

ROBERTO GUARDANI

**APLICAÇÃO DE REDES NEURAIIS NA MEDIÇÃO DE DISTRIBUIÇÃO DE
TAMANHOS DE PARTÍCULAS POR DIFRAÇÃO DE LASER**

Tese apresentada à Escola Politécnica da
Universidade de São Paulo para a obtenção do
título de Livre Docente junto ao Departamento de
Engenharia Química.

São Paulo, 1997

ROBERTO GUARDANI

Engenheiro Químico, Escola Politécnica da USP, 1976

Mestre em Engenharia Química, Escola Politécnica da USP, 1982

Doutor em Engenharia Química, Escola Politécnica da USP, 1989

**APLICAÇÃO DE REDES NEURAIIS NA MEDIÇÃO DE DISTRIBUIÇÃO DE
TAMANHOS DE PARTÍCULAS POR DIFRAÇÃO DE LASER**

Tese apresentada à Escola Politécnica da
Universidade de São Paulo para a obtenção do
título de Livre Docente junto ao Departamento de
Engenharia Química.

São Paulo, 1997

*Às minhas meninas,
Lucia e Mariana*

(de novo)

AGRADECIMENTOS

O trabalho aqui apresentado somente foi possível graças à colaboração de uma série de pessoas e entidades, relacionadas a seguir, às quais expresso meus sinceros agradecimentos.

Ao Prof. Dr. Cláudio A. Oller do Nascimento, pela motivação transmitida, incentivo à aplicação de novas idéias e colaboração prestada ao longo do desenvolvimento do trabalho.

Ao Prof. Dr. Marco Giulietti, diretor técnico do IPT, pelo apoio constante e pelas muitas coisas que tenho aprendido nesses vinte anos de convivência profissional.

Aos colegas do LSCP - Laboratório de Simulação e Controle de Processos, do DEQ-EPUSP, pela amizade, apoio e incentivo.

Aos técnicos do Agrupamento de Processos Químicos da Divisão de Química do IPT, pelo apoio prestado desde o início do trabalho.

À Fabiana Klinger, ex-aluna de iniciação científica no LSCP, pela colaboração na realização dos experimentos e simulações.

Ao Prof. Dr. Joachim Ulrich, da Universidade de Bremen, Alemanha, com quem mantemos trabalhos em cooperação, pela colaboração prestada no início dos trabalhos experimentais.

Ao DAAD - Serviço Alemão de Intercâmbio Acadêmico, pelo auxílio financeiro prestado nas atividades de intercâmbio, que em muito têm auxiliado o desenvolvimento do trabalho.

À FAPESP, pelo auxílio financeiro prestado ao projeto individual de pesquisa, dedicado ao tema.

RESUMO

O presente trabalho apresenta resultados de estudo voltado ao desenvolvimento de metodologia para o monitoramento da distribuição granulométrica de partículas em suspensões sólido-líquido. A metodologia estudada baseia-se em algoritmos de ajuste de redes neurais a dados experimentais obtidos por espalhamento de luz, visando possibilitar o uso da técnica para partículas não esféricas, assim como em suspensões concentradas, para as quais não são válidos os algoritmos baseados em modelos fenomenológicos.

O estudo envolveu uma etapa de experimentos, nos quais foram medidos os espectros de difração de laser em suspensões com concentração variável, utilizando-se partículas de diferentes formas, constituídas por diferentes materiais. As partículas foram caracterizadas quanto à distribuição de tamanhos e à forma, por técnica de análise de imagem. Os dados experimentais foram utilizados no ajuste de parâmetros de redes neurais de múltiplas camadas, por algoritmo de retropropagação.

Verificou-se que o uso de redes neurais constitui-se em alternativa capaz de reconhecer padrões de espalhamento de luz e associá-los a distribuições de tamanhos de partículas de diferentes formas, em suspensões com concentrações consideravelmente mais altas que aquelas permitidas pelos modelos de difração adotados convencionalmente. No entanto, foram observadas limitações na capacidade de extrapolação das redes neurais, indicando a necessidade de que as mesmas sejam treinadas previamente em uma faixa de concentrações representativa do sistema em que se pretende atuar. Dada a sua simplicidade, desde que adequadamente treinadas, as redes neurais podem ser utilizadas em substituição aos algoritmos convencionais, no cálculo da distribuição de tamanhos de partícula a partir de dados de difração de laser, nas condições do estudo realizado.

ABSTRACT

The present work is focused on the application of neural networks to particle size analysis by forward light scattering, with the objective of enabling the use of the laser diffraction technique in the measurement of particle size distributions in highly concentrated suspensions and for nonspherical particles. The use of neural networks constitutes an alternate method for recognizing light scattering patterns and associating them with particle size distributions, thus eliminating optical disturbances such as multiple scattering, which hinder the application of the phenomenological models.

A series of laboratory experiments was carried out, using particles with different shapes and liquid-solid suspensions with varying particle concentrations. The characterization of particle shapes and size distributions was performed by image analysis. The experimental data, consisting of the light scattering pattern of each experiment, were used in fitting neural networks with different configurations.

The results of simulations show that the use of neural networks enable the measurement of particle size distributions in highly concentrated suspensions, and non spherical particles. However, the learning process, which consists of the fitting of the neural network parameters, should cover the whole range of application conditions, since the model's ability to extrapolate results is limited, causing considerable deviations relative to experimental observations.

In view of their simplicity, if adequately fitted, neural network models can substitute the phenomenological models in the range of conditions studied.

ÍNDICE

LISTA DE FIGURAS	vi
LISTA DE TABELAS	x
NOMENCLATURA	xi
1. INTRODUÇÃO	1
2. OBJETIVO	3
3. FUNDAMENTOS DA MEDIÇÃO DE TAMANHOS DE PARTÍCULAS POR ESPALHAMENTO DE LUZ	4
3.1. Equacionamento básico para o espalhamento de luz por partículas	4
3.2. Funções de espalhamento de luz	11
3.3. Obtenção da distribuição granulométrica a partir da distribuição de intensidade de luz espalhada	15
4. APLICAÇÃO DE REDES NEURAIIS	17
4.1. Fundamentos	17
4.2. Algoritmo de treinamento de redes neurais	21
5. ESTUDOS EXPERIMENTAIS	24
5.1. Materiais e métodos	25
5.2. Estudo do efeito da forma das partículas sobre os resultados da medição de distribuição granulométrica por difração de laser	32
5.3. Estudo do efeito da concentração de suspensões sobre as medições de distribuição granulométrica por difração de laser.	39
6. USO DE ALGORITMOS BASEADOS EM REDES NEURAIIS NO TRATAMENTO DE DADOS DE ESPALHAMENTO DE LUZ PARA MEDIÇÃO DE DISTRIBUIÇÃO GRANULOMÉTRICA.	45
6.2. Estudo com amostras com distribuições bimodais.	57
6.3. Estudo com amostras com distribuições unimodais e bimodais.	60
6.4. Estudo incluindo partículas com diferentes formas.	61

7. CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS DE CONTINUAÇÃO	71
8. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	74
ANEXO 1	77

LISTA DE FIGURAS

- Figura 3.1. Diagramas polares para o grau de polarização (P) de partículas esféricas de látex em água, em função da dimensão α ($m = 1,20-0i$; $\lambda_0 = 0,63 \mu\text{m}$). Fonte: Boxman (1992). 7
- Figura 3.2. Fator de eficiência de extinção (Q_{ext}) em função de α , para partículas de látex em água ($m = 1,20-0i$; $\lambda_0 = 0,63 \mu\text{m}$) e para gotas de água em ar ($m = 1,33-0,04i$; $\lambda_0 = 7,0 \mu\text{m}$). Fonte: Boxman (1992). 9
- Figura 3.3. Intensidade de luz espalhada ($i_1 + i_2$) em função de α , para $\theta = 15^\circ$ ($m = 1,20-0i$; $\lambda_0 = 0,63 \mu\text{m}$). Fonte: Boxman (1992). 12
- Figura 4.1. Rede de múltiplas camadas com sentido único (“multilayer feedforward network”). 19
- Figura 4.2. Rede recursiva (“recurrent network”). 19
- Figura 4.3. Representação de um neurônio j da estrutura da rede. 20
- Figura 5.1. Imagem da amostra de catalisador de FCC, obtida por microscopia óptica. 26
- Figura 5.2. Imagem da amostra de fosfogesso, obtida por microscopia óptica. 26
- Figura 5.3. Imagem da amostra de mica, obtida por microscopia óptica. 27
- Figura 5.4. Imagem da amostra de amianto, obtida por microscopia óptica. 27
- Figura 5.5. Imagem da amostra de açúcar, obtida por microscopia óptica. 28
- Figura 5.6. Esquema simplificado do arranjo adotado no difratômetro de laser utilizado nos experimentos. 30
- Figura 5.7. Distribuição granulométrica da amostra de catalisador de FCC, fração separada por peneiramento, entre 44 e 53 μm . 33
- Figura 5.8. Distribuição granulométrica da amostra de catalisador de FCC, fração separada por peneiramento, entre 62 e 74 μm . 33
- Figura 5.9. Distribuição granulométrica da amostra de mica, fração separada por peneiramento, entre 75 e 90 μm . 34
- Figura 5.10. Distribuição granulométrica da amostra de mica, fração separada por peneiramento, entre 106 e 150 μm . 34
- Figura 5.11. Distribuição granulométrica da amostra de fosfogesso,

fração separada por peneiramento, entre 44 e 53 μm .	35
Figura 5.12. Distribuição granulométrica da amostra de fosfogesso, fração separada por peneiramento, entre 62 e 74 μm .	35
Figura 5.13. Distribuição granulométrica da amostra de amianto.	36
Figura 5.14. Distribuição granulométrica da amostra de açúcar (sacarose).	36
Figura 5.15. Variação do quociente entre D_v e as demais dimensões de partícula, em função da circularidade.	37
Figura 5.16. Relação entre concentração de partículas de catalisador de FCC nas suspensões e obscurescência, medida pelo difratômetro.	40
Figura 5.17. Efeito da concentração de partículas em suspensão sobre o diâmetro médio calculado pelo modelo óptico do difratômetro.	42
Figura 5.18. Efeito da concentração de partículas em suspensão sobre o grau de dispersão da distribuição granulométrica, calculada pelo modelo óptico do difratômetro.	42
Figura 5.19. Função densidade de distribuição granulométrica, para amostra de catalisador de FCC na faixa de 100 a 150 “mesh”, para três valores de concentração da suspensão (g/L).	43
Figura 6.1. Desvio quadrático médio em função do número de apresentações, em relação aos dados de treinamento (RMSTL) e de teste (RMSTT), para η entre 0,5 e 10. Rede com 8 neurônios na camada oculta; normalização entre 0 e 0,9.	52
Figura 6.2. Desvio quadrático médio em função do número de apresentações, em relação aos dados de treinamento (RMSTL) e de teste (RMSTT), para η entre 0,1 e 1. Rede com 8 neurônios na camada oculta; normalização entre 0 e 0,9.	52
Figura 6.3. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-10 (catalisador de FCC, 100 a 150 “mesh”; 35,027 g/L).	54
Figura 6.4. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MF-4 (catalisador de FCC, 400 “mesh” a fundo; 4,608 g/L).	54

Figura 6.5. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-11 (catalisador de FCC, 100 a 150 “mesh”; 40,656 g/L).	56
Figura 6.6. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MF-8 (catalisador de FCC, 400 “mesh” a fundo; 14,539 g/L).	56
Figura 6.7. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MC-1 (catalisador de FCC, 200 a 2750 “mesh”; 2,059 g/L).	58
Figura 6.8. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MC-10 (catalisador de FCC, 200 a 270 “mesh”; 41,98 g/L).	58
Figura 6.9. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-11 (catalisador de FCC, 100 a 150 “mesh”; 40,656 g/L).	59
Figura 6.10. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MF-1 (catalisador de FCC, 400 “mesh” a fundo; 1,075 g/L).	59
Figura 6.11. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-3 (catalisador de FCC, bimodal; 6,191 g/L).	61
Figura 6.12. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-7 (catalisador de FCC, bimodal; 20,482 g/L).	61
Figura 6.13. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-10 (catalisador de FCC, 100 a 150 “mesh”; 35,027 g/L), com pesos gerados para o conjunto de distribuições monomodais e bimodais.	63
Figura 6.14. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-3 (catalisador de FCC, bimodal; 6,191 g/L), com pesos gerados para o conjunto de distribuições monomodais e bimodais.	63

Figura 6.15. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-7 (catalisador de FCC, bimodal; 20,482 g/L), com pesos gerados para o conjunto de distribuições monomodais e bimodais.	64
Figura 6.16. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-5 (catalisador de FCC, 100-150 “mesh”; 12,146 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.	66
Figura 6.17. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MC-9 (catalisador de FCC, 200-270 “mesh”; 35,032 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.	66
Figura 6.18. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-3 (catalisador de FCC, bimodal; 6,191 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.	67
Figura 6.19. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-7 (catalisador de FCC, bimodal; 20,482 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.	67
Figura 6.20. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra A-3 (amianto; 0,712 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.	68
Figura 6.21. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra A-5 (amianto; 1,032 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.	68
Figura 6.22. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra S-4 (açúcar; 6,304 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.	69
Figura 6.23. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra S-12 (açúcar; 53,768 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.	69

LISTA DE TABELAS

Tabela 5.1. Características das partículas utilizadas no estudo, determinadas por análise de imagem em microscópio óptico.	37
Tabela 5.2. Faixas granulométricas das amostras de catalisador de FCC utilizadas nos experimentos.	40
Tabela 6.1. Relação de amostras utilizadas para ajuste de redes neurais.	47
Tabela 6.2. Distribuições granulométricas das amostras, estimadas por análise de imagem.	48

NOMENCLATURA

- A - Matriz com o modelo óptico (Eq. 21)
- a - Coeficiente de espalhamento de luz (Eqs 14 e 15)
- b - Coeficiente de espalhamento de luz (Eqs 14 e 15)
- C - Coeficiente de extinção (Eq. 5); circularidade (Cap. 5)
- D - Diâmetro de partícula
- E - Desvio quadrático entre dados experimentais e calculados
- f - Densidade de distribuição granulométrica; função sigmoideal (Eq. 24)
- I - Vetor intensidade de luz
- i - Função intensidade de luz espalhada
- K - Constante na Eq. 20
- k - Constante de propagação (Eq. 12)
- L - Comprimento do caminho óptico (Eq. 8); dimensão característica de partícula
- m - Índice de refração
- N - Densidade numérica de partículas
- n - Número de variáveis de entrada na rede neural
- NH - Número de neurônios na camada oculta
- Obs - “Obscurescência” (Eq. 9)
- O_j - Saída do neurônio j da camada de cálculo
- O_k - Saída do neurônio k da camada de saída
- P - Grau de polarização da luz
- p - Número de variáveis de saída da rede neural
- π - Índice de polarização da partícula
- Q - Fator de eficiência (Eq. 6)
- q - Número de variáveis de entrada da rede
- r - Distância da partícula ao plano de observação; número de pares entrada/saída do conjunto de aprendizado
- S_1, S_2 - Amplitudes de onda (Eqs. 14 e 15)
- S_j - Soma ponderada das entradas de um neurônio
- span - Grau de dispersão da distribuição granulométrica (Item 5.3)
- T - Transmitância

- W_{ij} - Peso da variável i , neurônio j
- W - Conjunto dos pesos da rede
- X_i - Variável normalizada de entrada da rede neural
- x - Dimensão característica de partícula
- Y - Vetor distribuição volumétrica de diâmetros de partícula
- y_k - Variável k normalizada da saída da rede neural
- z - Direção de incidência da luz; variável (Eq. 24)

Símbolos gregos

- α - Dimensão de partícula (Eq.1); variável da função sigma (Eq.24); termo de momento (Eq. 27)
- η - Fator de amortecimento e/ou aceleração (Eq. 28)
- λ - Comprimento de onda
- π - Função de fase (Eqs. 14 e 15)
- θ - Ângulo de espalhamento de luz
- τ - Turbidez da suspensão

Sobrescritos

- m - Ponto do conjunto de treinamento (Eq. 28)
- ' - Derivada primeira

Subscritos

- a - Maior dimensão de partícula (na posição mais estável)
- b - Menor dimensão de partícula (na posição mais estável)
- Im - Parte imaginária
- m - Número de classes de diâmetro de partícula (Eq. 21)
- meio - No meio em que a luz é transmitida

- n - Índice dos termos no modelo de Mie; número de detetores de luz desviada (Eq. 21)
- part - Da partícula
- Re - Parte real
- s - Círculo com área projetada equivalente
- v - Medido por espalhamento de luz; referente à esfera de volume equivalente
- vc - Calculado para a esfera de volume equivalente
- 0 - No vácuo; incidente

1. INTRODUÇÃO

A medição da distribuição granulométrica é uma variável importante na indústria de processos, nos casos em que há processamento de material sólido particulado. Nos últimos anos, tal importância tem crescido sensivelmente, em função das crescentes exigências referentes à qualidade dos produtos e à eficiência dos processos. Em alguns casos passou a ser essencial o monitoramento contínuo da distribuição granulométrica, para que o controle de processo possa ser eficiente. Exemplos conhecidos são os processos industriais de polimerização e os de precipitação e cristalização, nos quais a qualidade dos produtos é consequência direta da sua distribuição granulométrica. Nesses processos, caracterizados pela formação e crescimento de partículas, bem como pela ocorrência de quebra e agregação, o controle depende, muitas vezes, da medição de partículas com tamanhos pequenos demais (por exemplo, no controle de etapa de nucleação), o que exige técnicas instrumentais adequadas. Além disso, as taxas de crescimento de partículas são muitas vezes altas demais para a medição por métodos convencionais, baseados na coleta de amostras e na sua análise granulométrica em laboratório. Para tais situações, o ideal seria o monitoramento das partículas durante o processo de formação, por técnicas de medição “on-line”.

Desde os anos 80, tem sido crescente a utilização de medição de distribuição granulométrica por difração de laser. Essa técnica tem-se mostrado promissora, por ser rápida, reprodutível e permitir a medição de partículas com diâmetros variando desde cerca de 0,1 μm , até mais de 1 mm. Tais métodos baseiam-se no fenômeno de espalhamento de luz, quando esta atinge corpos presentes na sua trajetória. Para tanto, uma fonte de laser fornece um feixe de luz monocromático, com intensidade controlada, o qual, após incidir sobre partículas em suspensão, espalha-se em diferentes ângulos. O espectro de espalhamento depende de propriedades da suspensão (índices de refração, tamanho das partículas, etc.). A luz espalhada é detectada por um conjunto de sensores, dispostos em diferentes ângulos em relação à luz incidente. A intensidade de luz medida nos detetores forma o conjunto de dados utilizados no cálculo da distribuição de tamanho das partículas. Os algoritmos atualmente utilizados para cálculo da distribuição granulométrica, a partir da medição de dados de espalhamento de luz, baseiam-se na

teoria apresentada por Fraunhofer, em 1817, para descrever espectros de interferência na luz solar, e na solução proposta por Mie, em 1908, para as equações de onda de Maxwell, permitindo a previsão do ângulo de desvio de um feixe de luz, quando este circunda um corpo esférico com diâmetro e propriedades ópticas conhecidas.

As limitações dos algoritmos atuais são originárias da própria teoria de espalhamento de luz. Assim, as soluções das expressões matemáticas para o fenômeno supõem, primeiramente, que as partículas são esféricas, o que causa desvios nos resultados, conforme ilustrado por Guardani *et al.* (1992) e Guardani *et al.* (1993). Isto pode ser contornado, em alguns casos, com a introdução de fatores de correção, de natureza empírica, os quais, embora não correspondam aos critérios usuais de caracterização de forma de partícula, podem compensar os desvios. Outra suposição é a de que as partículas estejam suficientemente distantes umas das outras, de modo a não ocorrer interferências no padrão de espalhamento de cada partícula, ou múltiplo espalhamento (quando o feixe de luz desviado por uma partícula atinge outras partículas, antes de incidir sobre o detector). Na prática, este fato limita a medição em sistemas com altas concentrações de partículas, pois ocorrem desvios consideráveis nos resultados. Tais desvios têm sido corrigidos pela introdução de fatores de correção empíricos, como sugerem Ulrich e Stepanski (1990).

Face às limitações mencionadas, o presente trabalho visou estudar as possibilidades de aplicação de um modelo empírico, baseado em redes neurais, como alternativa aos modelos baseados no fenômeno de espalhamento. Embora seu equacionamento seja desvinculado do fenômeno considerado, as redes neurais têm já demonstrada sua capacidade no reconhecimento de padrões, em diferentes sistemas. Outro fator favorável é a simplicidade de sua estrutura computacional. Assim, em princípio, a capacidade de associação, por uma rede neural, de uma determinada distribuição de intensidade de luz espalhada à distribuição granulométrica de uma amostra deve ficar limitada pela própria resolução do espectro de intensidade de luz, em suspensões com altas concentrações de partículas. Nessas condições, ocorre a tendência para o espalhamento uniforme de luz em todos os ângulos, uma vez que a suspensão apresenta alta turbidez.

2. OBJETIVO

O objetivo global do presente trabalho é o estudo da utilização de algoritmo baseado em redes neurais para estimar a distribuição granulométrica de partículas em suspensões sólido-líquido, a partir de medições de espectro de difração de laser.

Em termos específicos, o trabalho visou, inicialmente, a realização de experimentos em laboratório, para a coleta de dados de espalhamento de luz com materiais particulados de diferentes formas, em suspensões com concentrações variáveis.

Os dados obtidos foram utilizados em ajustes e simulações, cujo objetivo foi estudar o comportamento do modelo e avaliar o potencial de aplicação da metodologia.

3. FUNDAMENTOS DA MEDIÇÃO DE TAMANHOS DE PARTÍCULAS POR ESPALHAMENTO DE LUZ.

Este capítulo visa apresentar um resumo referente aos princípios teóricos do espalhamento de luz, no que diz respeito à sua aplicação na medição da distribuição granulométrica de partículas em suspensão. Tais princípios são tratados de forma detalhada em uma série de livros especializados. Por exemplo, Allen (1990) apresenta uma breve introdução referente aos fenômenos de interesse para a técnica. O livro de Van de Hulst (1957) é um dos textos clássicos referentes à teoria de espalhamento de luz. O presente capítulo baseia-se no texto apresentado por Boxman (1992), voltado à aplicação de espalhamento de luz na medição da distribuição granulométrica em processos de cristalização. Para um estudo detalhado do tema sugere-se a consulta a Van de Hulst (1957), ou a algumas referências citadas por Boxman (1992), tais como: McCartney (1976), Twomey (1977) e Hinds (1982).

3.1. Equacionamento básico para o espalhamento de luz por partículas

Quando a luz irradiada em um meio homogêneo atinge uma interface (por exemplo, a superfície de um corpo qualquer) ocorrem simultaneamente fenômenos de absorção e espalhamento, que são responsáveis pela maior parte dos fenômenos ópticos envolvidos na observação de objetos na natureza. A absorção de luz pode ocorrer preferencialmente para determinados comprimentos de onda e envolver diferentes mecanismos, resultando na transformação da energia absorvida pelos corpos em outras formas (calor, por exemplo). O espalhamento envolve a reflexão e difração de luz na superfície, e refração através do objeto, resultando normalmente na distribuição de luz em várias direções.

Os modelos referentes ao espalhamento de luz por partículas suspensas em um meio objetivam descrever a distribuição do campo eletromagnético em qualquer ponto do espaço. A partir dessa distribuição, pode ser estimada a intensidade de luz espalhada

(potência por unidade de área) em diferentes ângulos em relação ao feixe de luz incidente.

A distribuição angular de luz espalhada por uma partícula suspensa em um meio depende do quociente α , entre a dimensão característica da partícula, x , e o comprimento de onda da luz incidente, λ :

$$\alpha = \frac{\pi x}{\lambda} \quad (1)$$

O comprimento de onda, por sua vez, é expresso em função do comprimento de onda da luz no vácuo, λ_0 , segundo a Eq. 2:

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{m_{\text{meio}}} \quad (2)$$

Outro fator importante é a razão entre os índices de refração (complexos), m , das partículas e do meio nas quais estão suspensas (considerado não absorvente):

$$m = \frac{m_{\text{part}}}{m_{\text{meio}}} = (m_{\text{Re}} - m_{\text{Im}}i) \quad (3)$$

No equacionamento, as partículas são consideradas opticamente homogêneas, isto é, m_{part} é constante para qualquer direção de incidência da luz (caso contrário, ocorre espalhamento anisotrópico). Além disso, partículas com forma assimétrica, ou partículas grandes com superfície rugosa, também apresentam padrões de espalhamento anisotrópico. Em tais casos, a orientação da partícula em relação ao feixe de luz afeta o padrão de espalhamento. Por essa razão, as soluções analíticas para as equações de onda de Maxwell foram obtidas apenas para esferas, ou partículas com certo grau de simetria, como elipsóides e cilindros (Van de Hulst, 1957), cujas superfícies podem ser descritas em um sistema de coordenadas ortogonal. Para partículas pequenas (α pequeno) esse efeito é menos pronunciado. Boxman (1992) cita uma série de autores que estudaram

soluções analíticas para as equações de Maxwell em sistemas com partículas de diferentes formas. O equacionamento aqui apresentado considera partículas esféricas.

O estado de polarização da luz incidente também é alterado pela passagem por interfaces e deve ser considerado no equacionamento. Assim, a descrição dos fenômenos causados pela luz deve envolver necessariamente sua intensidade e seu estado de polarização. Normalmente, o grau de polarização, P , é definido a partir de duas funções intensidade de luz espalhada: i_1 , para a direção perpendicular, e i_2 , para a direção paralela à direção do feixe de luz, segundo a Eq. 4:

$$P = \frac{i_1 - i_2}{i_1 + i_2} \quad (4)$$

O grau de polarização pode ser utilizado como indicação do tamanho de partículas suspensas em um meio, uma vez que partículas pequenas causam pouca variação em P , para diferentes ângulos de espalhamento, θ , ao passo que partículas grandes causam variações consideráveis e até imprevisíveis em P . Uma ilustração desse efeito para partículas de diferentes tamanhos pode ser vista na Fig. 3.1.

