperaturas do reator (T_r) e do condensador parcial (T_{cp}).

Após a temperatura do reator atingir 180 °C ela foi mantida constante por meio da potência de aquecimento na posição de 14% (207 W), com agitação constante de 150 rpm e com a vazão $Q_w=10$ ml/min. Após isto, foi dado um degrau na potência de aquecimento do reator de +30% sendo que o valor foi para 18% (266 W). A temperatura do reator (T_r) aumentou de 180 °C para 189 °C em 2 horas. Pode-se notar na figura 4.16 que a resposta é muito lenta, devido à resistência entre os compartimentos do reator, limitando a transferência de calor para a massa reacional. Este tipo de problema foi relatado anteriormente por alguns autores (Carrillo Le Roux, 2001; Noriega, 2001) e pode ser considerado um dos maiores problemas do controle do reator. No tempo de 30 a 40 minutos, nota-se oscilação na temperatura do reator, resultado da condensação da mistura líquida de EG e M que retorna ao reator. Há também outro problema: a temperatura do reator não aumenta enquanto uma parcela da mistura EG e M não é removida do reator.

No início do aumento da temperatura do reator, começa a haver presença de Metanol (M) no condensador parcial à temperatura de 64°C, o que significa que o metanol deixa o sistema praticamente puro nestas condições.

Depois disto, foi dado um degrau na potência de aquecimento do reator de -30% (148 W) e verificou-se que a temperatura do reator diminuiu para 140 °C em 2 horas. Na figura 4.17, observa-se que no início há presença de metanol no condensador parcial à temperatura de 64°C, a remoção deste foi diminuindo à medida que diminui a temperatura da massa reacional ao longo do tempo e o reator vai-se resfriando no modo natural e conseqüentemente a temperatura do condensador parcial (T_{cp}) diminui, o que facilita a condensação de uma parcela de metanol causando variações brusca na temperatura do reator, no intervalo de 20 a 30 minutos.

Figura 4.16 – Resposta em malha aberta com degrau de +30% na potência de aquecimento.

Figura 4.17 – Resposta em malha aberta com degrau de -30% na potência de aquecimento.

4.6.2.2 Ensaio para diferentes valores de Q_w

Nesta etapa, a potência de aquecimento foi mantida constante em 20% (296 W) o que levou a temperatura do reator a um valor constante de 189 °C. Logo depois, foi dado um degrau na variável Q_w de 2% para 7,8%. Na figura 4.18, é possível verificar que a vazão nesta posição faz com que a temperatura do condensador parcial diminua gradativamente. Nota-se que a temperatura do condensador cai bruscamente no início no tempo de 9 a 28 minutos e depois sobe quase atingindo a temperatura de ebulição do metanol a 64 °C durante alguns instantes, mas vai caindo gradativamente ao longo do tempo. Essas oscilações são devidas as pequenas quantidades de EG e M que retornam ao reator fazendo diminuir a temperatura do reator. Portanto conclui-se que a variável Q_w tem uma forte influência na temperatura do reator e está diretamente ligada à remoção do metanol no topo da coluna.

Figura 4.18 – Resposta em malha aberta com degrau de 2% para 7,8% na variável Q_w .

Portanto, conforme foi visto, que Q_r tem um efeito importante nas temperaturas do reator e do condensador parcial. Constatou-se também que a subida da temperatura é muito lenta para uma perturbação ao degrau de 30% na variável Q_r . Este fenômeno ocorre devido à resistência entre os compartimentos do reator, limitando a transferência de calor para a massa reacional, que é uma das dificuldades sendo um desafio para as técnicas de controle.

A variável Q_w exerce uma forte influência na temperatura do reator, portanto há uma forte interação entre as variáveis manipuladas (Q_r e Q_w) e tem uma importância direta na remoção do metanol no topo da coluna.

4.6.3 Aplicação do controlador NMPC com programação MINLP (item 4.5) ao reator experimental com reação química.

Nesta etapa, o modelo A com 3° ajuste é admitido como modelo interno para aplicação do controlador NMPC ao reator experimental, envolvendo reação química. O controlador NMPC é usado para fechar a malha de temperatura do reator experimental e para a malha de temperatura no topo da coluna, um controlador PI foi utilizado. A figura 4.19 mostra os detalhes da implementação. Deseja-se controlar a temperatura do reator (T_r) manipulando as variáveis: potência de aquecimento (Q_r) e a vazão de ar frio na camisa do reator (Q_{ac}). Para controlar a temperatura do condensador parcial (T_{cp}) manipula-se a vazão de resfriamento (Q_w) usando água fria.

Os parâmetros de sintonia utilizados no controlador NMPC são: os horizontes $M = 2$, $P = 4$, as matrizes diagonais $Q = 1$, $R = 0$, $S = 1e-3$, período de amostragem $\Delta t = 1$ minuto e as restrições utilizadas nas entradas são: $u_{min} = 0$ e $u_{max} = 100$. Para o controlador PI, as sintonias são: $K_p = 0,5 \text{ } \%/^{\circ}\text{C}$; $T_i = 0,01 \text{ min/repetições}$ e o período de amostragem é de 1 segundo.

Em todos ensaios experimentais, o reator foi carregado com 1,5 mols de DMT (tereftalato de dimetila) e 3 mols de etileno glicol (EG), com uso do catalisador acetato de zinco na concentração de $3,75 \times 10^{-4}$ (mol cat./mol DMT), sob agitação constante de 150 rpm.

Para favorecer o avanço da reação, a separação da mistura de M do EG é feita a 67°C , permitindo preferencialmente a remoção de M nesta temperatura. As trajetórias utilizadas como objetivo para as temperaturas do reator e condensador parcial foram:

-Trajetória: a temperatura do reator inicia-se a 140 e vai até 180°C a uma taxa de 4°C/min e depois para 200°C a uma taxa de $0,25^{\circ}\text{C/min}$. Mantêm-se no patamar de 200°C até 120 min;

-Trajetória do condensador parcial: patamar de 67°C por 120 min.

Figura 4.19 – Esquema de representação dos controles de temperatura T_r e T_{cp} em um reator experimental

4.6.3.1 Controlador NMPC usando o modelo A com 3° ajuste.

O experimento foi realizado aplicando o controlador NMPC ao reator experimental usando o modelo A com 3° ajuste. A figura 4.20 mostra os resultados obtidos. Nota-se que o controlador NMPC conseguiu manter a temperatura sob controle, mas a sua robustez foi afetada por causa da temperatura do modelo (T_{ma}) que divergiu quando comparada com a temperatura do reator experimental (T_r). O controlador NMPC apresentou valores de $ISE = 1956$ e $IAE = 215$ para um tempo total de 55 minutos. A partir deste tempo, o reator não seguiu em frente porque o modelo atinge temperaturas superiores a 236°C . O erro entre o modelo e o reator foi de $46,6^\circ\text{C}$ o que impossibilitou o controlador NMPC de realizar os cálculos de otimização.

O reator experimental não apresentou um sobre sinal, quando comparado com as implementações anteriores, porque logo no início do processo com reação química,

ocorre grande perda de massa principalmente de metanol. Mesmo com a potência de aquecimento (Q_r) elevada no tempo 5 a 11 minutos (ver figura 4.20), a temperatura não aumenta. No tempo 11 a 17 minutos, a vazão de ar da camisa do reator (Q_{ac}) foi acionada pelo controlador NMPC o que permitiu manter o controle de temperatura do reator, mas a temperatura do condensador parcial (T_{cp}) neste período foi um pouco afetada. A partir dos 17 minutos a variável Q_w (vazão da camisa do condensador parcial) entra em operação com mais intensidade chegando a 100% da capacidade, o que significa que grandes quantidades de componente voláteis EG e M chegaram ao topo da coluna, sendo que na temperatura de 67°C apenas o metanol é removido.

Figura 4.20 - Aplicação do NMPC ao reator experimental usando modelo A com 3° ajuste.

O modelo A com 3° ajuste é um modelo cujas hipóteses são que só EG retorna ao reator e que todo o metanol é removido do reservatório (ver item 4.1.2). Realizou-se uma simulação com o objetivo de ajustar o modelo aproveitando os valores de Q_r e Q_{ac}

apresentados na figura 4.20. A simulação foi feita variando o parâmetro Beta de 1 para 1000, o que permite retornar mais EG ao reator fazendo com que as composições sejam alteradas e, conseqüentemente, ocorra uma queda na temperatura. A figura 4.21 mostra os resultados da simulação. É possível observar que mesmo com um Beta muito grande a temperatura do modelo (T_{ma}) foi pouco afetada. Na figura 4.22, é possível ver que a retenção de EG no reservatório atingiu um valor por volta de 0,06 mol, o que se significa que praticamente todo EG ficou no reator.

Figura 4.21 – Resultados da simulação com diferentes Beta no modelo A com 3° ajuste.

Figura 4.22 – Resultados da retenção com diferentes Beta aplicado ao modelo A com 3° ajuste.

4.7 Proposição de um novo modelo sem saída de metanol: o modelo B

O modelo proposto com a hipótese de que só o EG retorna do reservatório ao reator não foi eficiente para realizar previsões, principalmente quando se atinge o equilíbrio líquido vapor e as interações com a coluna aumentam. Diante disto, o modelo foi modificado, em vez de só o EG retornar ao reator, foi considerado que o metanol (M) também retorna, sendo que a mistura de EG e M fica retida no reservatório, como pode ser visto na figura 4.23. Sendo assim, o metanol não sai do sistema e as trajetórias se tornam inviáveis com mais facilidade, como ocorre na prática.

