

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA ÁREA DE CONCENTRAÇÃO DESENVOLVIMENTO DE PROCESSOS QUÍMICOS

# Controle e Otimização de um Reator de Hidrogenação Trifásico

# AUTORA: MYLENE CRISTINA ALVES FERREIRA REZENDE ORIENTADOR: Prof. Dr. RUBENS MACIEL FILHO CO-ORIENTADORA: Dra. ALINE CARVALHO DA COSTA

Dissertação de Mestrado apresentada à Faculdade de Engenharia Química da Universidade Estadual de Campinas como parte dos requisitos exigidos para a obtenção do título de Mestre em Engenharia Química.

Campinas - São Paulo Novembro de 2003

1
UNICADE 12
FIR CHAMADAT/DIJI/P/DF
L KERAL
a a construir a construir a parte a construir a parte a particular de la construir de la construir de la constr La construir de la construir de la construir a construir de la construir de la construir de la construir de la c
and the second s
1 TOMAD SC/57145
1200 AL-P- ANA/04 1
1 MEGO 2311.00
1 DAGIA 02/13/14
₹Nº OPD
Same and the second of the second

# BU-id 31149.2

## FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA BIBLIOTECA DA ÁREA DE ENGENHARIA - BAE - UNICAMP

R339c	Rezende, Mylene Cristina Alves Ferreira Controle e otimização de um reator de hidrogenação trifásico / Mylene Cristina Alves Ferreira Rezende Campinas, SP: [s.n.], 2003.
	Orientadores: Rubens Maciel Filho e Aline Carvalho da Costa
	Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual de
	Campinas, Faculdade de Engenharia Química.
	1. Reatores químicos. 2. Controle preditivo. 3. Programação quadrática. 4. Algoritmos genéticos. I.
	Maciel Filho, Rubens. II. Costa, Aline Carvalho. III.
	Universidade Estadual de Campinas. Faculdade de Engenharia Química. IV. Título.

Dissertação de Mestrado defendida por Mylene Cristina Alves Ferreira Rezende e aprovada em 03 de novembro de 2003 pela banca examinadora constituída pelos doutores:

Prof. Dr. Rubens Maciel Filho (Orientador)

SM golino Redondo

Dra. Simone Ungari Azzolino Redondo (Titular)

Prof. Dr. Osvaldir Pereira Taranto (Titular)

Dr. Eduardo Coselli Vasco de Toledo (Suplente)

Este exemplar corresponde à versão final da Dissertação de Mestrado em Engenharia Química.

Prof. Dr. Rubens Maciel Filho (Orientador)

Dedico ao meu marido, Rodrigo, que é o amor da minha vida.

UNICAMP	
BIBLIOTECA CENTRAL	
SEÇÃO CIRCULANTE	

vii

## Agradecimentos

Gostaria de agradecer a todos aqueles que participaram desta fase da minha vida e que torceram para que eu tivesse êxito na realização desta Tese.

Ao meu marido Rodrigo, quem amo cada dia mais, agradeço pelo amor, pelo companheirismo, pela dedicação, pela paciência, por ter sempre uma palavra de incentivo, por estar sempre ao meu lado tornando os momentos difíceis mais leves e fazendo a minha vida mais feliz.

Aos meus pais por serem tão presentes em minha vida. Ao meu pai José, pela dignidade e pela coragem de deixar nossa terra natal (Pains-MG) para que meus irmãos e eu pudéssemos cursar uma Faculdade. A minha mãe Elaine, pelo exemplo de luta, por sua grandeza e por nossa profunda amizade. A minha irmã Márcia, pelos tantos bons momentos compartilhados. Ao meu irmão Wendel, pelo cuidado e por tudo que me ensinou no seu papel de irmão mais velho. A minha cunhada Josiane, pelo carinho.

A minha segunda família, meus sogros Ana Maria e Antonio, pelas orações e pelas lições de vida. Aos meus cunhados, Fabiano, Luciana e Cristian, por nossa amizade e pela torcida.

Às minhas famílias materna e paterna pelo apoio, em especial a minha querida avó materna, Luci, pelos preciosos momentos que já passamos juntas.

Às amigas Lyssa, Daniele, Alessandra e Virgínia pelo apoio na escolha pelo Mestrado.

Ao meu orientador, Professor Rubens Maciel Filho, pelo incentivo, pelo otimismo constante e pela amizade.

À Aline Carvalho da Costa, pela co-orientação e pela ajuda no direcionamento do trabalho.

À Professora Maria Regina Wolf Maciel pelo carinho e pelo apoio.

Ao Eduardo Coselli, à Simone Ungari e ao Prof. Osvaldir Taranto, pelas sugestões.

Aos amigos do LOPCA/LDPS, Caliane, Delba, Miria, Natascha, Agremis, Ana Paula, Urso, Edvaldo, Vanessa, Cristiane, Renata, André, Sebastião, Cristiano, Fábio, por tornarem nosso ambiente de trabalho mais prazeroso, e também a Patrícia (Pops), Meleiro, Jeferson, Basilino, Nagel, Salah, Favinha, Rubão, João Gonzaga e Rodrigo (*In Memorian*).

UNICAMP

BIBLIOTECA CENTRAL SECÃO CIRÓNILANTE

Ao Igor, pela valiosa ajuda na parte de Algoritmos Genéticos e a sua esposa Verônica.

Às amigas Isa e Danieli, que tive o prazer de conhecer durante o Mestrado.

À Roniane e Jânio, Luciana e Ricardo Maudonnet, pela amizade.

À FAPESP pelo apoio financeiro viabilizando a realização deste trabalho.

"Sede como os pássaros que, ao pousarem um instante sobre ramos muito leves, sentem-nos ceder, mas cantam! Eles sabem que possuem asas."

(Victor Hugo)

#### Resumo

O presente trabalho trata do estudo do controle e otimização de um reator tubular multifásico visando a Integração de Processos Contínuos em Tempo Real.

Como caso estudo é considerado um reator de hidrogenação catalítico trifásico, para o qual é utilizado um modelo matemático determinístico representativo do processo.

O comportamento dinâmico do processo de produção é estudado a fim de se determinar possíveis estruturas de controle. O controlador implementado é baseado na filosofia do Controle por Matriz Dinâmica (*Dynamic Matrix Control* - DMC), um tipo de Controle Preditivo baseado em Modelo.

Para resolver o problema da otimização, são revisadas e implementadas duas técnicas, a saber: a otimização por Programação Quadrática Sucessiva (*Successive Quadratic Programming* - SQP) e a otimização global por Algoritmos Genéticos.

Os resultados obtidos com a otimização por SQP mostram a eficiência desta técnica na otimização do reator trifásico.

Os Algoritmos Genéticos são métodos de otimização globais que trabalham com uma população de soluções que evolui ao longo de gerações e converge para um ótimo global. O estudo dos Algoritmos Genéticos mostra que se trata de um algoritmo robusto e eficiente para a otimização do reator trifásico, que pode ser uma alternativa para problemas onde métodos clássicos, como o SQP, não apresentam bom desempenho.

Também é feita uma proposta sobre a integração de processos em tempo real e apresentada uma forma de definir e implementar a estratégia em uma camada, com o objetivo de aplicá-la em trabalhos futuros.

#### Abstract

The present work aims to study the control and optimization of a multiphase catalyst slurry reactor, in order to deal with the Real Time Integration of Continuous Process.

As the study case is considered a three-phase catalytic hydrogenation reactor, which is represented by a deterministic mathematical model.

The dynamic behavior of the production process is studied in order to identify some suitable control structures. The controller implemented is based on Dynamic Matrix Control (DMC) philosophy, which is a type of Predictive Control based on Model.

In order to solve the optimization problem are reviewed and implemented two techniques: optimization by Successive Quadratic Programming (SQP) and the global Optimization by Genetic Algorithms.

The obtained results by SQP optimization shows the efficiency of this technique to be used for the three-phase reactor.

The Genetic Algorithms are optimization methods based on population solution that evoluted through successive generations and converge to a global optimal. The studies of Genetic Algorithms show the powerful and efficiency for the optimization of the threephase reactor, that may be a potential alternative when classical methods do not work well.

It is also done a propose on the over a real time integration process and presented a way to determine and to implement a strategy in one layer for the multiphase catalytic reactor.

# Sumário

LISTA DE FIGURASXVII
LISTA DE TABELASXIX
NOMENCLATURAXXI
CAPÍTULO 1 - INTRODUÇÃO 1
1.1 – Objetivo
CAPÍTULO 2 - REVISÃO SOBRE REATORES CATALÍTICOS TRIFÁSICOS
2.1. DEFINIÇÃO DE REATORES CATALÍTICOS TRIFÁSICOS       5         2.2. TIPOS DE REATORES TRIFÁSICOS       6         2.2.1. Reatores de leito fixo nos quais os catalisadores sólidos estão fixos.       6         2.2.2. Reatores de lama nos quais o catalisador sólido está suspenso e em movimento.       6         2.3. COMPARAÇÃO ENTRE OS REATORES DE LEITO FIXO E OS DE LAMA       7         2.4. TEORIA GERAL DE REAÇÕES TRIFÁSICAS       9         2.4.1. Introdução       9         2.4.2. Trabalhos Publicados sobre Reatores Trifásicos       11         2.5. CONCLUSÕES       14
CAPITULO 3 - MODELAGEM MATEMATICA

5.3.1. Controle da temperatura de saída do reator (T) manipulando a temperatura de alimentação do reator (Tf)64
5.3.2. Controle da temperatura de saída do reator (T) manipulando a temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf)70
5.3.2.Controle da concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl) manipulando a temperatura de alimentação do reator (Tf)
5.4.Conclusões
CAPÍTULO 6 - OTIMIZAÇÃO POR PROGRAMAÇÃO QUADRÁTICA SUCESSIVA
6.1. Princípios de Otimização
6.2. DEFINIÇÃO DA OTIMIZAÇÃO POR SQP
6.3. RESOLUÇÃO DO PROBLEMA DE OTIMIZAÇÃO DO REATOR TRIFÁSICO POR SQP86
6.3.1. Otimização por SQP usando o Modelo Rigoroso do Reator Trifásico88
6.3.2. Otimização por SQP usando o Modelo Estatístico do Reator Trifásico
CAPITULO 7 - OTIMIZAÇÃO POR ALGORITMOS GENETICOS 109
7.1. Princípios da Otimização por Algoritmos Genéticos
7.2. TRABALHOS ENCONTRADOS NA LITERATURA114
7.3. PROBLEMAS ENVOLVENDO RESTRIÇÕES
7.4. DEFINIÇÃO DA FUNÇÃO OBJETIVO
7.5. IMPLEMENTAÇÃO DOS ALGORITMOS GENETICOS NA UTIMIZAÇÃO DO REATOR
1 RIFASICO
7.0. RESULTADOS DA OTIMIZAÇÃO POR ALGORITMOS GENETICOS USANDO O MODELO ESTATÍSTICO DO REATOR TRIEÁSICO
7.7 CONCLUSÕES
CAPITULO 8 – CONCLUSOES E SUGESTOES PARA TRABALHOS
FUTUROS
8.1. Conclusões
8.2. Sugestões para Trabalhos Futuros
8.2.1. Integração de Processos em Tempo Real138
8.2.2. Otimização em Uma Camada142
8.2.2.1. Formulação Matemática
8.2.2.2. Implementação do Algoritmo de Otimização Integrada ao Controle
8.2.2.2.1. Modelo Estatistico
6.2.2.2.2. Wodelo Kigoroso
REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