A taxa de diminuição da intensidade de luz relaciona-se com o coeficiente de extinção, o qual representa a soma da luz removida do meio por absorção e por espalhamento:

$$C_{ext} = C_{esp} + C_{abs} \quad (5)$$

Esta soma é normalmente expressa na forma de seções transversais equivalentes de partículas expostas à luz, para extinção, C_{ext} (total), espalhamento, C_{esp} , e para absorção, C_{abs} . Os termos acima podem ser divididos pela seção transversal geométrica das partículas (por exemplo, por $\pi x^2/4$ para esferas), resultando nos fatores de eficiência, Q :

$$Q_{ext} = Q_{esp} + Q_{abs} \quad (6)$$

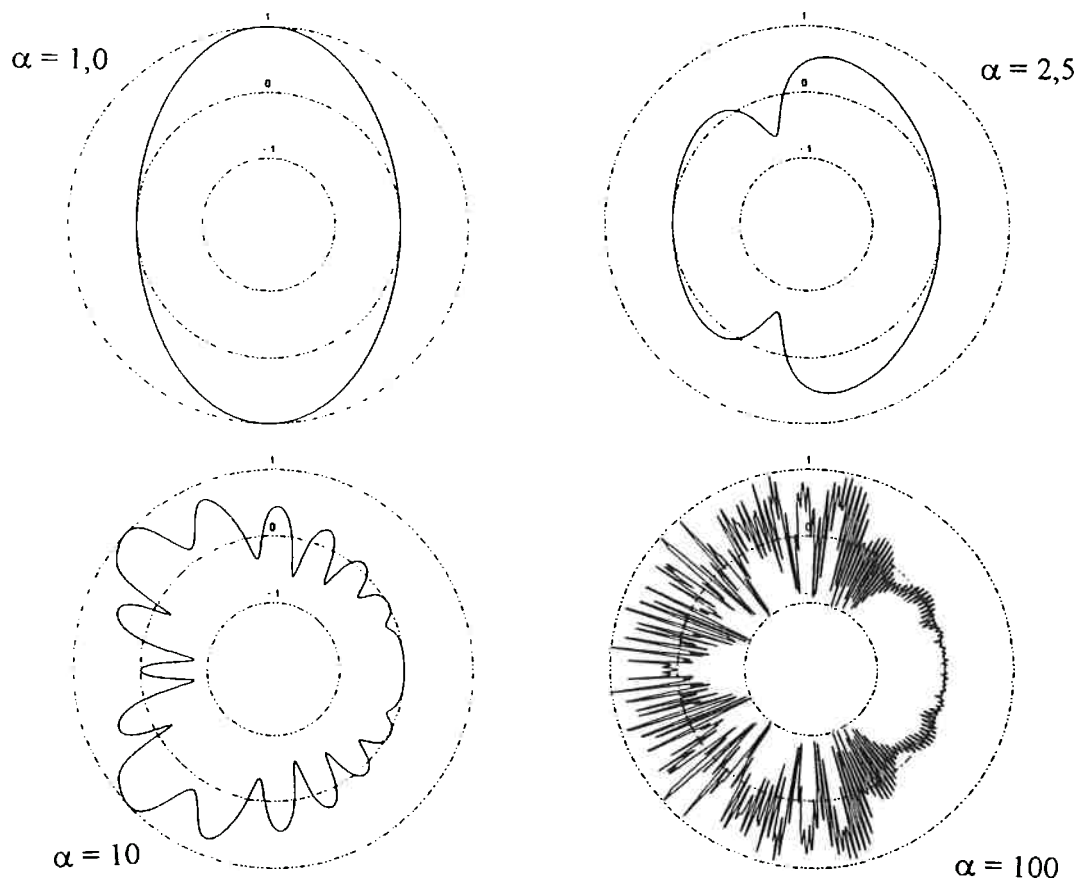


Figura 3.1. Diagramas polares para o grau de polarização (P) de partículas esféricas de látex em água, em função da dimensão α ($m = 1,20-0i$; $\lambda_0 = 0,63 \mu\text{m}$). Fonte: Boxman (1992).

A Fig. 3.2 ilustra o comportamento do fator Q_{ext} em função do índice de refração e tamanho das partículas. Esse fator tem comportamento oscilante, mas tende assintoticamente ao valor 2 para partículas grandes.

Um feixe de luz que atravessa uma suspensão homogênea de partículas em um fluido não absorvente, na direção z , contendo N partículas idênticas por unidade de volume, cada uma com seção transversal de extinção C_{ext} , tem sua intensidade I atenuada segundo a seguinte expressão:

$$-dI = NC_{ext} Idz \quad (7)$$

Integrando-se essa expressão ao longo de todo o caminho óptico, L , obtém-se a lei de Lambert-Beer para a transmitância, T :

$$T = \frac{I}{I_0} = \exp(-\tau L) \quad (8)$$

com I_0 sendo a intensidade da luz incidente, τ , a turbidez, definida como o produto NC_{ext} , e τL , a densidade óptica da suspensão.

A atenuação de luz é expressa comumente pelo termo “obscurecência” (em inglês: “obscuration”), a qual é definida como:

$$Obs = 1 - T \quad (9)$$

No caso da existência de uma distribuição de tamanhos de partículas, com $f(x)$ sendo a função densidade de distribuição, pode-se integrar a Eq. 8 para todos os tamanhos de partículas, obtendo-se:

$$T = \exp\left(-NL \int_0^{\infty} \frac{\pi x^2}{4} f(x) Q_{ext} dx\right) \quad (10)$$

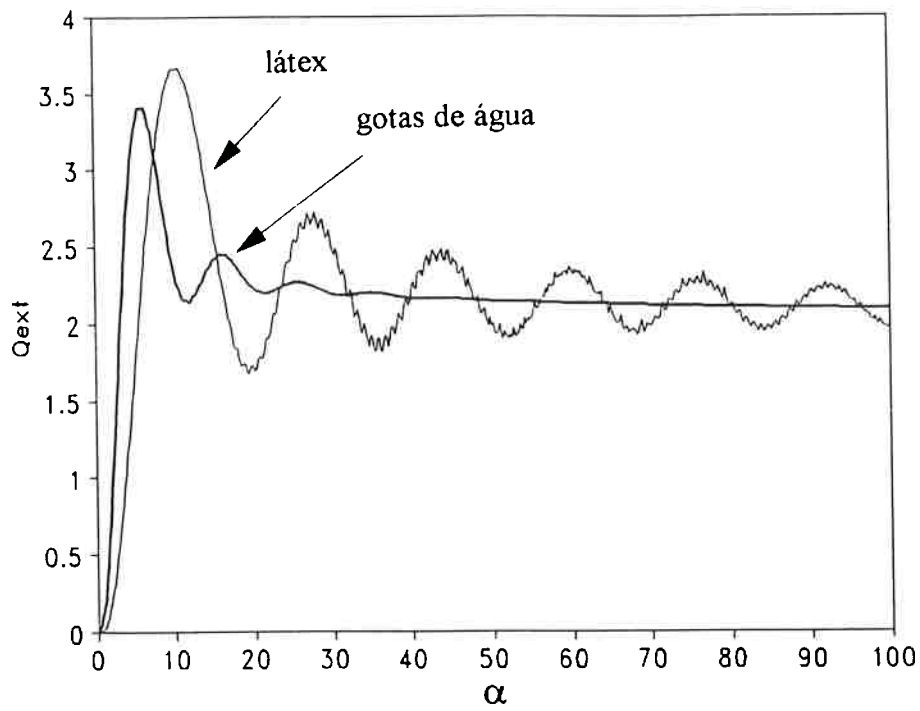


Figura 3.2. Fator de eficiência de extinção (Q_{ext}) em função de α , para partículas de látex em água ($m = 1,20-0i$; $\lambda_0 = 0,63 \mu\text{m}$) e para gotas de água em ar ($m = 1,33-0,04i$; $\lambda_0 = 7,0 \mu\text{m}$). Fonte: Boxman (1992).

Na Eq. 10, os coeficientes de extinção foram substituídos pela eficiência, Q_{ext} . Essa expressão pode ser utilizada para estimativa da concentração de partículas na suspensão, a partir da transmitância. A distribuição de tamanhos, $f(x)$, pode ser obtida por técnica de convolução da distribuição angular de luz espalhada.

Para que a Eq. 10 seja válida, as seguintes condições devem ser satisfeitas:

a) O espalhamento deve ocorrer de modo independente, entre as partículas. Para tanto, as mesmas devem estar suficientemente distantes umas das outras. Van de Hulst (1957) sugere que essa distância seja de, no mínimo, três vezes o seu raio, o que, em termos de concentração volumétrica, equivale a cerca de 5%. Além disso, as partículas devem estar distribuídas aleatoriamente, para que não ocorra interferência construtiva entre fases de luz espalhada por diferentes partículas. A luz incidente em um detector posicionado em um determinado ângulo em relação à luz incidente será a soma das contribuições de cada partícula individual (segundo Boxman, 1992, para pequenos ângulos de detecção, a interferência de fases existe sempre).

b) Não deve ocorrer múltiplo espalhamento, ou seja, a luz espalhada após atingir uma partícula não deve atingir outras antes de chegar ao detector. O fenômeno de múltiplo espalhamento intensifica-se gradualmente com o aumento da concentração volumétrica das partículas, tornando a distribuição angular de luz espalhada menos definida. Com isso, perde-se resolução na distribuição de intensidades de luz. No caso limite, a distribuição de luz torna-se praticamente uniforme em todos os ângulos de detecção. No entanto, mesmo em suspensões relativamente diluídas, a existência de múltiplo espalhamento resulta em erros na detecção da distribuição de intensidade de luz espalhada.

3.2. Funções de espalhamento de luz

Uma função de espalhamento define a distribuição angular de intensidades de luz, $I(\theta)$, a partir de um feixe de luz incidente (de intensidade I_0) sobre fontes de espalhamento distantes de um detetor. A intensidade de luz, I , referente a um ângulo θ , em relação à direção de incidência, é expressa na forma:

$$I(\theta) = I_0 \frac{\lambda^2}{8\pi^2 r^2} (i_1 + i_2) \quad (11A)$$

ou na forma:

$$I(\theta) = \frac{I_0}{2k^2 r^2} (i_1 + i_2) \quad (11B)$$

onde r representa a distância entre o plano de observação e a partícula, e k é o número de onda, ou constante de propagação, expressa como:

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (12)$$

É possível prever-se a distribuição de intensidade de luz espalhada em uma suspensão formada por partículas de diferentes tamanhos, a partir da soma das contribuições individuais de cada tamanho, desde que as condições para validade das expressões sejam satisfeitas e que sejam conhecidos os valores de α e de m . A Fig. 3.3 apresenta um gráfico da soma das intensidades i_1 e i_2 em função de α . Para pequenos valores de α (partículas pequenas), a intensidade apresenta-se como uma função de α^6 , compatível com a teoria de espalhamento de Rayleigh (Van de Hulst, 1957). À medida em que α aumenta, a função intensidade começa a oscilar e tende, para grandes valores de α , a uma função quadrática de α , que pode ser descrita pela teoria de difração de Fraunhofer. Na região intermediária, na qual o comprimento de onda é próximo às dimensões da partícula, a intensidade somente pode ser prevista a partir da solução das equações de onda de Maxwell, conforme apresentado por Mie (1908, *apud* Van de Hulst, 1957).

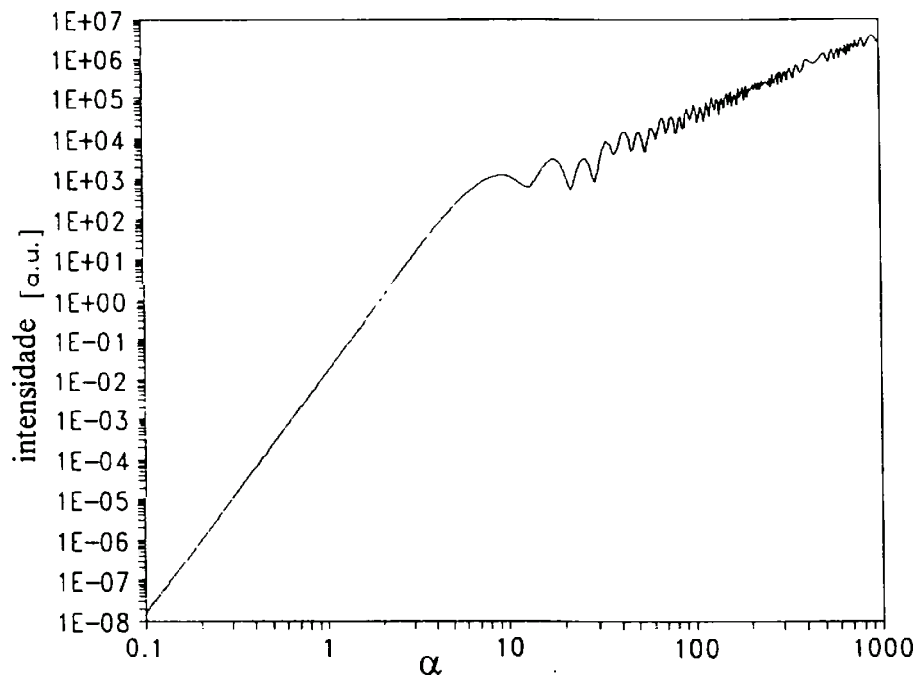


Figura 3.3. Intensidade de luz espalhada ($i_1 + i_2$) em função de α , para $\theta = 15^\circ$ ($m = 1,20 - 0i$; $\lambda_0 = 0,63 \mu\text{m}$). Fonte: Boxman (1992).

A solução apresentada por Mie baseia-se na separação de variáveis das equações de Maxwell em coordenadas esféricas, obtendo-se os quadrados dos módulos dos componentes de amplitude complexa de onda. As intensidades i_1 e i_2 de luz relacionam-se às amplitudes na forma:

$$i_1 = |S_1(\theta)|^2, \quad i_2 = |S_2(\theta)|^2 \quad (13)$$

onde:

$$S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(2n+1)}{n(n+1)} \{a_n \pi_n(\cos\theta) + b_n \tau_n(\cos\theta)\} \quad (14)$$

$$S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(2n+1)}{n(n+1)} \{a_n \tau_n(\cos\theta) + b_n \pi_n(\cos\theta)\} \quad (15)$$

Nas Eqs. 14 e 15, os termos a_n e b_n são os coeficientes de espalhamento de luz, que dependem dos parâmetros m e α . Os termos π_n e τ_n são funções de fase, dependentes de θ . O fator de eficiência de extinção, Q_{ext} , depende apenas de a_n e b_n , sendo expresso da seguinte forma:

$$Q_{ext} = \frac{2}{\alpha^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re}(a_n + b_n) \quad (16)$$

onde Re denota a parte real do argumento complexo.

Um estudo dos algoritmos para obtenção dos coeficientes de espalhamento de luz para as expressões de Mie é apresentado por Boxman (1992).

Para algumas condições específicas, podem ser utilizadas algumas soluções aproximadas das equações de Maxwell. Assim, para casos em que $\alpha \ll 1$, as soluções propostas por Rayleigh (1871, *apud* Van de Hulst, 1957) podem ser utilizadas. Neste

caso, a luz espalhada distribui-se em função de $(1 + \cos^2 \theta)$, com intensidade proporcional a α^6 :

$$I(\theta) = I_0 |pi|^2 \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^4 \frac{(1 + \cos^2 \theta)}{2r^2} \quad (17)$$

onde o termo pi representa o índice de polarização da partícula, o qual depende da sua forma, tamanho e índice de refração do meio. Por exemplo, para esferas, esse termo vale:

$$pi = \frac{(m^2 - 1) \pi x^3}{(m^2 + 2) 8} \quad (18)$$

Para os casos em que $\alpha \gg 1$, diferentes aproximações têm sido utilizadas, tais como a “difração anômala” (Van de Hulst, 1957), soluções da óptica geométrica ou, mais comumente, a difração de Fraunhofer. Esta teoria foi proposta em 1817 por Josef Fraunhofer, aplicada à descrição da presença de linhas escuras no espectro solar. A expressão para a intensidade é:

$$i_1(\theta) = i_2(\theta) = \alpha^4 \left[\frac{J_1(\alpha \cdot \text{sen} \theta)}{\alpha \cdot \text{sen} \theta} \right]^2 \frac{(1 + \cos^2 \theta)}{2} \quad (19)$$

onde J_1 é a função de Bessel de primeira espécie.

A vantagem desta expressão é que a intensidade de luz espalhada não depende do índice de refração das partículas, uma propriedade muitas vezes difícil de ser determinada. Além disso, o cálculo não envolve muitas grandezas de natureza diferente, tornando-se mais rápido. Na prática, a teoria de Fraunhofer pode ser aplicada com precisão em casos nos quais o índice de refração é alto ($m > 1$), as partículas são grandes ($\alpha \gg 1$) e os ângulos de espalhamento são pequenos. O fator de eficiência de extinção, nesses casos, vale aproximadamente 2 e não depende de α . Alguns autores realizaram comparações para o cálculo de intensidade de luz espalhada entre diferentes teorias, para

diferentes sistemas de partículas. Boxman (1992) cita os seguintes: Hodkinson (1966), Meehan e Gyberg (1973), Jones (1977), Boron e Waldie (1978), Fymat e Mease (1981) e Brown *et al.* (1991).

3.3. Obtenção da distribuição granulométrica a partir da distribuição de intensidade de luz espalhada

Em uma suspensão de partículas com diferentes tamanhos, a intensidade de luz espalhada depende da distribuição de tamanhos de partícula. De modo geral, para cada ângulo de detecção, θ , a intensidade de luz espalhada representa o total das contribuições de todas as partículas. A partir das Eqs. 11A ou 11B, para uma função densidade de distribuição granulométrica $f(\alpha)$, a intensidade de luz é expressa por:

$$I(\theta) = K \int_0^{\infty} i(\theta, \alpha, m) f(\alpha) d\alpha \quad (20)$$

onde $i(\theta, \alpha$ e $m)$ substitui as funções de intensidade paralela e perpendicular em relação à direção da luz. A constante K vem da Eq. 11, para observação de luz espalhada a uma distância r da fonte monocromática. A obtenção de $f(\alpha)$ a partir de dados de luz espalhada em diferentes ângulos é feita ajustando-se a função a esses dados, por algoritmos de minimização de desvios.

Na prática, a luz espalhada por uma suspensão de partículas, cuja distribuição granulométrica se deseja estimar, é medida por detetores dispostos em diferentes ângulos em relação à direção da luz incidente. Supõe-se que a fração volumétrica de partículas com um determinado diâmetro seja proporcional à intensidade de luz espalhada, segundo a função de espalhamento de luz adotada.

Os algoritmos utilizados comercialmente baseiam-se na resolução de um sistema linear de equações, como o seguinte:

$$\begin{pmatrix} I \\ \cdot \\ \cdot \\ I_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_{1,1} & \cdot & \cdot & A_{1,m} \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ A_{n,1} & \cdot & \cdot & A_{n,m} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} Y_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ Y_m \end{pmatrix} \quad (21)$$

O cálculo consiste da estimativa do vetor distribuição granulométrica, Y_j , para cada classe de diâmetro de partícula, j , de 1 a m , a partir dos valores medidos para o vetor intensidade de luz, I_i , para cada detetor i , de 1 a n , correspondente a um dado ângulo de desvio de luz. É utilizado um modelo óptico, constituído pela matriz $A_{n,m}$, e uma técnica de convolução, para resolver o sistema linear. Cada elemento $A_{i,j}$ da matriz A representa a contribuição de uma partícula esférica com diâmetro na classe j , para a intensidade de luz espalhada que atinge o detetor i . Os elementos da matriz A são calculados de diferentes formas, conforme a função de espalhamento adotada (por exemplo, modelo de Fraunhofer, ou de Mie). A solução da Eq. 21 é obtida por algoritmos de inversão de matrizes, modificados de modo a incorporar erros experimentais, por meio de amortecimento de oscilações entre valores do vetor Y .

4. APLICAÇÃO DE REDES NEURAIIS

4.1. Fundamentos

As redes neurais representam uma técnica de inteligência artificial que permaneceu pouco estudada por muito tempo, sendo utilizada basicamente no reconhecimento de imagens. Um breve histórico de redes neurais é apresentado por Nelson e Illingworth (1991) mostrando algumas de suas facetas interessantes e pitorescas. Outra referência geral sobre redes neurais pode ser vista no livro de Dayhoff (1990). Um resumo sobre redes neurais, bem como sobre o seu treinamento é apresentado por Kovács (1996), uma apresentação mais detalhada e extensa pode ser vista em Haykin (1994).

Na área de engenharia química em específico, sua utilização iniciou-se recentemente com trabalhos em detecção e diagnóstico de falhas (Hoskins *et al.*, 1988, 1990, Venkatasubramanian *et al.*, 1990, Watanabe *et al.*, 1989), assim como em modelagem e controle de processos químicos (Bhat *et al.*, 1990, Bhat e McAvoy, 1990, Ungar *et al.*, 1990, Psychogios e Ungar, 1991, Su e McAvoy, 1992).

Uma característica dos processos químicos é que a maioria deles apresenta fortes não-linearidades, as quais dificultam a obtenção de modelos fenomenológicos, a ponto de, em alguns casos, conseguir-se apenas um modelo extremamente simplificado, válido em condições muito específicas. É exatamente nessa área que as redes neurais surgem como uma técnica interessante de ser empregada, devido à sua característica de "aprender" o que ocorre no processo. Pode-se contornar, assim, em muitos casos, as dificuldades de obtenção de modelos fenomenológicos representativos do processo. Entretanto, o sucesso da modelagem e controle de processos via rede neural depende fortemente do conhecimento das principais variáveis do processo, além de ser necessária uma base de dados de boa qualidade, ou seja, que contenha todas as informações importantes do processo e o domínio desejado.

Embora existam muitos tipos de redes neurais, duas classes de rede são geralmente empregadas: a rede de múltiplas camadas, cuja informação segue uma única direção ("multilayer feedforward network"), e a rede recursiva ("recurrent network"). Estas duas classes de rede são mostradas respectivamente nas Figs. 4.1 e 4.2.

As etapas para o desenvolvimento de um modelo de rede neural podem ser descritas como: análise do processo e construção da base de dados, configuração de uma estrutura de rede neural e, por último, treinamento ou aprendizado da rede.

A fase de aprendizado ou treinamento é basicamente um problema de otimização e freqüentemente exige a apresentação da base de dados à rede por milhares de vezes. Desta forma, depara-se com as mesmas dificuldades associadas à otimização de processos, tais como: convergência, existência de mínimos locais, esforço computacional, entre outras. Não existe, até hoje, um algoritmo comprovadamente eficiente para assegurar um "treinamento ótimo".

A metodologia para a fase de treinamento de redes neurais foi basicamente consolidada por Rumelhart e McClelland (1986), conhecida como método de retropropagação ("backpropagation"). Tal metodologia foi obtida do método de otimização do gradiente descendente e tem sido utilizada na grande maioria dos trabalhos publicados na área de redes neurais, aplicadas a processos químicos.

A rede neural comumente empregada na modelagem e simulação de processos químicos é a "feedforward network" (abreviatura: FFNN). Nesta rede, os neurônios de uma camada são conectados a todos os neurônios da camada seguinte. Cada informação que sai de um neurônio de uma camada (i) é ponderada por um dado peso (W_{ij}) e enviada a todos os neurônios da camada seguinte (j). A convergência da rede neural está ligada à melhor escolha possível do conjunto de pesos W . A rede escolhida possui três camadas: a camada de entrada de dados, a camada oculta ("hidden layer") e a camada de saída. A camada de entrada não efetua nenhum processamento.

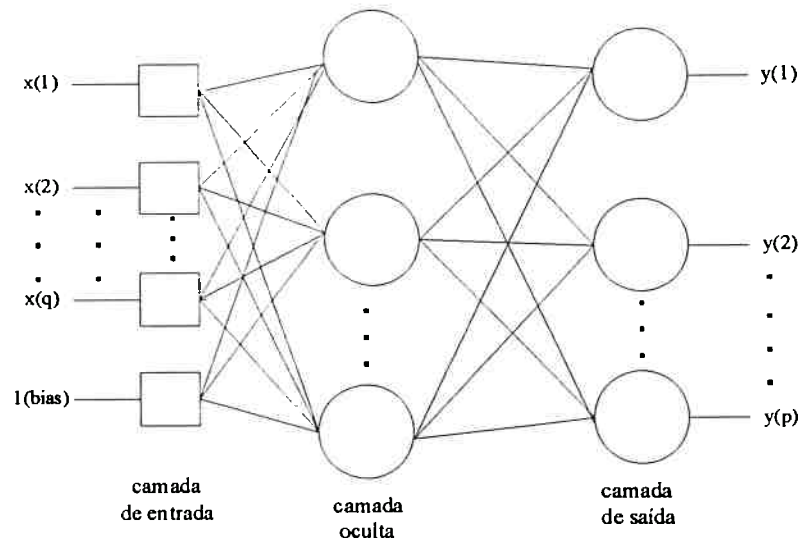


Figura 4.1. Rede de múltiplas camadas com sentido único (“multilayer feedforward network”).

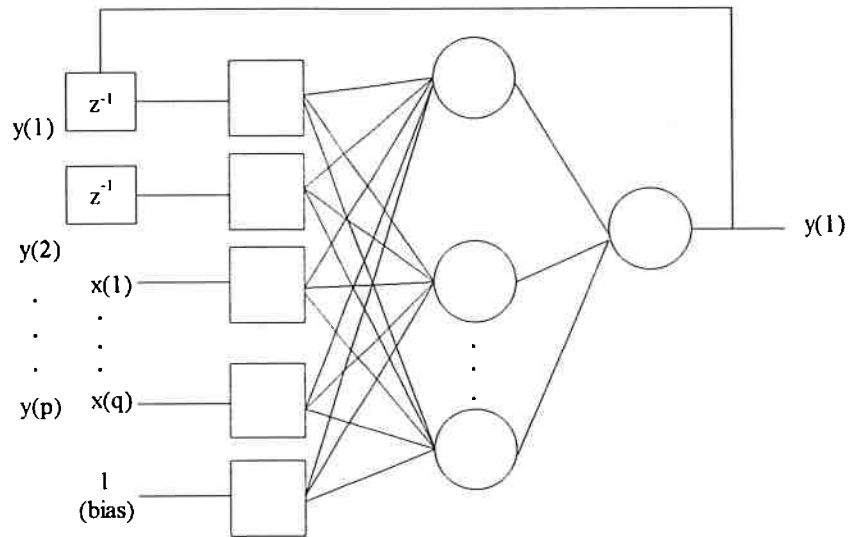


Figura 4.2. Rede recursiva (“recurrent network”).

A fim de diminuir as dificuldades de convergência, todos os dados do conjunto de aprendizagem são normalizados. Além dos dados de entrada, alimenta-se também um valor de referência ("bias") à rede.

A Fig. 4.3 apresenta um neurônio de uma camada j da estrutura da rede.

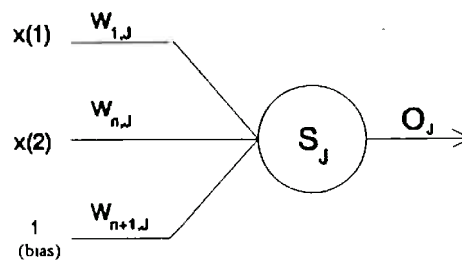


Figura 4.3. Representação de um neurônio j da estrutura da rede.