O modelo assim obtido foi denominado de Modelo B e a tabela com todos os parâmetros do modelo A encontra-se no anexo E. Observa-se na figura 4.24 que o modelo B com $\text{Beta} = 0,02$ já não leva a uma temperatura elevada como ocorreu no modelo A, pois uma mistura de EG e M que retorna ao reator não permite que a temperatura aumente enquanto a parcela de Metanol não for removida do reator. Como modelo B usando o $\text{Beta} = 0,02$, a quantidade de EG e M fica praticamente toda retida no reservatório (ver figura 4.25). O modelo B não se ajusta bem a temperatura do reator experimental, porém é mais representativo quando comparado com o modelo A. A

seguir foi realizado um novo experimento aplicando o controlador NMPC ao reator experimental usando o modelo B.

Figura 4.23 – Esquema do Modelo B com reservatório de EG e M.

Figura 4.24 - Resultados da simulação com $\beta = 0,02$ no modelo B.

Figura 4.25 – Resultados da retenção com $\text{Beta} = 0,02$ aplicado no Modelo B

4.8 Reavaliação dos estudos de viabilidade de trajetória comparando os modelos A e B em malha fechada.

O objetivo deste estudo foi reavaliar a viabilidade de trajetórias com o modelo A, que foi realizado no item 4.2, com o modelo A (teórico). O estudo consistiu em comparar a simulação dos dois modelos (ajustados com os dados experimentais) em malha fechada, variando-se o parâmetro Beta e verificando-se o seu efeito sobre a temperatura do reator, as concentrações de cada grupo funcional, as vazões F_v e L e a retenção molar (U) no reservatório. As simulações foram realizadas para trajetória que vai de 140 a 235°C à velocidade de 0,95 °C/min. Usou-se o algoritmo PID para fechar a malha.

Nas simulações em malha fechada, para o modelo A, Beta foi variado entre 0,1 e 1000, valor para o qual não foi possível seguir a trajetória proposta. Já para o modelo B, com Beta igual a 0,02 não foi possível seguir a trajetória. Por esta razão o modelo B foi simulado também com Beta igual a 0, em que não há retorno de líquido para o reator.

Nas figuras 4.26 e 4.27, são apresentados os efeitos da variação do parâmetro Beta sobre a temperatura para os modelos A e B. Os efeitos sobre os grupos funcionais Em, Eg, Z, EG e M estão representados nas figuras 4.28 e 4.29. Nas figuras 4.30 e 4.31, estão apresentadas os efeitos do parâmetro Beta sobre a conversão, retenção, vazões Fv, L e as frações molares dos componentes voláteis EG e M.

Nas figuras 4.26 e 4.27, pode-se observar para os dois modelos que, com o valor de Beta maior, o controlador PID não conseguiu fazer com que a temperatura do reator seguisse a trajetória desejada no tempo de 100 a 120 minutos.

Para o modelo A, o estudo é muito similar ao estudo apresentado no item 4.2, em que os parâmetros ainda não tinham sido ajustados. Por isso é que a variável Qr apresenta valores mais elevados neste novo estudo.

O modelo A não prevê o retorno de nenhum metanol ao sistema e o retorno de EG é controlado pelo parâmetro Beta. O aquecimento Qr tem o efeito de controlar o conteúdo de EG no reator, pois quanto mais vigoroso o aquecimento, maior Fv. No entanto, a quantidade de EG no reator não afeta tão significativamente a temperatura quanto à presença de M. Sendo assim, é possível ver na figura 4.28 que há uma diferença significativa no EG presente no reator. Para o modelo B a quantidade de EG no reator não apresenta uma diferença tão importante (ver figura 4.29). Isto mostra que a temperatura do reator é muito mais sensível à presença de M do que com o EG como era de se esperar, pela diferença de ponto de ebulição (temperaturas de ebulição: $T_{eM} = 64,7\text{ °C}$ e $T_{eEG} = 194,7\text{ °C}$ a 1 atm).

Figura 4.26 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a temperatura do reator no Modelo A

Figura 4.27 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a temperatura do reator no Modelo B

Figura 4.28 - Efeitos do parâmetro beta sobre os grupos funcionais E_m , E_g , Z , EG e M par ao Modelo A

Figura 4.29 - Efeitos do parâmetro Beta sobre os grupos funcionais E_m , E_g , Z , EG e M para o Modelo B.

Figura 4.30 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a conversão, retenção, nas vazões F_v , L e nas frações molares dos componentes voláteis EG e M para o Modelo A.

Figura 4.31 - Efeitos do parâmetro Beta sobre a conversão, retenção, nas vazões F_v , L e nas frações molares dos componentes voláteis EG e M para o Modelo B.

As figuras 4.28 e 4.30 apresentam os resultados do modelo A. Aumentando o valor de Beta, a retenção de EG no reservatório diminuiu atingindo valor de 0,1 mol. Conseqüentemente, o EG tendeu a acumular a mais no reator, provocando aumento no consumo de grupos Em favorecendo a conversão da reação e aumentando assim a formação do metanol total (Mt). Para o metanol (M) no reator ocorreu uma variação não perceptível como pode ser visto na figura 4.28. A concentração de grupos éster hidroxietílico (Eg) aumentou e a concentração de grupos diéster (Z) diminuiu com o aumento de Beta. A redução de grupos éster Z (figura 4.28) se deve ao deslocamento da reação de policondensação (ver capítulo 3, equação 3.3) para a esquerda devido ao aumento da concentração de EG, favorecendo o aumento de grupos Eg. A fração molar de EG na fase vapor diminui enquanto a de M aumenta por causa do retorno de EG mais frio ao reator. Mesmo assim, a conversão da reação não é prejudicada (ver figura 4.30). O aumento das vazões molares de Fv deve-se ao fato do Qr aumentar na tentativa de manter a temperatura do reator por meio do controlador PID e como o valor de Beta é alto, faz com que a vazão L aumente.

Para o modelo B, pode-se notar na figura 4.31 que com o aumento de Beta, a retenção de EG no reservatório aumentou e a de M diminuiu. Observa-se também que o efeito na retenção é muito maior quando comparado com o modelo A da figura 4.30. Nota-se que na figura 4.27 que apesar do valor de Beta ser de 0,02 a temperatura do reator é afetada, devido ao acúmulo de metanol mesmo em pequenas quantidades.

O metanol é um produto da reação de grupos Em com o EG e com os ésteres Eg e Z. Observe-se na figura 4.29 o retorno do metanol em pequenas quantidades ao reator, faz mudar o sentido da reação, resultando em uma pequena redução no consumo de grupos Em, na conversão da reação e no metanol total (Mt). Quanto ao metanol (M) no reator, ocorreu uma pequena variação, imperceptível devido à escala (figura 4.29). A concentração de grupos éster hidroxietílico (Eg) diminuiu, enquanto a concentração de grupos diéster (Z) permaneceu praticamente inalterada. O retorno da mistura de EG e M ao reator, faz o metanol diminuir a velocidade de reação, o que pode ser notado pela redução de EG, deixando o EG livre, o que explica o aumento da fração molar de EG na fase vapor, enquanto a de M diminuiu. Na figura 4.31, a conversão foi prejudicada chegando a 80%, no tempo de 120 minutos, enquanto que para o modelo A ela ficou em

torno de 92%. O aumento de F_v foi devido ao fato de Q_r aumentar, na tentativa de manter a temperatura do reator por meio do controlador PID.

A realidade está entre os dois modelos: ao contrário do que supõe o modelo A algum metanol retorna ao reator e diferentemente do que supõe o modelo B algum metanol deixa a coluna. No entanto, conforme foi mencionado a simplificação do modelo foi necessária a fim de obter um modelo para uso em um controlador NMPC. Devido ao fato dele ser mais conservativo, ou seja, ser menos otimista quanto à viabilidade das trajetórias, optamos pelo modelo B com $\text{Beta}=0,02$ para a implementação do NMPC.

4.9 Controlador NMPC com o modelo B

O experimento foi realizado aplicando o controlador NMPC ao reator experimental. A figura 4.32 mostra os resultados obtidos. Para quantificar os resultados, na tabela 4.6 encontram-se os valores de ISE e IAE para os modelo A e B. Nota-se que o controlador NMPC apresentou melhor desempenho quando comparado com o NMPC com o modelo A. Nota-se que o modelo B teve melhor desempenho que o modelo A em todo o processo, o que permitiu que o controlador NMPC obtivesse uma melhora global no seu desempenho. Na seqüência, o desempenho do controlador NMPC com modelo B, foi comparado com um controlador convencional PID do IFIX 2.20.

Figura 4.32 – Aplicação do NMPC no reator experimental usando o modelo B

Tabela 4.6 – Valores de ISE e IAE obtidos do controlador NMPC com modelo A e B.

	Modelo A	Modelo B
ISE	1956	696
IAE	229	198

Obs: valores de ISE e IAE calculados até 55 minutos para o Modelo A e no modelo B até 120 min.

4.91 Comparação do controlador NMPC com controlador PID do IFIX aplicado a um reator experimental.

Nesta fase, as malhas das temperaturas do reator e condensador parcial do reator experimental foram fechadas usando um controlador PID para a malha da temperatura do reator e um controlador PI para a malha do condensador parcial cujo algoritmo foi do programa IFIX 2.20.

Os parâmetros de sintonia para o PID foram estimados usando uma NLP, que minimiza os erros entre a temperatura do reator e a trajetória (do item 4.6.3) como “setpoint”. Para o controlador PI os parâmetros foram retirados de Noriega (2001). Os parâmetros de sintonia utilizados nos controladores são:

PID da malha do reator: $K_p = 1,45 \text{ } \%/^{\circ}\text{C}$; $T_i = 0,28 \text{ min/repetições}$; $T_d = 1,4 \text{ min}$;

PI da malha do condensador parcial: $K_p = 0,5 \text{ } \%/^{\circ}\text{C}$; $T_i = 0,01 \text{ min/repetições}$.