# Lista de Figuras

Figura 2.1 – Esquema básico de um reator trifásico	5
Figura 2.2 – Gradientes de Concentração em um Sistema Trifásico	10
Figure 4, 1. Efeite de las no temperature de coíde de rector	25
Figura 4. 1 – Efeito de ul na temperatura de saída do reator	20 26
Figura 4, 2 – Efeito de un na temperatura de saída do reator	20
Figura 4. $J$ – Efeito de la fina temperatura de saída do reator	21 20
Figure 4. 5 – Efeito de Alf pe temperature de seíde do reator	
Figura 4. 6 – Efeito de Blf na temperatura de saída do reator	30
Figura 4. 7 – Efeito de Efina temperatura de saída do reator	31
Figura 4. 8 – Efeito de Trf na temperatura de saída do reator	32
Figura 4, 9 – Efeito de 111 na concentração de o- cresol na saída do reator	
Figura 4.10 – Efeito de ul na concentração de o- cresol na saída do reator	34
Figura 4, 11 – Efeito de un na concentração de o-cresol na saída do reator	35
Figura 4 12 – Efeito de Agf na concentração de o-cresol na saída do reator	36
Figura 4 13 – Efeito de Alf na concentração de o-cresol na saída do reator	37
Figura 4, 14 – Efeito de Blf na concentração de o- cresol na saída do reator	38
Figura 4, 15 – Efeito de Tf na concentração de o-cresol na saída do reator	39
Figura 4. 16 – Efeito de Trf na concentração de o-cresol na saída do reator	40
	50
Figura 5. 1 - Estrutura basica de um controle preditivo	50
Figura 5. 2 – Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação	o de
±10% em 1rf	64
Figura 5. 3 – Temperatura de alimentação vs tempo para perturbação de $\pm 10\%$ em Trf	64
Figura 5. 4 - Controle da Temperatura para alteração no set point	65
Figura 5. 5 - Temperatura de alimentação vs tempo para uma alteração no set point	65
Figura 5. 6 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação	) de
$\pm$ 10% em Trf	66
Figura 5. 7 - Temperatura de alimentação vs tempo para perturbação de $\pm 10\%$ em Trf	66
Figura 5. 8 - Controle da Temperatura para uma mudança no set point	67
Figura 5.9 - Temperatura de alimentação vs tempo para uma mudança no set point	67
Figura 5. 10 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbaçã	io
de $\pm$ 10% em Trf	69
Figura 5. 11 - Temperatura de alimentação vs tempo para perturbação de $\pm 10\%$ em Trf.	69
Figura 5. 12 - Controle da temperatura e resposta do sistema em malha aberta para	
perturbação de $\pm$ 10% em Tf	70
Figura 5. 13 - Temperatura de alimentação do fluido refrigerante vs tempo para perturba	ição
de $\pm$ 10% em Tf	70
Figura 5. 14 - Controle da temperatura para perturbação de $\pm$ 10% em Tf. (NM=23,	
NP=10, NC=1, f=1,5)	71
Figura 5. 15 - Controle da temperatura para perturbação de $\pm$ 10% em Tf. (NM=23, NP=	=10,
NC=1, f=3)	71

Figura 5. 16 - Controle da temperatura para perturbação de ± 10% em Tf. (NM=23, NP=10, NC=1, f=5)
Figura 5. 17 - Controle da temperatura para perturbação de ± 10% em Tf
de $\pm$ 10% em Blf
<ul> <li>Figura 5. 23 - Temperatura de alimentação vs tempo para perturbação de ± 10% em Blf75</li> <li>Figura 5. 24 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação de ± 10% em Blf</li></ul>
<ul> <li>Figura 5. 25 - Temperatura de alimentação vs tempo para perturbação de ± 10% em Blf76</li> <li>Figura 5. 26 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação de ± 10% em Trf</li></ul>
Figura 5. 27 - Temperatura de alimentação vs tempo para perturbação de ± 10% em Trf78 Figura 5. 28 - Controle da Concentração Bl
Figura 6. 1 - Perfil da conversão vs temperatura de alimentação sem otimização
<ul> <li>Figura 7. 1 - Espaço de busca – AG´s x Métodos Convencionais (VICTORINO, 2002)110</li> <li>Figura 7. 2 - Método de aproximação da função penalidade</li></ul>
Figura 8. 1 – Esquema da estratégia de otimização em duas camadas

# Lista de Tabelas

Tabela 3.1 – Parâmetros Cinéticos	16
Tabela 4. 1 – Valores das variáveis nos níveis do planejamento.	44
Tabela 4. 2 – Matriz do Planejamento Fatorial Fracionário 2 <sup>8-4.</sup>	44
Tabela 4. 3 – Respostas das Variáveis de Saída	45
Tabela 4. 4 – Estimativas dos Efeitos	45
Tabela 5. 1 – Valores de ISE para variações em NP perturbando-se Trf em ±10%	68
Tabela 5. 2 – Valores de IAE para diferentes valores de NP.	77
Tabela 6. 1 – Planejamento Composto Central.	94
Tabela 6. 2 - Matriz do Planejamento Composto Central	95
Tabela 6. 3 – ANOVA (Análise da Variância)	96
Tabela 6. 4 – Resultados da Otimização por SQP	99
Tabela 7. 1– Resultados da Otimização por Algoritmos Genéticos	. 130

## Nomenclatura

a alea memacial, m	а	área	interfacial,	$m^{-1}$
--------------------	---	------	--------------	----------

- admc matriz dos coeficientes do modelo linear do processo
- $a_i$  coeficiente de resposta ao degrau
- a\* valores modificados dos coeficientes do modelo linear
- A concentração do componente A, kmol/m<sup>3</sup>
- Al concentração de  $H_2$  na fase líquida na saída do reator, kmol/m<sup>3</sup>
- Alf concentração de hidrogênio na fase líquida na alimentação do reator, kmol/m<sup>3</sup>
- Ag concentração de  $H_2$  na fase gasosa na saída do reator, kmol/m<sup>3</sup>
- Agf concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator, kmol/m<sup>3</sup>
- A<sup>\*</sup> concentração do soluto no líquido
- B concentração do componente B, kmol/m<sup>3</sup>
- Bl concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator, kmol/m<sup>3</sup>
- Blf concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação do reator, kmol/m<sup>3</sup>
- c posições da predição, do *set point* e do limite de uma determinada variável controlada nos seus respectivos valores
- C<sub>A</sub> concentração de hidrogênio, kmol/m<sup>3</sup>
- C<sub>B</sub> concentração de o-cresol, kmol/m<sup>3</sup>
- Cp capacidade calorífica, kJ/kg K
- ds vetor das perturbações no estado estacionário
- De difusividade mássica efetiva, m<sup>2</sup>/s
- D<sub>t</sub> diâmetro do reator;
- f fator de supressão
- f<sub>eco</sub> função objetivo econômica
- F1 expressão da restrição
- *hi* coeficiente de resposta ao impulso
- h<sub>e</sub> restrições do modelo econômico
- h<sub>p</sub> restrições do modelo não linear
- h coeficiente de transferência de calor, kJ/m<sup>2</sup> s K
- H constante da lei de Henry
- H aproximação do Hessiano

- I<sub>a</sub> conjunto ativo correspondente à solução ótima do problema
- k constante cinética, kmol/kg-cat.s
- K coeficiente de transferência de massa entre fases, cm/s
- K<sub>A</sub> constante do equilíbrio de adsorção do hidrogênio, m<sup>3</sup>/kmol
- K<sub>B</sub> constante do equilíbrio de adsorção do o-cresol, m<sup>3</sup>/kmol
- L comprimento do reator, m
- *li* tamanho de uma *substring* binária
- nc número de variáveis controladas
- NC Horizonte de Controle
- NM Horizonte de Modelo
- NP Horizonte de Predição
- $p_A$  pressão parcial do gás sobre o líquido em equilíbrio com a concentração  $A^*$  do soluto no líquido
- rp posição radial da partícula admensional
- R parâmetro de penalidade
- R constante universal dos gases perfeitos
- R<sub>A</sub> taxa de reação, kmol/kg-cat.s
- Rp raio da partícula, m
- T temperatura, K
- T temperatura de saída do reator, K
- T<sub>a</sub> período de amostragem ou de execução do algoritmo
- Tf temperatura de alimentação do reator, K
- Tr temperatura de saída do fluido refrigerante, K
- Trf temperatura de alimentação do fluido refrigerante, K
- u velocidade linear, m/s
- u vetor das variáveis manipuladas
- u<sub>at</sub> vetor das variáveis manipuladas no instante atual
- ug velocidade linear do gás, m/s
- ul velocidade linear do líquido, m/s
- ur velocidade linear do fluido refrigerante, m/s
- u<sub>s</sub> vetor das variáveis manipuladas no estado estacionário

- U coeficiente global de transferência de transferência de calor, kJ/m<sup>2</sup> s K
- $x_i^l$  limites operacionais mínimos das variáveis
- $x_i^{max}$  limites superiores das variáveis
- $x_i^{min}$  limites inferiores das variáveis
- $x_i^{\mu}$  limites operacionais máximos das variáveis
- x<sub>s</sub> vetor das variáveis do modelo não linear (não incluindo as variáveis manipuladas)
   no estado estacionário
- x<sup>\*</sup> solução local de um problema de otimização
- y variável de saída
- $y_k$  valor medido da variável de saída
- y<sub>1</sub> set point modificado

 $y_{k+1}^c$  valor predito da variável de saída

- y<sub>p</sub> vetor da predição linear das variáveis controladas dinamicamente
- y<sub>pf</sub> vetor da predição linear das variáveis controladas dinamicamente, baseada somente
   nas ações de controle passadas
- *y<sub>sp</sub>* valor do *set point*
- y<sub>sp</sub> vetor dos *set points* das variáveis controladas dinamicamente
- $y^d$  valor desejado
- y<sup>inf</sup> limite inferior
- $y^P$  vetor de predições
- y<sup>sup</sup> limite superior
- W<sub>1</sub> matriz diagonal dos pesos das variáveis controladas dinamicamente
- W<sub>2</sub> matriz diagonal dos fatores de supressão das variáveis manipuladas
- W<sub>3</sub> peso da parcela econômica na função objetivo
- z posição axial admensional no reator

#### Subscrito

- A componente A
- B componente B
- f alimentação

- g fase gasosa
- gl gás-líquido
- l fase líquida
- ls líquido-sólido
- p partícula
- ref valor de referência usado para admensionalizar as equações
- s sólido

#### Sobrescrito

s superfície da partícula

#### Letras Gregas

- $\alpha_k$  amortecimento obtido a partir da minimização unidirecional de uma função objetivo
- $\Delta H_R$  calor de reação, kJ/kmol
- $\Delta u_k$  primeira ação de controle
- $\Delta t$  tempo de amostragem
- $\Delta u$  vetor das amplitudes das ações de controle
- ε porosidade
- $\varepsilon_i$  precisão requerida para a variável i
- μ vetor formado pelos multiplicadores de Lagrange das restrições de desigualdade
- $\lambda$  condutividade térmica, kJ/m s K
- $\lambda$  vetor formado pelos multiplicadores de Lagrange das restrições de igualdade
- v coeficiente estequiométrico
- $\rho$  densidade, kg/m<sup>3</sup>

# CAPÍTULO 1 - Introdução

Os reatores catalíticos trifásicos são amplamente usados em processos industriais, como hidrogenação e oxidação. Investimentos nestes tipos de reatores têm sido ampliados, principalmente, no que se refere ao desenvolvimento de modelos matemáticos, já que a modelagem dinâmica destes reatores é de dimensão complexa e, por isso, requer estudos detalhados.