Todas as variáveis de entrada X_i são ponderadas com um valor $W_{i,j}$ e somadas, conforme a Eq. 22:

$$S_j = \sum_{i=1}^n W_{i,j} X_i + W_{n+1,j} \quad (22)$$

A saída do neurônio, O_j , é, então, calculada a partir da expressão:

$$O_j = f(S_j) \quad (23)$$

A relação entre a entrada e a saída dos neurônios pode ser dada por diferentes funções (Kovács, 1996). Uma das mais utilizadas é a função ativadora sigmoideal, do tipo:

$$f(z) = \frac{1}{1 + e^{-z}} \quad (24)$$

Hunt *et al.* (1992) apresentam outras formas desta relação $f(z)$, utilizadas em modelagem e controle de processos químicos, bem como um apanhado de recomendações quanto à utilização de um ou outro tipo de rede neural.

4.2. Algoritmo de treinamento de redes neurais

O treinamento de uma rede neural (ou aprendizado) consiste de uma adaptação dos pesos, W_{ij} , aplicados sobre as informações entre as camadas de neurônios, de forma a minimizar o erro quadrático, expresso na forma da função E , abaixo. Esta função representa o valor acumulado para todos os dados experimentais, (de 1 a γ), das somas dos erros quadráticos entre os valores experimentais e os calculados pela rede neural, para todas as saídas da rede (de 1 a p) (Eq. 25):

$$\min(E) = \min \left(\sum_{m=1}^{\gamma} \sum_{k=1}^p \left(Y_{k,calc}^{(m)} - Y_{k,exp}^{(m)} \right)^2 \right) \quad (25)$$

Outros critérios foram propostos recentemente na literatura, como os de Pollard *et al.* (1992), nos quais a função objetivo seria menos sensível a dados com erros grosseiros.

Para se obter o conjunto de pesos (W_{ij}), é preciso ter, em primeiro lugar, um conjunto de dados formado por subconjuntos de pares (entrada e saída) do processo, que constituem o conjunto de aprendizado ("learning set"). Este conjunto deve ser montado de tal forma que se contemplem todas as informações relevantes do processo. Tendo esse conjunto de dados, utiliza-se um algoritmo de otimização, a fim de se obter o conjunto de pesos que satisfaça um critério dado, por exemplo, pela Eq. 25.

O algoritmo mais utilizado para determinar o conjunto de pesos (W) é o de retropropagação ("backpropagation"), que é uma derivação do gradiente descendente (Rumelhart e McClelland, 1986). Este é obtido a partir da minimização do resíduo

quadrático (E) com respeito a $W_{i,j}$. Desta forma, o gradiente $\delta E/\delta W_{i,j}$ pode ser calculado e, conseqüentemente, a direção a ser seguida no processo de minimização do resíduo. Em cada passo da otimização, m , a atualização dos pesos pode ser dada pela equação:

$$W_{i,j}^{(m+1)} = W_{i,j}^{(m)} + \Delta W_{i,j}^{(m)} \quad (26)$$

Esta atualização pode ser feita, alternativamente, utilizando a técnica do "momento", baseada na inclusão do termo de momento, α , proporcional à variação dos pesos, de modo que $0 < \alpha < 1$:

$$W_{i,j}^{(m+1)} = (1 - \alpha)W_{i,j}^{(m)} + \alpha \cdot \Delta W_{i,j}^{(m)} \quad (27)$$

A diferença entre o método do gradiente descendente e o "backpropagation" é que este último usa apenas um subconjunto de dados entrada/saída de cada vez, enquanto o método do gradiente tradicional emprega todos os dados do conjunto de aprendizado. Para a camada de saída, a variação dos pesos referentes ao neurônio de saída k , incidentes sobre a saída do neurônio j , da camada oculta, a cada iteração m , é dada por:

$$\Delta W_{j,k}^{(m)} = \eta \cdot f'(S_k) (Y_k^{(m)} - O_k^{(m)}) O_j^{(m)} \quad (28)$$

Para a camada oculta, a variação dos pesos referentes ao neurônio oculto j , incidentes sobre a entrada X_i , a cada iteração m , é dada por:

$$\Delta W_{i,j}^{(m)} = \eta \cdot f'(S_j) \left\{ \left[\sum_{k=1}^p f'(S_k) (Y_k^{(m)} - O_k^{(m)}) W_{j,k}^{(m-1)} \right] X_i^{(m)} \right\} \quad (29)$$

Nas Eq. 28 e 29, f' é a derivada da função sigmoidal, dada por:

$$f'(z) = \frac{e^{-z}}{(1 + e^{-z})^2} \quad (30)$$

e η é um fator de amortecimento, que pode ser utilizado para evitar passos excessivamente grandes no processo de minimização, que causem divergência da função objetivo.

No algoritmo de retropropagação, em cada iteração, são calculadas inicialmente as saídas da camada oculta (O_j) e da camada de saída (O_k), com os pesos estimados na iteração anterior, pelas Eqs. 22 a 24, para os n neurônios da camada oculta e p neurônios da camada de saída; em seguida, as saídas da rede são utilizadas para o cálculo dos novos valores dos pesos, utilizando-se as Eqs. 30, 29 e 28 para as variações e a Eq. 26 ou 27 para os novos valores. Isto é feito para cada apresentação dos pontos experimentais. Assim, inicialmente os erros são propagados para a frente, na rede, e utilizados para estimar os novos valores dos pesos nas camadas anteriores.

Uma vez determinado o conjunto de pesos (W) que minimiza o resíduo (E), para simular o processo basta multiplicar um conjunto de dados de entrada qualquer pelos respectivos pesos, respeitando-se a estrutura da rede, obtendo-se o conjunto de resultados após a camada de saída da rede.

5. ESTUDOS EXPERIMENTAIS

Existe ainda certo desconhecimento, entre técnicos que operam equipamentos de difração de laser para medição de distribuição granulométrica, referente a qual dimensão de partícula realmente é medido pelo método. Os fabricantes dos equipamentos apresentam como dimensão característica da partícula o diâmetro da esfera de volume equivalente, D_v (ver, por exemplo, MALVERN, 1993). Essa informação, no entanto, é correta apenas no caso previsto pelos modelos de espalhamento de luz, ou seja, para partículas esféricas. Para partículas de forma não esférica, não há ainda correlações baseadas na geometria da partícula, que possam ser introduzidas nos modelos, tornando possível a medição de D_v por difração de laser.

Conforme apresentado anteriormente, os modelos ópticos para cálculo da distribuição angular da intensidade de luz espalhada supõem que as partículas estejam suficientemente distantes entre si, assegurando a medição da luz difratada pelas partículas em suspensão, de forma independente. O aumento da concentração volumétrica de partículas resulta na ocorrência de múltiplo espalhamento, causado pela incidência da luz difratada por uma dada partícula sobre outras presentes na suspensão, antes de atingir o detetor.

Dentre vários autores que realizaram estudos visando equacionar o efeito de forma e concentração de partículas na medição da distribuição granulométrica por técnicas de espalhamento de luz, podem ser citados: Jager (1990), Dishman *et al.* (1993), Masłowska *et al.* (1994) e Ulrich e Stepanski (1990). O efeito da forma das partículas foi estudado por este autor em 1992 (Guardani *et al.*, 1992, Guardani *et al.*, 1993), em estudo concluído posteriormente. Nesse estudo, foram feitas medições no difratômetro de laser, com partículas de diferentes formas, as quais foram caracterizadas por análise de imagem.

Neste capítulo são apresentados resultados de experimentos voltados à verificação do efeito da forma e da concentração de partículas em suspensões, sobre os resultados da análise granulométrica por difração de laser. As evidências experimentais

quanto aos efeitos mencionados serviram de base para a proposta de utilização de redes neurais em substituição aos modelos ópticos fenomenológicos adotados convencionalmente.

5.1. Materiais e métodos

Foram utilizadas amostras de material particulado de diferentes origens, selecionados segundo os seguintes critérios: a) faixa de tamanhos de partícula compatível com a faixa de medição do equipamento disponível (entre 0,1 μm e 600 μm); b) formas das partículas (esferas, cubos, cilindros, placas); c) estabilidade das partículas em relação às condições dos experimentos (quanto à dissolução e desagregação).

Os materiais utilizados nos experimentos foram:

- a) catalisador de craqueamento catalítico (FCC), constituído por partículas de zeólita com forma elipsoidal;
- b) sulfato de cálcio hidratado, subproduto da produção de ácido fosfórico (fosfogesso), com forma acicular;
- c) mica, constituída por plaquetas;
- d) amianto, auxiliar de filtração, constituído por fibras;
- e) açúcar de cana (sacarose) grau comestível, refinado, constituído por partículas prismáticas (cristais monoclinicos);

Para utilização nos experimentos, as amostras de FCC, fosfogesso e mica foram separadas em diferentes faixas granulométricas, por peneiramento em peneiras padronizadas. Com as demais amostras não foi possível tal separação, devido à grande tendência de agregação observada.

As Figs. 5.1 a 5.5 apresentam imagens obtidas por microscopia óptica (luz transmitida), ilustrando o aspecto das partículas estudadas. As características de forma e distribuição de tamanho de partículas das amostras estão descritas no Item 5.2.

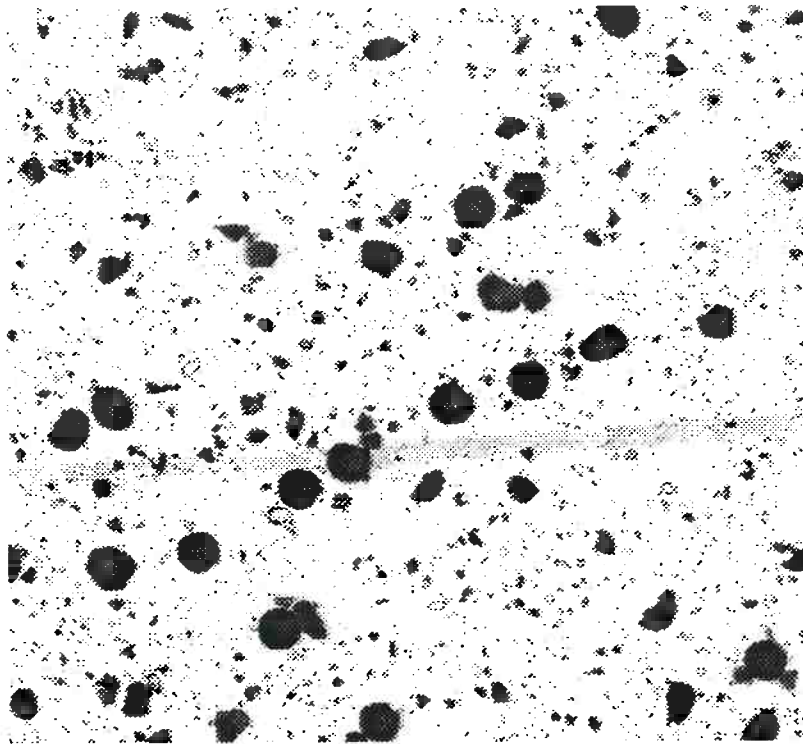


Figura 5.1. Imagem da amostra de catalisador de FCC, obtida por microscopia óptica.

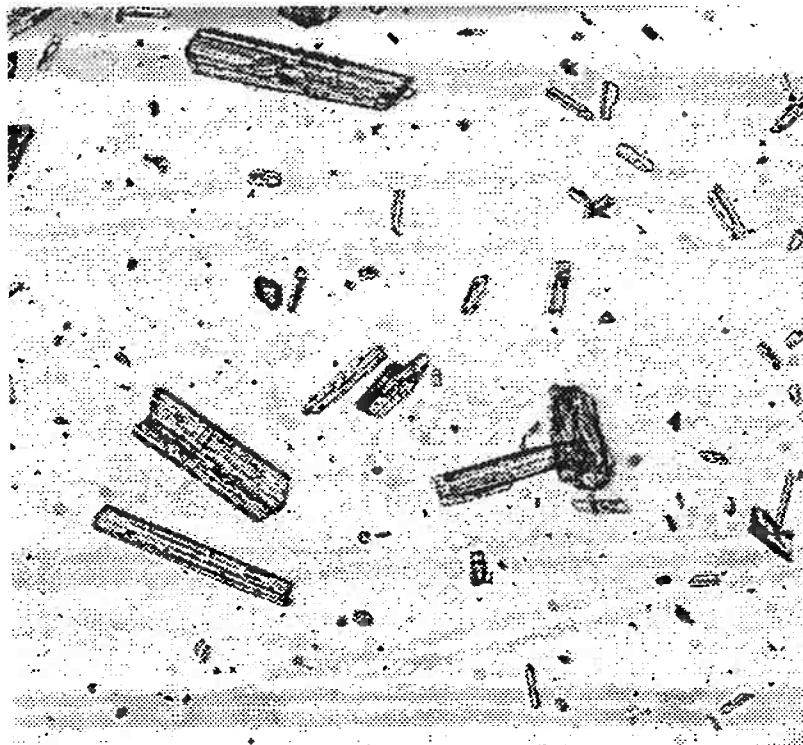


Figura 5.2. Imagem da amostra de fosfogesso, obtida por microscopia óptica.

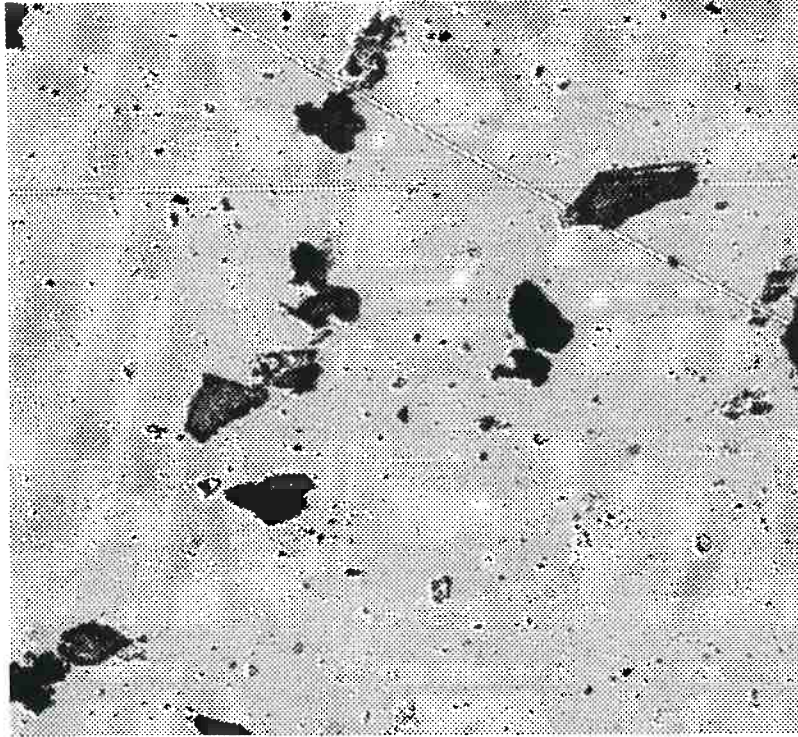


Figura 5.3. Imagem da amostra de mica, obtida por microscopia óptica.

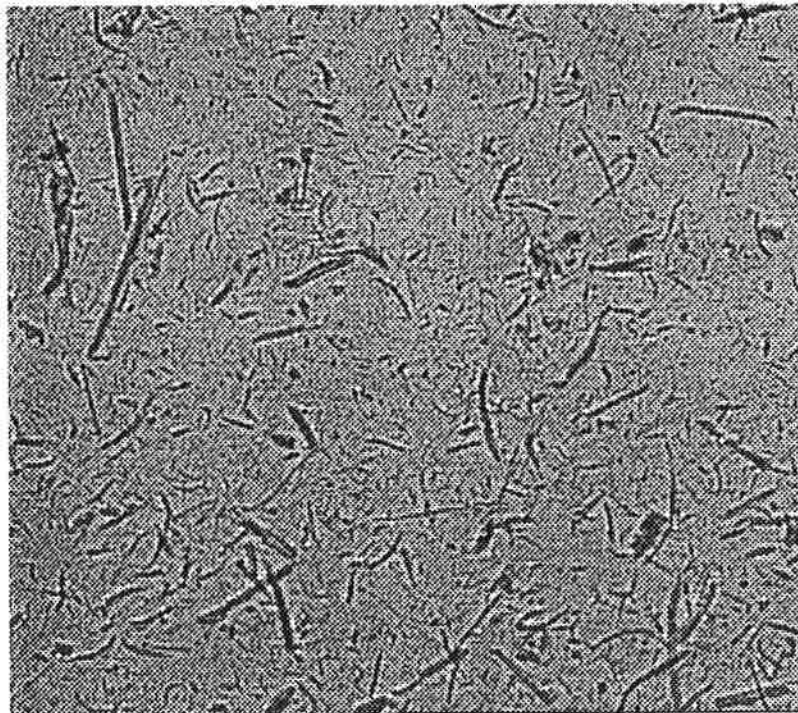


Figura 5.4. Imagem da amostra de amianto, obtida por microscopia óptica.

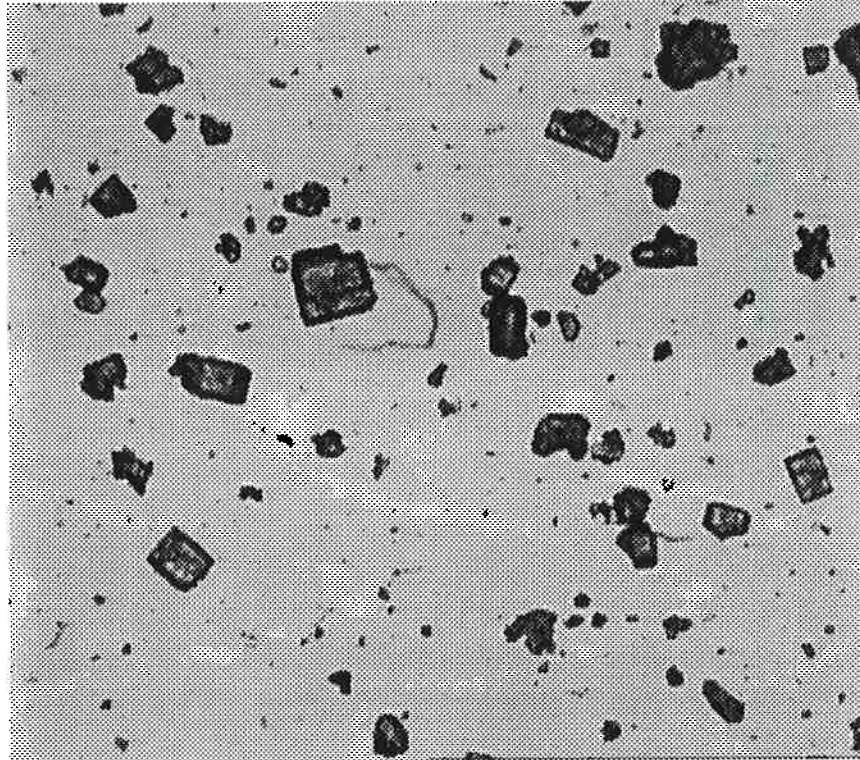


Figura 5.5. Imagem da amostra de açúcar, obtida por microscopia óptica.

As distribuições granulométricas das amostras foram medidas utilizando-se duas técnicas experimentais: análise por espalhamento de luz (difração de laser) e análise de imagem.

Nas análises por espalhamento de luz foi utilizado um difratômetro de laser de marca Malvern, modelo Mastersizer X. A Fig. 5.6 apresenta um esquema do equipamento, o qual consiste basicamente de um sistema de geração de laser de He-Ne, de comprimento de onda igual a $0,638 \mu\text{m}$, um sistema de amostragem e um detector. O sistema de amostragem consiste de uma célula de aço inox, com paredes de vidro óptico, distantes entre si $2,4 \text{ mm}$. A suspensão líquida contendo as partículas escoam através da célula, passando pelo feixe de laser. A luz espalhada pelas partículas, em diferentes ângulos, atinge então uma lente biconvexa (lente de Fourier), a qual faz com que a luz difratada pelas partículas atinja o detector em uma determinada distância em relação ao centro do feixe de laser, independentemente da distância em que as mesmas se encontram na célula, em relação ao centro. O detector é constituído por 32 fotodiodos, na forma de anéis concêntricos. O detector central é utilizado para alinhamento do sistema e para medição do grau de obscurecimento. Os demais 31 detectores medem a luz espalhada nos diferentes ângulos em que estão dispostos, em relação ao feixe incidente. A faixa de tamanhos de partícula que o equipamento pode medir depende, entre outros fatores, dos ângulos de detecção. Estes, por sua vez, dependem da distância focal da lente biconvexa. No presente trabalho, foi utilizada uma lente com distância focal de 300 mm , o que permite, para a configuração do equipamento, a medição de partículas com tamanho entre $1,2$ e $600 \mu\text{m}$. O controle do equipamento é realizado por um programa em computador, que também estima a análise granulométrica a partir dos dados de luz espalhada. O cálculo utiliza um modelo óptico (função de intensidade de luz para diferentes ângulos) baseado nos modelos de Mie e de Fraunhofer, dependendo dos ângulos de espalhamento de luz (ou seja, dependendo dos tamanhos de partícula utilizados). No preparo das suspensões foi utilizado um tanque de dispersão de amostra, fornecido com o difratômetro, com volume de 1 litro , construído em aço inox, provido de um agitador central, ultra-som e uma bomba centrífuga, que faz a circulação da suspensão entre o tanque e a célula de amostragem.

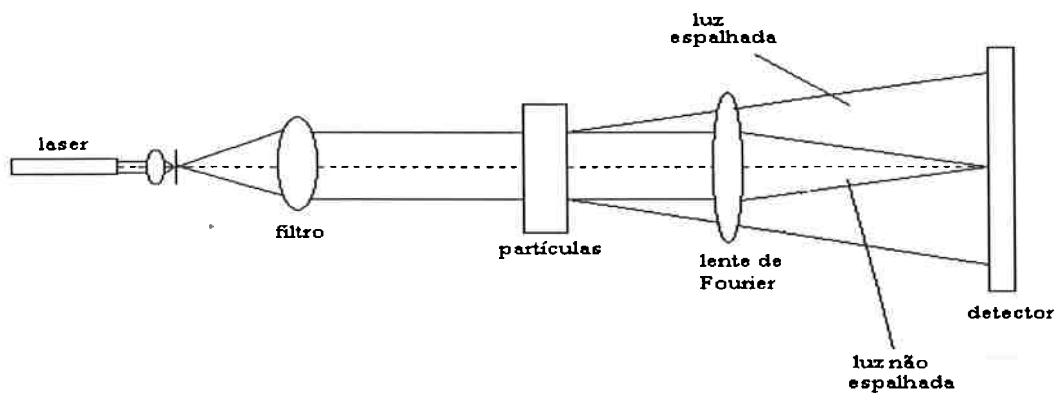


Figura 5.6. Esquema simplificado do arranjo adotado no difratômetro de laser utilizado nos experimentos.

As análises de imagens foram feitas com um microscópio óptico de marca Olympus, modelo BX-60, com luz transmitida, acoplado a uma câmera de vídeo CCD. A imagem proveniente da câmera é digitalizada e analisada em um analisador de imagem de marca Leica, modelo Q500MC. Diferentes características de partículas podem ser medidas com o equipamento. Entre elas, o presente trabalho utilizou as seguintes:

- a) diâmetro do círculo de área equivalente (D_s);
- b) maior dimensão da partícula, em seu plano de repouso estável (L_a);
- c) menor dimensão da partícula, em seu plano de repouso estável (L_b);
- d) circularidade C , proporcional ao quociente entre o quadrado do perímetro e a área da partícula;
- e) relação de aspecto (L_a/L_b).

Foram obtidos histogramas de distribuições de número de partículas em função das grandezas medidas, a partir da contagem, para cada amostra, de pelo menos 600 partículas (Allen, 1990). Foram também estimados histogramas de distribuição volumétrica, sendo o volume estimado como proporcional a $(D_s)^3$.

O procedimento experimental envolveu a preparação de suspensões de cada amostra com a concentração desejada, para análise nos dois equipamentos. Os líquidos utilizados na preparação das suspensões foram:

- a) água destilada (para catalisador de FCC, amianto e mica);
- b) etanol absoluto (para fosfogesso);
- c) isopropanol p. a. (para sacarose).

Nos estudos referentes ao efeito da forma das partículas, prepararam-se suspensões com concentração na faixa ideal de medição do difratômetro de laser (segundo indicação do programa de controle do equipamento), mantendo-se valores de obscurecência próximos a 14% ($\pm 3\%$).

Nos estudos de verificação do efeito da concentração de partículas, variou-se a concentração de cada amostra adicionando-se uma massa conhecida da mesma no tanque de preparo de suspensão.

5.2. Estudo do efeito da forma das partículas sobre os resultados da medição de distribuição granulométrica por difração de laser

O presente estudo envolveu experimentos com partículas de diferentes formas, as quais foram caracterizadas por análise de imagem e tiveram sua distribuição granulométrica medida no difratômetro de laser.

As amostras utilizadas foram:

- a) catalisador de FCC, separado, por peneiramento, nas seguintes faixas de granulometria: de 44 a 53 μm e de 62 a 74 μm ;
- b) fosfogesso, separado, por peneiramento, nas seguintes faixas de granulometria: de 44 a 53 μm e de 62 a 74 μm ;
- c) mica, separada, por peneiramento, nas seguintes faixas de granulometria: de 75 a 90 μm e de 106 a 150 μm ;
- d) amianto;
- e) açúcar.

As Figs. 5.7 a 5.14 apresentam curvas de distribuição granulométrica das amostras.