Os resultados estão apresentados na figura 4.33 e os valores de ISE e IAE estão na tabela 4.7. Comparando os resultados, o controlador PID apresentou resultado equivalente ao controlador NMPC proposto. O modelo quando representa bem o processo aumenta a robustez do NMPC. Porém, no tempo 100 a 120 minutos da figura 4.32 (do item 4.9), nota-se que o modelo vai se distanciando do processo, e o desempenho do controlador NMPC vai se degradando.

Devido ao processo de otimização, o NMPC tem vantagens em relação ao PID, porém tem limitação da carga computacional elevada, o que inviabiliza o trabalho com pequenos períodos de amostragem.

Outra dificuldade do controlador NMPC provém da observação de estado, pois há muitos estados iniciais para estimar que traz uma grande incerteza ao modelo. Portanto diante disto, no próximo capítulo é proposto um NMPC com retroalimentação de estado com o objetivo de corrigir a trajetória do modelo o que permitirá melhorar o controle do reator experimental.

Figura 4.33 - Resultados dos controladores PID e PI aplicado no reator experimental.

Tabela 4.7 – Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC e PID.

	NMPC (com modelo A)	NMPC (com modelo B)	PID
ISE	1956	696	621
IAE	229	198	241

Obs: valores de ISE e IAE calculados até 55 minutos para o Modelo A e no modelo B até 120 min.

CAPÍTULO 5

5 ESTUDO COM PERTURBAÇÃO NOS ESTADOS INICIAIS DO MODELO B E APLICAÇÃO EXPERIMENTAL DO CONTROLADOR NMPC COM RETROALIMENTAÇÃO DE ESTADO.

Neste capítulo, são realizadas várias simulações com perturbação nos estados iniciais do modelo B em malha fechada usando o controlador NMPC implementado anteriormente. Ele será denominado de NMPC simples para diferenciá-lo da nova estratégia proposta de NMPC com retroalimentação de estado. Em seguida, serão apresentadas simulações de casos com perturbações mais vigorosas a fim de comparar os desempenhos entre os controladores NMPC simples e com retroalimentação de estado. Por último o controlador NMPC com retroalimentação de estado será aplicado experimentalmente para comparar o seu desempenho com os outros dois controladores NMPC simples e o PID. Depois, o desempenho do controlador NMPC com retroalimentação de estado será comparado com o PID, para diferentes trajetórias.

5.1 Perturbação nos estados iniciais do modelo B.

O modelo B é composto de diferentes compartimentos que representam o sistema de aquecimento do reator experimental (ver figura 3.4 do capítulo 3). Portanto, o modelo possui sete balanços de energia e cada estado está representado como segue:

T_{Cu} – temperatura da resistência do cobre;

T_{Al} – temperatura da placa de alumínio;

$T_{base\ inox}$ – temperatura da base inox do reator;

T_r – temperatura da massa reacional;

$T_{inox\ lateral}$ – temperatura da parede do reator;

$T_{a.c.}$ – temperatura da camisa do reator;

$T_{inox\ cima}$ – temperatura da parede de cima do reator.

Simulações foram realizadas perturbando as temperaturas iniciais do modelo B conforme a tabela 5.1. Para fechar a malha, foi utilizado o controlador NMPC simples.

Nas simulações, as condições foram realizadas para cada caso no modelo de referência e mantidas fixas as condições do 1º caso no modelo de processo. O modelo de referência é um modelo do processo que é utilizado para realizar os cálculos de previsões para o controlador NMPC, também conhecido como modelo interno. Portanto, assume-se que o modelo de referência é compatível com o modelo do processo.

Tabela 5.1– Casos com diferentes condições iniciais utilizados no modelo.

	Temperaturas iniciais em °C						
	T _{Cu}	T _{Al}	T _{base inox}	T _r	T _{inox lateral}	T _{a.c}	T _{inox cima}
1º caso	160	160	144	140	137	133	134,5
2º caso	140	140	140	140	140	140	140
3º caso	160+30	160+30	144+30	140	137+30	133+30	134,5+30
4º caso	160-30	160-30	144-30	140	137-30	133-30	134,5-30
5º caso	160-50	160+30	144-50	140	137+40	133-30	134,5+50

O 1º caso (representa a condição normal) correspondente as mesmas condições iniciais para os dois modelos: de referência (mb) e do processo (mp) .

As figuras 5.1, 5.2, 5.3, 5.4 e 5.5 mostram os resultados da perturbação nos estados iniciais para cada caso. A figura 5.1 corresponde ao 1º caso (condição normal). Pode-se visualizar nas figuras 5.2, 5.3, 5.4 e 5.5 as divergências do modelo de predição com o processo nos instantes de 0 a 30 minutos. Para quantificar o desempenho do controlador NMPC simples, foram calculados os valores de ISE e IAE para cada caso de perturbação, o que pode ser visto na tabela 5.2. Analisando os resultados de ISE e IAE do 1º caso com os outros casos, o controlador NMPC simples teve seu desempenho afetado por causa da dificuldade do modelo em realizar previsões em diferentes casos de perturbação. Portanto, como proposta de melhoria do controle, foram realizadas duas simulações com uma nova estratégia de controlador NMPC com retroalimentação de estado. Os dois casos escolhidos foram o 3º e o 5º casos de perturbação, os quais foram considerados os mais rigorosos pelo fato de apresentarem valores maiores de ISE e IAE do que os outros casos. Depois foram comparadas as duas estratégias NMPC simples e NMPC com retroalimentação de estado.

Figura 5.1 – Resultados em malha fechada com NMPC para o 1º caso

Figura 5.2 – Resultados em malha fechada com NMPC para o 2º caso.

Figura 5.3 – Resultados em malha fechada com NMPC para o 3º caso.

Figura 5.4 – Resultados em malha fechada com NMPC para o 4º caso.

Figura 5.5 – Resultados em malha fechada com NMPC para o 5° caso.

Tabela 5.2 – Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC simples.

	1° caso	2° caso	3° caso	4° caso	5° caso
ISE	137	228	239	209	240
IAE	60	72	82	77	80

5.2 Simulação usando o controlador NMPC com retroalimentação de estado.

O modelo está sujeito a perturbações do processo, o que requer sempre necessidade de ajuste para tornar-se mais compatível com o processo. Desta forma, uma estratégia do controlador NMPC com retroalimentação de estado é proposta.

A estratégia do controlador NMPC com retroalimentação de estado consiste em corrigir a trajetória do modelo de predição. A estado do reator do processo é lido a cada período de amostragem e torna-se condição inicial do modelo. A retroalimentação é realizada usando a temperatura do reator experimental como uma condição inicial no modelo a cada período de amostragem.

Foram feitos duas simulações com o 3° e o 5° caso para cada estratégia de controle NMPC simples e NMPC com realimentação de estado. Os resultados encontram-se nas figuras 5.6, 5.7, 5.8 e 5.9. As figuras 5.6 e 5.8 mostram os desvios da trajetória do modelo em relação ao processo com o controlador simples. As figuras 5.7 e 5.9, mostram a trajetória do modelo corrigido com o controlador NMPC com retroalimentação de estado. A tabela 5.3 mostra os resultados de ISE e IAE para cada controlador. Comparando as figuras 5.6 e 5.8 com 5.7 e 5.9, nota-se que o modelo é corrigido através da retroalimentação de estado.

Os desempenhos dos controladores foram avaliados mais quantitativamente através dos resultados de ISE e IAE da tabela 5.3. Analisando os resultados, é possível verificar que no 5° caso o controlador com retroalimentação de estado apresenta um desempenho muito superior ao controlador simples. Quando se compara o 3° caso, a superioridade do desempenho não é tão evidente. No entanto, de modo geral, a proposta do controlador NMPC com retroalimentação de estado tende a ser melhor que o NMPC simples. Diante disto, no próximo item 5.3 são apresentadas duas aplicações experimentais com duas trajetórias diferentes usando o controlador NMPC com retroalimentação de estado e comparado com o controlador PID.

Figura 5.6 – Resultados em malha fechada com NMPC simples para o 3º caso.

Figura 5.7 – Resultados do NMPC com retroalimentação de estado para o 3º caso

Figura 5.8 – Resultados em malha fechada com NMPC simples para o 5º caso.

Figura 5.9 – Resultados do NMPC com retroalimentação de estado para o 5º caso

Tabela 5.3 – Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC simples e NMPC com retroalimentação de estado.

	NMPC simples		NMPC com retroalimentação de estado	
	3º caso	5º caso	3º caso	5º caso
ISE	239	240	205	152
IAE	82	80	79	62

5.3 Validação experimental do controlador NMPC com retroalimentação de estado no reator.

Os experimentos foram realizados usando duas trajetórias diferentes. Foi comparado o desempenho dos controladores NMPC com retroalimentação de estado e o PID. As trajetórias usadas como “setpoints” foram:

-1° Trajetória: a temperatura do reator inicia a 140°C e é aumentada até 180°C a uma taxa de 4°C/min, sendo depois aumentada até 200°C a uma taxa de 0,25°C/min. Em seguida, mantém-se a um patamar de 200°C até 120 min;

-2° Trajetória: a temperatura do reator inicia-se a 140°C e é aumentada até 180°C a uma taxa de 1,33 °C/min e depois é mantida a 180°C até 120 min;

-Trajetória do condensador parcial: patamar de 67°C por 120 min nos dois experimentos.