Em qualquer processo químico, a disponibilidade de um modelo matemático confiável para estudo do comportamento dinâmico é importante para fins de projeto, otimização e controle. Além do desenvolvimento de um modelo que possa representar de forma adequada os principais fenômenos que ocorrem no sistema, consideração tem que ser feita também com relação ao tempo, ao esforço computacional e à aplicabilidade do modelo. Para aplicações em tempo real, o modelo deve permitir uma solução rápida e confiável enquanto mantém as características desejadas de predição do comportamento do sistema.

A Integração de Processos Químicos em Tempo Real é uma importante área de pesquisa que visa garantir alto desempenho na operação dos processos químicos, o que permite uma maior produtividade e lucratividade aos processos químicos.

A Integração em Tempo Real pode ser feita através da otimização em uma ou duas camadas. Na estratégia em duas camadas, o problema de otimização é resolvido independentemente do problema de controle e o algoritmo de otimização gera valores de referência para o controlador avançado. A estratégia em uma camada consiste em resolver os problemas de controle e otimização conjuntamente (TVRZSKÁ DE GOUVÊA, 1997).

Para o controle dos processos, tem-se utilizado técnicas de controle moderno, tais como o Controle Preditivo baseado em Modelo. Este tipo de controle apresenta algumas subdivisões dependendo do tipo de modelo e função objetivo utilizados. Dentre elas, a mais difundida tem sido o Controle por Matriz Dinâmica (*Dynamic Matrix Control - DMC - CUTLER e RAMAKER*, 1979).

Como técnicas de otimização, a mais utilizada para a resolução do problema de programação não linear (PNL) tem sido o algoritmo de Programação Quadrática Sucessiva (*Successive Quadratic Programming* - SQP). Métodos alternativos de otimização também

têm recebido destaque pelo potencial de aplicação, a saber: Algoritmos Genéticos e Simulated Annealing.

#### 1.1 – Objetivo

Este trabalho tem como objetivo o estudo de um reator de hidrogenação trifásico a fim de propor a sua otimização.

O caso estudo a ser considerado é a reação de hidrogenação do o-cresol formando como produto o 2-metil-ciclohexanol, realizada em um reator de lama tubular na presença de catalisador à base de níquel (NiSO<sub>2</sub>).

Propõe-se fazer um estudo do comportamento dinâmico do processo a fim de determinar as variáveis do processo que precisam ser medidas, manipuladas e controladas para constituir uma estrutura de controle viável para o processo.

Para controlar o processo, o controlador implementado é baseado na filosofia do Dynamic Matrix Control (DMC).

A otimização do processo será feita através da implementação da técnica de Programação Quadrática Sucessiva e dos Algoritmos Genéticos.

#### 1.2 – Organização do Trabalho

O capítulo 2 traz uma apresentação dos reatores trifásicos e alguns trabalhos encontrados na literatura que abordam esse tipo de reator.

No capítulo 3 é apresentado o modelo matemático que representa a reação de hidrogenação do o-cresol.

O capítulo 4 mostra um estudo do comportamento dinâmico do processo, através do qual se definem as variáveis que podem ser usadas em um esquema de controle. Um planejamento fatorial também é apresentado.

No capítulo 5 é apresentado o desenvolvimento de um algoritmo baseado no Controle por Matriz Dinâmica (*Dynamic Matrix Control* - DMC) para ser usado no controle do processo.

O capítulo 6 traz a otimização do reator trifásico através da técnica de otimização por Programação Quadrática Sucessiva.

2

No capítulo 7 é apresentada a otimização do processo usando um método de otimização global por Algoritmos Genéticos.

O capítulo 8 apresenta as conclusões do trabalho e sugestões para trabalhos futuros.

# CAPÍTULO 2 - Revisão sobre Reatores Catalíticos Trifásicos

Neste capítulo é apresentada uma revisão sobre reatores catalíticos trifásicos, mostrando os tipos de reatores trifásicos, uma comparação entre eles, a teoria geral de reações trifásicas e os trabalhos encontrados na literatura sobre reatores trifásicos.

#### 2.1. Definição de Reatores Catalíticos Trifásicos

Um reator catalítico trifásico é um sistema no qual as fases gasosa e líquida estão em contato com um catalisador na fase sólida. Na maioria das aplicações, a reação ocorre entre um gás dissolvido e um reagente na fase líquida na presença de um catalisador sólido. Em alguns casos, o líquido é um meio inerte e a reação ocorre entre os gases dissolvidos na superfície sólida.



A Figura 2.1 abaixo ilustra a configuração de um reator trifásico.

Figura 2.1 - Esquema básico de um reator trifásico

Segundo RAMACHANDRAN e CHAUDHARI (1983), os reatores trifásicos têm diversas aplicações em processos catalíticos e estão tornando-se cada vez mais importantes na industria química. Algumas de suas aplicações comerciais podem ser citadas: a hidrogenação de óleos insaturados, na qual um reator trifásico é essencial, pois a vaporização de gorduras é uma proposta altamente impraticável; a síntese de Fischer-

Tropsch, que consiste da síntese de hidrocarbonetos a partir da reação de monóxido de carbono e hidrogênio em reator de lama na presença de uma suspensão catalítica; o controle da poluição, através da remoção de gases poluentes, tais como  $SO_2$  ou  $H_2S$ , por oxidação na presença de um catalisador.

#### 2.2. Tipos de Reatores Trifásicos

Os reatores trifásicos industriais podem ser classificados em duas categorias principais, segundo RAMACHANDRAN e CHAUDHARI (1983):

#### 2.2.1. Reatores de leito fixo nos quais os catalisadores sólidos estão fixos.

- Reator de Leito Gotejante (*Trickle Bed Reactor*) a fase líquida é a fase dispersa e flui na forma de filme descendente. A fase gasosa é a fase contínua e flui tanto contracorrente como co-corrente com o líquido. O reator é sempre operado no modo contínuo.
- Reator de Leito Fixo com Borbulhamento de Gás as fases gasosa e líquida são fluxos ascendentes e co-correntes. A fase gasosa é a fase dispersa e a fase líquida é a contínua. Os reatores de colunas são sempre operados no modo contínuo.

#### 2.2.2. Reatores de lama nos quais o catalisador sólido está suspenso e em movimento

- Reatores de Lama Mecanicamente Agitados as partículas catalíticas são mantidas em suspensão pela agitação mecânica.
- Reatores de Lama com Coluna de Bolhas (*Bubble Column Slurry Reactors*)
   as partículas sólidas estão suspensas pela turbulência induzida pela elevação das bolhas de gás. Partículas pequenas são usadas para este tipo de catalisador.
- Reatores de Leito Fluidizado Trifásico as partículas sólidas estão suspensas pela ação combinada do movimento de bolhas e fluxo líquido cocorrente, mas principalmente devido a este último. Partículas maiores são usadas para este tipo de catalisador.

#### Capítulo 2 – Revisão sobre Reatores Catalíticos Trifásicos

Um reator de lama é um reator de fluxo multifásico no qual gás reagente é borbulhado através da solução contendo partículas de catalisadores sólidos. A solução pode ser tanto um reagente, como no caso da hidrogenação do metil linoleate, como um inerte, como na síntese de Fischer-Tropsch de metano. Nos reatores de lama é assumido que a fase líquida é bem misturada, que as partículas de catalisador são uniformemente distribuídas, e que a fase gasosa está em fluxo empistonado (*plug flow*). Estes reatores podem ser operados em modo contínuo ou batelada. Reatores de lama podem freqüentemente ser operados isotermicamente e o pequeno tamanho das partículas minimiza os efeitos de transporte. Estas vantagens, em comparação com outros tipos de reatores trifásicos, justificam o uso em escala comercial de reatores de lama para processos de polimerização e hidrogenação. Operações em reatores de lama também podem ter vantagens para outros processos como absorção de poluentes de correntes de gás (GIANETTO e SILVESTON, 1986).

#### 2.3. Comparação entre os Reatores de Leito Fixo e os de Lama

De acordo com RAMACHANDRAN e CHAUDHARI (1983), estes reatores podem ser comparados sob o ponto de vista da taxa global de reação, da transferência de calor e da separação e manipulação do catalisador.

Devido à natureza heterogênea do sistema trifásico, antes que as espécies sejam convertidas a produtos é preciso que alguns passos sejam completados. Os principais passos são a transferência de massa do gás para o líquido, a transferência de massa do líquido para a superfície do catalisador, e a difusão intrapartícula dentro dos poros do catalisador acompanhado de reação química.

As taxas de transferência de massa são geralmente mais rápidas em reatores de lama do que em reatores de leito fixo. Isto porque partículas menores podem ser usadas em reatores de lama, o que garante taxas de transferência de massa do líquido para o sólido e difusão intrapartícula mais altas levando a uma maior eficiência de utilização do catalisador.

A carga de catalisador (quantidade por unidade de volume do reator) é menor em um sistema de lama. Como a taxa de reação é também proporcional a carga de catalisador, a taxa de reação por unidade de volume do reator é geralmente mais alta em reatores de leito fixo. Então, a taxa de reação por unidade de volume do reator é mais baixa em sistemas de lama, enquanto que a taxa por unidade de peso de catalisador é mais alta.

A taxa de reação também é influenciada pela forma na qual as fases líquida e gasosa estão misturadas. Duas formas de mistura são fluxo empistonado (*plug-flow*) e mistura perfeita (*backmixing*). Em fluxo empistonado, a concentração de reagentes diminui monotonicamente da entrada para a saída do reator, enquanto que em um reator de mistura perfeita a concentração é a mesma através de todo reator e igual à concentração da saída. Mistura perfeita, geralmente, diminui o desempenho do reator. Em um reator de lama a fase líquida é, geralmente, bem misturada enquanto no reator de leito fixo, o comportamento do fluxo de líquido aproxima-se do modelo de fluxo empistonado. Assim, quando alta conversão de líquido reagente é desejada, operação de leito fixo é preferível a reatores de lama.

Com relação à transferência de calor, sabe-se que é mais eficiente em reatores de lama do que em reatores de leito fixo o que caracteriza maior facilidade de controle de temperatura nos reatores de lama. Isto conduz a temperatura uniforme nos sítios ativos do catalisador e evita formação de pontos quentes. Alto *holdup* nos reatores de lama também facilita o controle de temperatura devido à larga capacidade calorífica na fase líquida.

Quanto à separação do catalisador, há dificuldades na operação contínua de reatores de lama, principalmente, devido a problemas de filtração, enquanto que nos reatores de leito fixo este problema não é detectado. Entretanto, a manipulação de catalisadores é mais fácil em reatores de lama devido ao estado suspenso das partículas. Em processos onde a freqüente remoção e reposição dos catalisadores são necessárias, os reatores de leito fixo podem não ser adequados, pois a reposição de catalisador requer parada e desmontagem do reator. Além disso, o problema da incrustação do leito devido à formação de resíduos nãovoláteis é eliminado em reatores de lama pelo uso de partículas pequenas e de movimento livre.