A Tab. 5.1 apresenta um resumo das características das partículas, medidas pelo difratômetro de laser e pelo analisador de imagens. Tratam-se de valores médios, baseados na distribuição de volume das partículas. O efeito da forma das partículas pode ser observado na Fig. 5.15, que mostra a relação entre D_v , medido por difração de laser (em condições ideais para análise), e as demais dimensões das partículas, em função da circularidade das mesmas. Observa-se que, à medida em que a circularidade tende ao

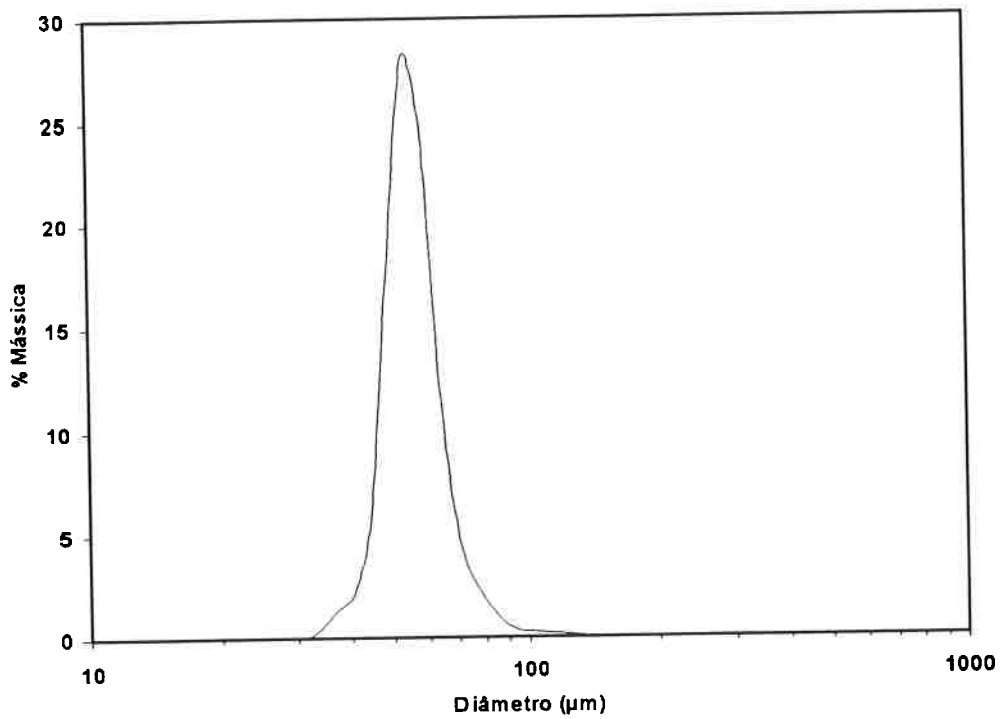


Figura 5.7. Distribuição granulométrica da amostra de catalisador de FCC, fração separada por peneiramento, entre 44 e 53 μm .

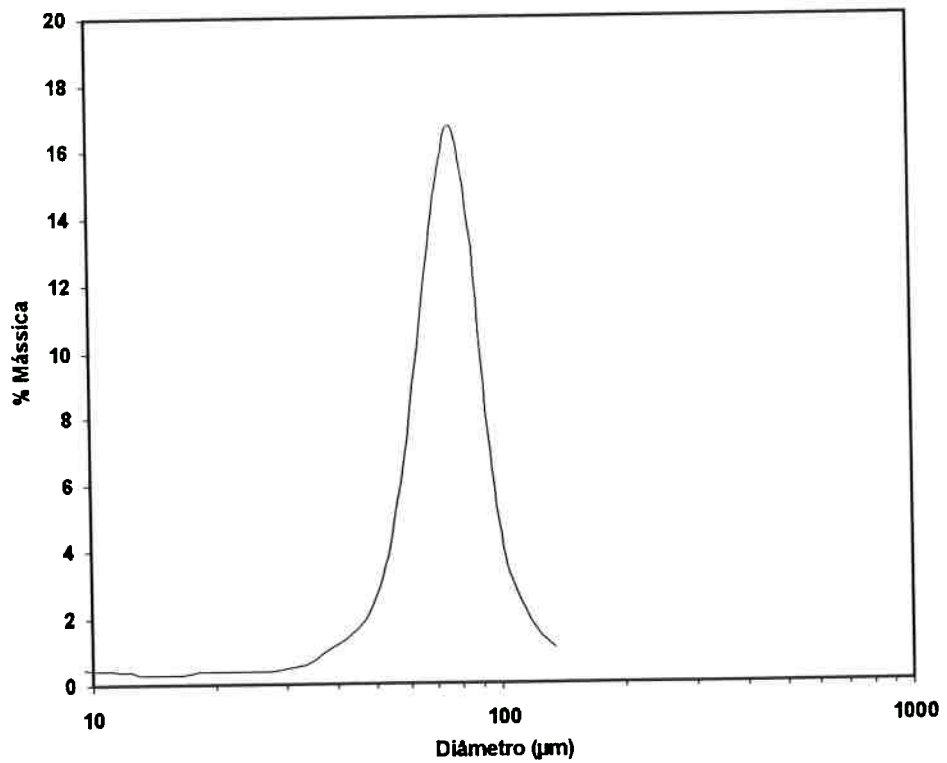


Figura 5.8. Distribuição granulométrica da amostra de catalisador de FCC, fração separada por peneiramento, entre 62 e 74 μm .

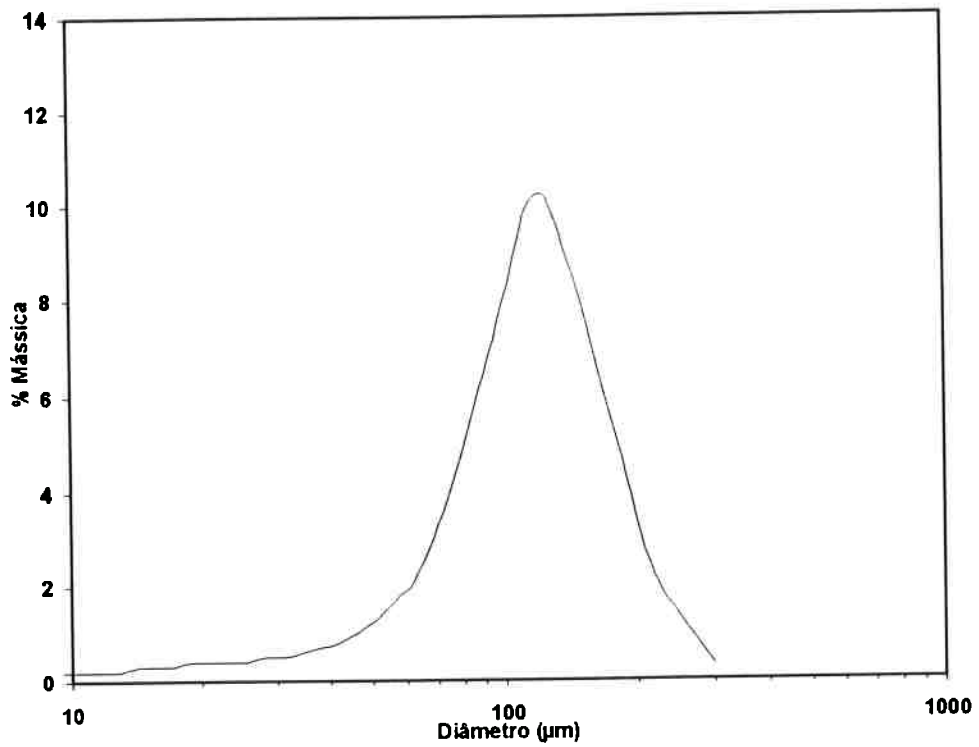


Figura 5.9. Distribuição granulométrica da amostra de mica, fração separada por peneiramento, entre 75 e 90 μm.

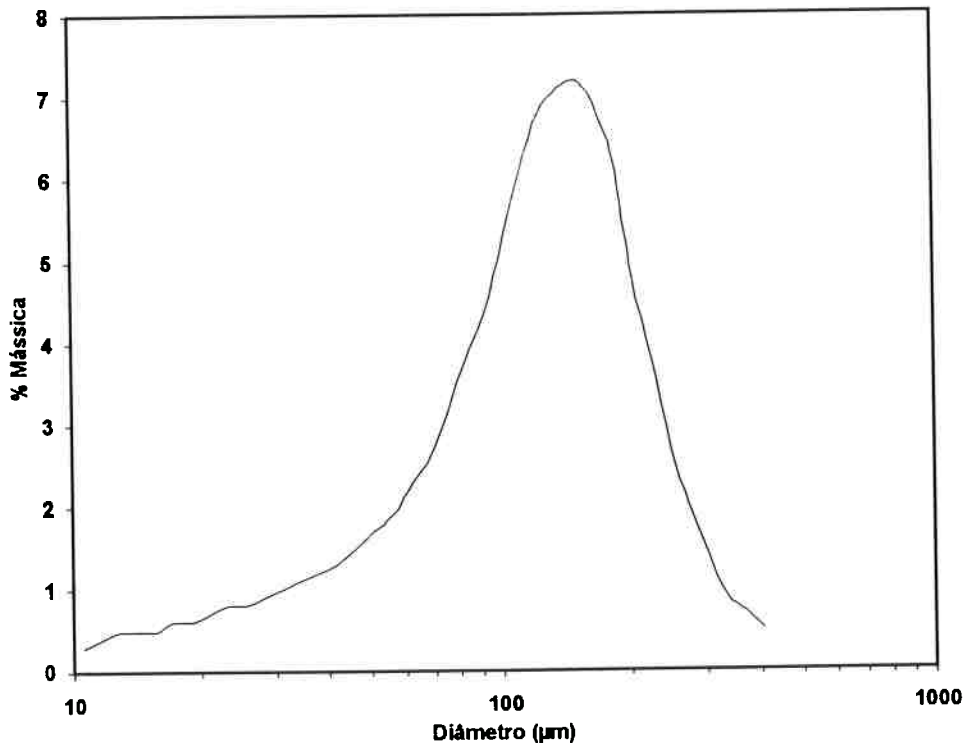


Figura 5.10. Distribuição granulométrica da amostra de mica, fração separada por peneiramento, entre 106 e 150 μm.

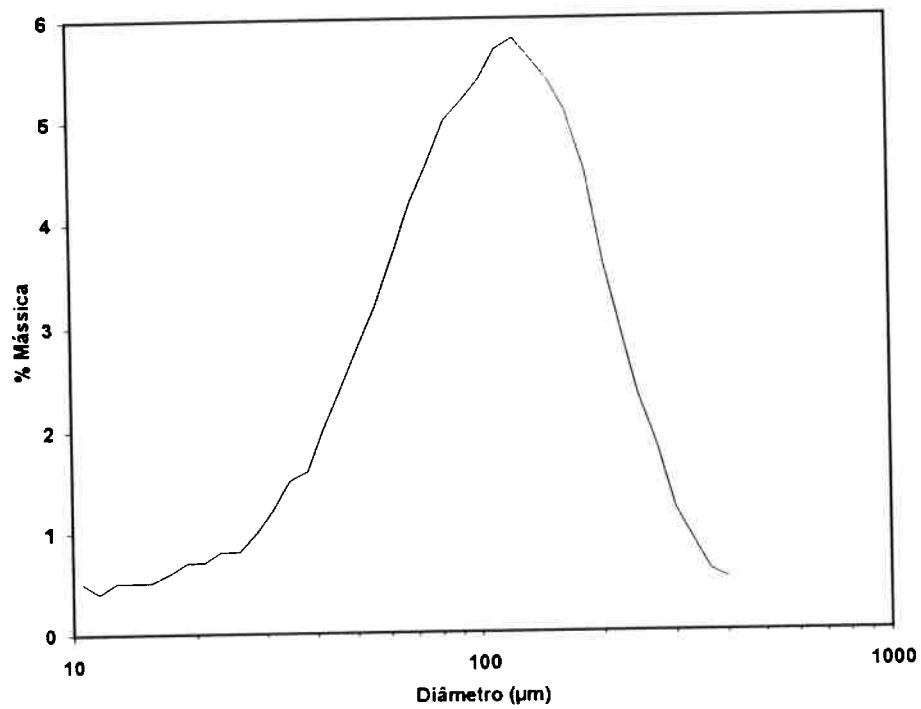


Figura 5.11. Distribuição granulométrica da amostra de fosfogesso, fração separada por peneiramento, entre 44 e 53 μm.

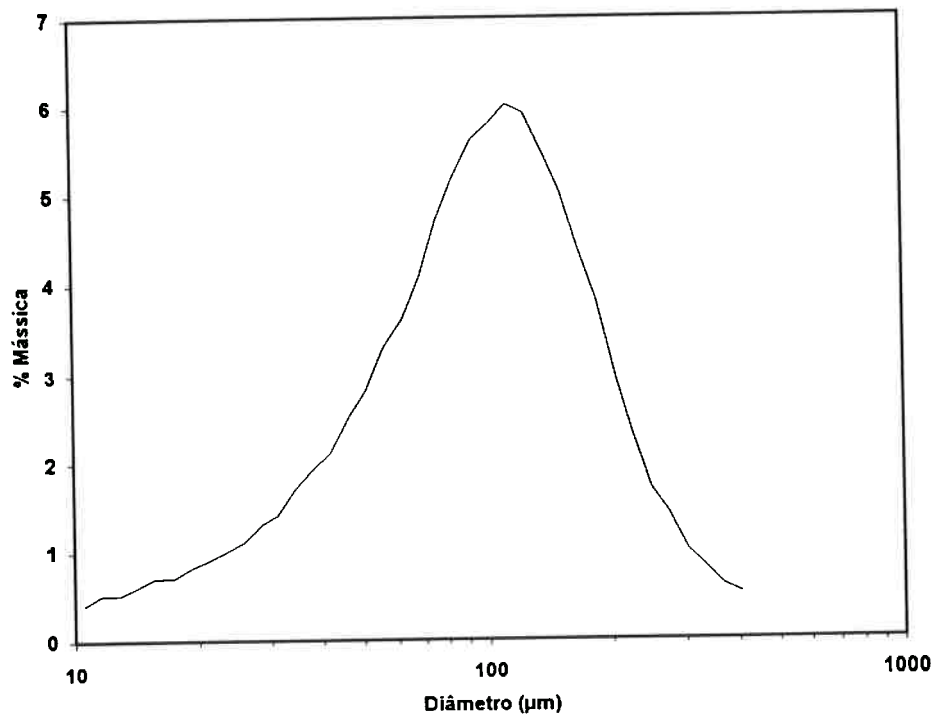


Figura 5.12. Distribuição granulométrica da amostra de fosfogesso, fração separada por peneiramento, entre 62 e 74 μm.

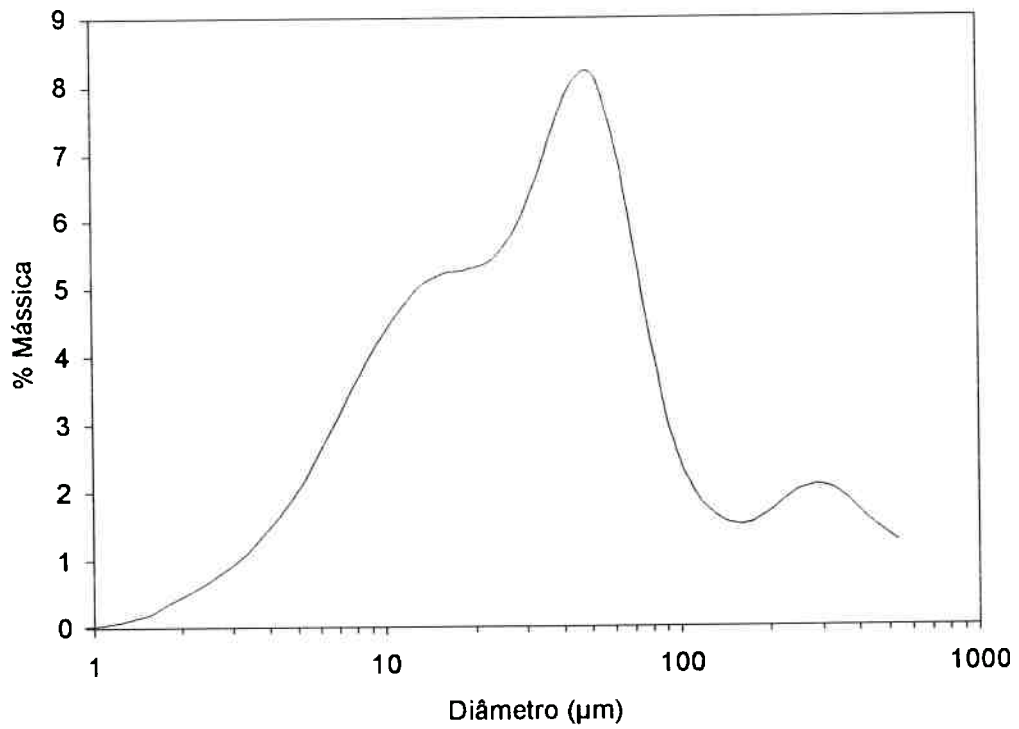


Figura 5.13. Distribuição granulométrica da amostra de amianto.

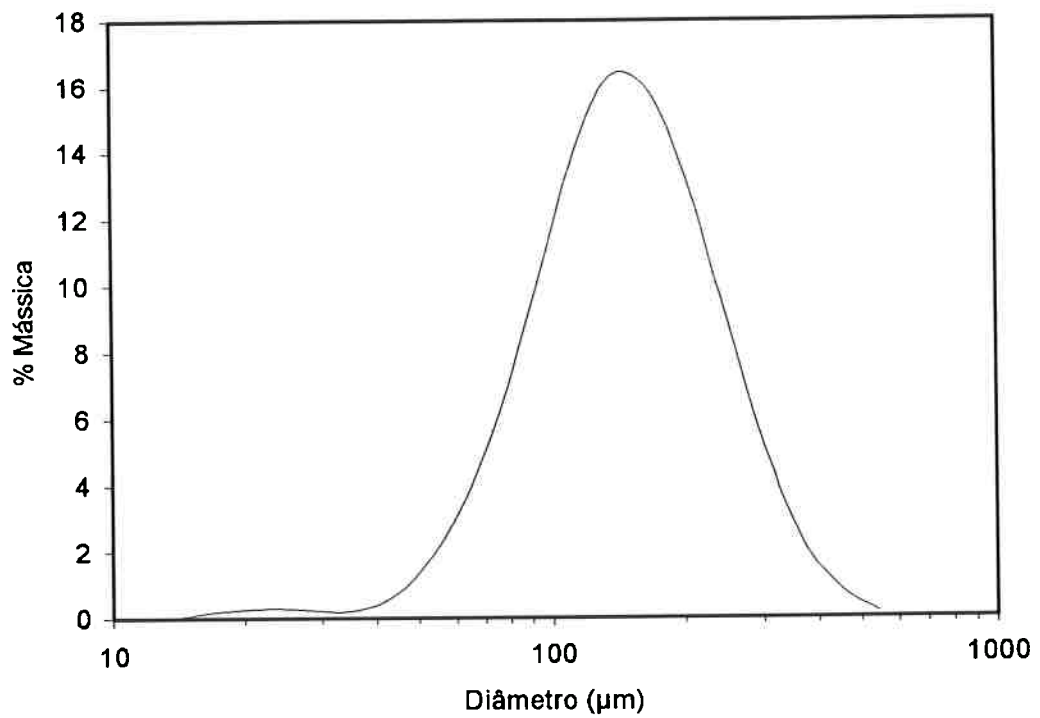


Figura 5.14. Distribuição granulométrica da amostra de açúcar (sacarose).

Tabela 5.1. Características das partículas utilizadas no estudo, determinadas por análise de imagem em microscópio óptico.

AMOSTRA	L_a/L_b	C	D_v^* (μm)	D_{vc} (μm)	D_s (μm)	L_a (μm)	L_b (μm)
amianto	2,34	0,43	56,1	-	29,9	83,7	35,7
fosfogesso (-53+44 μm)	2,19	0,46	106,3	68,0	62,6	100,3	45,7
fosfogesso (-74+62 μm)	2,01	0,50	111,9	83,4	73,3	116,0	57,7
mica (-90+75 μm)	1,56	0,64	114,2	-	79,0	110,3	70,6
mica (-150+106 μm)	1,49	0,67	123,9	-	103,7	144,3	96,8
açúcar	1,48	0,69	158,9	-	165,4	220,5	148,7
FCC (-53+44 μm)	1,29	0,78	53,2	47,2	48,3	56,0	43,4
FCC (-74+62 μm)	1,29	0,78	68,8	70,1	49,1	83,1	64,4

* D_v é o diâmetro médio, obtido por difração de laser.

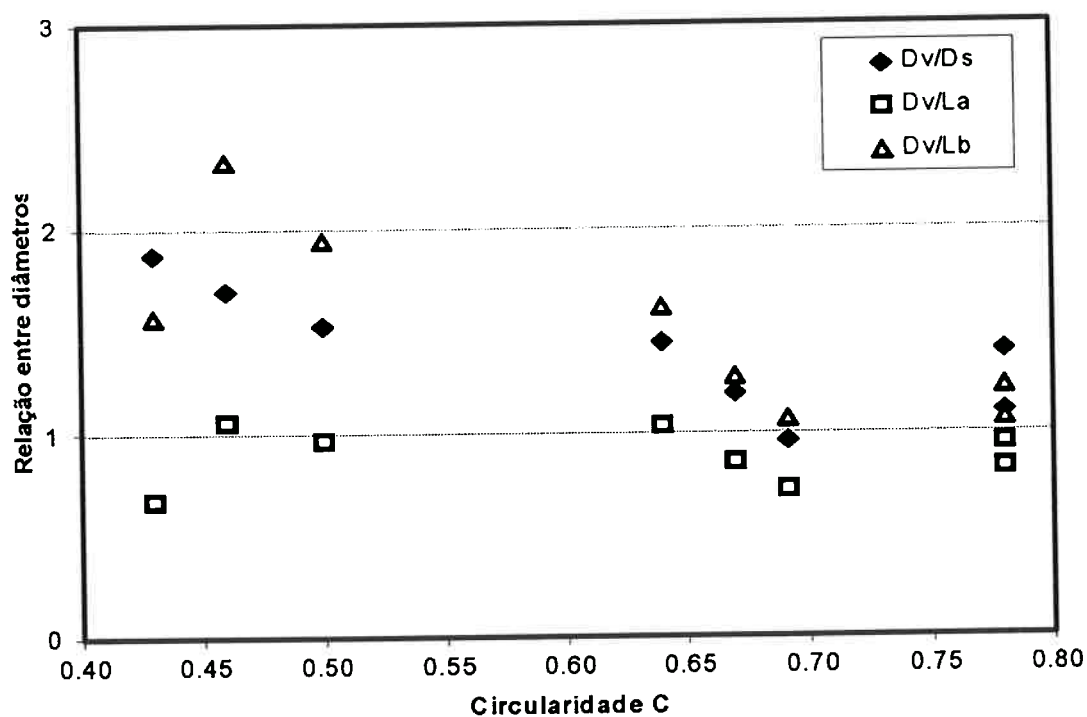


Figura 5.15. Variação do quociente entre D_v e as demais dimensões de partícula, em função da circularidade.

valor 1 (forma projetada mais próxima de um círculo), as dimensões apresentadas tendem a um mesmo valor, fato esperado, pois, para partículas esféricas, todos os diâmetros devem ser iguais. No entanto, para partículas com forma irregular, observa-se que a relação entre D_v e L_a permanece próxima de 1 à medida em que a circularidade diminui. Embora a tendência esteja prejudicada no caso das partículas de amianto, as quais apresentaram grande tendência à aglomeração, dificultando as medições, observa-se que D_v tende à maior dimensão projetada das partículas, L_a . Para o caso das partículas de FCC e de fosfogesso foi possível estimar o diâmetro médio aproximado da esfera de volume equivalente, indicado na Tab. 5.1 como D_{vc} . Para tanto, consideraram-se as partículas de FCC como elipsóides de revolução e as de fosfogesso como cilindros. Observa-se que os valores médios medidos para as amostras situam-se próximos a D_v para as partículas de FCC. No entanto, para as partículas com menor circularidade, os valores distanciam-se consideravelmente.

A partir das observações acima descritas, pode-se concluir o seguinte:

a) a dimensão característica de partícula calculada pelo modelo óptico baseado na difração de laser não corresponde a D_v , para as partículas utilizadas no presente trabalho;

b) aparentemente, a dimensão característica de partícula obtida por difração de laser tende a corresponder ao valor médio para uma partícula orientada, em princípio, aleatoriamente em relação à direção do feixe de laser. Isto deve ocorrer de fato, uma vez que as partículas escoam na forma de uma suspensão sólido-líquido através da célula de amostragem. Mesmo havendo orientação preferencial em relação ao sentido do escoamento, não haverá efeito sobre a posição das partículas em relação ao feixe de laser, pois este incide transversalmente à direção de escoamento. Assim, por exemplo, para fosfogesso, D_v medido tende ao diâmetro de um corpo esférico resultante da rotação da partícula (com maior dimensão média projetada igual a L_a) em torno de seu centro de gravidade. Portanto, a medição do diâmetro da esfera de volume equivalente às partículas deve ser feita levando-se em consideração a forma das mesmas.

5.3. Estudo do efeito da concentração de suspensões sobre as medições de distribuição granulométrica por difração de laser.

Os experimentos visando estudar o efeito da concentração de partículas consistiram da realização de medições da distribuição granulométrica no difratômetro de laser, em suspensões de partículas com diferentes formas e faixas de tamanho, variando-se a concentração.

Devido à grande tendência de agregação observada para as amostras de amianto, fosfogesso e mica, foram utilizadas nos experimentos aqui descritos as amostras de catalisador de FCC e açúcar. A amostra de catalisador de FCC foi separada em diferentes faixas granulométricas, conforme apresentado na Tab. 5.2. A amostra de açúcar foi utilizada tal qual recebida.

O efeito da concentração volumétrica das partículas sobre a obscurescência da suspensão em relação à luz incidente, medida pelo detetor central do difratômetro, pode ser visto na Fig. 5.16, para as partículas de catalisador de FCC com diferentes faixas de tamanhos. Devido à forma da dependência em relação à concentração, ocorre saturação da obscurescência a partir de certos valores de concentração.

Valores de obscurescência considerados adequados à medição pelo difratômetro utilizado situam-se entre 10 e 30%, o que corresponde a concentrações variáveis da suspensão, em função da distribuição granulométrica de cada amostra. Na Fig. 5.16, observa-se que, para cada amostra dentre os experimentos realizados, pelo menos dois ou três pontos situam-se na faixa de medição adequada, conforme indicação do programa controlador do difratômetro.

A obscurescência é consideravelmente mais sensível a variações de concentração das partículas menores, uma vez que os ângulos de espalhamento de luz dessas partículas são maiores.

Tabela 5.2. Faixas granulométricas das amostras de catalisador de FCC utilizadas nos experimentos.