5.3.1 Reator experimental em malha fechada com a 1° trajetória.

Os resultados para a 1° trajetória encontram-se na figura 5.10 e na tabela 5.4. A figura 5.10 foi comparada com as figuras 4.32 e 4.33 (do capítulo 4, item 4.9 e 4.9.1) que são, respectivamente, os resultados das implementações anteriores dos controladores NMPC simples e PID. Na comparação, verifica-se que o controlador NMPC com retroalimentação de estado apresenta um desempenho melhor que o controlador NMPC simples, porque apenas nos instantes de 35 a 42 minutos (da figura 5.10) houve problemas de controle na temperatura do reator experimental, enquanto o NMPC com simples (da figura 4.32) teve seu desempenho afetado nos instantes 15 a 35 e 100 a 120 minutos por que o modelo apresenta dificuldade em realizar previsões nestes instantes. Ao comparar o NMPC com retroalimentação de estado (figura 5.10) com o controlador PID (figura 4.33), o mesmo apresenta ter um desempenho competitivo. Portanto, estas últimas observações necessitam que sejam quantificadas para melhor avaliação dos controladores.

Para quantificar o desempenho dos controladores, os valores de ISE e IAE foram calculados e encontram-se na tabela 5.4. Analisando os resultados de ISE e IAE, o controlador NMPC com retroalimentação de estado apresentou um desempenho melhor que os controladores NMPC simples e o PID. Porém, esses resultados não apresentam vantagens significativas para o controlador NMPC com retroalimentação em função do custo e benefício quando comparado com a implementação do controlador PID.

A dificuldade de obter um modelo que seja compatível com o processo torna-se um desafio na implementação do controlador NMPC simples. Essa dificuldade pode ser traduzida pelo fato que o modelo possui vários estados iniciais a serem estimados. Esta dificuldade pode ser contornada com a aplicação do controlador NMPC com retroalimentação de estado.

Em termos de segurança, o controlador NMPC com retroalimentação de estado apresenta-se mais seguro em relação ao controlador NMPC simples, pois evita que o modelo divirja do processo evitando a necessidade de intervenção “manual”, como ocorreu no experimento realizado com controlador NMPC simples (ver figura 4.20 do item 4.6.3.1, capítulo 4). Neste experimento, o controlador não realizou mais os cálculos de otimização devido a um erro de 46,6 °C entre o modelo e o processo. Neste caso, se o reator prosseguir em malha aberta, pode comprometer a qualidade do produto final e até oferecer um risco potencial ao processo e ao ecossistema (Bonvin,1998).

A seguir, o NMPC com retroalimentação de estado é comparado com o PID usando a 2ª trajetória.

Figura 5.10 – Resultados do NMPC com retroalimentação de estado aplicado no reator experimental

Tabela 5.4 – Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC simples, NMPC com retroalimentação de estado e PID.

	NMPC simples	NMPC com retroalimentação de estado	PID
ISE	696	585	621
IAE	198	186	241

5.3.2 Reator experimental em malha fechada com a 2ª trajetória.

Os resultados para a 2ª trajetória encontram-se nas figuras 5.11 e 5.12. Os valores de ISE e IAE foram calculados e estão na tabela 5.5. Comparando as duas figuras 5.11 e 5.12 e analisando os valores de ISE e IAE, é possível observar que o controlador NMPC com retroalimentação de estado teve um desempenho superior ao do controlador PID. Para o controlador PID, usou-se a mesma sintonia ($K_p = 1,45 \text{ } \%/^{\circ}\text{C}$; $T_i = 0,28 \text{ min/repetições}$; $T_d = 1,4 \text{ min}$) do capítulo 4, e o mesmo apresentou um desempenho competitivo em relação ao controlador NMPC simples. Na 2ª trajetória da figura 5.12, o controlador PID teve um desempenho pobre, com oscilações na temperatura ao longo do tempo. É possível observar que a variável manipulada Q_r apresenta oscilações muito bruscas ao longo do tempo, o que demonstra dificuldades do controlador PID em estabilizar a temperatura do reator experimental. Tais dificuldades, não acontecem com o controlador NMPC com retroalimentação de estado (figura 5.11).

A temperatura do condensador parcial ficou em torno de 64°C em média nos dois controladores. O metanol (M) foi destilado normalmente não acusando nenhum avanço de etilenoglicol (EG) no condensador parcial. O controlador PI praticamente não entrou em operação e não houve registro das ações da variável manipulada Q_w (vazão de resfriamento do condensador parcial).

Figura 5.11 – Resultados do NMPC com retroalimentação de estado aplicado no reator experimental para a 2ª trajetória.

Figura 5.12 – Resultados do controlador PID aplicado no reator experimental para a 2ª trajetória.

Tabela 5.5 – Valores de ISE e IAE obtidos dos controladores NMPC com retroalimentação de estado e PID.

	NMPC com retroalimentação de estado	PID
ISE	835	1428
IAE	248	346

5.4 Conclusões

Os controladores NMPC simples, com retroalimentação de estado e PID, foram comparados em um reator experimental. Os ensaios mostraram que o controlador com retroalimentação de estado tem um desempenho superior aos controladores NMPC simples e PID para as duas trajetórias.

Geralmente, os processos que possuem algum tipo de perturbação fazem com que o modelo realize previsões inadequadas, o que torna inseguro o controle da temperatura do reator usando o controlador NMPC simples.

A implementação do NMPC com retroalimentação de estado permitiu que o modelo fosse corrigido a cada período de amostragem através da informação da temperatura do reator do processo, garantindo um desempenho melhor que o controlador NMPC simples.

O desempenho do controlador PID foi inferior ao controlador NMPC com retroalimentação de estado na 1ª e 2ª trajetórias. Na 2ª trajetória, o seu desempenho foi ainda mais pobre. Neste caso, o NMPC com retroalimentação apresenta vantagens além de corrigir o modelo de eventuais perturbações do processo, devido o seu processo de otimização, ele pode trabalhar em diferentes trajetórias sem afetar muito o seu desempenho.

A sintonia do PID não é robusta, ou seja, o PID pode se tornar instável para diferentes trajetórias e, portanto, o NMPC com retroalimentação de estado é mais robusto.

CAPÍTULO 6

6 CONCLUSÕES E PROPOSTAS PARA CONTINUAÇÃO DO TRABALHO.

6.1 Conclusões finais

Nesta tese foi implementado e testado o controlador NMPC em um reator experimental de policondensação usando modelo fenomenológico como modelo de referência. Existem pouquíssimos trabalhos com este tipo de abordagem na literatura.

Dois modelos matemáticos simplificados, que foram ajustados aos dados experimentais, foram implementados e comparados como modelos de referência do NMPC. Assim, foram realizadas diversas simulações e experimentos em malha aberta e fechada que serviram de base para a implementação das estratégias de controle e a sua avaliação no reator experimental.

As seguintes aplicações do controlador NMPC foram apresentadas:

- aplicação ao reator experimental sem reação;
- aplicação do controlador com otimização MINLP, considerando a variável de resfriamento, com reação e sem reação;
- aplicação do controlador NMPC com retroalimentação simples de estado.

Todas estas estratégias de controle foram comparadas com um controlador tradicional PID.

A seguir são descritas as conclusões e contribuições deste trabalho:

- O reator experimental apresenta limitações na transferência de calor entre os elementos de aquecimento, a massa reacional, o ambiente e o ar soprado para resfriamento, causando uma resposta extremamente lenta, o que aumenta o grau de dificuldade de controle para este tipo de processo.

- O desempenho dos diferentes controladores NMPC implementados foram avaliados e comparados ao do PID. Comparando os valores de ISE e IAE, o controlador NMPC com retroalimentação de estado apresentou um desempenho melhor que os controladores NMPC simples e o PID;

- O controlador NMPC com retroalimentação de estado mostrou-se mais robusto que o NMPC simples e que o PID porque permitiu corrigir a trajetória do modelo que está sujeito a perturbações do processo para trajetórias diferentes, sem para isto ter que sofrer alterações nos seus parâmetros de sintonia. Sendo assim, o NMPC com retroalimentação de estado foi mais produtivo, pois evita esforços para as correções do modelo ou da sintonia antes de executar bateladas em malha fechada com os controladores mais simples, como o NMPC sem retroalimentação e o PID;

Sendo assim, o controlador NMPC foi adaptado a trabalhar em uma grande variedade de trajetórias diferentes. Já o controlador PID, apresentou dificuldades no controle para determinadas trajetórias, necessitando uma nova sintonia para estabilizar a temperatura do reator. Como os reatores em batelada nas indústrias geralmente são multiproduto ou a escala das bateladas varia de acordo a demandas, o NMPC com retroalimentação de estado parece mais adaptado a operar nestas condições. Para adaptar um controlador NMPC para controlar uma batelada em uma escala diferente da qual ele foi projetado para operar, basta alterar o valor correspondente de massa de reagente que existe explicitamente no controlador. Por outro lado, se quisesse alterar a escala de um controlador PID seria necessário fazer uma nova sintonia.

É importante ter em conta que o controlador NMPC necessita de uma carga computacional elevada, o que inviabiliza o trabalho com períodos de amostragem muito pequenos. Como a dinâmica em processos químicos costuma ser lenta, esta preocupação não torna os controladores NMPC inadequados para processos químicos.

A complexidade que o modelo fenomenológico atinge, limita o tempo de processamento e encarece o controlador final. A implementação de um controlador NMPC pode se tornar mais simples com a utilização de ferramentas adaptadas para a

implementação deste tipo de controlador, tais como as propostas por algumas empresas de soluções de controle de Processos. Mas, com o trabalho desenvolvido é possível dizer que nenhuma ferramenta comercial é suficientemente genérica a ponto de dispensar a intervenção de um especialista para a geração do modelo. Sendo assim, a intervenção de um especialista é sempre necessária.