#### 2.4. Teoria Geral de Reações Trifásicas

#### 2.4.1. Introdução

Os sistemas de reações trifásicas encontradas na prática podem ser representados pelo seguinte esquema de reação:

$$V_A A(g) + V_B B(l) \xrightarrow{\text{catalisado } r} V_C C(l)$$

A espécie A é, geralmente, um reagente presente na fase gasosa e a espécie B é um reagente não volátil presente na fase líquida, com a reação ocorrendo na superfície de um catalisador sólido. Em alguns casos, ambas espécies A e B podem estar presentes na fase gasosa.

Para que as espécies A e B possam ser convertidas a produtos sobre os sítios ativos do catalisador, o seguinte número de passos precisa ocorrer:

- 1 Transporte de A do seio da fase gasosa para a interface gás-líquido
- 2 Transporte de A da interface gás-líquido para o líquido
- 3 Transporte de A e B do líquido para superfície do catalisador
- 4 Difusão interna dos reagentes nos poros do catalisador
- 5 Adsorção dos reagentes sobre os sítios ativos do catalisador
- 6 Reação das espécies adsorvidas com formação de produtos

No caso de reações reversíveis e produtos voláteis, passos adicionais devem ser considerados, tais como dessorção de produtos e transporte dos produtos no sentido contrário ao dos reagentes.

A Figura 2.2 abaixo representa um esquema com os gradientes de concentração em um sistema catalítico trifásico.



Figura 2.2 - Gradientes de Concentração em um Sistema Trifásico

Uma análise detalhada destas etapas, bem como as soluções de equações que predigam o efeito da transferência de massa sobre a taxa de reação são fundamentais no estudo do desempenho de um reator trifásico.

A taxa de reação é dependente da cinética intrínseca da reação e também das taxas de transferência de massa dos reagentes envolvidos.

Outro parâmetro importante na análise de reatores trifásicos é a solubilidade das espécies gasosas no líquido. Geralmente a solubilidade do gás no líquido é quantificada pela Lei de Henry, o que significa supor que existe equilíbrio termodinâmico na interface líquido-gás.

A Lei de Henry, que estabelece a solubilidade do gás, é proporcional a sua pressão parcial, e pode ser representada como se segue:

$$p_A = H A^*$$

Onde  $p_A$  é a pressão parcial do gás sobre o líquido em equilíbrio com a concentração  $A^*$  do soluto no líquido, e H é a constante da lei de Henry.

É importante ressaltar que a Lei de Henry é válida somente para soluções ideais e aplicável apenas a soluções diluídas (SANTANA, 1995)

#### 2.4.2. Trabalhos Publicados sobre Reatores Trifásicos

O controle e segurança de um reator são aspectos importantes no projeto e operação de processos industriais que realizam reações complexas com restrições de estabilidade térmica e/ou seletividade. Desta forma, um modelo dinâmico do reator é importante para o estudo da partida e dos efeitos de mudanças acidentais nas condições de operação. No entanto, no caso de reatores catalíticos trifásicos, a maioria dos trabalhos encontrados na literatura trata do desenvolvimento de modelos estacionários (HERSKOWITZ e SMITH, 1983; GIANETTO e SPECCHIA, 1991; SANTANA, 1999), enquanto poucos trabalhos tratam da modelagem dinâmica (JULCOUR et al., 1999).

JULCOUR et al. (1999) examinaram numericamente a concentração transiente e perfis de temperatura obtidos em um fluxo ascendente co-corrente durante a consecutiva hidrogenação de 1,5,9-ciclododecatrieno (CDT) sobre um catalisador 0,5% Pd/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> em um reator trifásico de leito fixo e investigaram a estabilidade térmica do reator e as respostas transientes do sistema a mudanças nas taxas de fluxo. Foi escolhido um modelo heterogêneo não-isotérmico para avaliar as limitações de transferência de massa e energia nas interfaces gás-líquido e líquido-sólido bem como as trocas de calor através das paredes do reator, incluindo o balanço térmico do fluido refrigerante. As seguintes hipóteses foram assumidas para a formulação do modelo: os gradientes radiais foram desprezados; a vaporização dos componentes orgânicos não foi considerada; a transferência de calor com o interior da parede do reator foi assumida ocorrer através da fase líquida somente, não considerando a resistência à difusão dentro da partícula do catalisador; para a fase gasosa foi assumido *plug flow*; mas foram levados em conta os efeitos da dispersão axial do líquido. O modelo consistiu de equações diferenciais parciais e algébricas que foram discretizadas por Colocação Ortogonal e resolvidas pelo método das linhas. JULCOUR et al.(1999) concluíram que a modelagem dinâmica é confiável para a descrição da partida da reação bem como para as respostas à variação da taxa de fluxo de gás e líquido em condições normais de trabalho e que o modelo desenvolvido não é capaz de predizer

corretamente a formação de pontos quentes no reator e necessita de melhorias, talvez a consideração da resistência da transferência de calor e massa dentro dos poros do catalisador.

Segundo LANGE et al. (1999), aplicações comerciais típicas de reatores de leito gotejante, sob o regime de estado estacionário, podem ser encontradas na indústria petroquímica, envolvendo principalmente hidrogenação e oxidação de compostos orgânicos. As partículas de catalisador que não são completamente molhadas e a influência daquelas totalmente molhadas nos reatores de leito gotejante têm recebido considerável atenção. O desempenho de reatores de leito gotejante pode ser afetado por muitos fatores, tais como transferência de massa na interface, difusão intrapartícula, dispersão axial e molhagem incompleta do catalisador. A resistência à transferência de massa entre as fases afeta a taxa da reação global e a conversão.

LANGE et al. (1999) desenvolveram um modelo baseado na dispersão axial para predizer o desempenho global do reator de leito gotejante com catalisador parcialmente coberto pelo líquido, condição na qual o termo adicional de resistência à transferência de massa gás-sólido precisa ser incorporado. O modelo heterogêneo utilizado consiste de balanços de massa e entalpia, no estado dinâmico, dos componentes da reação dentro do gás, do líquido e do leito catalítico. Foi feita uma simulação do desempenho do reator com o desenvolvimento do modelo heterogêneo dinâmico de leito catalítico gotejante trifásico. Foi feita também uma comparação entre as simulações da conversão no estado estacionário e aquelas simulações no estado não-estacionário. As conversões preditas pelo modelo heterogêneo dinâmico foram significativamente maiores do que as experimentais. O aumento e a diminuição da molhagem do catalisador, a influência ótima dos processos de transferência de massa (gás-líquido, gás-sólido, líquido-sólido), o desenvolvimento de mais canais no leito catalítico são algumas das causas de melhoria do desempenho do reator. A simulação com um modelo heterogêneo no estado não-estacionário demonstra que a eficiência de molhagem teve forte influência na taxa de reação global e na conversão, respectivamente. Para sistemas de reação catalítica específica em reatores de leito gotejante, o regime de operação periódico conduz ao melhor controle e à melhoria no desempenho do reator.

#### Capítulo 2 – Revisão sobre Reatores Catalíticos Trifásicos

Segundo SALMI et al. (2000), no passado, os reatores trifásicos eram descritos com modelos pseudo-homogêneos, nos quais a existência de diferentes fases era descartada: as taxas da reação catalítica eram descritas com as concentrações no líquido e as equações de balanço global eram usadas para o líquido. A fase gasosa era descartada. No entanto, uma descrição realística dos reatores catalíticos trifásicos deve ser baseada nas características de transferência de massa e calor do sistema, isto é, em modelos cinéticos, modelos de transferência de calor e massa para as fases gasosa e líquida bem como para as partículas do catalisador. A maioria dos processos catalíticos trifásicos ocorridos em reatores de leito fixo é fortemente influenciada pela resistência difusional dentro da partícula do catalisador.

No modelo para a partícula do catalisador, as limitações de transferência de massa do lado do líquido no filme gás-líquido e dentro da partícula do catalisador tem grande relevância. Para a transferência de calor, as resistências do filme são muito importantes já que a transferência de calor dentro do catalisador sólido é rápida. Nesse modelo todas as resistências são incluídas nas equações do balanço.

Um modelo heterogêneo para reatores trifásicos consiste de equações de balanço para a partícula do catalisador, para a fase líquida e para a fase gasosa. Os autores assumiram que as reações ocorrem na superfície do catalisador sólido, isto é, dentro dos poros do catalisador e reações não catalíticas procedem no líquido e na fase líquida existente dentro dos poros. Nenhuma reação ocorre na fase gasosa.

SALMI et al. (2000) desenvolveram modelos para dois tipos de reatores: reator batelada e reator de leito fixo. O modelo do reator batelada considera somente o balanço da fase líquida. O modelo para leitos fixos considera o balanço de massa para as fases gasosa e líquida. A fase gasosa está em *plug-flow*, implicando que os efeitos de dispersão axial são descartados. Para componentes não voláteis, o balanço de massa na fase gasosa é ignorado. O modelo utilizado gerou um sistema de equações diferenciais parabólicas parciais que foram convertidas a equações diferenciais ordinárias pelo método das diferenças finitas. Foram apresentados casos estudo de processos trifásicos de hidrogenação e oxidação que comprovaram a importância da resistência à transferência de massa na partícula do catalisador bem como a dinâmica das diferentes fases presentes nos reatores trifásicos.

### 2.5. Conclusões

Este capítulo mostrou a importância do estudo dos reatores trifásicos, a sua ampla utilização na indústria e alguns trabalhos estudando a sua modelagem matemática.

O próximo capítulo mostra a modelagem dinâmica do reator de lama trifásico, caso de estudo considerado neste trabalho, aplicada à reação de hidrogenação do o-cresol formando como produto o 2-metil-ciclohexanol.

# CAPÍTULO 3 - Modelagem Matemática

Este capítulo trata-se da modelagem cinética e da modelagem matemática dinâmica usadas para representar a reação de hidrogenação do o-cresol formando como produto o 2metil-ciclohexanol, realizada em um reator de lama tubular na presença de catalisador à base de níquel (NiSO<sub>2</sub>).

#### 3.1. Modelagem Dinâmica do Reator de Lama Trifásico

O modelo usado neste trabalho é o modelo desenvolvido por TOLEDO (2001) o qual considera como caso estudo a reação de hidrogenação do o-cresol formando como produto o 2-metil-ciclohexanol, realizada em um reator de lama agitado na presença de catalisador à base de níquel (NiSO<sub>2</sub>). Este modelo é baseado em uma reação simples e de cinética conhecida, podendo ser facilmente adaptado a outras reações de hidrogenação.

A estequiometria da reação de hidrogenação do o-cresol utilizada é representada da seguinte forma:

$$3H_2(g) + C_6H_4OHCH_3(l) \rightarrow C_6H_{10}OHCH_3(l)$$

O modelo cinético é baseado no modelo proposto por HICHRI et al. (1991) que considera que o hidrogênio e o o-cresol são adsorvidos em sítios ativos diferentes, sem dissociação do hidrogênio, e sendo a reação superficial o passo limitante da taxa de reação (SANTANA, 1995).