AMOSTRA	FAIXA ("mesh")	FAIXA DE TAMANHOS (μm)
1	100 a 150	105 a 149
2	150 a 200	74 a 105
3	200 a 270	53 a 74
4	270 a 325	44 a 53
5	325 a 400	37 a 44
6	400 a fundo	0 a 37

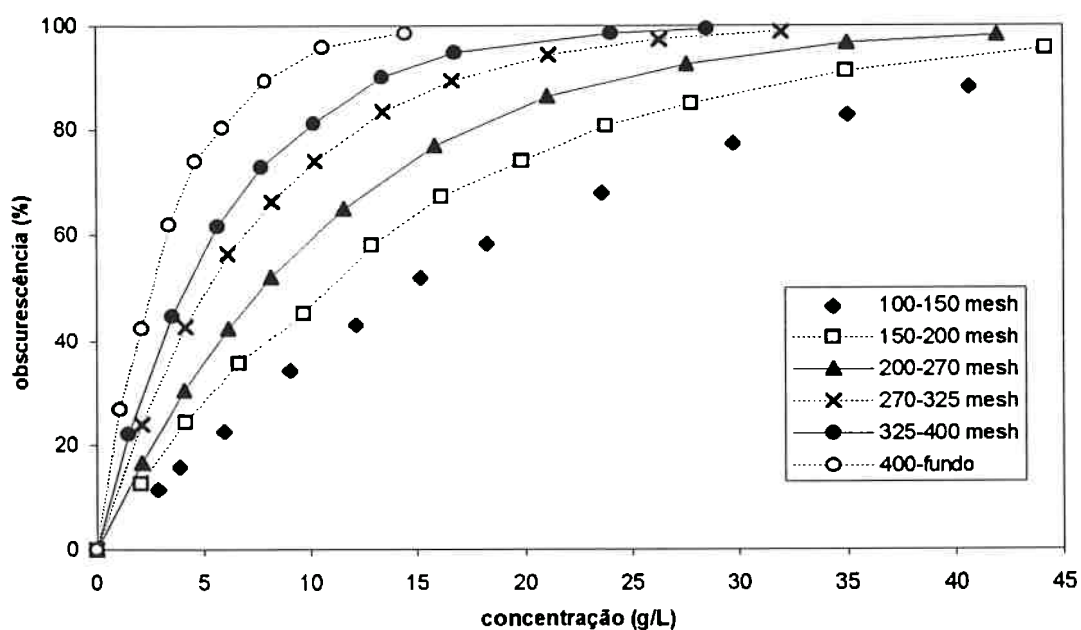


Figura 5.16. Relação entre concentração de partículas de catalisador de FCC nas suspensões e obscurecência, medida pelo difratômetro.

As Figs. 5.17 e 5.18 apresentam a variação do diâmetro médio e do grau de dispersão das curvas de distribuição granulométrica calculadas pelo modelo óptico utilizado pelo difratômetro, em função da concentração de partículas na suspensão, para as partículas de catalisador de FCC e de açúcar.

Como medida do grau de dispersão das distribuições, foi adotado o mesmo critério utilizado pelo programa controlador do difratômetro, denominado “span”, e definido da seguinte forma (MALVERN, 1993):

$$\text{span} = \frac{D_{v, 0,9} - D_{v, 0,1}}{D_{v, 0,5}}$$

Na expressão, os subscritos 0,1, 0,5 e 0,9 correspondem, respectivamente, aos valores da função distribuição granulométrica acumulada, normalizada entre 0 e 1. Assim, o “span” equivale a um coeficiente de variação da distribuição granulométrica. Os valores apresentados nas Figs. 5.17 e 5.18 são relativos àqueles obtidos para as menores concentrações.

Observa-se, na Fig. 5.17, que há uma tendência de diminuição no diâmetro médio de partícula para os materiais estudados, com o aumento da concentração. Esta tendência é conseqüência do aumento da intensidade de luz difratada por mais que uma partícula (múltiplo espalhamento), que, incidindo sobre o detetor em ângulos maiores do que os correspondentes às partículas em suspensão, resulta em diâmetros calculados menores do que os reais. Na Fig. 5.18 observa-se que ocorre também aumento da dispersão da distribuição granulométrica calculada, com o aumento da concentração. A tendência de diminuição do diâmetro médio e aumento da dispersão da distribuição é mais intensa para partículas menores, pois estas causam maior variação na obscurescência da suspensão, quando sua concentração varia. A Fig. 5.19 ilustra o efeito do aumento da concentração sobre a curva de distribuição granulométrica. No caso, foi utilizada uma amostra de catalisador de FCC com granulometria na faixa de 100 a 150 “mesh”. Observa-se que, para as altas concentrações, é nítido o efeito do múltiplo espalhamento, causando o surgimento de um pico na função densidade de distribuição

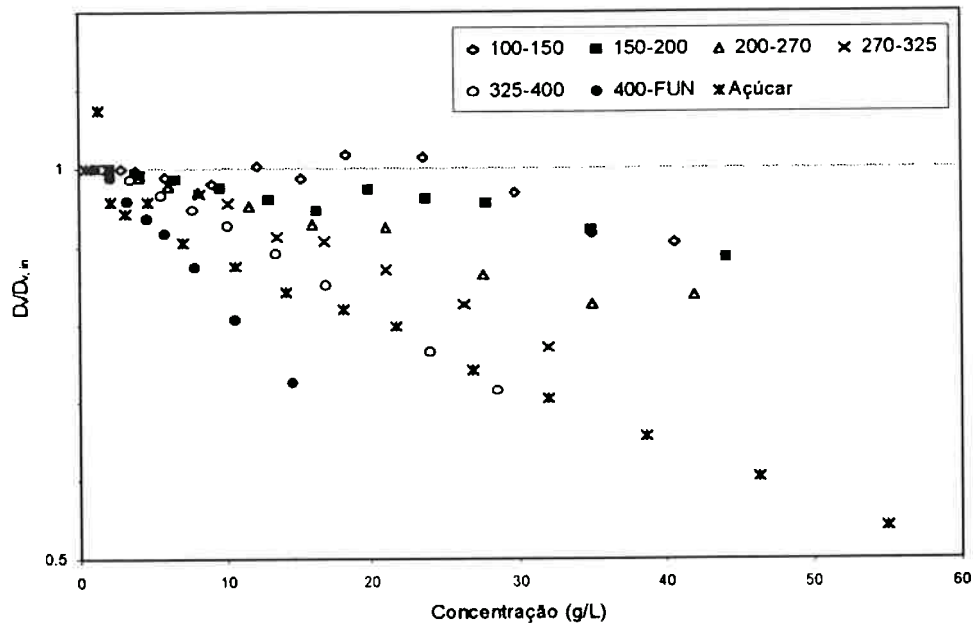


Figura 5.17. Efeito da concentração de partículas em suspensão sobre o diâmetro médio calculado pelo modelo óptico do difratômetro.

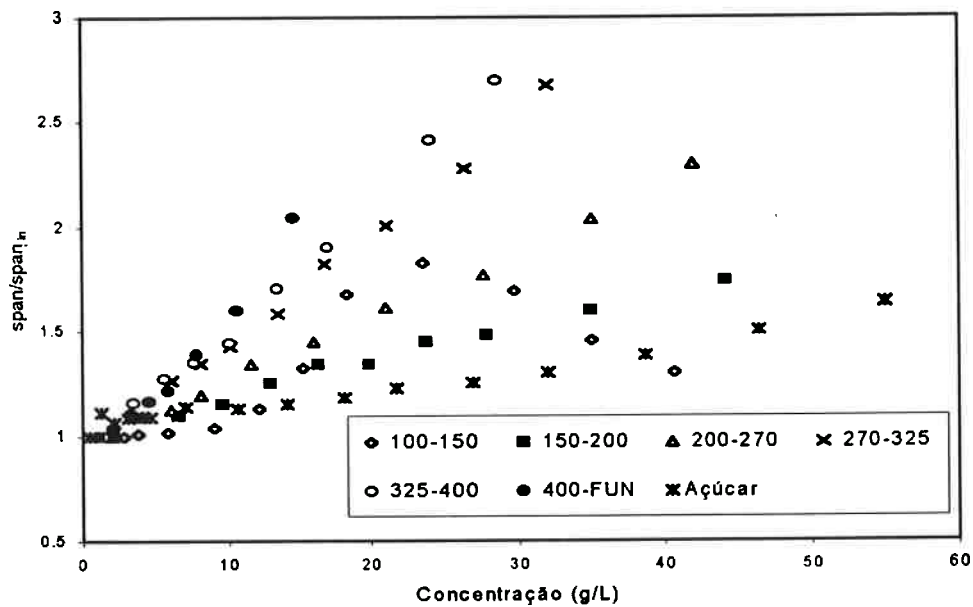


Figura 5.18. Efeito da concentração de partículas em suspensão sobre o grau de dispersão da distribuição granulométrica, calculada pelo modelo óptico do difratômetro.

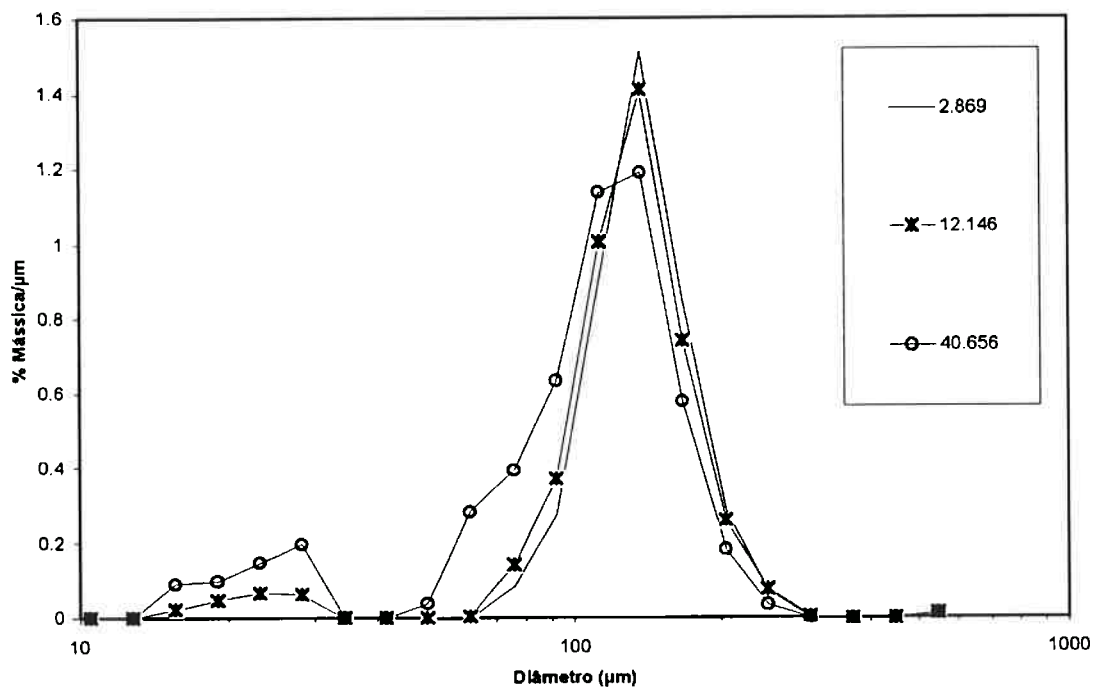


Figura 5.19. Função densidade de distribuição granulométrica, para amostra de catalisador de FCC na faixa de 100 a 150 “mesh”, para três valores de concentração da suspensão (g/L)

granulométrica em torno de 25 μm . Este comportamento ocorreu para todas as amostras, contribuindo tanto para diminuir o diâmetro médio quanto aumentar a dispersão da curva de distribuição granulométrica.

A partir dos resultados experimentais apresentados neste capítulo, pode-se concluir que existe um efeito considerável de três fatores sobre os resultados dos cálculos da distribuição granulométrica por difração de laser: 1) concentração de partículas na suspensão; 2) faixa de tamanho das partículas (pois, quanto menores as partículas, maior foi a variação observada sobre D_v e sobre o “span”); 3) forma das partículas. Uma vez que as expressões matemáticas que descrevem o fenômeno de espalhamento de luz, utilizadas pelos algoritmos, não são válidas na presença de múltiplo espalhamento, nem prevêm o efeito da forma das partículas, torna-se necessário introduzir coeficientes de ajuste empíricos nos cálculos, os quais devem prever os efeitos dos três fatores mencionados. Assim, para um dado material (com determinado fator de forma), o algoritmo de cálculo adotaria uma expressão, função da obscurecência da suspensão, para compensar o efeito do múltiplo espalhamento.

No presente trabalho, procurou-se verificar o potencial de aplicação de um método alternativo, o qual leve em consideração os efeitos apresentados. O método consiste em utilizar os dados experimentais obtidos em diferentes condições, no treinamento de redes neurais. Uma vez feito o ajuste de uma rede neural, pode-se, então, estimar a distribuição granulométrica compensando-se os efeitos de forma e concentração de partículas.

6. USO DE ALGORITMOS BASEADOS EM REDES NEURAIIS NO TRATAMENTO DE DADOS DE ESPALHAMENTO DE LUZ PARA MEDIÇÃO DE DISTRIBUIÇÃO GRANULOMÉTRICA.

As observações experimentais do Cap. 5 indicam que os algoritmos baseados no equacionamento do fenômeno de espalhamento de luz não são adequados à medição da distribuição granulométrica em suspensões com altas concentrações de partículas, devido à presença do múltiplo espalhamento de luz. Esse fato, somado ao efeito observado de forma das partículas, torna necessária a introdução de fatores de correção empíricos.

A adoção de um modelo baseado em redes neurais para tratamento dos dados de difração de laser não considera os princípios fundamentais do fenômeno em si. No entanto, devido à grande capacidade de “aprender” a partir da apresentação a dados experimentais referentes a um determinado sistema, as redes neurais são uma alternativa à introdução de fatores de correção empíricos.

O estudo aqui apresentado visou verificar o potencial de utilização de redes neurais para estimar a distribuição granulométrica de partículas em suspensão, efetuando-se o treinamento da rede com dados experimentais de espalhamento de luz para partículas com diferentes características de distribuição granulométrica. O efeito de múltiplo espalhamento foi considerado pela inclusão da concentração das suspensões como um dos dados de entrada, além da distribuição angular de luz espalhada.

Estudos iniciais de mesma natureza, efetuados com sistemas particulados específicos, foram realizados em trabalho de iniciação científica orientado por este autor (Klinger *et al.*, 1996) e em cooperação com outros pesquisadores (Nascimento *et al.*, 1997). Nesses estudos, realizados respectivamente com partículas de areia de quartzo e algumas frações de catalisador de FCC, constatou-se que as redes neurais poderiam compensar o efeito de múltiplo espalhamento, que leva a erros nos cálculos da distribuição granulométrica pelos algoritmos baseados em modelos ópticos. O presente trabalho representa um ampliação dos estudos citados, incluindo resultados obtidos com

faixas de concentração e de granulometria mais amplas, assim como partículas com diferentes formas.

A Tab. 6.1. apresenta a relação de amostras incluídas no estudo. Tratam-se de partículas de três materiais diferentes: catalisador de FCC, amianto e açúcar (sacarose). As amostras denominadas de MA a MF são constituídas por catalisador de FCC, com distribuições granulométricas monomodais, separadas por peneiramento em diferentes faixas granulométricas. As amostras BA, BB e BC apresentam distribuições bimodais, obtidas pela mistura, em proporções mássicas iguais, das amostras monomodais de catalisador de FCC. As amostras de amianto e de açúcar (sacarose) foram utilizadas tal qual recebidas. A distribuição granulométrica, obtida por análise de imagem projetada, adotada neste capítulo como distribuição “real”, é apresentada na Tab. 6.2. Os valores correspondem à distribuição volumétrica, baseada nos diâmetros de esferas com volume equivalente, a partir dos dados de diâmetro de círculo com área equivalente.

Para ajuste da rede neural, os dados experimentais foram organizados da seguinte forma. Para cada experimento, os dados de entrada eram constituídos pela medição primária do difratômetro de laser, ou seja, a intensidade de luz espalhada, registrada pelos 31 anéis do fotodetector. Além desses, a concentração de partículas na suspensão sólido-líquido na qual eram efetuadas as medições foi incluída como dado de entrada. No lugar da concentração, poderia ter sido utilizada a medição do grau de obscurescência, registrado pelo anel central do fotodetector. Embora a obscurescência seja uma variável diretamente relacionada com a intensidade de dispersão de luz pela suspensão, optou-se por adotar a concentração, uma vez que esta variável permanece não relacionada às propriedades ópticas da suspensão, e não está sujeita à saturação, como ocorre com a obscurescência, para suspensões concentradas (ver Capítulo 5). Portanto, as variáveis de entrada, fornecidas à rede neural, foram um total de 32, sendo: a concentração da suspensão, mais 31 valores de intensidade de luz. Na etapa final do estudo, na qual foi verificada a possibilidade de previsão da distribuição granulométrica para partículas com diferentes forma, um fator de forma (relação de aspecto) das partículas foi incluído como dado de entrada, ficando a rede com um total de 33 entradas.

Tabela 6.1. Relação de amostras utilizadas para ajuste de redes neurais.

AMOSTRA	DESCRIÇÃO	L_a/L_b	No. DE PONTOS EXPERIMENTAIS
MA	catalisador de FCC, faixa de 100 a 150 "mesh" (105 a 149 μm)	1,29	11
MB	catalisador de FCC, faixa de 150 a 200 "mesh" (74 a 105 μm)	1,29	11
MC	catalisador de FCC, faixa de 200 a 270 "mesh" (53 a 74 μm)	1,29	10
MD	catalisador de FCC, faixa de 270 a 325 "mesh" (44 a 53 μm)	1,29	10
ME	catalisador de FCC, faixa de 325 a 400 "mesh" (37 a 44 μm)	1,29	9
MF	catalisador de FCC, faixa de 400 a fundo (0 a 37 μm)	1,29	8
BA	MA + MF (1:1)	1,29	8
BB	MB + ME (1:1)	1,29	8
BC	MC + MD (1:1)	1,29	9
A	amianto, amostra original	2,34	7
S	açúcar (sacarose), amostra original	1,48	16

Tabela 6.2. Distribuições granulométricas das amostras, estimadas por análise de imagem.

Faixa de diâmetros (μm)		MA	MB	MC	MD	ME	MF	BA	BB	BC	A	S
0	9,68	0	0	0	0	0	0,53	0,265	0	0	5,76	0
9,68	19,4	0	0	0	0	0,15	11,64	5,82	0,075	0	17,94	0,14
19,4	29	0	0	0	0,02	2,11	38,17	19,1	1,055	0,01	16,84	0,35
29	38,7	0	0	0,03	0,77	21,32	34,36	17,18	10,66	0,4	21,34	0,42
38,7	48,4	0,01	0,01	0,17	7,56	53,32	12,82	6,415	26,67	3,865	16,15	0,69
48,4	58,1	0	0,01	3,18	35,25	18,89	2,48	1,24	9,45	19,22	7,38	0,54
58,1	67,7	0,03	0,08	20,52	20,5	3,52	0	0,015	1,8	20,51	14,57	0,75
67,7	77,4	0,01	0,59	31,87	13,45	0,69	0	0,005	0,64	22,66	0	1,01
77,4	87,1	0,03	5,11	23,99	13,12	0	0	0,015	2,555	18,56	0	1
87,1	96,8	0,24	12,42	13,46	3,85	0	0	0,12	6,21	8,655	0	4,41
96,8	106	0,3	17,17	3,09	2,61	0	0	0,15	8,585	2,85	0	5,57
106	116	3,13	17,5	3,31	1,58	0	0	1,565	8,75	2,445	0	3
116	126	9,71	13,43	0,39	0	0	0	4,855	6,715	0,195	0	5,59
126	135	15,95	8,51	0	0	0	0	7,975	4,255	0	0	5,79
135	145	15,94	8,26	0	0	0	0	7,97	4,13	0	0	12,18
145	155	16,14	5,55	0	1,3	0	0	8,07	2,775	0,65	0	9,21
155	165	11,16	3,95	0	0	0	0	5,58	1,975	0	0	7,86
165	174	9,18	2,61	0	0	0	0	4,59	1,305	0	0	4,39
174	184	7,26	1,88	0	0	0	0	3,63	0,94	0	0	1,8
184	194	3,58	1,29	0	0	0	0	1,79	0,645	0	0	8,08
194	203	2,44	0,79	0	0	0	0	1,22	0,395	0	0	2,36
203	213	2,31	0,85	0	0	0	0	1,155	0,425	0	0	5,44
213	223	1	0	0	0	0	0	0,5	0	0	0	6,54
223	232	1,13	0	0	0	0	0	0,565	0	0	0	3,45
232	242	0,01	0	0	0	0	0	0,001	0	0	0	4,38
242	271	0,44	0	0	0	0	0	0,224	0	0	0	5,06

As saídas da rede constituíam a distribuição granulométrica de cada amostra, para as 26 classes de diâmetro, apresentadas na Tab. 6.2.

O conjunto de dados experimentais obtidos está apresentado no Anexo 1. Para cada amostra, foram realizadas medições no difratômetro de laser, com diferentes concentrações, registrando-se os valores de intensidade de luz incidente em cada anel do detector. Os valores de intensidade de luz, tabelados para cada concentração, correspondem à escala de intensidades do difratômetro utilizado, não tendo relação direta com unidades de densidade de radiação usuais. Dentre os dados experimentais obtidos para todas as amostras, somente apresentaram concentrações adequadas à medição pelo difratômetro (segundo indicação do programa controlador do equipamento) os seguintes: MA-1 a 3; MB-1 e 2; MC-1; MD-1; ME-1; MF-1; BA-1; BB-1; BC-1; A-1 a 4; S-1 a 4.

Os dados foram organizados em função dos casos estudados. Inicialmente (item 6.1), foi estudado o ajuste, para diferentes faixas granulométricas, das amostras de catalisador de FCC, monomodais (MA a MF). Em seguida (item 6.2), foi estudada a capacidade de ajuste no caso de distribuições bimodais (amostras BA a BC) separadamente, e misturadas com amostras de distribuições monomodais (item 6.3). Na etapa final (item 6.4), foi incluída a forma das partículas como variável de entrada.

Para cada caso estudado, os dados experimentais foram divididos em dois grupos: “treinamento” e “teste”. O processo de ajuste da rede neural, baseado na minimização do desvio quadrático médio entre as saídas da rede e os valores esperados (no caso, os valores “reais” da distribuição granulométrica), utiliza os dados experimentais de treinamento para ajuste dos pesos. O desvio quadrático é calculado tanto em relação ao grupo de treinamento quanto em relação ao de teste.

O treinamento da rede neural utilizou um algoritmo desenvolvido no LSCP-DEQ/EPUSP, escrito em código FORTRAN 77, que faz o ajuste dos pesos de uma rede do tipo “feedforward” pela minimização do desvio quadrático médio entre saídas calculadas pela rede e resultados experimentais. O programa baseia-se no algoritmo de retropropagação, apresentado resumidamente no Cap. 4. Para uma descrição mais

completa, ainda resumida, ver Kovács (1996). Uma descrição extensiva sobre redes neurais pode ser vista em Haykin (1994).

O algoritmo de treinamento faz o ajuste dos pesos correspondentes às saídas da camada de entrada e da camada intermediária (NH), dados: 1) o número de neurônios da camada de entrada (igual ao número de variáveis de entrada, mais um para compensação, ou “bias”); 2) o número de neurônios da camada intermediária, NH (definido pelo usuário); 3) o número de neurônios da camada de saída (igual ao número de saídas); 4) a faixa de normalização das variáveis de entrada (definida pelo usuário). Além desses, o algoritmo admite alguns parâmetros referentes ao aprendizado, entre os quais vale destacar: número de apresentações do conjunto de dados de treinamento à rede, termo de momento, α (Eq. 27, Cap. 4) e a faixa de variação do fator de amortecimento do algoritmo de retropropagação, η (Eqs. 28 e 29, Cap. 4).

A partir da experiência prévia da equipe de pesquisadores e do autor com o algoritmo, os parâmetros acima foram definidos visando obter ajuste eficiente dos pesos, sem instabilidades. Em testes preliminares, verificou-se que o desvio quadrático médio atingia valores relativamente estáveis após cerca de 8 a 9 mil apresentações dos dados de treinamento. Assim, no presente estudo esse número foi fixado em 10 mil. O intervalo de normalização das variáveis foi testado em 2 valores: de 0 a 0,9 e de 0,1 a 0,9. O intervalo não é normalizado entre 0 e 1, devido ao caráter assintótico da função ativadora sigmoideal (Eq. 24, Cap. 4). Um ou outro intervalo foi escolhido, dependendo de testes preliminares para cada caso estudado. O termo de momento não foi incluído no treinamento. Quanto ao fator de amortecimento, buscou-se utilizar valores altos, de modo a tornar mais rápido o processo de minimização. Em alguns casos, no entanto, o fator teve de ser diminuído, devido a problemas de não convergência para o mínimo da função objetivo. O valor de NH foi variado em cada caso, segundo o critério de mínimo desvio quadrático médio final, após 10 mil apresentações dos dados à rede.

6.1. Estudo com frações granulométricas com distribuições monomodais.

O primeiro caso estudado no presente trabalho consiste de uma ampliação de trabalho inicial, realizado por este autor em cooperação, apresentado por Nascimento *et al.* (1997), abordando amostras de catalisador de FCC separadas em diferentes faixas granulométricas, em suspensões com diferentes concentrações.

O conjunto de experimentos foi dividido nos grupos de treinamento e de teste, com os dados para treinamento cobrindo toda o intervalo de concentrações, para cada faixa granulométrica. Para o conjunto de teste, foram selecionados alguns valores de concentração para cada faixa granulométrica, sem incluir os valores extremos de concentração em cada faixa. Os experimentos selecionados para o conjunto de testes (retirados do conjunto de treinamento) foram: MA-5 e MA-10; MB-3 e MB-7; MC-4 MC-9; MD-5 e MD-9; ME-6 e MF-4. Assim, o teste da rede consistia da interpolação dos dados em relação à concentração e à faixa granulométrica.

As Figs. 6.1. e 6.2 ilustram a evolução dos desvios quadráticos médios em relação aos dados do conjunto de treinamento (RMSTL) e do conjunto de teste (RMSTT), para dois valores do fator de amortecimento, rede com NH igual a 8 e normalização entre 0 e 0,9.

Observa-se primeiramente que o desvio em relação ao conjunto de treinamento é sempre menor que em relação ao conjunto de teste. Além disso, observa-se uma instabilidade maior do desvio em sucessivas apresentações, para maiores valores de η , embora os valores finais atingidos sejam menores. Isto é consequência das maiores variações nos pesos, para maiores valores de η . Esse comportamento foi observado para todos os casos estudados.

Os valores finais obtidos para os desvios, em função de NH, são apresentados a seguir, para o melhor caso, isto é, normalização das variáveis de entrada entre 0 e 0,9.