Esta necessidade pode tornar a implementação do NMPC extremamente dispendiosa, dependendo da dificuldade de se obter um modelo que seja compatível com o processo. Sendo assim, o desafio para implementar um controlador NMPC simples pode tornar a tarefa muito dispendiosa, pelo custo da mão de obra especializada envolvida. Um modelo fenomenológico permite entender as relações entre as variáveis do processo. Foi muito importante implementar o NMPC, pois adquiriu-se uma compreensão mais profunda do processo. E assim, a implementação de um NMPC baseado em modelo fenomenológico apresenta esta vantagem inegável. Assim, como resultado deste esforço obtém-se não apenas um controlador, mas um modelo do processo, o que traz benefícios indiretos, pelo fato de acrescentar conhecimento sobre os equipamentos e operações da planta.

De acordo com os fenômenos estudados, pode-se concluir que a realidade está entre os dois modelos: o modelo A não prevê o retorno ao reator de nenhum metanol enquanto que o modelo B supõe que o metanol retorna ao reator. Mas a simplificação do modelo foi necessária a fim de obter um modelo para uso em um controlador NMPC. Devido ao fato dele ser mais conservativo, ou seja, ser menos otimista quanto à viabilidade das trajetórias, optou-se pelo modelo B com $\text{Beta}=0,02$ para a implementação do NMPC.

Embora a proposição deste estudo tenha sido de utilizar um modelo fenomenológico como modelo de referência, um modelo caixa-preta também poderia ter sido utilizado. No entanto, este tipo de modelo não permite, por exemplo, a realimentação de estados. No trabalho de Marcolla et al., (2006), com uma rede RNN treinada, o controlador não foi capaz de representar algumas variações na dinâmica do processo de polimerização do estireno em suspensão, o que levou a ocorrência de sobre-sinal e “off set” ao longo da reação.

6.2 Propostas para continuação do trabalho

É interessante estender este estudo para aplicações do sistema de controle NMPC multivariável. Para o reator de policondensação, além do controle da temperatura do reator, passaria-se a controlar também a temperatura do condensador parcial no topo da coluna de recheio. Nos estudo de Teixeira (2003), o NMPC mostrou-se, em simulação, adaptado para lidar com a importante interação entre as variáveis manipuladas, quando o sistema entra em regime semi-batelada.

Em decorrência deste estudo, a estimação de estado parece ser crucial para a implementação do controlador NMPC. Os estudos mostraram que o desempenho do NMPC foi fortemente influenciado pelo fato de implementar esta hipótese. Em geral, o modelo está sujeito às perturbações do processo e o emprego de estimadores de estado, por exemplo, o filtro estendido de Kalman, garantiria um desempenho melhor ao controlador NMPC.

A aplicação de um NMPC em escala industrial aparece atraente, em função do sucesso da aplicação do controlador NMPC em escala de laboratório e da inexistência de relatos confiáveis da aplicação dos mesmos nesta escala. Os parâmetros do NMPC possuem todos um significado físico o que permite que o controlador seja facilmente adaptado para diferentes escalas e equipamentos.

É interessante aplicar o NMPC a outros sistemas em batelada da engenharia química em que ocorrem outros tipos de não-linearidades e interação entre malhas de controle de temperatura e de composição.

Alguns sistemas nos quais seria interessante aplicação deste tipo de controlador são:

- Polimerização semi-batelada em emulsão e suspensão;
- Processos alimentícios em batelada;
- Separações com reação;

- e muitos outros sistemas que muitas vezes não são implementados devido à dificuldade em controlá-los.

Neste sentido, este estudo serve de ilustração também para a implementação de um controlador NMPC a partir de um número básico de informações do processo.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AKESSON, B. M.; TOIVONEM, H. T., A neural network model predictive controller, **Journal of Process Control**, 16, p.937-946, 2006.

BALASUBRAMHANYA, L. B.; DOYLE, F. J., Nonlinear model-based control of a batch reactive distillation column, **Journal of Process Control**, 10, p.209-218, 2000.

BEQUETE, B. W., Nonlinear control of chemical processes: a review, **Industrial Engineering Chemical Research**, 30, p. 1391-1413, 1991.

BHASKAR, V.; GUPTA, S. K.; RAY, A. K.; Multiobjective optimization of an industrial wiped film poly (ethylene terephthalate) reactor: some further insights, **Computers & Chemical Engineering**, Vol. 25, p.391-407, 2001.

BIAGIOLA, S. L.; FIGUEROA, J. L., Application of state estimation based NMPC to an unstable nonlinear process, **Chemical Engineering Science**, Vol. 59, p. 4601-4612, 2004.

BILLET, R. **Packed Towers in Processing and Environmental Technology**, VCH Publishers, Inc., New York, 1995.

BISOWARNO, B. H.; TIAN, Y. C.; TADÈ, M. O., Application of side reactors on ETBE reactive distillation, **Computers & Chemical Engineering**, Vol. 99 p. 35-43, 2004.

BONVIN, D., Optimal operation of batch reactors - a personal view, **Journal of Process Control**, 5-6, p.355-368, 1998.

BONVIN, D.; SRINIVASAN, B. HUNKELER, D., Performance improvement in batch process: control and optimization challenges in the production of specialty chemicals, **IEEE Control Systems Magazine**, in press, 2006.

CARRILLO LE ROUX, G. A. C.; TEIXEIRA, R. A. Application of nonlinear predictive control to a semi-batch polycondensation reactor, **Industrial Engineering & Chemistry Research**, 43, p 7303-7311, 2004.

CARRILLO LE ROUX, G. A., **Estudo sobre a viabilidade de trajetórias de temperatura na otimização de processo de policondensação**, Tese de livre docente, EPUSP, 2001.

CASAS LIZA, J. E; CARRILLO LE ROUX, G. A.. Comportamento dinâmico dos reatores de policondensação em batelada, **Anais do 6º Congresso Brasileiro de Polímeros**, p. 1632-1635, 2001.

CASAS LIZA, J., **Estudo da dinâmica de um processo de policondensação em batelada através de um modelo fenomenológico**, Dissertação de Mestrado, EPUSP, 2000.

CERRILLO, J. F.; MACGREGOR, J. F., Control of batch product quality by trajectory manipulation using latent variable models, **Journal of Process Control**, 14, p.539-553, 2004.

CERVANTES, A. L.; AGAMENNOMI, O. E.; FIGUEROA, L. L., A nonlinear model predictive control system based on wiener piecewise linear models, **Journal Process Control**, 13, p.655-666, 2003.

CHENIER, PHILIP J., **Survey of Industrial Chemistry**, VCH Publishers, 2nd Revised Edition, p. 229, 1992.

CHOI, K. Y.; KHAN A. A., Optimal Estimation in the transesterification stage of a continuous polyethylene terephthalate condensation polymerization process, **Chemical Engineering Science** Vol.43, No.4, p.749-762, 1988.

CHU, X; SEBORG, D. E., Nonlinear model predictive control based on Hammerstein models, Proc. **Int. Symp. on Process Systems Engineering**, Seoul, Korea, p. 995, 1994.

CROWLEY, T. J.; CHOI, K.Y., On-line monitoring and control of a batch polymerization reactor, **Journal of Process Control**, 6, p.119-127, 1996.

DEHAAN, D.; GUAY, M., A new real-time perspective on non-linear model predictive control, **Journal of Process Control**, 16, p.615-624, 2006.

DITTMAR, R; OGONOWSKI, Z.; DAMERT, K., Predictive control of a nonlinear open-loop unstable polymerization reactor, **Chemical Engineering Science**, Vol. 46 p. 2679-2689, 1991.

ERDOGAN, S.; ALPBAZ, A., R.; KARAGOZ, A., R., The effect of operational conditions on the performance of batch reactor control, **Chemical Engineering Journal**, Vol. 86, p.259-268, 2002.

FONTANA C. M. Polycondensation Equilibrium and the kinetics of the Catalyzed Transesterification in the Formation of Polyethylene Terephthalate, **Journal of Polymer Science**, Vol 6. p.2313-2358, 1968.

FRIEDRICH, M.; PERNE, R., Design and control of batch reactors – an industrial viewpoint, **Computers & Chemical Engineering**, Vol. 19 p. S357-S368, 1995.

FRUZZETTI, K. P.; PALAGLU, A.; MCDONALD, K. A., Nonlinear model predictive control using hammerstein models, **Journal of Process Control**, Vol. 7, No 1, p. 31-41, 1997.

GIL, P.; RAMOS, H. D.; CORREIA, A. D. Controlo óptimo recidivo com restrições sobre as entradas e saídas: Aplicação a um processo didático, **International Symposium NMPC: Assessment and Future Directions**, Ascona, Switzerland, 1998.

GIORDANO, J. B; CAMPOS, J. S. C., Estudo dos parâmetros tempo e temperatura na termofixação em tecidos de poliéster, **Revista Química Têxtil**, nº 85 p.44-54, dez., 2006.

GUPTA, S.K., KUMAR, A., **Reaction Engineering of Step-Growth Polymerization**, Plenum Press, 1987.

HENSON, M. A., Nonlinear model predictive control: current status and future directions, **Computers & Chemical Engineering**, 23 p.187-202, 1998.

JACOBSEN, L. L.; RAY, W. H, Analysis and Design of melt and solution Polycondensation Process, **AIChE Journal**, Vol. 38, No. 6, 1992.

KAISTHA, N.; JOHNSON, M. S.; MOORE, C. F.; LEITNAKER, M. G. Online batch recipe adjustments for product quality control using empirical models: Application to a nylon-6.6 process, **ISA Transactions**, Vol. 42 p.305-315, 2003.