A taxa de reação é dada pela seguinte expressão:

$$R_{A} = k \frac{K_{A} K_{B} C_{A} C_{B}}{(1 + K_{A} C_{A})(1 + K_{B} C_{B})}$$
(3.1)

onde:

 $C_A$  =concentração de hidrogênio, kmol/m<sup>3</sup>;  $C_B$  =concentração de o-cresol, kmol/m<sup>3</sup>; k = constante cinética, kmol/kg-cat.s;  $K_A$  = constante do equilíbrio de adsorção do hidrogênio, m<sup>3</sup>/kmol;

 $K_B$  = constante do equilíbrio de adsorção do o-cresol, m<sup>3</sup>/kmol;

 $R_A = taxa de reação, kmol/kg-cat.s.$ 

As constantes são funções da temperatura, dadas por correlações do tipo lei de Arrhenius (HICHRI et al., 1991):

$$k = A \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \tag{3.2}$$

$$K_A = A_1 \exp\left(-\frac{E_1}{RT}\right) \tag{3.3}$$

$$K_B = A_2 \exp\left(-\frac{E_2}{RT}\right) \tag{3.4}$$

Onde T é a temperatura absoluta e R é a constante universal dos gases perfeitos. Os valores das constantes são apresentados na Tabela 1 a seguir.

Tabela 5.1 - Parametros Cineticos (TOLEDC	), 2000)
$A = 5.4 \times 10^5$	E = 82220
A <sub>1</sub> = 10.55	$E_1 = 5003$
$A_2 = 7.54 \times 10^{-3}$	$E_2 = 16325$

Tabela 3.1 - Parâmetros Cinéticos (TOLEDO, 2000)

TOLEDO (2000) desenvolveu vários modelos dinâmicos representativos de um reator de lama trifásico baseados no modelo estacionário desenvolvido por SANTANA (1999). Os modelos consistem de equações de balanço de massa e de energia para as fases líquida e gasosa e para a partícula de catalisador, além do balanço para o fluido refrigerante.

O modelo matemático utilizado neste trabalho considera os balanços para as fases gasosa, líquida e sólida e desconsidera a resistência à difusão na partícula de catalisador. Geralmente, nos reatores de lama, desconsidera-se a equação do catalisador devido sua reduzida dimensão. Porém, neste trabalho ela será considerada para garantir maior precisão do comportamento dinâmico do reator (TOLEDO, 2000).

Para o desenvolvimento de tal modelo foram adotadas as seguintes hipóteses:

- escoamento empistonado (*plug-flow*) para os fluidos reagente e térmico;
- suspensão (líquido+sólido) homogênea, considerada como um pseudo-fluido;
- variações de pressão desprezíveis;

• reação do tipo A(g) +  $vB(l) \rightarrow vC(l)$  acontecendo no catalisador e com cinética dependente das concentrações de A e B;

• não ocorre mudança de fase no sistema.

Estas hipóteses foram adotadas com o intuito de simplificar a formulação do modelo, porém sem comprometer a representação do reator. Estas hipóteses são assumidas na maioria dos trabalhos encontrados na literatura descritos no item 2.4.2. A utilização de um modelo constando de sofisticações como a ocorrência de mudança de fase no sistema é uma proposta para trabalhos futuros.

O modelo é, então, dado pelas seguintes equações de balanço:

#### I – Balanços para a fase fluida

Balanço de massa do reagente A na fase gasosa:

$$\varepsilon_{g} \frac{\partial A_{g}}{\partial t} = \frac{D_{eg}}{L^{2}} \frac{\partial^{2} A_{g}}{\partial z^{2}} - \frac{u_{g}}{L} \frac{\partial A_{g}}{\partial z} - (K_{gl})_{A} a_{gl} (A^{*} - A_{l})$$
(3.1)

Condições de contorno:  $\frac{D_{eg}}{L} \frac{\partial A_g}{\partial z}\Big|_{z=0} = u_g (A_g - A_{gf})$ 

$$\frac{\partial A_g}{\partial z}\Big|_{z=1} = 0$$

Balanço de massa do reagente A na fase líquida:

$$\varepsilon_{l} \frac{\partial A_{l}}{\partial t} = \frac{D_{el}}{L^{2}} \frac{\partial^{2} A_{l}}{\partial z^{2}} - \frac{u_{l}}{L} \frac{\partial A_{l}}{\partial z} + (K_{gl})_{A} a_{gl} (A^{*} - A_{l}) - (K_{ls})_{A} a_{ls} (A_{l} - A_{s})$$
(3.2)

Condições de contorno:

$$\frac{D_{el}}{L} \frac{\partial A_{l}}{\partial z}\Big|_{z=0} = u_{l} (A_{l} - A_{lf})$$

$$\frac{\partial A_1}{\partial z}\Big|_{z=1} = 0$$

Balanço de massa do reagente B na fase líquida:

$$\varepsilon_{l} \frac{\partial B_{l}}{\partial t} = \frac{D_{el}}{L^{2}} \frac{\partial^{2} B_{l}}{\partial z^{2}} - \frac{u_{l}}{L} \frac{\partial B_{l}}{\partial z} - (K_{ls})_{B} a_{ls} (B_{l} - B_{s}^{s})$$
(3.3)

Condições de contorno:  $\frac{D_{el}}{L} \frac{\partial B_l}{\partial z}\Big|_{z=0} = u_1 (B_1 - B_{lf})$ 

$$\frac{\partial B_1}{\partial z}\Big|_{z=1} = 0$$

Balanço de energia na fase fluida:

$$(\varepsilon_{g} \rho_{g} C_{pg} + \varepsilon_{l} \rho_{l} C_{pl}) \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{(\varepsilon_{g} \lambda_{g} + \varepsilon_{l} \lambda_{l}) \partial^{2} T}{L^{2} \partial z^{2}} - \frac{(\varepsilon_{g} \rho_{g} C_{pg} u_{g} + \varepsilon_{l} \rho_{l} C_{pl} u_{l}) \partial T}{L \partial z} + h_{s} a_{ls} (T_{s}^{s} - T) - \frac{4U}{D_{t}} (T - T_{r})$$

$$(3.4)$$

Condições de contorno:

$$\frac{\left(\varepsilon_{g} \lambda_{g} + \varepsilon_{1} \lambda_{1}\right) \partial T}{L} \bigg|_{z=0} = \left(\varepsilon_{g} \rho_{g} C_{pg} u_{g} + \varepsilon_{1} \rho_{1} C_{p1} u_{1}\right) (T - T_{f})$$
$$\frac{\partial T}{\partial z} \bigg|_{z=1} = 0$$

Balanço de energia do fluido refrigerante:

$$\rho_{\rm r} \, C_{\rm pr} \frac{\partial T_{\rm r}}{\partial t} = -\frac{\rho_{\rm r} \, C_{\rm pr} \, u_{\rm r}}{L} \frac{\partial T_{\rm r}}{\partial z} + \frac{4U}{D_{\rm t}} (T - T_{\rm r}) \tag{3.5}$$

Condição de contorno:  $T_r = T_{rf}$ , z = 0

#### II – Balanços para a fase sólida

Balanço de massa para o reagente A na fase sólida:

$$(1-\varepsilon)\varepsilon_{s}\frac{\partial A_{s}}{\partial t} = (K_{ls})_{A}a_{ls}(A_{l}-A_{s}) - \frac{(1-\varepsilon)\rho_{s}}{A_{ref}}R_{W}(A_{s},B_{s},T_{s})$$
(3.6)

Balanço para o reagente B na fase sólida:

$$(1-\varepsilon)\varepsilon_{s}\frac{\partial B_{s}}{\partial t} = (K_{ls})_{B}a_{ls}(B_{l}-B_{s}) - \frac{\nu(1-\varepsilon)\rho_{s}}{B_{ref}}R_{W}(A_{s},B_{s},T_{s})$$
(3.7)

Balanço de energia na fase sólida:

$$(1-\varepsilon)\rho_{s}C_{ps}\frac{\partial T_{s}}{\partial t} = h_{s}a_{ls}(T_{s}-T) + \frac{(1-\varepsilon)\rho_{s}(-\Delta H_{R})}{T_{ref}}R_{W}(A_{s},B_{s},T_{s})$$
(3.8)

Onde:

- a área interfacial,  $m^{-1}$ ;
- A concentração do componente A, kmol/m<sup>3</sup>;
- B concentração do componente B, kmol/m<sup>3</sup>;
- Cp capacidade calorífica, kJ/kg K;
- De difusividade mássica efetiva,  $m^2/s$ ;
- Dt diâmetro do reator;
- h coeficiente de transferência de calor, kJ/m<sup>2</sup> s K;
- K coeficiente de transferência de massa entre fases, cm/s;
- L comprimento do reator, m;
- rp posição radial da partícula adimensional;
- Rp raio da partícula, m;
- T temperatura, K;
- Tr temperatura do fluido refrigerante, K;
- u velocidade linear, m/s;
- U coeficiente global de transferência de transferência de calor, kJ/m<sup>2</sup> s K;
- z posição axial adimensional no reator;
- $\Delta H_R$  calor de reação, kJ/kmol;
- R<sub>w</sub> taxa de reação, kmol/kg catalisador.s;
- ε porosidade ;
- $\lambda$  condutividade térmica, kJ/m s K;
- v coeficiente estequiométrico;
- $\rho$  densidade, kg/m<sup>3</sup>.

## Subscritos:

- A componente A
- B componente B
- f alimentação;
- g fase gasosa;
- gl gás-líquido;
- 1 fase líquida;
- ls líquido-sólido;
- p partícula;
- s sólido.

## Sobrescrito:

s superfície da partícula.

As equações do balanço descritas acima são do tipo equações diferenciais parciais e equações diferenciais ordinárias. Para que o modelo possa ser resolvido, é necessário que as equações diferenciais parciais sejam convertidas em equações diferenciais ordinárias, por algum método de discretização. Para tanto foi utilizado o método da Colocação Ortogonal. A escolha deste método é justificada pela sua facilidade de implementação, o que o torna muito aplicado em problemas de Engenharia Química. A otimização da escolha dos pontos de colocação requer menos termos de expansão se comparados com os requeridos pelo método de colocação. Quando comparado com os métodos de Garlekin ou dos Mínimos Quadrados, exige menor esforço na manipulação de expressões algébricas já que não necessita de solução de integrais (TOLEDO, 2000).

O sistema de equações gerado pela aplicação do método da Colocação Ortogonal foi resolvido usando o pacote DASSL, que é específico para sistemas algébrico-diferenciais e com natureza rígida (*stiff*).

## 3.2. Conclusões

Este capítulo apresentou a modelagem dinâmica do reator de lama trifásico no qual ocorre a reação de hidrogenação do o-cresol formando como produto o 2-metilciclohexanol. A partir do modelo disponível e suas equações resolvidas, as variáveis de processo podem ser identificadas, e é possível proceder à aplicação das técnicas de controle e otimização que foram propostas. Antes, porém, é necessário fazer um estudo do comportamento dinâmico do processo a fim de se identificar as suas variáveis mais importantes e as variáveis de entrada que têm maior influência sobre uma variável de saída específica. Este estudo será feito no próximo capítulo.