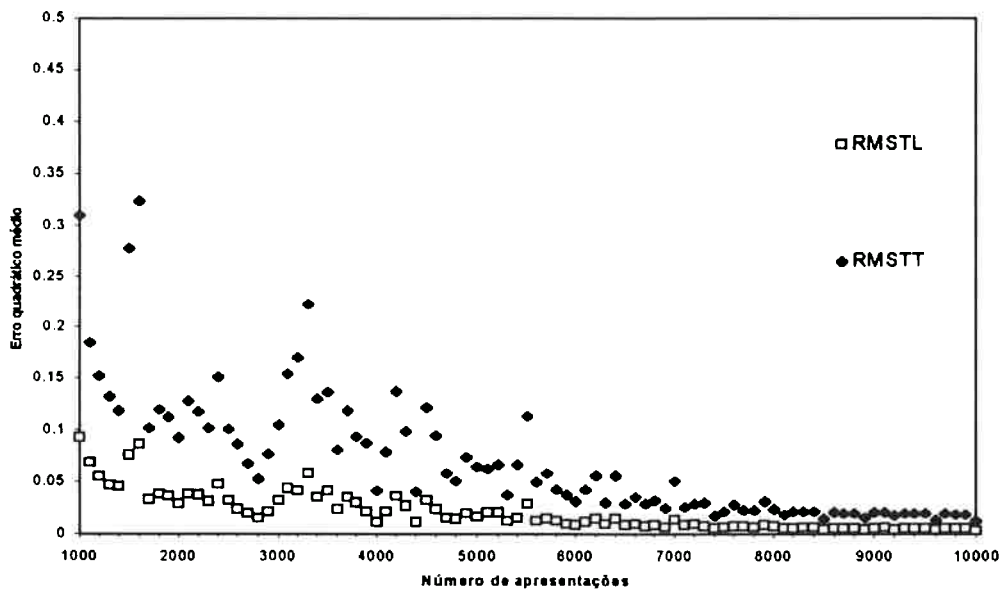


Figura 6.1. Desvio quadrático médio em função do número de apresentações, em relação aos dados de treinamento (RMSTL) e de teste (RMSTT), para η entre 0,5 e 10. Rede com 8 neurônios na camada oculta; normalização entre 0 e 0,9.

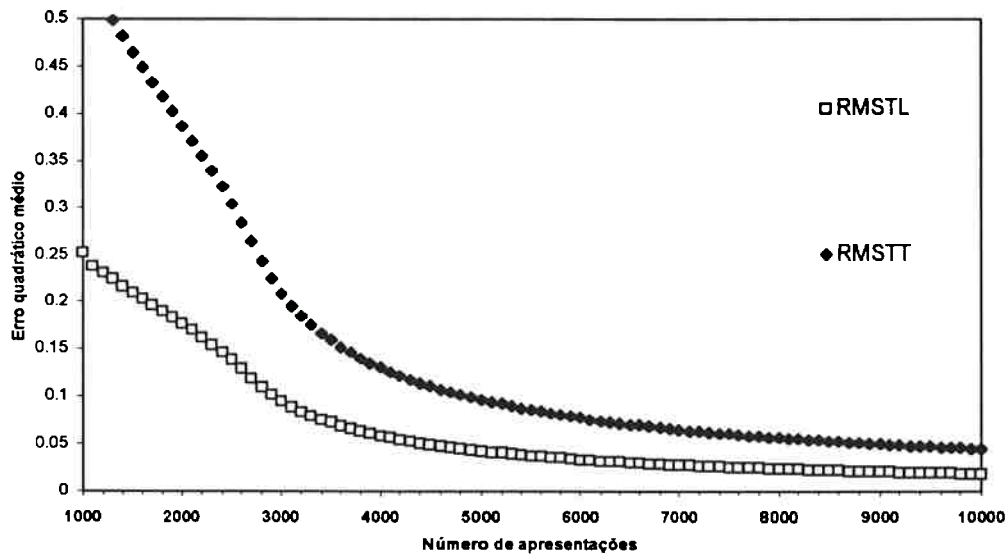


Figura 6.2. Desvio quadrático médio em função do número de apresentações, em relação aos dados de treinamento (RMSTL) e de teste (RMSTT), para η entre 0,1 e 1. Rede com 8 neurônios na camada oculta; normalização entre 0 e 0,9.

NH	RMSTL	RMSTT
4	1.4471	3.4566
6	0.0889	0.261
7	0.0696	0.276
8	0.0032	0.0121
9	0.608	1.23
10	0.291	0.925

Os menores valores obtidos para os desvios correspondem a NH igual a 8. A configuração da rede correspondente (pesos ajustados para NH igual a 8 e normalização das variáveis entre 0 e 0,9) foi utilizada em simulações para verificação do comportamento da rede em relação aos dados experimentais. As simulações consistiram em alimentar a rede com um conjunto de dados de entrada (concentração da suspensão e a intensidade de luz incidente sobre os anéis do detetor do difratômetro) e comparar as saídas com os dados “reais” referentes a cada amostra. O procedimento foi feito utilizando-se pesos ajustados segundo o menor desvio quadrático em relação ao conjunto de treinamento (menor RMSTL) e pesos ajustados segundo o mesmo critério, para o conjunto de teste (menor RMSTT). As Figs. 6.3 e 6.4 apresentam resultados de simulações com a rede, para dois experimentos contidos no conjunto de teste (não utilizados no treinamento da rede), MA-10 e MF-4, em termos da função densidade de distribuição granulométrica. Observa-se que a rede foi capaz de reproduzir a distribuição granulométrica “real”, com pesos referentes aos dois conjuntos: treinamento e teste. O efeito de múltiplo espalhamento, observado nas duas figuras para os resultados obtidos com o algoritmo adotado pelo difratômetro, é totalmente eliminado dos resultados calculados pela rede neural. O mesmo comportamento ilustrado nas Figs. 6.3 e 6.4 foi observado com os demais dados.

A boa concordância com os dados experimentais, observada nos cálculos efetuados com a rede neural, é devida à forma como foi feito o treinamento, pois este cobriu todo o intervalo de concentrações e faixas de distribuição granulométrica. Assim,

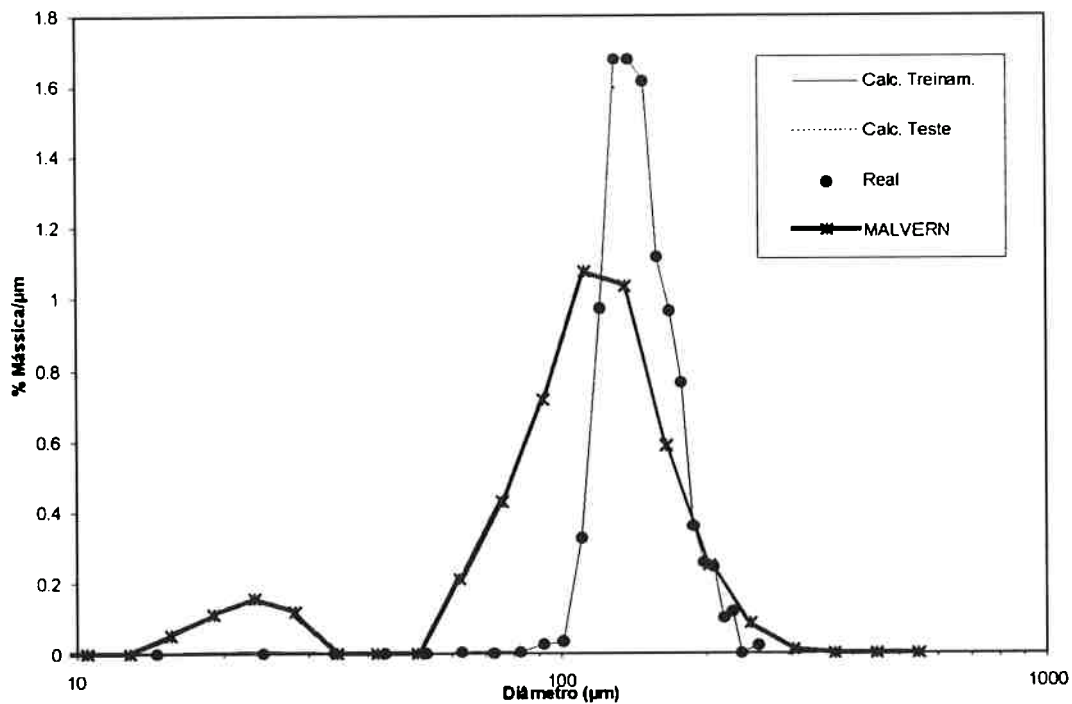


Figura 6.3. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-10 (catalisador de FCC, 100 a 150 “mesh”; 35,027 g/L).

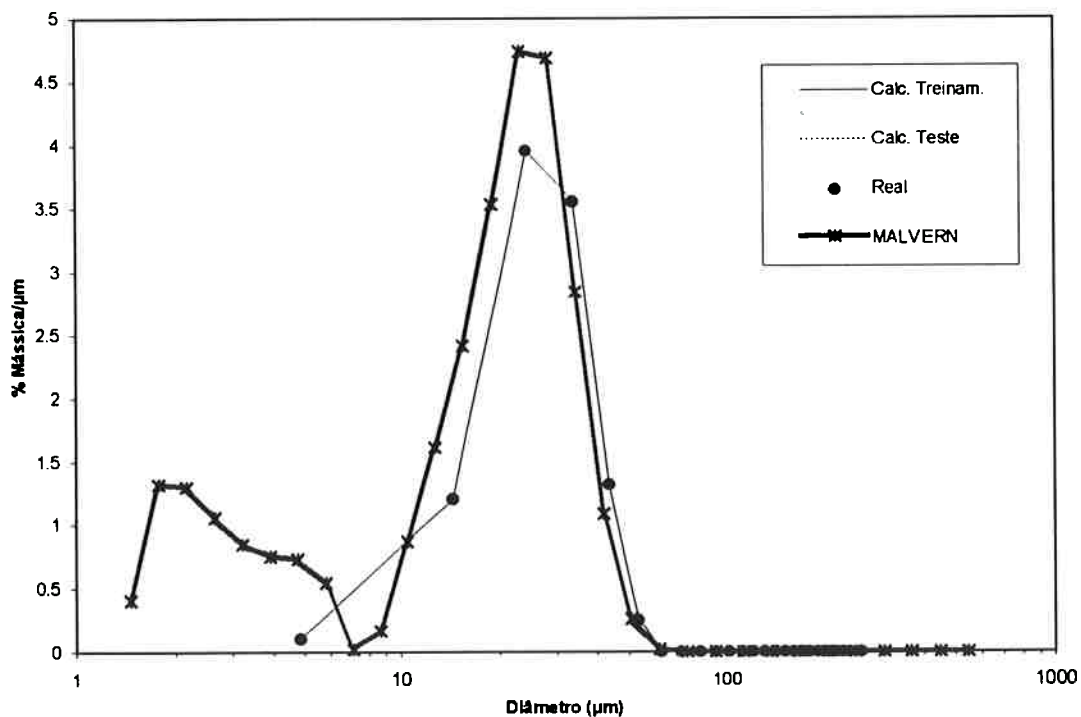


Figura 6.4. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MF-4 (catalisador de FCC, 400 “mesh” a fundo; 4,608 g/L).

as simulações consistiram da interpolação de dados, dentro do intervalo em que a rede foi treinada.

A capacidade de extrapolação por parte da rede, isto é, de prever resultados fora do intervalo de condições em que foi treinada, foi estudada montando-se dois conjuntos diferentes de dados para treinamento e teste. No caso 1, o conjunto de treinamento continha todos os dados experimentais das amostras MA a MF, menos os dados correspondentes aos valores mínimo e máximo de concentração, para cada amostra, que passaram a constituir o conjunto de teste. No caso 2, duas amostras foram deixadas fora do conjunto de treinamento: MA (de MA-1 a MA-11) e MF (de MF-1 a MF-8). Essas amostras passaram a integrar o conjunto de teste. Portanto, no caso 1, buscou-se testar a capacidade de extrapolação da rede, em relação à concentração das suspensões. No caso 2, buscou-se testar a capacidade de extrapolação em relação à distribuição granulométrica.

Para o caso 1, o processo de treinamento resultou em mínimo desvio quadrático médio para uma rede com NH igual a 10 e normalização das variáveis de entrada entre 0,1 e 0,9. Os desvios obtidos foram: RMSTL igual a 0,00106 e RMSTT igual a 0,347. O fato do valor de RMSTT ser mais de 300 vezes maior que RMSTL indica a limitação de extrapolação por parte da rede. Os resultados são ilustrados nas Figs. 6.5 e 6.6, para dados não utilizados no treinamento da rede. Observa-se que os resultados utilizando os pesos ajustados segundo os desvios em relação aos conjuntos de treinamento e de teste coincidiram. De modo geral, houve concordância com os valores “reais”, mas, para as partículas mais finas (MF), foram observados alguns desvios, como mostra a Fig. 6.6. Nessas condições, os dados calculados pelo modelo óptico do difratômetro são consideravelmente discordantes dos valores “reais”.

Para o caso 2, os resultados do ajuste dos pesos da rede indicaram desvios mínimos para NH igual a 8 e normalização entre 0,1 e 0,9, obtendo-se RMSTL igual a $9,04 \times 10^{-4}$ e RMSTT igual a 60,5. Neste caso, novamente, o desvio em relação ao conjunto de teste é consideravelmente maior que em relação ao conjunto de treinamento.

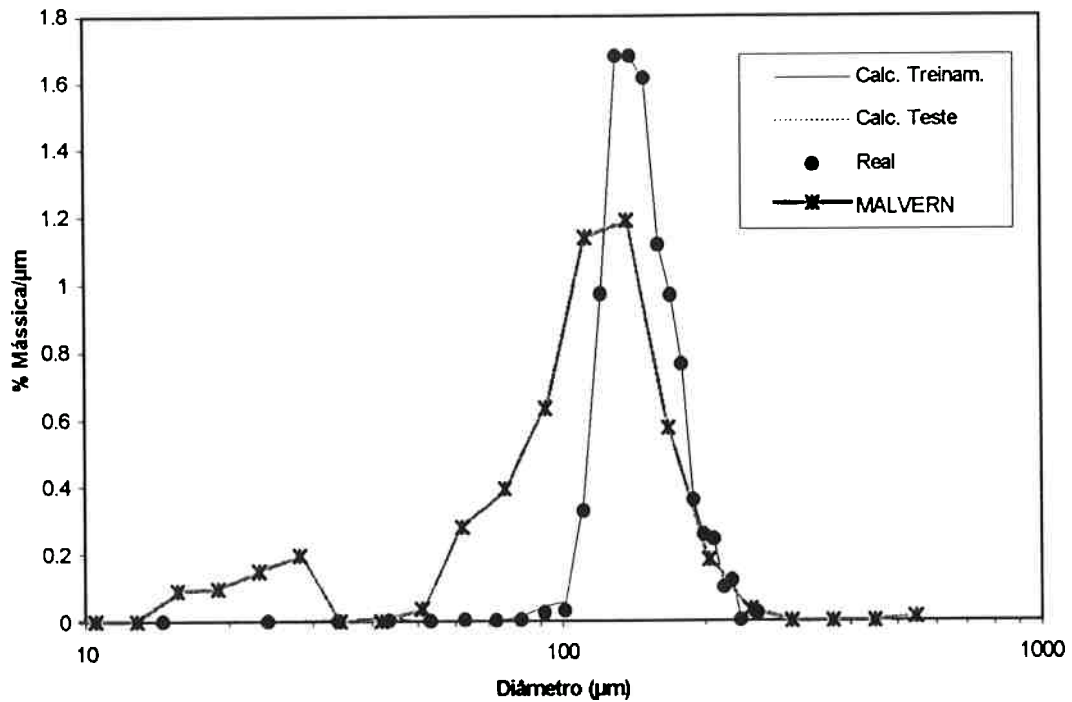


Figura 6.5. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-11 (catalisador de FCC, 100 a 150 “mesh”; 40,656 g/L).

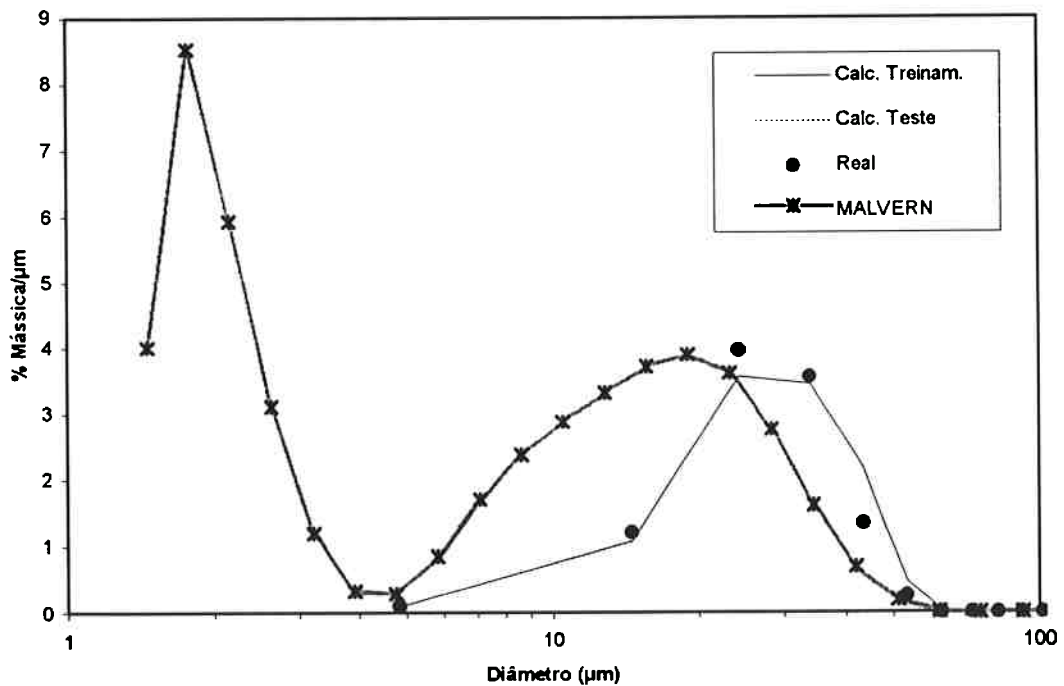


Figura 6.6. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MF-8 (catalisador de FCC, 400 “mesh” a fundo; 14,539 g/L).

As Figs. 6.7 a 6.10 ilustram os resultados. Observa-se que, para experimentos que compunham o conjunto de treinamento (Figs. 6.7 e 6.8), o resultado continua preciso. No entanto, nas Figs. 6.9 e 6.10, referentes a dados do conjunto de teste, não utilizadas no treinamento, a discordância é grande, tanto para os pesos ajustados para mínimo desvio em relação ao conjunto de treinamento, quanto de teste. Na Fig. 6.9 são observados, inclusive, valores negativos para a função densidade de distribuição.

Os resultados apresentados indicam que o ajuste de redes neurais aos dados de espalhamento de luz, para suspensões com altas concentrações, possibilita estimar com precisão a distribuição granulométrica, desde que o treinamento da rede tenha sido efetuado no intervalo em que as medições são efetuadas. A capacidade de extrapolação da rede é limitada, podendo resultar em erros consideráveis, como ilustrado nas Figs. 6.9 e 6.10.

6.2. Estudo com amostras com distribuições bimodais.

A capacidade de previsão da rede neural no caso de amostras com distribuição granulométrica bimodal foi testada com três amostras de catalisador (BA, BB e BC), preparadas misturando-se amostras com diferentes faixas granulométricas. A diferença entre as três amostras é a posição dos máximos das curvas de distribuição granulométrica.

Os dados experimentais foram divididos nos conjuntos de treinamento e de teste, fazendo-se com que os dados de teste estivessem dentro da faixa de treinamento da rede. Assim, o conjunto de treinamento continha dados referentes a toda a faixa de concentrações, para as três amostras. O conjunto de teste continha dados referentes a duas concentrações para cada amostra (BA-3, BA-7, BB-2, BB-6, BC-3 e BC-6).

O ajuste dos pesos apresentou, como melhor resultado, uma rede com NH igual a 11 e normalização das variáveis de entrada entre 0,1 e 0,9.

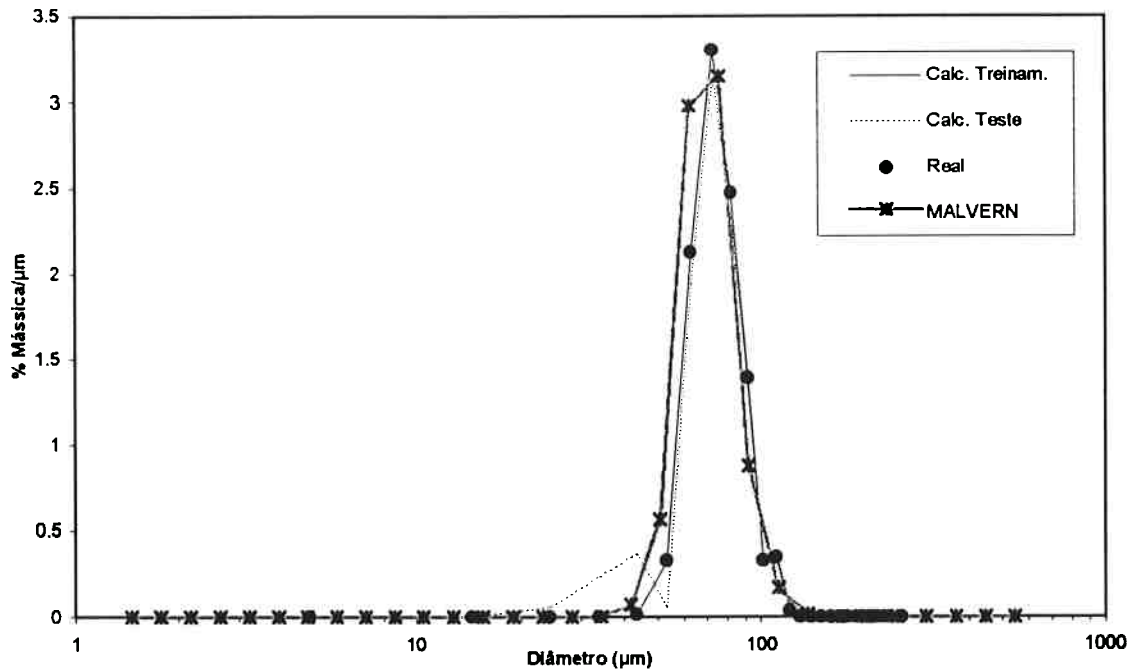


Figura 6.7. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MC-1 (catalisador de FCC, 200 a 2750 “mesh”; 2,059 g/L).

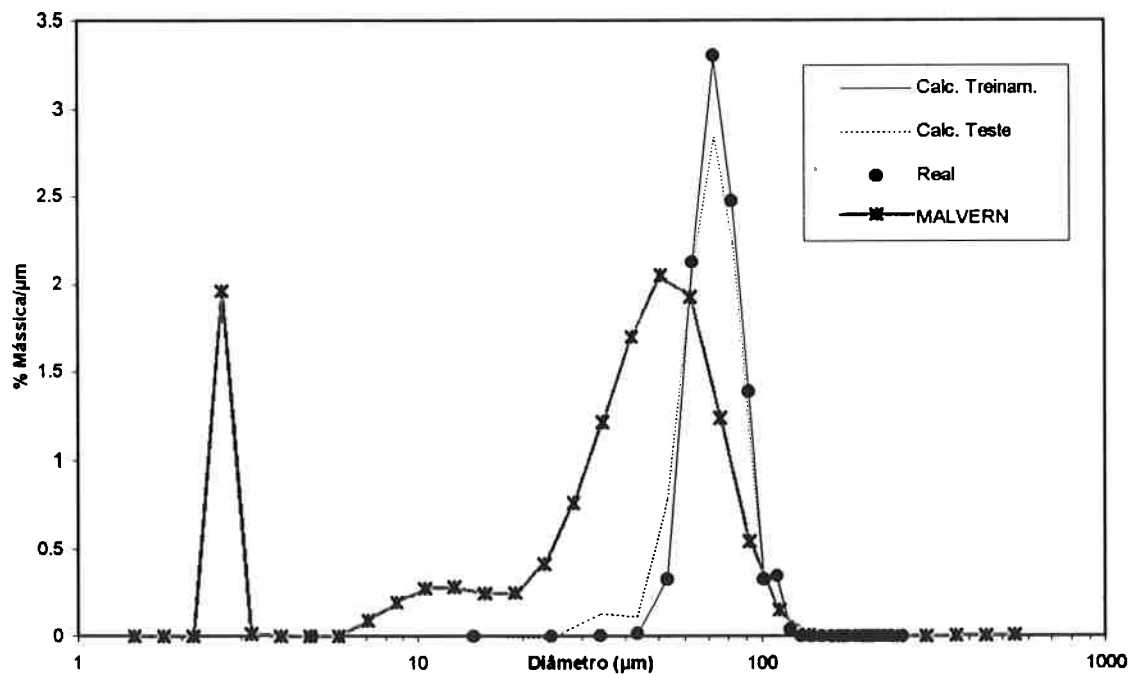


Figura 6.8. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MC-10 (catalisador de FCC, 200 a 270 “mesh”; 41,98 g/L).

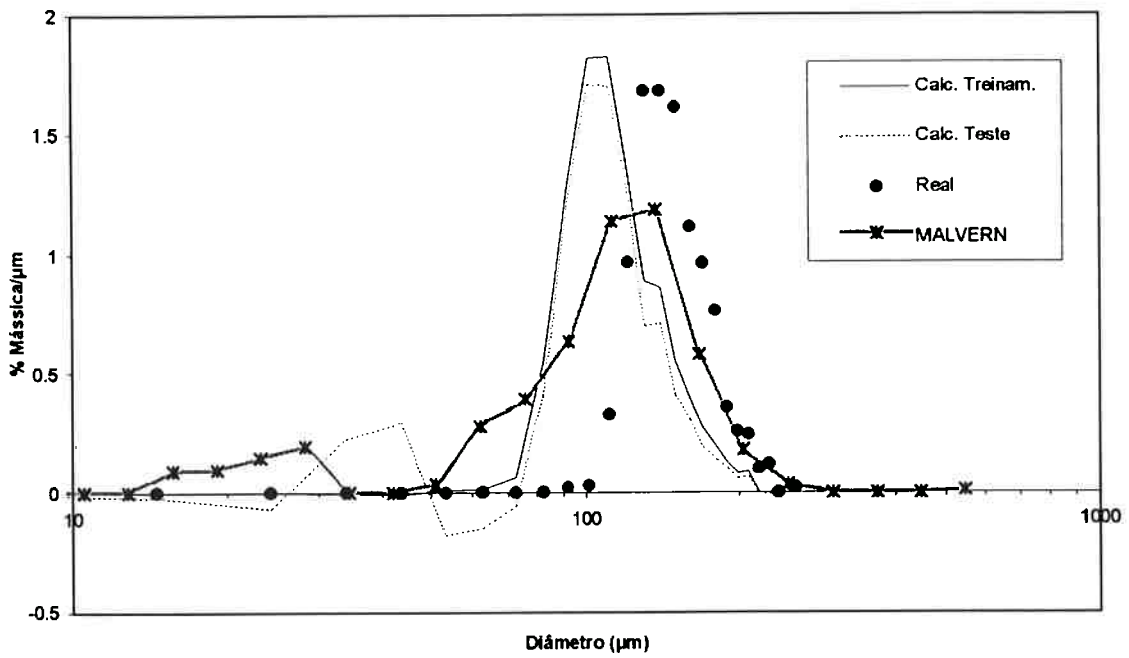


Figura 6.9. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-11 (catalisador de FCC, 100 a 150 “mesh”; 40,656 g/L).