KAWATHEKAR, R.; RIGGS, J. B., Nonlinear model predictive control of a reactive distillation column, **Control Engineering Practice**, Vol. 15, p. 231-239, 2007.

KIPARISSIDES, C., Polymerization reactor modeling: A review of recent developments and future directions, **Chemical Engineering Science**, Vol. 51. p. 1637-1659, 1996.

KROTHAPALLY, M.; BENNETT, B.; FINNEY, W.; PALANKI, S., Experimental implementation of an on-line optimization scheme to batch PMMA synthesis, **ISA Transactions**, 38, 185-198, 1999.

KUMAR, A.; DAOUTIDIS, P., Modeling, analysis and control of ethylene glycol reactive distillation column, **AIChE Journal**, Vol.32 p. 449–465,1999.

LEE, K.S., BANG, S.H., YI, S., SON, J.S., YOON, S.C., Iterative learning control of heat-up phase for a batch polymerization reactor, **Journal of Process Control**, 6, (4), 255-262, 1996.

LEE, K.S.; LEE, J.H. Model predictive control for nonlinear batch processes with asymptotically perfect tracking, **Computers & Chemical Engineering**, 21, S873-S879, 1997.

LEI, G.D.; CHOI, K.Y., Experimental and modeling studies on melt transesterification of Dimethyl Terephthalate with Ethylene Glycol in a continuous Stirred Tank reactor, **Industrial Engineering Chemical Research**, 32, 800-808, 1993.

LOEBLEIN, C., PERKINS, J.D., SRINIVASAN, B., BONVIN, D., Performance analysis of on-line batch optimization systems, **Computers Chemical Engineering**, 21, S867-S872, 1997.

NORIEGA, G. C. L. Metodologia experimental para a análise de processos de policondensação em batelada. **Congresso Brasileiro de Polímeros**, p. 1684-1687, 2001.

LOULEH, Z.; CABASSUD, M.; LE LANN, M.V., A new strategy for temperature control of batch reactors: experimental application, **Chemical Engineering Journal**, 75, 11-20, 1999.

MANER B. R.; DOYLE III F. J.; OGUNNAIKE B. A.; PEARSON R. K., Nonlinear Model Predictive Control of a Simulated Multivariable Polymerization Reactor Using Second-order Volterra Models, **Automatica**, Vol. 32, No 9, p.1285-1301, 1996.

MARCOLLA, R. F.; CLAUMANN, C. A.; CANCELIER, A.; BOLZAN, A.; MACHADO, R. A. F., Modelagem e controle de processos de polimerização utilizando técnicas de inteligência artificial, **XVI Congresso Brasileiro de Engenharia Química**, 2006.

MAYNE, D. Q.; RAWLINGS, J. B.; RAO, C. V.; SCOKAERT, P. M. Constrained Model Predictive Control: Stability and Optimality. **Automatica**, Vol.36, p. 789-814, 2000.

MEADOWS, E. S.; RAWLINGS, J. B., Model Predictive Control. In M. A. Henson & D. E. Seborg (Eds). **Nonlinear Process Control**, Englewood Cliffs, NJ: Prentice Hall. Chapter 5, p.233-310, 1997.

MORARI, M.; LEE, J.H. Model predictive control: past, present and future, **Computers & Chemical Engineering**, 23, 667-682, 1999.

NA, S. S.; RHEE, H. K., An experimental study for property control in a continuous styren polymerization reactor using a polynomial ARMA model, **Chemical Engineering Science**, 57, 1165-1173, 2002.

NAGY, Z. K.; BRAATZ, R. D., Robust nonlinear model predictive control batch processes, **AIChE Journal**, Vol.49 p. 1776–1786, 2003.

NAGY, Z. K.; MAHN, B.; FRANKE, R.; ALLGÖWER, F., Evaluation study of an efficient output feedback nonlinear model predictive control for temperature tracking in an industrial batch reactor, **Control Engineering Practice**, Vol. 15 p.839-850, 2007.

OGUNNAIKE, B. A., A contemporary industrial perspective on process control theory and practice, **Automatica Rev. Control**, Vol. 20, pp 1-8, 1996.

OGUNNAIKE, B. A., RAY, W. H., **Process dynamics, modeling and control**. New York, NY: Oxford Press, 92-95, 1994.

OLIVEIRA, J. A., **Oligomerização e Policondensação em estado fundido do Poli (tereftalato de etileno) – Estudo experimental e de modelagem da curva de distribuição de pesos moleculares**, Tese de doutorado, COPPE-UFRJ, 2006.

OZKAN, G.; OZEN, S.; ERDOGAN, S.; HAPOGLU, H.; ALPBAZ, M., Nonlinear control of polymerization reactor, **Computers & Chemical Engineering**, Vol. 25, p.757-763, 2001.

PANTELIDES, C.C., GRITSIS, D., MORISON, K.R., SARGENT, R.W.H., The mathematical modeling of transient systems using differential-algebraic equations, **Computers & Chemical Engineering**, 12 (5), 449-454, 1988.

PATWARDHAN, A. A.; EDGAR, T. F., Nonlinear Model predictive control of a Packed distillation column, **Industrial Engineering Chemistry Research**, 32, 2345-2356, 1993.

PENG, J; EDGAR, T. F.; ELDRIDGE, R.B., Dynamic rate – based and equilibrium models for a packed reactive distillation column, **Chemical Engineering Science**, 58, 2671-2680, 2003.

POTTMANN, M.; SEBORG D. E., A nonlinear predictive control strategy based on radial basis function models, **Computers & Chemical Engineering**, Vol. 21, No. 9, p. 965-980, 1997.

PRASAD, V.; SCHLEY, M., RUSSO, L. P.; BEQUETTE, B. W., Product property and production rate control of styrene polymerization, **Journal of Process Control**, 12, 353-372, 2002.

QIN, S. J.; BADGWELL, T. A., A survey of undustrial model predictive control technology, **Control Engineering Practice**, 11, 733-764, 2003.

RAVINDRANATH, K.; MASHELKAR, R. A. Modeling of Poly(ethylene Terephthalate) reactors - I., A semibatch ester interchange reactor, **Chemical Engineering Science**, v.26, n.9, p.3197-3204, 1981.

RAVINDRANATH, K.; MASHELKAR, R. A. Modeling of Poly(ethylene Terephthalate) reactors - I. A semibatch prepolymerization process. **Journal of Applied Polymer Science**, v.27, p.2625-2652, 1982.

RAVINDRANATH, K.; MASHELKAR, R. A. Polyethylene Terephthalate-I. Chemistry, Thermodynamics and transport properties, **Chemical Engineering Science**, v.41, n.9, p. 2197-2214, 1986.

RHO, H.-J., HUH, Y.-J., RHEE, H.-K., Application of adaptative model-predictive control to a batch polymerization reactor, **Chemical Engineering Science**, 53, p.3729-3739, 1998.

RICHARDS J.R.; CONGALIDIS, J. P., Measurement and control of polymerization reactors, **Computers & Chemical Engineering**., Vol. 30 p. 1447-1463, 2006.

RICKER, L. N.; LEE, J. H., Nonlinear model predictive control of the Tennessee Eastman challenge process, **Computers & Chemical Engineering**., Vol. 19 No, 09 p.961-981,1995.

RUPPEN, D.; BONVIN, D.; RIPPIN, D.W.T., Implementation of adaptative optimal operation for a semi-batch reaction system, **Computers & Chemical Engineering**, 22, p.185-199, 1997.

RUSSELL, S.A.; ROBERTSON. D.G.; LEE, J.H.; OGUNNAIKE, B.A., Control of product quality for batch nylon 6,6 autoclaves, **Chemical Engineering Science**, 53 (21), 3685-3702, 1998.

SAMANT K. D.; NG K. M., Synthesis of Prepolymerization Stage in Polycondensation Processes, **AIChE Journal**, Vol. 45, No 8, p.1808-1829,1999.

SANTOS, L. O.; AFONSO, A. F. N. A.; CASTRO, J. A. A. M.; OLIVEIRA N. M. C.; BIEGLER, L.T., On-line implementation of nonlinear MPC: an experimental case study, **Control Engineering Practice**, 9, 847-857, 2001.

SEKI, H.; OGAWA, M.; OYAMA, S.; AKAMATSU, K., OHSHIMA, M.; YANG, W., Industrial application of a nonlinear model predictive control to polymerization reactors, **Control Engineering Practice**, Vol. 09, p. 819-828, 2001.

SHIN, J.; LEE, Y.; PARK, S., Optimization of the pre-polymerization step of the polyethylene terephthalate (PET) production in a semi-batch reactor, **Chemical Engineering Journal**, 75, 47-55, 1999.

SORENSEN, E.; MACCHIETTO, S.; STUART, G.; SKOGESTAD, S., Optimal control and on-line operation of reactive batch distillation, **Computers & Chemical Engineering**, Vol 20, (12), 1491-1498, 1996.

SORENSEN, E.; SKOGESTAD, S., Control strategies for reactive batch distillation, **Journal Process Control**, 4 (4), 205-217, 1994.

SOROUSH, M.; KRAVARIS, C., Discrete-time nonlinear controller synthesis by input/output linearization, **AIChE Journal**, Vol.38, p.1923-1945, 1992.

SRINIWAS, G. R.; ARKUN, Y., A Global Solution to the Nonlinear Model Predictive Control Algorithms Using Polynomial ARX Models, **Computers & Chemical Engineering**, Vol. 21, No. 4, 431 - 439, 1997.

SU, H. T.; MCAVOY, T.J., Artificial neural networks for nonlinear process identification and control, In **Nonlinear Process control**, ed. Prentice Hall, p371-428, 1997.

TEIXEIRA, R. A., **Aplicação de controlador preditivo não linear a um reator de policondensação**, Dissertação de Mestrado, EPUSP, 2003.