# CAPÍTULO 4 - Estudo do Comportamento Dinâmico do Reator

Este capítulo apresenta um estudo do comportamento dinâmico do reator trifásico, identificando as variáveis de entrada que têm maior influência sobre as variáveis de saída, podendo-se, assim, determinar possíveis estruturas de controle para o processo. Também é apresentado um planejamento fatorial que determina as variáveis mais importantes do processo e que será utilizado na etapa de construção do modelo estatístico para a otimização do reator trifásico.

## 4.1. Avaliação da influência das variáveis de entrada sobre as variáveis de saída

O estudo do comportamento dinâmico do reator de produção de 2-metilciclohexanol tem como objetivo determinar as variáveis do processo que precisam ser medidas, manipuladas e controladas para constituir uma estrutura de controle viável para o processo.

Para tanto, é feita uma análise das variáveis de saída a partir de perturbações nas variáveis de entrada, utilizando um programa computacional feito em Fortran para a reação de hidrogenação do o-cresol.

Antes de partir para o estudo do comportamento dinâmico do processo é importante fazer um comentário sobre a formação de pontos quentes em reatores trifásicos.

Como já foi dito anteriormente, reatores trifásicos apresentam um problema de formação de pontos quentes, que são pontos onde ocorre a máxima temperatura ao longo do comprimento do reator, sendo mais comuns em reatores de leito fixo. A sua existência e localização dependem do tipo de reator e das condições operacionais e da alimentação. A formação de pontos quentes pode levar à desativação total ou parcial do catalisador e à diminuição da eficiência do reator, além de representar um risco à segurança de operação do mesmo.

O estudo do comportamento dinâmico seria importante meio de se identificar a existência e onde ocorrem esses pontos quentes. Para identificar se ocorre a formação de pontos quentes no reator de hidrogenação do o-cresol, COSTA (2001) determinou os perfis de temperatura ao longo do comprimento do reator mostrando que a temperatura é sempre

mais alta na entrada ou na saída do reator. A previsão do modelo mostra que a variação da temperatura ao longo do reator não é demasiadamente grande e o controle usando somente um ponto de medida da saída do reator já deve ser eficaz.

Feita essa consideração, pode-se partir para o estudo do comportamento dinâmico do reator, definindo-se, primeiramente, as variáveis de entrada e saída relevantes do processo.

Como variáveis de entrada, foram consideradas as seguintes:

- ug velocidade linear do gás (m/s)
- ul velocidade linear do líquido (m/s)
- ur velocidade linear do fluido refrigerante(m/s)
- Agf concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator ( kmol/m<sup>3</sup> )
- Alf concentração de hidrogênio na fase líquida na alimentação do reator ( kmol/m<sup>3</sup> )
- Blf concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação do reator ( kmol/m<sup>3</sup> )
- Tf temperatura de alimentação do reator (K)
- Trf temperatura de alimentação do fluido refrigerante (K)

Como variáveis de saída, foram consideradas as variáveis de maior interesse para um esquema de controle; são elas:

- T temperatura de saída do reator (K)
- Bl concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (kmol/m<sup>3</sup>)

Foram feitas perturbações de  $\pm 10\%$  e de  $\pm 25\%$  nas variáveis de entrada a fim de se verificar a influência das mesmas sobre as variáveis de saída.

Foram plotados gráficos mostrando os perfis das variáveis de saída T e Bl em função do tempo para as perturbações de  $\pm 10\%$  e de  $\pm 25\%$  em cada variável de entrada.

Foram feitos também cálculos do desvio percentual da variável de saída analisada em relação ao seu valor inicial para a perturbação de  $\pm 10\%$  em cada variável de entrada. Foi considerado que uma variável de entrada não exerce nenhuma influência sobre as Capítulo 4 – Estudo do Comportamento Dinâmico do Reator

variáveis de saída quando os valores do desvio percentual são inferiores a 3%. Entre 3 e 7% a influência é fraca e acima de 7% a influência é forte.

## 4.2. Variável de saída analisada: Temperatura de saída do reator (T)

a) Perturbação em ug (velocidade linear do gás)



Figura 4. 1- Efeito de ug na temperatura de saída do reator

Nota-se, na Figura 4.1, que a velocidade linear do gás (ug) tem efeito direto sobre a temperatura de saída do reator (T) pois um aumentando-se ug, T também aumenta. Verifica-se também que este efeito é fraco, pois ao se perturbar a velocidade linear do gás (ug) em  $\pm 10\%$  e em  $\pm 25\%$ , é pequena a variação na temperatura de saída do reator (T).

A conclusão gráfica pode ser comprovada pela análise em termos de desvio percentual fazendo, após a perturbação, a diferença entre a temperatura de saída final (Tfin) e a temperatura de saída inicial (Tini) em relação à temperatura de saída inicial (Tini):

Para a perturbação de +10% em ug
(Tfin-Tini)\* 100 / Tini = (539,17498-539,11828) \* 100 / 539,11828 = 0,01052%
Para a perturbação de -10% em ug
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (539,0477-539,11828) \* 100 / 539,11828 = -0,01309%

Percebe-se que a variação da temperatura de saída do reator, após a perturbação de +10%, é de apenas 0,01052% e, após a perturbação de -10%, é de apenas 0,01309%, o que

leva à conclusão de que a velocidade linear do gás (ug) não tem influência sobre a temperatura de saída do reator (T) para estas condições operacionais.



b) Perturbação em ul (velocidade linear do líquido)

Figura 4. 2 - Efeito de ul na temperatura de saída do reator

Analisando-se a Figura 4.2, é possível perceber que o efeito da velocidade linear do líquido (ul) sobre a temperatura de saída do reator (T) é direto, pois um aumento em ul ocasiona um aumento em T. Percebe-se também que este efeito é fraco, pois ao se perturbar a velocidade linear do líquido (ul), a variação na temperatura de saída do reator (T) é pequena.

A conclusão gráfica pode ser comprovada pela análise em termos de desvio percentual fazendo, após a perturbação, a diferença entre a temperatura de saída final (Tfin) e temperatura de saída inicial (Tini) em relação à temperatura de saída inicial (Tini):

Para a perturbação de +10% em ul
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (539,64220-539,11828) \* 100 / 539,11828 = 0,09718%
 Para a perturbação de -10% em ul
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (539,45461-539,11828) \* 100 / 539,11828 = 0,06238%

Observa-se que o desvio percentual da temperatura de saída é de apenas 0,09718% após a perturbação de +10% em ul, e de 0,06238% após a perturbação de -10%, confirmando que a velocidade linear do líquido (ul) não tem influência sobre a variável de saída (T).



## c) Perturbação em ur (velocidade linear do fluido refrigerante)

Figura 4.3 - Efeito de ur na temperatura de saída do reator

Para a perturbação de +10% em ur
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (538,68243-539,11828)\*100 / 539,11828 = -0,08084 %
 Para a perturbação de -10% em ur
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (539,63149-539,11828)\* 100 / 539,11828 = 0,09519 %

Analisando-se a Figura 4.3 para as perturbações de  $\pm 10\%$  e de  $\pm 25\%$ , nota-se que o efeito de ur sobre T é indireto, pois aumentando-se ur, T diminui. A análise gráfica e a os baixos valores dos desvios percentuais da variável de saída (T) para as perturbações de  $\pm 10\%$  na variável de entrada (ur), nos leva a concluir que a velocidade linear do fluido refrigerante (ur) não tem influência sobre a temperatura de saída do fluido refrigerante (T).

d) Perturbação em Agf (concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator)



Figura 4. 4 - Efeito de Agf na temperatura de saída do reator

Para a perturbação de +10% em Agf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (539,85787-539,11828) \* 100 / 539,11828 = 0,13718 %
 Para a perturbação de -10% em Agf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (538,31678-539,11828) \* 100 / 539,11828 = 0,14867 %

Pode-se observar que os desvios percentuais em relação aos anteriores são maiores, mas ainda continuam baixos para que a variável de entrada (Agf) pudesse influenciar a variável de saída (T). Também pela análise da Figura 4.4, pode-se perceber que a concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator (Agf) não exerce influência significativa sobre a temperatura de saída do reator (T).

Capítulo 4 - Estudo do Comportamento Dinâmico do Reator

e) Perturbação em Alf (concentração de hidrogênio na fase líquida na alimentação do reator)



Figura 4. 5 - Efeito de Alf na temperatura de saída do reator

Para a perturbação de +10% em Alf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (539,12528-539,11828)\* 100 / 539,11828 =0,001298 %
 Para a perturbação de -10% em Alf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (539,11127-539,11828)\*100 / 539,11828 =-0,001300 %

Analisando-se a Figura 4.5 e observando-se que os valores dos desvios são muito baixos, pode-se concluir que a concentração de hidrogênio na fase líquida na alimentação do reator (Alf) não tem nenhuma influência sobre a temperatura de saída do reator (T).

f) Perturbação em Blf (concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação do reator)



Figura 4. 6 - Efeito de Blf na temperatura de saída do reator

Para a perturbação de +10% em Blf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (540,25155-539,11828) \* 100 / 539,11828 = 0,21021 %
 Para a perturbação de -10% em Blf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (537,97857-539,11828) \* 100 / 539,11828 =-0,21140 %

Os valores dos desvios percentuais são um pouco maiores do que os anteriores, mas não o suficiente para que Blf exerça alguma influência sobre T. A Figura 4.6 ilustra essa afirmação, pois a variação da temperatura de saída do reator (T) é muito baixa quando a variável Blf é perturbada em  $\pm 10\%$  e  $\pm 25\%$ . Portanto, a concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação do reator (Blf) não exerce influência sobre a temperatura de saída do reator (T).



g) Perturbação em Tf (temperatura de alimentação do reator)

Figura 4.7 - Efeito de Tf na temperatura de saída do reator

Para a perturbação de +10% em Tf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (582,17736-539,11828) \* 100 / 539,11828 = 7,98694%
 Para a perturbação de -10% em Tf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (495,76853-539,11828) \* 100 / 539,11828 = -8,04086%

Como pode ser observado, os valores de desvio percentual para perturbações de  $\pm 10\%$  em Tf são maiores que 7%, o que implica que a temperatura de alimentação do reator (Tf) tem forte influência sobre a temperatura de saída do reator (T), como pode ser visto na Figura 4.7 que também mostra o efeito direto da perturbação de  $\pm 25\%$ .

- 650-625 -Trf (+25%) = 625 600 575-Trf (+10%) = 550 550 525 T (K) 500 Trf (-10%) = 450 475-450-Trf (-25%) = 375 425-400-600 1000 0 200 400 800 Tempo (s)
- *h) Perturbação em Trf (temperatura de alimentação do fluido refrigerante)*

Figura 4.8 - Efeito de Trf na temperatura de saída do reator

Para a perturbação de +10% em Trf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (556,17259-539,11828) \* 100 / 539,11828 = 3,16337%
 Para a perturbação de -10% em Trf
 (Tfin-Tini)\*100 / Tini = (522,02574-539,11828)\*100 / 539,11828 = -3.17046%

Como os valores dos desvios percentuais são maiores que 3% e menores que 7% pode-se afirmar que a temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf) tem influência fraca sobre a temperatura de saída do reator (T). Esse efeito é ilustrado pela Figura 4.8, que mostra também que o efeito de Trf sobre T é direto, já que um aumento em Trf acarreta um aumento em T.