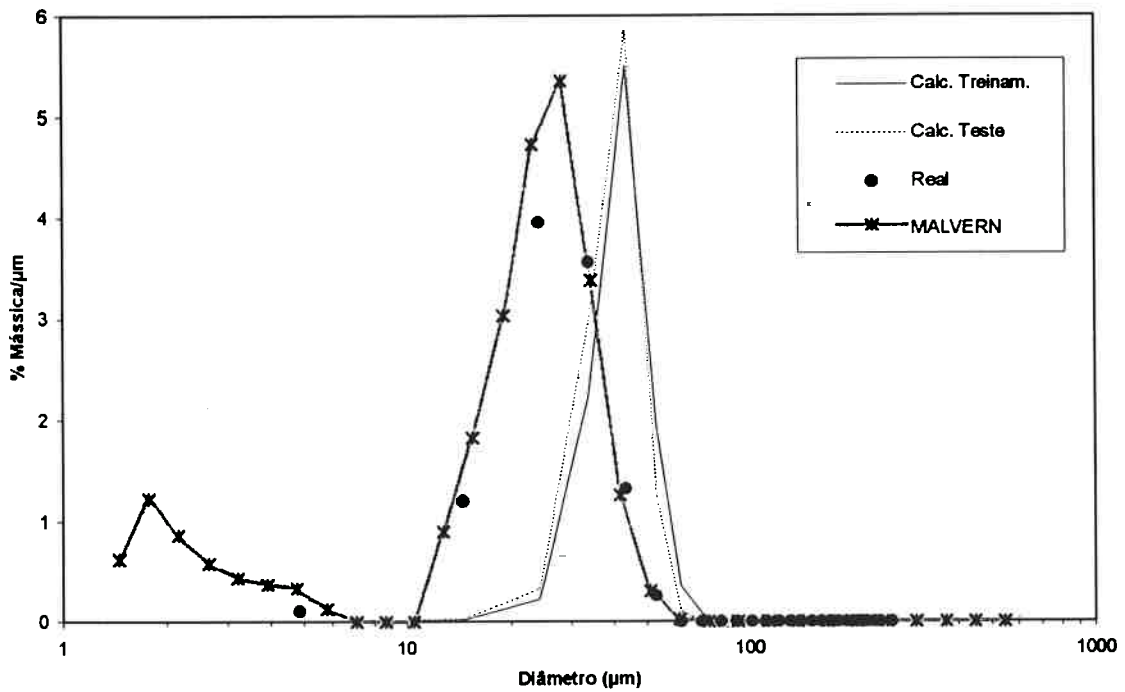


Figura 6.10. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MF-1 (catalisador de FCC, 400 “mesh” a fundo; 1,075 g/L).

Os desvios médios finais foram: RMSTL: $4,04 \times 10^{-5}$; RMSTT: $2,193 \times 10^{-3}$. Portanto, a concordância com os dados de ambos os conjuntos é boa, conforme ilustrado nas Figs. 6.11 e 6.12, para a amostra BA, em duas concentrações, não utilizadas no treinamento da rede. Observa-se que os resultados com os pesos obtidos com base no desvio em relação ao conjunto de teste praticamente coincidem com os obtidos com base no desvio em relação ao conjunto de treinamento. Os resultados coincidem com os valores “reais”, enquanto os resultados obtidos com o modelo óptico do difratômetro são fortemente afetados pelo múltiplo espalhamento.

6.3. Estudo com amostras com distribuições monomodais e bimodais.

Nesta terceira etapa do estudo, testou-se a capacidade de previsão da distribuição granulométrica pela rede neural, para amostras com distribuições granulométricas monomodais e bimodais, representando um caso de aplicação mais ampla do que os casos apresentados anteriormente.

Para tanto, foram utilizados dados experimentais referentes às amostras MA a MF e BA a BC. O conjunto de dados para treinamento abrangeu toda a faixa de concentrações, para todas as amostras. Para compor o conjunto de teste, foram separados ao acaso dois dados de cada amostra, evitando-se os extremos de concentração.

O ajuste dos pesos resultou em desvios mínimos para uma rede com NH igual a 10, normalização das variáveis de entrada entre 0 e 0,9, com os seguintes valores para os desvios: RMSTL: 0,0688; RMSTT: 0,2177. Esses valores são consideravelmente maiores que aqueles obtidos para as amostras com distribuições monomodais e bimodais, estudadas separadamente. Da mesma forma como anteriormente observado, o valor de RMSTT (desvio em relação ao conjunto de teste) é cerca de 30 vezes maior que o valor de RMSTL.

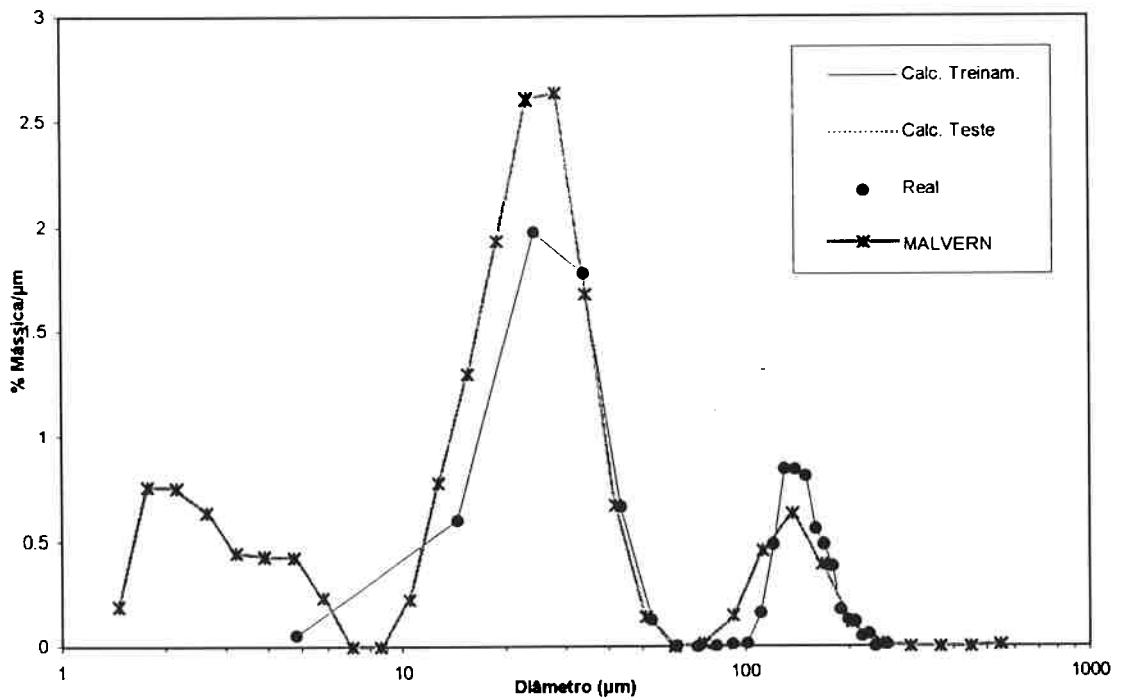


Figura 6.11. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-3 (catalisador de FCC, bimodal; 6,191 g/L).

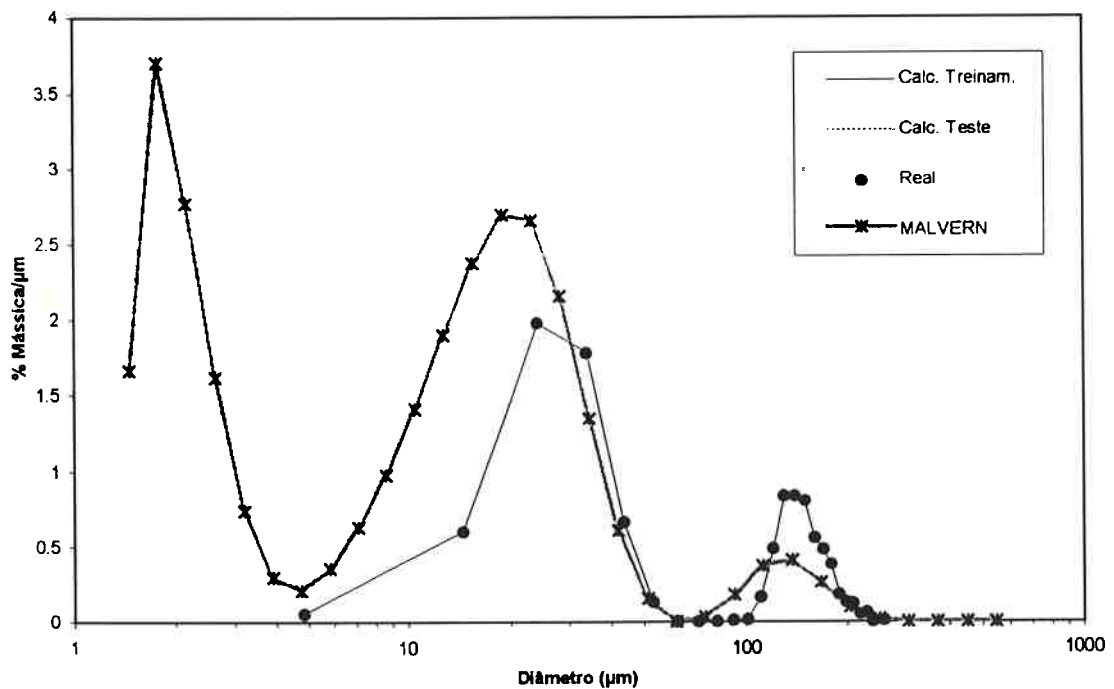


Figura 6.12. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-7 (catalisador de FCC, bimodal; 20,482 g/L).

Os resultados de simulações com a rede ajustada podem ser vistos nas Figs. 6.13 a 6.15, como exemplos para amostras com distribuição unimodal e bimodal. Os gráficos de densidade de distribuição granulométrica referem-se a dados não pertencentes ao conjunto de treinamento. A concordância é boa em relação às amostras com distribuição unimodal, em todas as concentrações, utilizando-se os pesos ajustados tanto em relação ao conjunto de treinamento, quanto de teste. Para as amostras com distribuição bimodal, a concordância não foi tão boa. Neste caso, os desvios foram maiores para as suspensões mais concentradas, conforme ilustrado nas Figs. 6.14 e 6.15. Em ambas as figuras, observa-se que os resultados obtidos pelo modelo óptico do difratômetro sofrem grande influência do efeito de múltiplo espalhamento.

Os resultados apresentados neste item indicam que, mesmo sem informação prévia referente ao padrão da distribuição granulométrica, é possível a previsão, pela rede neural, da distribuição granulométrica de amostras com padrão de distribuição unimodal e bimodal, desde que o treinamento seja feito cobrindo a faixa de condições nas quais o método será aplicado.

6.4. Estudo incluindo partículas com diferentes formas.

Neste item são apresentados resultados de estudo visando verificar a capacidade de previsão, por parte da rede neural, em casos nos quais são incluídas, além de amostras com diferentes padrões de distribuição granulométrica, partículas de diferentes formas. Para isso, todo o conjunto de dados, relacionado no Anexo 1, foi utilizado. A estrutura de entrada da rede foi modificada, passando a contar com 33 neurônios de entrada, sendo: 1 para a concentração da suspensão, 31 para a intensidade de luz medida por cada anel do detetor e 1 para o fator de forma das partículas. Foi adotada, como fator de forma, a relação de aspecto, expressa como L_a/L_b , medida por análise de imagem projetada das partículas. As saídas da rede foram mantidas em 26 classes de diâmetro de partícula.

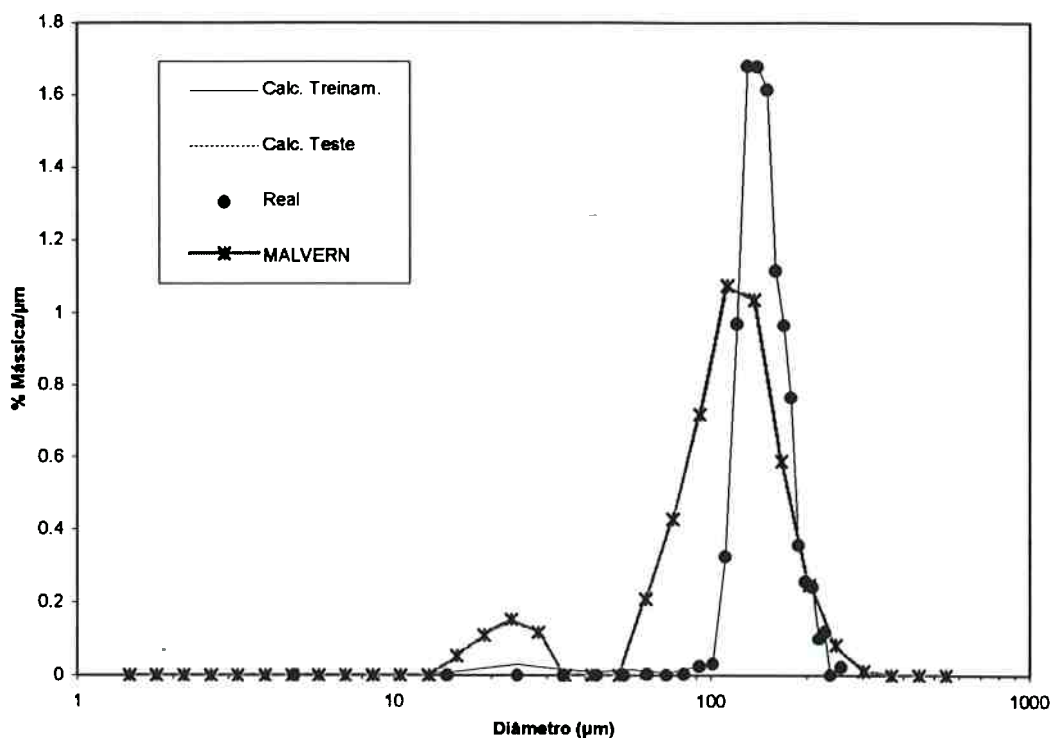


Figura 6.13. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra MA-10 (catalisador de FCC, 100 a 150 “mesh”; 35,027 g/L), com pesos gerados para o conjunto de distribuições monomodais e bimodais.

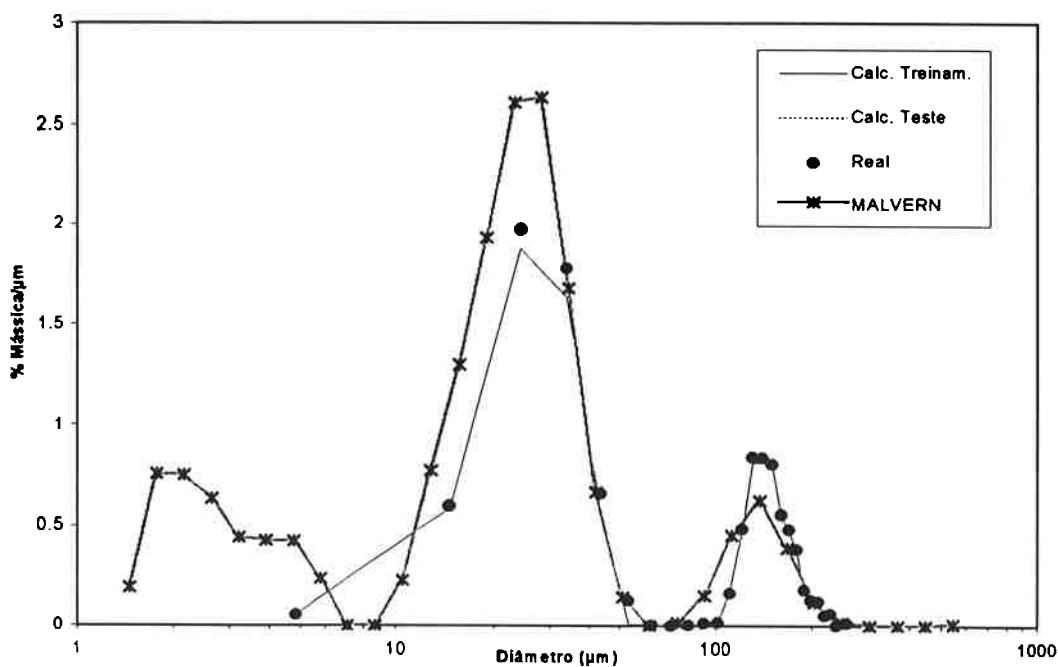


Figura 6.14. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-3 (catalisador de FCC, bimodal; 6,191 g/L), com pesos gerados para o conjunto de distribuições monomodais e bimodais.

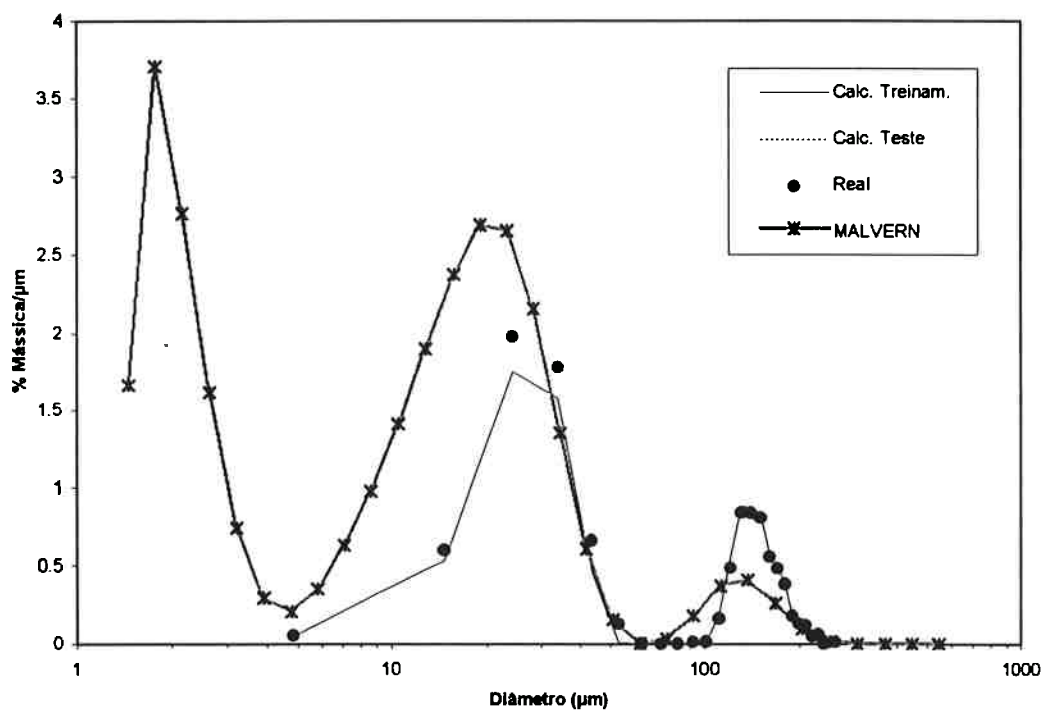


Figura 6.15. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-7 (catalisador de FCC, bimodal; 20,482 g/L), com pesos gerados para o conjunto de distribuições monomodais e bimodais.

Os experimentos foram divididos da seguinte forma: o conjunto de treinamento continha todos os dados, envolvendo todo o intervalo de concentrações e de tamanhos de partículas, a menos daqueles separados para formar o conjunto de dados para teste. Este foi montado retirando-se ao acaso um ou dois experimentos de cada amostra, excluindo-se os extremos de concentração. Os experimentos que compuseram o conjunto de teste são: MA-5 e 10; MB-3 e 7; MC-4 e 9; MD-5 e 9; ME-6; MF-4; BA-3 e 7; BB-2 e 6; BC-3 e 6; A-5; S-4, 7 e 12.

Como nos casos anteriores, foram testadas redes com diferentes valores de NH e diferentes intervalos de normalização das variáveis de entrada, tendo sido obtidos os menores desvios para rede com NH igual a 10 e normalização entre 0 e 0,9. Os desvios obtidos são: RMSTL: 0,194; RMSTT: 0,466.

Os resultados de simulações com a rede ajustada estão ilustrados nas Figs. 6.16 a 6.23. Observa-se que, para as amostras com distribuição unimodal (Figs. 6.16 e 6.17), a concordância entre os valores calculados pela rede e os valores “reais” é boa, utilizando-se os pesos ajustados em relação ao conjunto de treinamento e ao conjunto de teste. O mesmo comportamento é observado para amostras de distribuição bimodal (Figs. 6.18 e 6.19), embora, seja notada nas figuras alguma diferença nos valores, em relação à distribuição “real”.

Para as amostras de amianto e de açúcar (Figs. 6.20 a 6.23), houve problemas em relação aos intervalos de classes de diâmetros utilizados para apresentação à rede, baseados nas distribuições granulométricas medidas por análise de imagem. Aparentemente, seria necessário, no caso, contar um número muito maior do que as cerca de 1000 partículas contadas nas análises, de modo a obter curvas de distribuição mais atenuadas em relação às mudanças de classes de diâmetro. Isto pode ser visto pela comparação com as medições feitas pelo difratômetro em condições ideais de concentração (Figs. 5.13 e 5.14). Mesmo assim, preferiu-se manter os dados de distribuição para ambas as amostras, mantendo-se a uniformidade na metodologia.

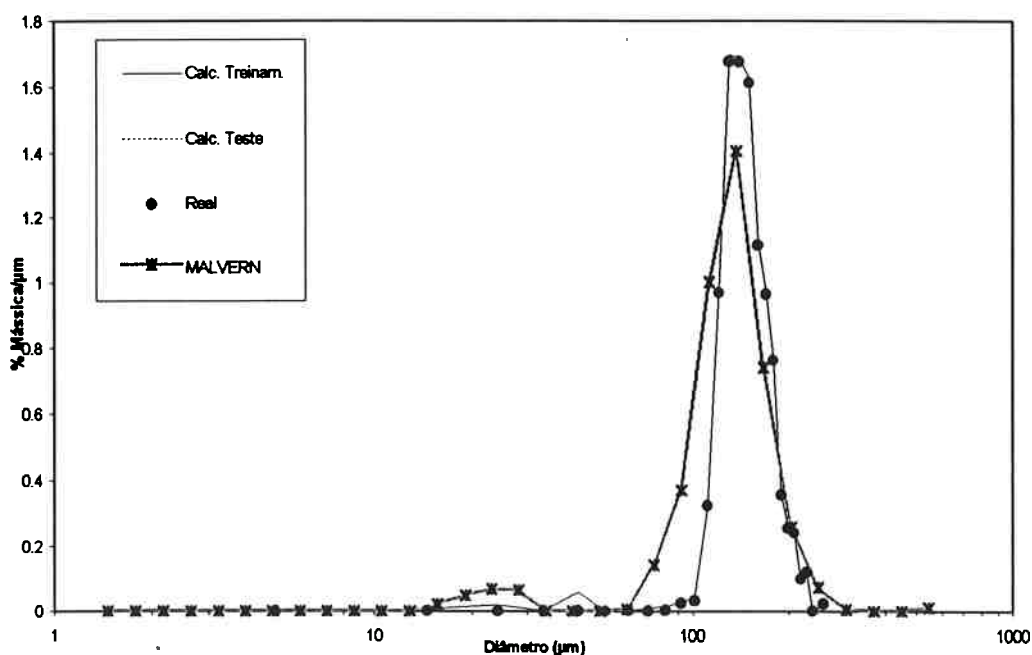


Figura 6.16. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para amostra MA-5 (catalisador de FCC, 100-150 “mesh”; 12,146 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.

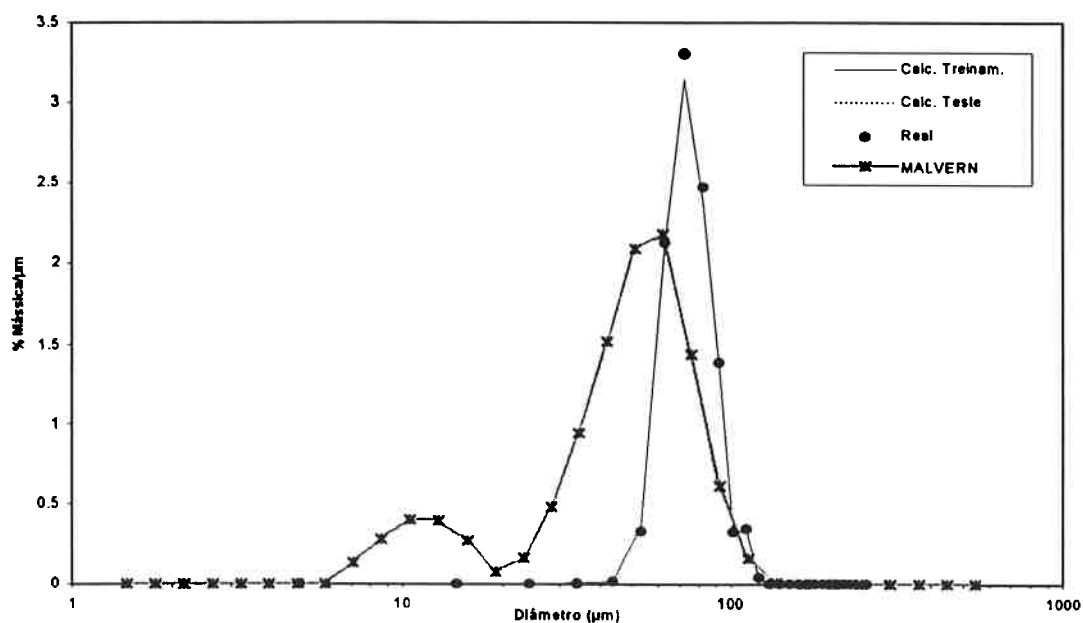


Figura 6.17. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para amostra MC-9 (catalisador de FCC, 200-270 “mesh”; 35,032 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.