WEITAO, Z.; WUQIAN, W.; ZHIJIANG, S.; YUYUE, Z.; JIXIN, Q., Optimization of an Industrial Batch Polycondensation Reactor, **Proceedings of the American Control Conference**, Arlington, VA June 25-27, 2001.

WRIGHT, G. T.; EDGAR, T. F., Nonlinear model predictive control of a fixed-bed water-gas shift reactor: An experimental study, **Computers & Chemical Engineering**, 18, p.83-102, 1994.

XAUMIER F.; LE LANN, M.V.; CABASSUD, M.; CASAMATTA, G. Experimental application of nonlinear model predictive control: temperature control of an industrial semi-batch pilot-plant reactor. **Journal of Process Control**, Vol. 12, pp.353-372, 2002.

ZHAN, J; ISHIDA, M., The multi-step predictive control of nonlinear SISO processes with a neural model predictive control (NMPC) method, **Computers & Chemical Engineering**, Vol. 21, p. 210-210, 1997.

Anexo A: Dedução da equação para o calculo da vazão de vapor, F_v na saída do reator.

Substituindo as equações (3.9) na (3.11) tem-se:

$$K_{EG} \frac{EG}{N_t} + K_M \frac{M}{N_t} = 1 \quad (A1)$$

Substituindo a equação (3.19) na equação (A1) acima obtém-se:

$$\frac{E_m + E_g}{2} + EG(1 - K_{EG}) + M(1 - K_M) = 0 \quad (A2)$$

Derivando a equação (A2) produz:

$$\frac{1}{2} \frac{dE_m}{dt} + \frac{1}{2} \frac{dE_g}{dt} + (1 - K_{EG}) \frac{dEG}{dt} + (1 - K_M) \frac{dM}{dt} - \frac{dT}{dt} \left(\frac{dK_{EG}}{dT_r} EG + \frac{dK_M}{dT_r} M \right) = 0 \quad (A3)$$

Substituindo as equações (3.4), (3.5), (3.7), (3.8) e (3.20) na equação acima e isolando o F_v a equação se reduz a:

$$\begin{aligned} F_v = & V(R_1 K_M + R_2 K_M - R_1 K_{EG} + R_3 K_{EG}) - L_N \left[(1 - K_m) x_{M,N} + (1 - K_{EG}) x_{EG,N} \right] - \\ & L_N \left[\frac{(H_R^\ell - h_R^\ell)}{M_r C_{p_r}} \left(\frac{dK_{EG}}{dT_r} EG + \frac{dK_M}{dT_r} M \right) \right] + \frac{1}{M_r C_{p_r}} \left[(Q4 - Q5 - Q11) + V \sum_{j=1}^{n,r} (-\Delta H_j) R_j \right]. \\ & \left(\frac{dK_{EG}}{dT_r} EG + \frac{dK_M}{dT_r} M \right) \Bigg/ \left[\frac{(H_R^V - h_R^V)}{M_r C_{p_r}} \left(\frac{dK_{EG}}{dT_r} EG + \frac{dK_M}{dT_r} M \right) - y_{EG}(1 - K_{EG}) + y_M(1 - K_M) \right] \end{aligned} \quad (A4)$$

Anexo B: Dedução da equação de balanço de energia do reator

Equação de balanço de energia no reator

$$\frac{dU}{dt} = Q - F_v H_R^V + L_N H_N^\ell \quad (\text{B1})$$

$$U \simeq H = H(T, P, N_i) \quad (\text{B2})$$

Derivando a equação (B2) tem-se

$$dU \simeq dH = \frac{\partial H}{\partial T} dT + \frac{\partial H}{\partial P} dP + \sum_i \frac{\partial H}{\partial N_i} dN_i \quad (\text{B3})$$

onde,

m reações $j=1, 2 \dots m$

n componente $i=1, 2 \dots n$

$$\frac{\partial H}{\partial T} dT = \rho V C_p dT \quad (\text{B4})$$

$$\frac{\partial H}{\partial P} dP \simeq 0 \quad (\text{B5})$$

$$\sum_i \frac{\partial H}{\partial N_i} dN_i = \tilde{H}_i dN_i \quad (\text{B6})$$

$$\frac{dN_i}{dt} = F_{io} - F_i + V \sum_j \nu_{ij} R_j \quad (\text{B7})$$

Substituindo a equação (B3) na (B1) tem-se:

$$\frac{\partial H}{\partial T} \frac{dT}{dt} + \frac{\partial H}{\partial P} \frac{dP}{dt} + \sum_i \frac{\partial H}{\partial N_i} \frac{dN_i}{dt} = Q - F_v H_R^V + L_N H_N^\ell \quad (\text{B8})$$

Substituindo as equações (B4), (B5), (B6), (B7) na (B8) tem-se:

$$\rho V C_p \frac{dT}{dt} + \sum_i \tilde{H}_i F_{io} - \sum_i \tilde{H}_i F_i + V \sum_i \sum_j v_{ij} R_j = Q - F_v H_R^V + L_N H_N^\ell \quad (\text{B9})$$

onde

$$\text{o termo } V \sum_i \sum_j v_{ij} R_j = V \sum_j \Delta H_j R_j$$

$$\text{o termo } \sum_i \tilde{H}_i F_{io} - \sum_i \tilde{H}_i F_i = \sum_i \tilde{H}_i (F_{io} - F_i)$$

$$F_{io} = \begin{cases} 0 & i=\text{outros} \\ L_N x_{iN} & i=EG, M \end{cases}$$

$$F_i = \begin{cases} 0 & i=\text{outros} \\ F_v y_i & i=EG, M \end{cases}$$

$$\sum_i \tilde{H}_i F_{io} - \sum_i \tilde{H}_i F_i = \tilde{H}_{EG}^\ell (L_N x_{EG,N} - F_v y_{EG}) + \tilde{H}_M^\ell (L_N x_{M,N} - F_v y_M)$$

$$\sum_i \tilde{H}_i F_{io} - \sum_i \tilde{H}_i F_i = L_N (x_{EG,N} \tilde{H}_{EG}^\ell - x_{M,N} \tilde{H}_M^\ell) - F_v (y_{EG} \tilde{H}_{EG}^\ell - y_M \tilde{H}_M^\ell)$$

onde

$$h_N^\ell = x_{EG,N} \tilde{H}_{EG}^\ell - x_{M,N} \tilde{H}_M^\ell$$

$$h_r^v = y_{EG,N} \tilde{H}_{EG}^\ell - y_{M,N} \tilde{H}_M^\ell$$

substituindo na equação (B9) tem-se:

$$\rho V C_p \frac{dT}{dt} + L_N h_N^\ell - F_v h_R^v = Q + V \sum_{j=1}^m (-\Delta H_j) R_j - F_v H_R^v + L_N H_N^\ell \quad (\text{B10})$$

rearranjando os termos L e F_v da equação (B10) e obtém-se a equação de balanço de energia para um reator semi-batelada:

$$\rho V C_p \frac{dT}{dt} = Q + V \sum_{j=1}^m (-\Delta H_j) R_j - F_v (H_R^v - h_R^v) + L_N (H_N^\ell - h_N^\ell) \quad (\text{B11})$$

com $Q = Q_4 - Q_5 - Q_{11}$ e $M_r = \rho V$

E o balanço de energia do reator fica:

$$\frac{dT_r}{dt} = \frac{1}{M_r C_{p_r}} \left[(Q_4 - Q_5 - Q_{11}) + V \sum_{j=1}^m (-\Delta H_j) R_j - F_v (H_R^v - h_R^v) + L_N (H_N^\ell - h_N^\ell) \right] \quad (\text{B12})$$

onde:

$$H_R^v = y_{EG} (\Delta H_{EG}^{vap} + C_{p_{EG}} (T_r - T_{ref})) + y_M (\Delta H_M^{vap} + C_{p_M} (T_r - T_{ref})) \quad (\text{B13})$$

$$h_R^v = y_{EG} P M_{EG} C_{p_r} (T_r - T_{ref}) + y_M P M_M C_{p_r} (T_r - T_{ref}) \quad (\text{B14})$$

$$H_N^\ell = x_{EG,N} C_{p_{EG,N}} (T_N - T_{ref}) + x_{M,N} C_{p_{M,N}} (T_N - T_{ref}) \quad (\text{B15})$$

$$h_N^\ell = x_{EG,N} P M_{EG} C_{p_r} (T_r - T_{ref}) + x_M P M_M C_{p_r} (T_r - T_{ref}) \quad (\text{B16})$$

Anexo C: Dedução da equação para o calculo da vazão de vapor V_j para cada seção j da coluna de recheio.

Substituindo as equações (3.43) na (3.45) tem-se:

$$K_{EG}EG + K_M(U_j - EG) = U_j \quad (C1)$$

Derivando-se a equação (C1) obtém-se:

$$(K_{EG} - K_M)\frac{dEG}{dt} + (K_M - 1)\frac{dU_j}{dt} + \frac{dT_j}{dt} \left(\frac{dK_{EG}}{dT_j} EG + \frac{dK_M}{dT_j} (U_j - EG) \right) = 0 \quad (C2)$$

Substituindo as equações (3.38), (3.40) e (4.47), na equação acima e isolando o V_j a equação se reduz a:

$$V_j = \left[\frac{V_{j+1}H_{j+1}^V + L_{j-1}H_{j-1}^I - Q_{c,j}}{M_{re,j}Cp_{re,j} + EG_jCp_{EG,j} + M_jCp_{M,j}} \left(\frac{dK_{EG}}{dT_j} EG + \frac{dK_M}{dT_j} (U_j - EG) \right) + L_{j-1} (K_{EG}x_{EG,j-1} - K_Mx_{EG,j-1} + K_M - 1) + \right. \\ \left. V_{j+1} (K_{EG}y_{EG,j+1} - K_My_{EG,j+1} + K_M - 1) \right] / \left[\frac{H_j^V}{M_{re,j}Cp_{re,j} + EG_jCp_{EG,j} + M_jCp_{M,j}} \cdot \right. \\ \left. \left(\frac{dK_{EG}}{dT_j} EG + \frac{dK_M}{dT_j} (U_j - EG) \right) + (K_{EG}x_{EG,j} - K_Mx_{EG,j} + K_M - 1) - L_j (K_{EG}x_{EG,j} - K_Mx_{EG,j} + K_M - 1) \right] \quad (C3)$$

Anexo D: Dedução da equação de balanço de energia da coluna de recheio.