## 4.3. Variável de Saída: Concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl)



a) Perturbação em ug (velocidade linear do gás)

Figura 4.9 - Efeito de ug na concentração de o- cresol na saída do reator

Para a perturbação de +10% em ug
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01294-0,01299) \* 100 / 0,01299 = -0,38491%
Para a perturbação de -10% em ug
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01306-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 0,53888 %

O efeito da velocidade linear do gás (ug) na concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl) pode ser observado na Figura 4.9. Nota-se que não há variação relevante na concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).

O cálculo do desvio percentual da variável de saída Bl, quando são feitas perturbações de  $\pm 10\%$  na variável de entrada ug, forneceu valores abaixo de 3%. Isto nos leva à conclusão de que a velocidade linear do gás (ug) não tem nenhuma influência sobre a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).



b) Perturbação em ul (velocidade linear do líquido)

Figura 4. 10 - Efeito de ul na concentração de o- cresol na saída do reator

Para a perturbação de +10% em ul
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01354-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 4,23403 %
Para a perturbação de -10% em ul
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01240-0,01299) \* 100 / 0,01299 = -4,54195 %

A Figura 4.10 mostra que o efeito da variável de entrada ul sobre a variável de saída Bl é direto, pois aumentando-se ul, há também um aumento em Bl. Pode ser visualizada uma pequena variação em Bl quando são feitas perturbações de  $\pm 10\%$  e de  $\pm 25\%$  em ul.

Pelo cálculo do desvio percentual foi observada uma variação em Bl entre 3 e 7%, o que leva à conclusão de que a velocidade linear do gás (ul) exerce uma influência fraca sobre a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).





Figura 4. 11 - Efeito de ur na concentração de o-cresol na saída do reator

Para a perturbação de +10% em ur
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01305-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 0,46189 %
Para a perturbação de -10% em ur
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01293-0,01299) \* 100 / 0,01299 = -0,46189 %

A Figura 4.11 mostra o efeito da variável de entrada ur sobre a variável de saída Bl. Percebe-se que ao se fazer perturbações de  $\pm 10\%$  e  $\pm 25\%$  em ur, a variável Bl praticamente não sofre alteração.

Fazendo-se o cálculo do desvio percentual, foram encontrados valores abaixo de 3%, o que comprova que a velocidade linear do gás (ur) não tem nenhuma influência sobre a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).

d) Perturbação em Agf (concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator)



Figura 4. 12 - Efeito de Agf na concentração de o-cresol na saída do reator

➢ Para a perturbação de +10% em Agf
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01226-0,01299) \* 100 / 0,01299 = -5,61971 %
➢ Para a perturbação de -10% em Agf
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01378-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 6,08160 %

A Figura 4.12 mostra que o efeito da variável de entrada Agf sobre a variável de saída Bl é indireto, pois diminuindo-se Agf, Bl aumenta. Pode-se notar também que as perturbações de  $\pm 10\%$  e  $\pm 25\%$  em Agf, provocam efeito pequeno em Bl.

Fazendo-se o cálculo do desvio percentual, foram encontrados valores entre 3 e 7%, o que confirma que a concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator (Agf) tem influência fraca sobre a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).

e) Perturbação em Alf (concentração de hidrogênio na fase líquida na alimentação do reator)



Figura 4. 13 - Efeito de Alf na concentração de o-cresol na saída do reator

Para a perturbação de +10% em Alf
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01299-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 0 %
Para a perturbação de -10% em Alf
(Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01300-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 0,07698%

A Figura 4.13 mostra o efeito da variável de entrada Alf sobre a variável de saída Bl. Percebe-se claramente que ao se fazer perturbações de  $\pm 10\%$  e  $\pm 25\%$  em Alf, a variável Bl permanece praticamente inalterada.

De acordo com o cálculo do desvio percentual, a variação em Bl é inferior a 3%, o que confirma que a concentração de hidrogênio na fase líquida na alimentação do reator Alf não tem a mínima influência sobre a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).



f) Perturbação em Blf (concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação do reator)

Figura 4. 14 - Efeito de Blf na concentração de o- cresol na saída do reator

Para a perturbação de +10% em Blf
 (Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01425-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 9,69977%
 Para a perturbação de -10% em Blf
 (Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01173-0,01299) \* 100 / 0,01299 = -9,69977 %

A Figura 4.14 mostra que o efeito da variável de entrada Blf sobre a variável de saída Bl é direto, já que um aumento em Blf, ocasiona um aumento em Bl. Nota-se também que perturbações de  $\pm 10\%$  e  $\pm 25\%$  em Blf, provocam um efeito forte sobre Bl.

O desvio percentual de Bl é superior a 7%, o que confirma que a concentração de ocresol na fase líquida na alimentação do reator (Blf) tem forte influência sobre a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).



g) Perturbação em Tf (temperatura de alimentação do reator)

Figura 4. 15 - Efeito de Tf na concentração de o-cresol na saída do reator

Para a perturbação de +10% em Tf
 (Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,00754-0,01299) \* 100 / 0,01299 = -41,95535 %
 Para a perturbação de -10% em Tf
 (Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01871-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 44,03387 %

A Figura 4.15 ilustra o efeito indireto da variável de entrada Tf sobre a variável de saída Bl, pois como pode ser visto, um aumento em Tf, implica uma diminuição em Bl, o que significa que o aumento de Tf favorece a conversão diminuindo a concentração de ocresol na fase líquida na saída do reator (Bl). Nota-se também que perturbações de  $\pm 10\%$  e  $\pm 25\%$  em Tf, provocam um efeito forte sobre Bl.

O desvio percentual de Bl é muito superior a 7%, o que confirma que a temperatura de alimentação do reator (Tf) tem forte influência sobre a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).



h) Perturbação em Trf (temperatura de alimentação do fluido refrigerante)

Figura 4. 16 - Efeito de Trf na concentração de o-cresol na saída do reator

Para a perturbação de +10% em Trf
 (Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01079-0,01299) \* 100 / 0,01299 = -16.93610 %
 Para a perturbação de -10% em Trf
 (Tfin-Tini) \* 100 / Tini = (0,01523-0,01299) \* 100 / 0,01299 = 17,24403 %

A Figura 4.16 mostra o efeito direto da variável de entrada Trf sobre a variável de saída Bl, já que um aumento em Trf gera um aumento em Bl. Pode-se observar também que as perturbações de  $\pm 10\%$  e  $\pm 25\%$  em Blf provocam forte efeito sobre Bl.

O desvio percentual de Bl é superior a 7%, o que confirma que a temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf) tem forte influência sobre a concentração de ocresol na fase líquida na saída do reator (Bl).

## 4.4. Conclusão do Estudo do Comportamento Dinâmico do Reator

O estudo do comportamento dinâmico do reator analisou a influência das variáveis de entrada sobre as variáveis de saída quando as primeiras sofrem perturbações de  $\pm 10\%$  e de  $\pm 25\%$ . Como variáveis de saída, foram consideradas a temperatura de saída do reator (T) e a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl). Concluiu-se que a

#### Capítulo 4 – Estudo do Comportamento Dinâmico do Reator

temperatura de saída do reator (T) sofre influência forte da temperatura de alimentação do reator (Tf) e influência fraca da temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf).

A concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl) sofre influência fraca da velocidade linear do gás (ul) e da concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação (Agf) e influência forte das seguintes variáveis: concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação (Blf), temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf) e temperatura de alimentação do reator (Tf).

Como pôde ser visto, as velocidades lineares dos reagentes e do fluido refrigerante não têm influência forte sobre a temperatura de saída do reator (T) nem sobre a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl). Assim, as vazões de reagentes e de fluido refrigerante não podem ser consideradas como variáveis manipuladas. Esta conclusão se torna um inconveniente no estudo do controle da temperatura de saída do reator, que teria um controle mais viável a partir da manipulação da vazão de fluido refrigerante.

É importante ressaltar que o modelo adotado aqui não considera mudança de fase dos fluidos reagentes nem do fluido refrigerante, sendo, para tanto, considerado que a pressão do sistema é suficiente para que não ocorra vaporização. Complexidade esta que vem sendo estudada por TOLEDO (2001) e que poderá alterar o comportamento do processo de forma que as vazões cheguem a ter influência sobre as variáveis de saída.

O maior desafio nos reatores trifásicos, segundo SANTANA (1999), é a maior conversão possível do componente líquido. Assim, uma forma de controle seria sustentar a concentração de o-cresol na saída do reator (Bl) como um valor fixo baixo, manipulando as variáveis Blf, Tf e Trf. Porém, segundo JORGENSEN e JENSEN (1989), medidas de concentração em tempo real são dispendiosas, além de ocasionar atrasos significativos. Dessa forma torna-se mais viável controlar a temperatura controlando indiretamente a concentração. Assim sendo, uma possível estrutura de controle seria a de controle da temperatura tendo como variáveis manipuladas Tf e Trf.

#### 4.5. Planejamento Fatorial

Posteriormente ao estudo do comportamento dinâmico do processo, foi feito um planejamento fatorial que também tem o objetivo de determinar as variáveis mais

importantes no processo. Baseado em princípios estatísticos, o planejamento fatorial contribui para um estudo mais aprofundado do sistema considerado e é bastante aplicado aos processos de Engenharia. Além disso, o uso da técnica de planejamento fatorial é importante nesse trabalho, pois será imprescindível na etapa de construção do modelo empírico para a otimização do reator trifásico.

O planejamento fatorial consiste em determinar a influência de determinada variável sobre uma outra variável de interesse. Para isso, é preciso definir as variáveis estudadas (fatores), os valores dos fatores usados no estudo (níveis) e as respostas de interesse.

Um planejamento fatorial completo compreende a realização de experimentos (ou simulações) em todas as possíveis combinações dos níveis dos fatores. A representação geral de um planejamento fatorial completo é dada por  $y^k$ , onde y é o número de níveis do planejamento e k é o número de fatores. O planejamento fatorial mais simples é o  $2^k$  por ser avaliado em apenas dois níveis. As  $2^k$  combinações possíveis dos dois níveis podem ser listadas na chamada matriz de planejamento.

Em planejamentos de dois níveis, os sinais (+) e (-) representam os níveis superiores e inferiores avaliados, respectivamente. Quando os efeitos dos fatores passam de um nível para outro, são ditos efeitos principais ou efeitos de interação.

O número de fatores envolvidos em um planejamento fatorial completo, pode muitas vezes ser grande, o que eleva o número de ensaios (simulações) a serem realizadas. Por exemplo, com 8 fatores, é necessário fazer 256 simulações em um planejamento fatorial completo. Além disso, um número alto de fatores aumenta a chance de que um ou mais fatores não influenciem significativamente a resposta, seja através de efeitos principais, seja através de efeitos de interações. Sendo assim, não se faz necessária a realização de todos os experimentos (simulações) do planejamento completo. Uma alternativa ao planejamento fatorial completo é o planejamento fatorial fracionário que permite fazer uma triagem das variáveis selecionando as mais importantes e usando um número menor de ensaios (experimentos). Para fazer um planejamento fatorial completo com 4 variáveis, seria necessário realizar 16 experimentos (simulações). Uma fração meia deste planejamento é representada por  $2^{4\cdot 1}$ , indicando ter 4 fatores, cada um com dois níveis, mas apenas 8 ensaios (simulações). Nota-se que o planejamento fatorial completo

#### Capítulo 4 – Estudo do Comportamento Dinâmico do Reator

foi dividido por dois, o que é mostrado pelo -1 no expoente. Caso ele fosse dividido em quatro partes, o expoente seria 4-2 e assim, sucessivamente (BARROS NETO et al., 2001).