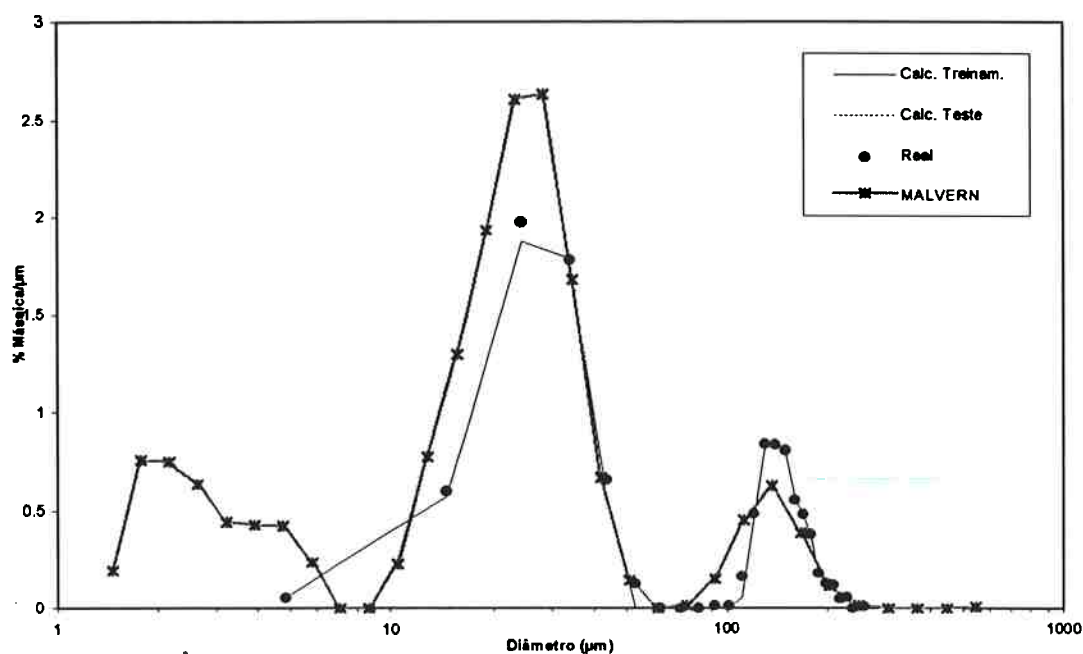


Figura 6.18. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-3 (catalisador de FCC, bimodal; 6,191 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.

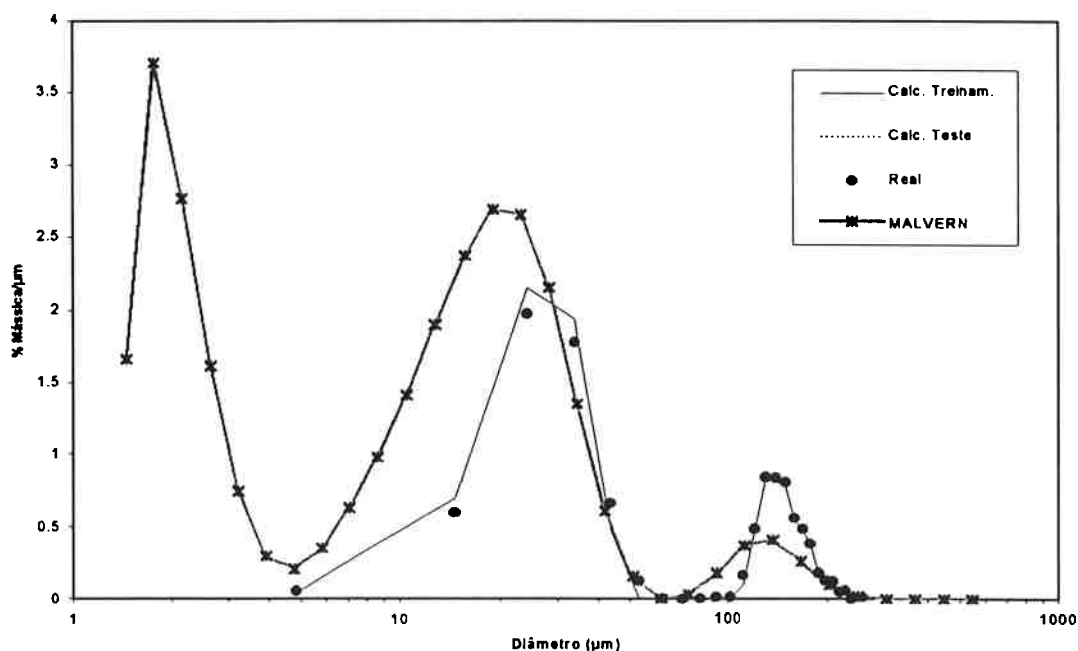


Figura 6.19. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra BA-7 (catalisador de FCC, bimodal; 20,482 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.

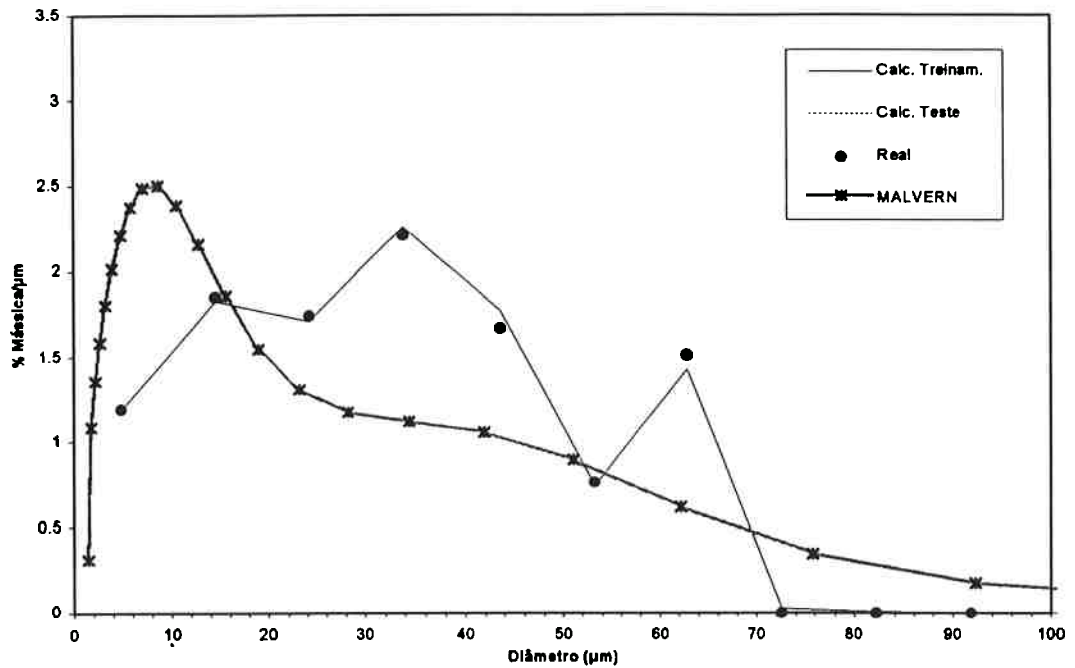


Figura 6.20. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra A-3 (amianto; 0,712 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.

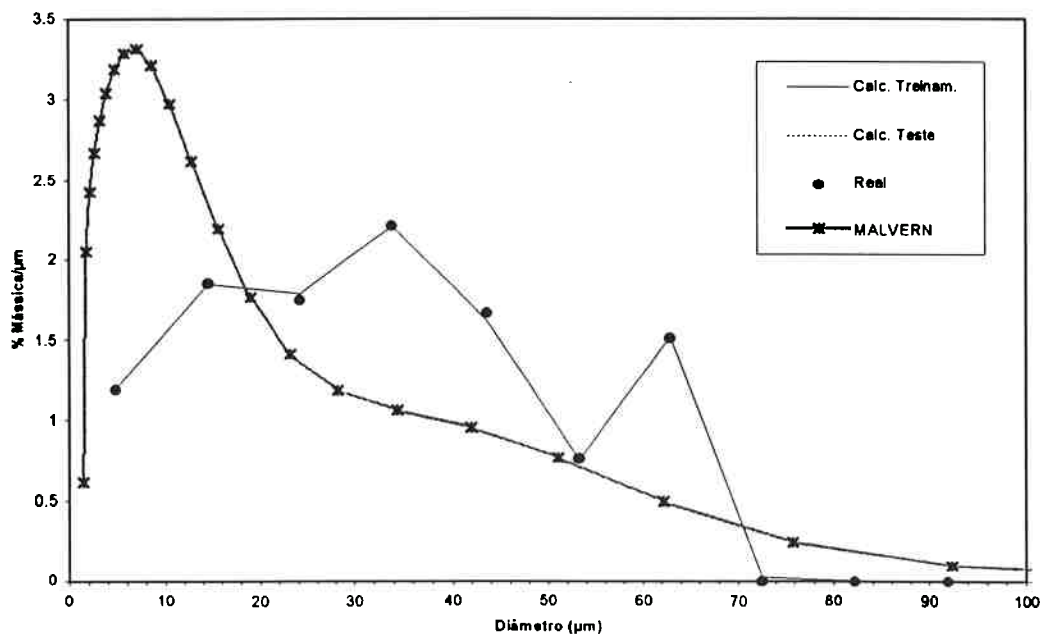


Figura 6.21. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra A-5 (amianto; 1,032 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.

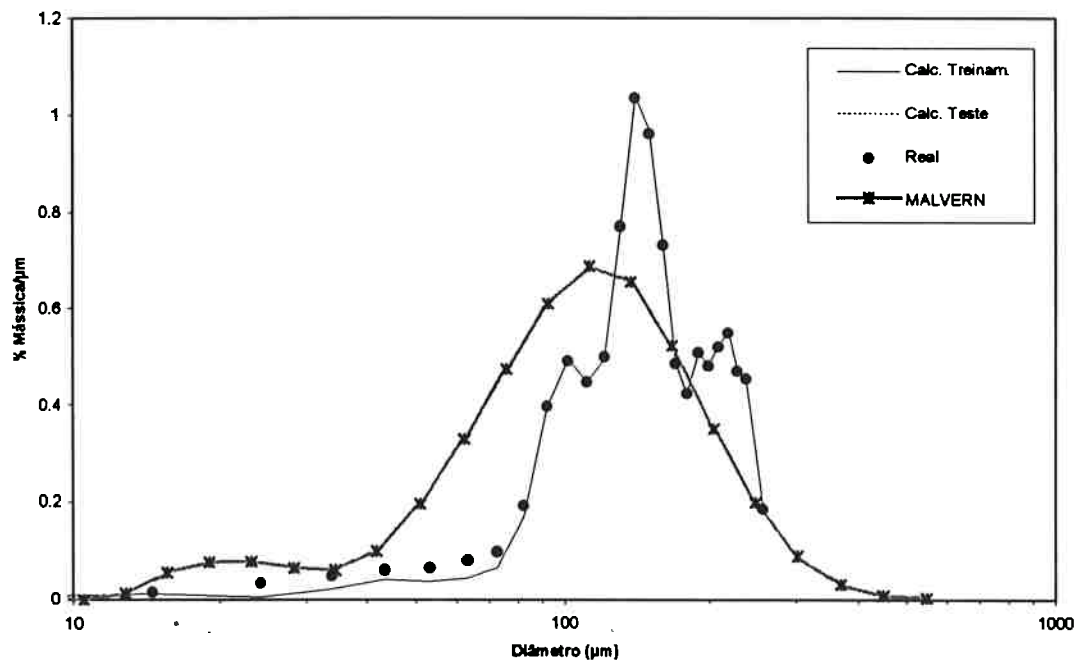


Figura 6.22. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra S-4 (açúcar; 6,304 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.

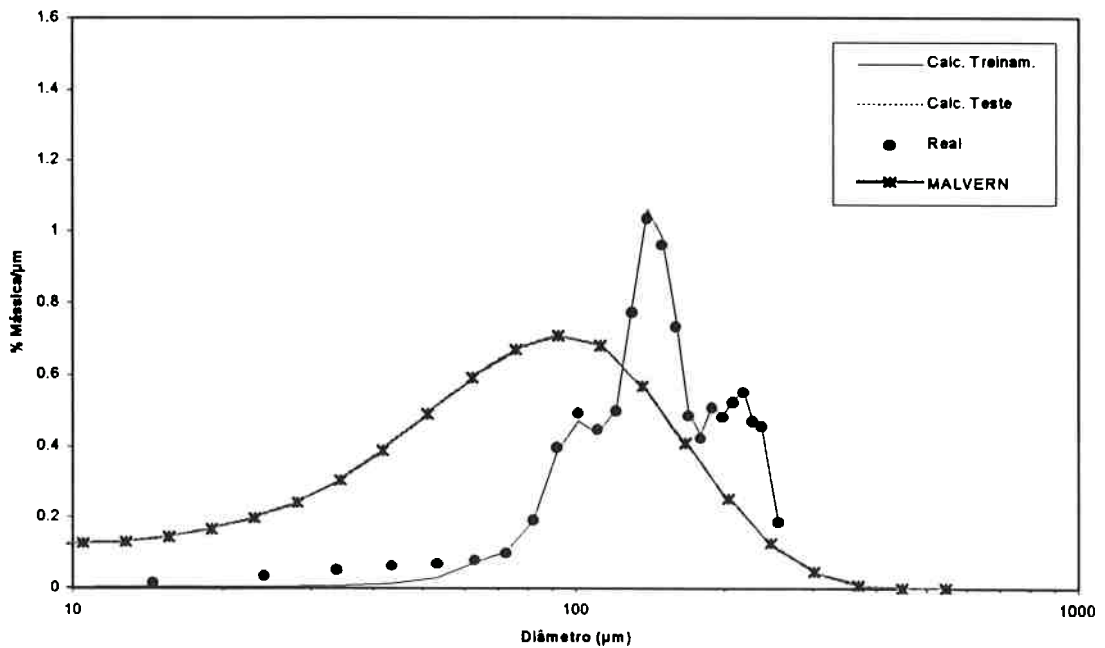


Figura 6.23. Resultados de simulações. Densidade de distribuição granulométrica para a amostra S-12 (açúcar; 53,768 g/L), com pesos gerados para o conjunto de todos os experimentos.

Nas Figs. 6.20 e 6.21, a escala do eixo representando o diâmetro é linear, para enfatizar as diferenças no caso das amostras de amianto. Tanto para o amianto, quanto para o açúcar, a rede neural ajustada foi capaz de reproduzir, com pequenos desvios, as distribuições granulométricas apresentadas como “reais”, mesmo com as oscilações presentes nas curvas de distribuição. Os maiores desvios ocorreram para a amostra de açúcar, para os menores diâmetros de partícula (Figs. 6.22 e 6.23). Tanto para o amianto, quanto para o açúcar, os resultados de simulações com os pesos ajustados em relação aos conjuntos de treinamento e de teste foram idênticos, indicando que o desvio mínimo obtido para os dois casos corresponde aos mesmos valores para os pesos.

Em todas as figuras, observa-se que os resultados calculados pelo modelo óptico do difratômetro são fortemente afetados pelo efeito de múltiplo espalhamento, uma vez que as concentrações das suspensões são consideravelmente superiores aos valores adequados para medição.

Os resultados indicam que a utilização de um modelo empírico baseado em redes neurais é capaz de prever, com precisão satisfatória, a distribuição granulométrica de amostras com diferentes formas e diferentes padrões de distribuição, em suspensões com concentrações superiores aos limites tolerados pelo modelo óptico de espalhamento de luz adotado pelo difratômetro.

7. CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS DE CONTINUAÇÃO

O conjunto de experimentos, estudos para ajuste de parâmetros e simulações com um modelo empírico baseado em redes neurais, possibilitou a aquisição de conhecimentos referentes ao comportamento do sistema estudado e ao potencial de aplicação da metodologia proposta. As conclusões e sugestões para continuação do trabalho são apresentadas a seguir.

Os experimentos com suspensões de partículas de catalisador de FCC, em diferentes concentrações, possibilitaram verificar o efeito do aumento da concentração sobre a distribuição granulométrica, estimada por modelo fenomenológico, baseado no espalhamento de luz. Os resultados são afetados pelo fenômeno de múltiplo espalhamento de luz, que aumenta de intensidade com o aumento da concentração das suspensões, resultando em aparente diminuição do diâmetro médio e aumento do grau de dispersão da distribuição granulométrica.

Os experimentos com partículas de diferentes formas indicam que, diferentemente do que tem sido divulgado na literatura técnica referente ao uso de difratômetros de laser, a dimensão característica de partícula medida pelo método não é o diâmetro da esfera de volume equivalente; os resultados indicam que a dimensão medida tende a ser a maior dimensão projetada da partícula (L_a). Este comportamento pode ser interpretado como consequência do fato das partículas escoarem através, suspensas em líquido, orientadas aleatoriamente em relação à direção do feixe de luz incidente. Assim, a partícula resultante é um corpo de revolução no espaço, com diâmetro igual a L_a .

A alternativa de adoção de um modelo empírico, baseado em redes neurais, para estimar a distribuição granulométrica, de modo a compensar efeitos de forma das partículas e de múltiplo espalhamento de luz, mostrou-se promissora. O modelo, com parâmetros ajustados, faz o reconhecimento de padrões de espalhamento de luz, dadas a concentração da suspensão e a forma das partículas, associando-os à distribuição granulométrica. Embora o modelo empírico parta das mesmas informações que o modelo fenomenológico, para fornecer o mesmo resultado, difere deste por executar os cálculos

de forma independente do fenômeno físico, não dependendo, portanto, do seu equacionamento. Assim, no caso, o fenômeno de múltiplo espalhamento, não previsto no modelo fenomenológico, é totalmente compensado pela rede neural. Os resultados apresentados no Cap. 6 indicam que a rede foi capaz de prever, com precisão razoável, a distribuição granulométrica em amostras de partículas com distribuições monomodais e bimodais, e partículas de diferentes formas, em suspensões com altas concentrações.

No entanto, dois aspectos limitantes devem ser destacados em relação ao uso de redes neurais. Em primeiro lugar, o fato de ser um modelo empírico torna sua validade restrita ao intervalo de condições nas quais seus parâmetros foram treinados. A aplicação do modelo em condições não testadas previamente pode resultar em erros consideráveis. Isto ficou evidenciado no Item 6.1, no qual se testaram as características de extrapolação da rede, tendo sido obtidos resultados totalmente diferentes dos experimentais.

O segundo fator relaciona-se ao limite máximo de concentrações em que o método pode ser aplicado, o que envolve o próprio fenômeno de espalhamento de luz. Embora a rede neural compense o efeito do múltiplo espalhamento, à medida em que a concentração da suspensão aumenta, a luz espalhada tem sua distribuição angular cada vez mais dispersa. No limite, a luz espalhada tende a incidir com a mesma intensidade em todos os anéis do detetor. Assim, quanto mais alta for a concentração da suspensão, menor será a capacidade de distinção entre duas amostras diferentes, a partir da distribuição de luz espalhada, diminuindo a precisão do método, até torná-lo inviável.

Os limites de aplicação do método deverão ser estudados na próxima etapa prevista na continuação dos estudos, os quais constituem projeto de pesquisa em desenvolvimento, com apoio da FAPESP (Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo), com término previsto para o final de 1997. Até o final desse projeto, deverão ser realizadas as seguintes atividades:

- 1) verificação dos limites de aplicação do modelo baseado em redes neurais, com a realização de experimentos, ajustes e simulações em suspensões com altas concentrações;

2) complementação dos estudos com partículas de diferentes formas;

3) aplicação do método no monitoramento de um processo químico envolvendo suspensão de partículas em líquido. Neste caso, o método deverá ser aplicado em dois processos: a) processo de polimerização, em emulsão, de acetato de vinila, em reator descontínuo; b) processo de cristalização descontínua, com sistema a ser definido.

As informações a serem obtidas deverão possibilitar uma avaliação mais fundamentada das possibilidades de aplicação do método em condições atualmente não praticadas, ou seja, no monitoramento da distribuição granulométrica em processos industriais.

8. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ALLEN, T. Particle size measurement. 4^a. ed., Chapman & Hall, London, 1990. 832p.
- BHAT, N. V. ; MCAVOY, T. Use of neural nets for dynamic modeling and control of chemical process systems , Computers & Chemical Engineering , v.14(4/5) , p. 573-583, 1990
- BHAT, N. V.; MINDERMAN JR., P. A.; MCAVOY, T.; WANG, N. S. Modeling chemical process systems via neural computation , IEEE Control Systems Magazine ; v. 4, p. 24-30 , 1990
- BORON, S., WALDIE, B. Particle sizing by forward lobe scattered intensity-ratio technique: errors introduced by applying diffraction theory in the Mie regime. Appl. Opt., 17:1644-1648, 1978
- BOXMAN, A. Particle size measurement for the control of industrial crystallizers. Tese de doutorado. Universidade de Delft, Delft, 1992. 176p.
- BRAUN, A.M.; JAKOB, L.; OLIVEROS, E.; NASCIMENTO, C.A.O. "Up-scaling photochemical reactions", Advances in Photochemistry , Vol.18, Edited by Volman, D.; Hammond, G.S. & Neckers, D.C., John Wiley & Sons Inc., pp 235-313, 1993
- BROWN, D.J., ALEXANDER, K., CAO, J. Anomalous diffraction effects in the sizing of aolid particles in liquids. Part. Part. Syst. Charact., 8:175-178, 1991
- CHAN, W.M.; NASCIMENTO, C.A.O. "Use of neural networks for modeling of olefin polymerization in high pressure tubular reactors", a ser publicado
- DAYHOFF, J.E., "Neural Network Architectures - An Introduction", Van Nostrand Reinhold, New York, 1990
- DISHMAN, K. L.; DOOLIN, P. K.; HOFFMAN, J. F. Comparison of particle size of cracking catalyst determined by laser light scattering and dry sieve methods. Ind. Eng. Chem. Res., 32 (7): 1457-1463. 1993.
- FYMAT, A.L., MEASE, K.D. Improved semi empirical aproximation with application to particle size distribution inversion. Appl. Opt., 20:194-198, 1981
- GUARDANI, R., SKRUZDELIAUSKAS, A.T., DERENZO, S., GIOIELLI, P. Efeito da forma da partícula sobre a distribuição granulométrica medida por difração de laser. XX ENEMP, UFSCar, São Carlos-SP, 1992
- GUARDANI, R., SKRUZDELIAUSKAS, A.T., DERENZO, S., GIOIELLI, P. Measurement of particle size distribution by forward light scattering: effect of particle shape. 12th Symposium on Industrial Crystallization. Varsóvia, 1993

- HAYKIN, S. Neural networks: a comprehensive foundation. Mecmillan, New York. 1994. 696p.
- HINDS, W.C. Aerosol technology; properties, behavior and measurement of airborne particles. John Wiley, New York, 1982
- HODKINSON, J.R. Particle sizing by means of the forward scattering lobe. Appl. Opt., 5: 839-843, 1966
- HOSKINS, J. C.; HIMMELBLAU, D. M. Artificial neural network models of knowledge representation in chemical engineering , Computers & Chemical Engineering , v. 12(9/19) , p. 881-890, 1988
- HOSKINS, J. C.; HIMMELBLAU, D. M. Fault detection and diagnosis using artificial neural networks , In Artificial Intelligence in Process Engineering , (M. L. Mavrovouniots, ed.) , N.Y., Academic Press, p 123-160 , 1990
- HUNT, J.K. ; SBARBARO, D. ; ZBIKOWSKI, R. ; Gawthrop, P.J. Neural networks for control systems - A survey, Automatica , Vol. 28 (6), pag. 1083-1112, 1992.
- JACOBS, R. A. Increased rates of convergence through learning rate adaptation , Neural Networks, v. 1, p. 295-307 , 1988.
- JAGER, J. Control of industrial crystallizers: the physical aspects. Tese de doutorado. Universidade de Delft, Delft, 1990. 139p.
- JONES, A.R. Error contour charts relevant to particle sizing by forward-scattered lobe methods. J. Phys. D: Appl. Phys., 10: L163-165, 1977.
- JOSEPH, B.; WANG, F.H. e SHIEH, D.S.S. Exploratory data analysis: a comparison of statistical methods with artificial neural networks. Computers & Chemical Engineering , v. 16(4) , p. 413-423, 1992.
- KLINGER, F., GUARDANI, R., NASCIMENTO, C.A.O. Uso de redes neurais no tratamento de dados de análise granulométrica por difração de laser, em suspensões com alta concentração de partículas. ENEMP, UFU, Uberlândia, 1996.
- KOVÁCS, Z.L. Redes neurais artificiais. Fundamentos e aplicações. Edição Acadêmica, São Paulo, 1996. 163p.
- MALVERN. Mastersizer X instrument manual, rev.nº. MAN 0054. Ed. 2.1. Malvern, Worcestershire, 1993.
- MASLOWSKA, A., FLATAU, P.J., STEPHENS, G.L. On the validity of the anomalous diffraction theory to light scattering by cubes. Optics Comm., 107 (1-2): 35-40. 1994.
- MCCARTNEY, E.J. Optics of the atmosphere; scattering, by molecules and particles. John Wiley, New York, 1976

- MEEHAN, E.J., GYBERG, A.E. Particle size determination by low-angle light scattering: effects of refractive index. Appl. Opt., 12:551-554, 1973
- NASCIMENTO, C.A.O., GUARDANI, R. e GIULIETTI, M. Use of neural networks in the analysis of particle size distributions by laser diffraction. Powder Technology, 80(1):89-94, 1997.
- NELSON, M.M. e ILLINGWORTH, W.T. "A Practical Guide to Neural Nets", Addison-Wesley Publishing Company, 1991
- POLLARD, J. F. ; BROUSSARD, M. R. ; GARRISON, D. B. ; SAN , K. Y. Process identification using neural networks , Computers & Chemical Engineering , v. 16(4): p. 253-270 , 1992
- PSICHOGIOS, D. C.; UNGAR, L. H. Direct and indirect model based control using artificial neural networks , Ind. Eng. Chem. Res., v. 30, p. 2564-2573 , 1991
- RUMELHART, D. ; MCCLELLAND, J. Parallel distributed processing explorations in the microstructure of cognition, v. 1, cap. 8, MIT, Cambridge, Mass., 1986
- SU, H. T.; MCAVOY, T.; WERBOS, P. Long-term predictions of chemical processes using recurrent neural networks: A parallel training approach., Ind. Eng. Chem. Res., v. 31, p. 1338-1352, 1992
- TWOMEY, S. Atmospheric aerosols. Elsevier, Amsterdam, 1977
- ULRICH, J., STEPANSKI, M. Use of the laser diffraction technique for particle size measurement at high suspension densities. Part. Part. Syst. Charact., 7:25-29. 1990.
- UNGAR, L. H.; POWELL, B. A. ; KAMENS, S. N. Adaptative networks for fault diagnosis and process control , Computers & Chemical Engineering, v. 14(4/5), p. 651-572, 1990
- VAN de HULST, H.C. Light scattering by small particles. John Wiley, London. 469p, 1957
- VENKATASUBRAMANIAM, V.; VAIDYANATHAN, R.; YAMAMOTO, Y. Process fault detection and diagnosis using neural networks - I. Steady state process, Computers & Chemical Engineering, v. 14(7), p. 699-712, 1990
- WATANABE, K.; MATSURA, I.; KUBOTA, M.; HIMMELBLAU, D. M. Incipient fault diagnosis of chemical processes via artificial neural networks. AICHE Journal, v. 35(11), p. 1803-1812, 1989
- YAMAMOTO, C.I.; BABA, E.H.; NASCIMENTO, C.A.O. Previsão de comportamento de reator de síntese de amônia via rede neuronal , I Simpósio Brasileiro de Automação Inteligente (I SBAI) , Anais, p. 48-57, Rio Claro (SP), setembro, 1993.

ANEXO 1

**DADOS EXPERIMENTAIS DE ESPALHAMENTO DE LUZ,
PARA TODAS AS AMOSTRAS**