No balanço de energia:

$$\frac{d \left[M_{re,j} Cp_{re,j} (T_j - T_{ref}) + EG_j Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + M_j Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \right]}{dt} = V_{j+1} H_{j+1}^v + L_{j-1} H_{j-1}^\ell - V_j H_j^v - L_j H_j^\ell \quad (D1)$$

Abrindo o termo do lado esquerdo tem-se:

$$M_{re,j} Cp_{re,j} \frac{dT_j}{dt} + Cp_{re,j} (T_j - T_{ref}) \frac{dM_{re,j}}{dt} + Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) \frac{dEG_j}{dt} + EG_j Cp_{EG,j} \frac{dT_j}{dt} + Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \frac{dM_j}{dt} + M_j Cp_{M,j} \frac{dT_j}{dt} = V_{j+1} H_{j+1}^v + L_{j-1} H_{j-1}^\ell - V_j H_j^v - L_j H_j^\ell + Q_{c,j} \quad (D2)$$

Substituindo as equações de balanço de massa EG e M (equação 3.38 e 3.39) e fazendo a separação dos termos tem-se:

$$\begin{aligned} & (M_{re,j} Cp_{re,j} + EG_j Cp_{EG,j} + M_j Cp_{M,j}) \frac{dT_j}{dt} + L_{j-1} \left[x_{EG,j-1} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + x_{M,j-1} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \right] + \\ & V_{j+1} \left[y_{EG,j+1} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + y_{M,j+1} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \right] - L_j \left[x_{EG,j} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + x_{M,j} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \right] - \\ & V_j \left[y_{EG,j} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + y_{M,j} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \right] = V_{j+1} H_{j+1}^v + L_{j-1} H_{j-1}^\ell - V_j H_j^v - L_j H_j^\ell + Q_{c,j} \end{aligned} \quad (D3)$$

os termos da equação D3 são:

$$H_{j+1}^v = y_{EG,j+1} \left[\Delta H_{EG}^{vap} + Cp_{EG,j} (T_{j+1} - T_{ref}) \right] + y_{M,j+1} \left[\Delta H_M^{vap} + Cp_{M,j} (T_{j+1} - T_{ref}) \right] \quad (D4)$$

$$H_j^v = y_{EG,j} \left[\Delta H_{EG}^{vap} + Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) \right] + y_{M,j} \left[\Delta H_M^{vap} + Cp_M (T_j - T_{ref}) \right] \quad (D5)$$

$$H_{j-1}^\ell = x_{EG,j-1} Cp_{EG,j} (T_{j-1} - T_{ref}) + x_{M,j-1} Cp_{M,j} (T_{j-1} - T_{ref}) \quad (D6)$$

$$H_j^l = x_{EG,j} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + x_{M,j} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \quad (D7)$$

$$h_{j+1}^V = y_{EG,j+1} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + y_{M,j+1} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \quad (D8)$$

$$h_{j-1}^\ell = x_{EG,j-1} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + x_{M,j-1} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \quad (D9)$$

$$h_j^V = y_{EG,j} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + y_{M,j} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \quad (D10)$$

$$h_j^l = x_{EG,j} Cp_{EG,j} (T_j - T_{ref}) + x_{M,j} Cp_{M,j} (T_j - T_{ref}) \quad (D11)$$

O balanço de energia fica:

$$\frac{dT_j}{dt} = \frac{1}{(M_{re,j} Cp_{re,j} + EG_j Cp_{EG,j} + M_j Cp_{M,j})} \left[V_{j+1} (H_{j+1}^v - h_{j+1}^v) + L_{j-1} (H_{j-1}^\ell - h_{j-1}^\ell) - V_j (H_j^v - h_j^v) - L_j (H_j^\ell - h_j^\ell) + Q_{e,j} \right] \quad (D12)$$

fazendo:

$$H_{j+1}^v = H_{j+1}^v - h_{j+1}^v ;$$

$$H_{j-1}^l = H_{j-1}^\ell - h_{j+1}^\ell ;$$

$$H_j^V = H_j^V - h_j^V ;$$

$$H_j^\ell = (H_j^\ell - h_j^\ell) = 0 .$$

$$H_{j+1}^V = y_{EG,j+1} \left[\Delta H_{EG}^{vap} + Cp_{EG,j} (T_{j+1} - T_j) \right] + y_{M,j+1} \left[\Delta H_M^{vap} + Cp_{M,j} (T_{j+1} - T_j) \right] \quad (D13)$$

$$H_{j-1}^l = x_{EG,j-1} Cp_{EG,j} (T_{j-1} - T_j) + x_{M,j-1} Cp_{M,j} (T_{j-1} - T_j) \quad (D14)$$

$$H_j^V = y_{EG,j} \Delta H_{EG}^{vap} + y_{M,j} \Delta H_M^{vap} \quad (D15)$$

O balanço de energia se resume a:

$$\frac{dT_j}{dt} = \frac{1}{(M_{re,j} Cp_{re,j} + EG_j Cp_{EG,j} + M_j Cp_{M,j})} (V_{j+1} H_{j+1}^V + L_{j-1} H_{j-1}^l - V_j H_j^V + Q_{c,j}) \quad (D16)$$

Anexo E: Tabela com os parâmetros dos modelos A e B.

Parâmetros	Unidade
Compartimento 1 (Cu → Al)	
$k_{Al} = 209,3$	W/m.k
$A_{Al} = 0,0137$	m ²
$x_{Al} = 0,0175$	m
$m_{Cu} = 0,5$	kg
$Cp_{Cu} = 394$	J/kg.k
Compartimento 2 (Al → Inoxbase)	
$k_{inoxbase} = 52,5$	W/m.k
$A_{inoxbase} = 0,03371$	m ²
$X_{inoxbase} = 0,004$	m
$m_{Al} = 3,464$	kg
$Cp_{Al} = 904$	J/kg.k
Compartimento 3 (Al → Ar da camisa de resfr.)	
$h_{AC} = 10$ para $Q_{ac} = 0$ l/min	W/m ² .k
$h_{AC} = 100$ para $Q_{ac} = 150$ l/min	W/m ² .k
$A_{Al-AC} = 0,0109$	m
Compartimento 4 (Al → Massa reacional)	
$h_{mr} = 65,5$	W/m ² .k
$A_{inoxbase-mr} = 0,0323$	m ²
$m_{inoxbase} = 0,41$	kg
$Cp_{inoxbase} = 460$	W/m.k
Compartimento 5 (Massa reacional → Inoxlateral)	
$A_{mr-inoxlateral} = 0,0276$	m ²
$h_{mr} = 65,5$	W/m ² .k
$Cp = 0,245$	J/g.k
$\Delta H_{r1} = 5862$	J/mol
$\Delta H_{r2} = 5862$	J/mol
$\Delta H_{r3} = 0$	J/mol

Parâmetros	Unidade
Compartimento 6 (Inoxlateral → Camisa de resfr.)	
$h_{AC} = 10$ para $Q_{ac} = 0$	W/m.k
$h_{AC} = 3000$ para $Q_{ac} = 150$	W/m.k
$A_{inoxlateral-ac} = 0,0283$	m ²
$m_{inoxlateral} = 0,346$	kg
$Cp_{inoxlateral} = 460$	J/kg.k
Compartimento 7 (Camisa de resfr. → Inoxacima)	
$\rho_{AC} = 28,84/(0,08206.T_{AC})$	g/l
$V_{AC} = 0,83/\text{par}$	l
$Cp_{AC} = 1$	J/g.k
$h_{AC} = 10$ para $Q_{ac} = 0$ l/min	W/m ² .k
$h_{AC} = 20$ para $Q_{ac} = 150$ l/min	W/m ² .k
$A_{inoxacima-ar} = 0,04$	m ²
Compartimento 8 (Inoxacima → Ar externo)	
$h_{ar\ ext} = 12,57$	W/m ² .k
$A_{inoxcima-ar} = 0,0108$	m ²
$m_{inoxcima} = 0,498$	kg
$Cp_{inoxcima} = 460$	J/kg.k
Compartimento 9 (Camisa de resfr. → Ar externo)	
$h_{ar\ ext} = 12,57$	W/m ² .k
$A_{ac-ar\ ext} = 0,0550$	m ²
Compartimento 10 (Alumínio → Ar externo)	
$h_{ar\ ext} = 12,57$	W/m ² .k
$A_{Al\ ext} = 0,0418$	m ²
Compartimento 11 (Massa reacional→ Inoxacima)	
$A_{inoxcima} = 0,0108$	m ²
$h_{EG/M} = 150$	W/m ² .k
$PM_{EG} = 62,068$	g/mol
$PM_M = 32,042$	g/mol

Outros parâmetros	Unidade
Beta (Modelo A = 1 e Modelo B = 0,02)	$\text{min}^{-1}.\text{mol}^{-2}$
Qac = 150	l/min
Pressão do sistema	700 mmHg