No estudo do reator considerado neste trabalho, estão presentes 8 variáveis de entrada (considerando-se todas as variáveis de entrada no reator) e o planejamento utilizado é o planejamento fatorial fracionário  $2^{8-4}$ . Para realizá-lo são então feitas 16 simulações mais uma, na qual os valores são os do ponto central, perfazendo um total de 17 simulações.

As variáveis de entrada consideradas são:

ug –velocidade linear do gás (m/s)

ul – velocidade linear do líquido (m/s)

ur – velocidade linear do fluido refrigerante(m/s)

Agf – concentração de H<sub>2</sub> na fase gasosa na alimentação do reator (kmol/m<sup>3</sup>)

Alf – concentração de H<sub>2</sub> na fase líquida na alimentação do reator  $(\text{kmol/m}^3)$ 

Blf - concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação do reator (kmol/m<sup>3</sup>)

Tf – temperatura de alimentação do reator (K)

Trf - temperatura de alimentação do fluido refrigerante (K)

As respostas de interesse (considerando-se todas as variáveis de saída no reator) são:

Ag - concentração de H<sub>2</sub> na fase gasosa na saída do reator (kmol/m<sup>3</sup>)

Al – concentração de H<sub>2</sub> na fase líquida na saída do reator (kmol/m<sup>3</sup>)

Bl - concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (kmol/m<sup>3</sup>)

T – temperatura de saída do reator (K)

Tr - temperatura de saída do fluido refrigerante (K)

Os níveis  $\pm 1$  usados no planejamento são dados pelos valores correspondentes a perturbações de  $\pm 15\%$  nos valores referentes ao ponto central, como mostra a Tabela 4.1.

Variável (Fator)	Nível –1	Nível 0	Nível +1
ug	1,53	1,8	2,07
ul	6,80x10 <sup>-3</sup>	8,00 x 10 <sup>-3</sup>	9,2 x10 <sup>-3</sup>
ur	4,25 x10 <sup>-3</sup>	5,0 x 10 <sup>-3</sup>	5,75 x10 <sup>-3</sup>
Agf	1,27 x10 <sup>-3</sup>	$1,5 \times 10^{-3}$	1,72 x10 <sup>-3</sup>
Alf	$1,27 \times 10^{-3}$	1,5 x10 <sup>-3</sup>	1,72 x10 <sup>-3</sup>
Blf	$2,0 \times 10^{-2}$	2,4 x10 <sup>-2</sup>	2,8 x10 <sup>-2</sup>
Tf (	459	540	621
Trf	425	500	575

Tabela 4. 1 - Valores das variáveis nos níveis do planejamento.

A matriz do planejamento fatorial fracionário  $2^{8-4}$  gerada pelo *software Statistica*, no módulo *Experimental Design*, é mostrada na Tabela 4.2.

Simulação	ug	ul	ur	Agf	Alf	Blf	Tf	Trf
1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
2	+1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	-1
3	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1
4	+1	+1	-1	-1	+1	+1	-1	-1
5	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1
6	+1	-1	+1	-1	+1	-1	-1	+1
7	+1	-1	-1	+1	+1	-1	+1	-1
8	+1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1
9	-1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	-1
10	-1	+1	+1	-1	-1	+1	-1	+1
11	-1	+1	-1	+1	-1	+1	+1	-1
12	-1	+1	-1	-1	+1	-1	+1	+1
13	-1	-1	+1	+1	1	-1	+1	+1
14	-1	-1	+1	-1	+1	+1	+1	-1
15	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1
16	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	-1
17	0	0	0	0	0	0	0	0

Tabela 4. 2 - Matriz do Planejamento Fatorial Fracionário 28-4.

As respostas encontradas para cada uma das 17 simulações mostradas na Tabela 4.3 abaixo são referentes aos valores das saídas no estado estacionário.

Tabela 4. 3 - Respostas das Variáveis de Saída.						
Simulação	Ag	Al	B1	T	Tr	
1	0,00141	0,00109	0,00408	632,1844	603,5466	
2	0,00111	0,00093	0,00803	578,6490	503,6207	
3	0,00167	0,00160	0,01626	493,5823	524,2666	
4	0,00126	0,00124	0,02607	452,3844	443,0852	
5	0,00170	0,00168	0,02479	450,5919	438,8670	
6	0,00123	0,00116	0,01512	504,0776	538,4894	
7	0,00158	0,00141	0,00536	572,9185	516,9187	
8	0,00105	0,00080	0,00465	627,1196	605,2543	
9	0,00170	0,00168	0,01901	451,1554	438,7794	
10	0,00119	0,00112	0,02304	496,5358	534,5948	
11	0,00137	0,00109	0,00803	590,8805	527,6219	
12	0,00099	0,00077	0,00462	625,3069	604,8349	
13	0,00148	0,00130	0,00237	621,2800	597,9172	
14	0,00105	0,00087	0,01072	569,0457	498,7128	
15	0,00161	0,00150	0,01890	504,7533	530,9895	
16	0,00126	0,00124	0,01872	451,2427	443,1721	
17	0,00135	0,00120	0,01299	539,1183	521,7688	

Capítulo 4 – Estudo do Comportamento Dinâm	nico do Reator
--	----------------

As estimativas dos efeitos principais de cada resposta, dadas pelo *Statistica*, são mostradas na Tabela 4.4 abaixo, sendo os efeitos significativos (com 95% de confiança) destacados em negrito.

1 a 0 c 1 a + 4 - 12	Sumativas dos Enc	1103				
Variável	Estimativas dos Efeitos Principais das Variáveis de Respostas					
(Fator)	Ag	Al	Bl	Т	Tr	
Ug	0,0000450	0,000042	-0,000131	0,1634	-0,3217	
U	0,0000325	-0,000055	0,001064	2,4562	1,2536	
Ur	0,00001000	0,000022	0,000569	-1,8335	-5,2019	
Agf	0,0004225	0,000402	-0,001521	1,6231	0,8928	
Alf	0,0000000	-0,000005	-0,000251	0,2430	0,0053	
Blf	-0,0000475	-0,000087	0,003849	3,1604	1,8341	
Tf	-0,0001975	-0,000370	-0,014256	126,6326	70,7729	
Trf	-0,000050	-0,000100	-0,003961	48,4965	91,1394	

Tabela 4. 4 - Estimativas dos Efeitos

Através da análise da Tabela 4.4, verifica-se que todas as variáveis de entrada têm alguma influência sobre as variáveis de saída, com exceção de Alf, que não influencia nenhuma saída. Considerando as variáveis de saída Bl e T como as de maior interesse em um esquema de controle, tem-se que as variáveis de entrada que mais influenciam Bl são:

ul, Agf, Blf, Tf e Trf, e as variáveis de entrada que mais influenciam T são: ul, ur, Agf, Blf, Tf e Trf, sendo estas duas últimas as de influência mais forte sobre T.

## 4.6. Conclusões

Através do estudo do comportamento dinâmico do processo, foi possível identificar as variáveis de saída que têm a maior influência sobre as variáveis de saída, T (temperatura de saída do reator) e Bl (concentração de o-cresol na saída do reator). Definiu-se como principais estruturas de controle, o controle da temperatura, manipulando-se a temperatura de alimentação dos reagentes (Tf) e o controle de Bl, manipulando-se a temperatura de alimentação dos reagentes (Tf). Também foi feito um planejamento fatorial que identificou as variáveis de entrada mais importantes para o processo e as variáveis de entrada mais importantes para o processo e as variáveis de entrada mais

O capítulo 5 traz a proposta de estudo das principais estruturas de controle do processo através de um tipo de controlador preditivo baseado em modelo, o Controle por Matriz Dinâmica (*Dynamic Matrix Control* – DMC).

## **CAPÍTULO 5 - Controle de Processos**

Neste capítulo é apresentado o desenvolvimento de um algoritmo baseado no Controle por Matriz Dinâmica (*Dynamic Matrix Control* - DMC) para sistemas monovariáveis (SISO), usado no controle do processo de hidrogenação do o-cresol. É feita uma revisão bibliográfica sobre Controle Preditivo baseado em Modelo, enfocando o DMC. Os resultados gerados da aplicação do controlador DMC ao processo de hidrogenação do ocresol considerando as estruturas de controle propostas pelo estudo do comportamento dinâmico do processo, são apresentados neste capítulo.

### 5.1. Controle Preditivo baseado em Modelo

O controlador implementado é baseado na filosofia do *Dynamic Matrix Control* (DMC), um tipo de Controle Preditivo baseado em Modelo, para o qual também é feita uma revisão bibliográfica.

A definição da estratégia de controle de um reator depende do seu objetivo operacional. O estudo do controle de reatores químicos pode ter vários objetivos tais como, garantir a segurança de operação do reator, a qualidade do produto desejado e a economia de operação do reator.

Um dos tipos de controle moderno mais empregados na indústria de processos atualmente é o Controle Preditivo baseado em Modelo (*Model Predictive Control* – MPC), fato que motivou o emprego do mesmo nesta tese.

O Controle Preditivo baseado em Modelo (*Model Predictive Control* – MPC) fundamenta-se no uso de um modelo dinâmico do processo como parte do controlador. O modelo é usado para predizer os valores futuros das saídas do processo durante um longo período de tempo. Atualmente, as técnicas de controle preditivo baseado em modelo mais robustas são aquelas fundamentadas na otimização de uma função objetivo quadrática envolvendo o erro entre os valores dos *set points* e as saídas preditas.

UNICAMP <u>BIBLIOTECA CEN</u>TRAL SEÇÃO CIRCULANTE A abordagem de controle MPC foi desenvolvida para lidar com problemas de controle multivariáveis complexos onde existam significativas interações entre as entradas (variáveis manipuladas) e as saídas (variáveis controladas). A estratégia MPC apresenta a vantagem de incorporar restrições nas variáveis de processo.

Nas versões com restrições dos algoritmos MPC, o cômputo das ações de controle consiste na resolução, em tempo real, de um problema de programação linear ou quadrática a cada instante de amostragem, assim que novas medidas do processo estejam disponíveis (MELEIRO, 2002).

Para QIN e BADGWELL (1997), o ponto de operação de uma planta química típica que leva ao ótimo econômico, geralmente faz intersecção com as restrições operacionais.

O controlador baseado em Modelo para processos multivariáveis e com restrições indica que a ação de controle é determinada através da solução, em tempo real, de um problema de otimização dinâmico a cada instante de amostragem.

Segundo SEBORG (1999), a identificação do modelo é fundamental na implementação da estratégia MPC. Em geral, os modelos são desenvolvidos a partir de testes experimentais em malha aberta. A princípio, a abordagem MPC pode ser implementada a partir de uma grande variedade de modelos de processo: determinísticos, lineares ou não lineares, estáticos ou dinâmicos. Porém, a maioria das aplicações industriais utiliza modelos dinâmicos discretos na forma de resposta ao degrau ou ao impulso. Também têm sido utilizados os modelos na forma de função de transferência empregados no Controle Preditivo Generalizado (*Generalized Predictive Control* - GPC).

O Controle MPC pode ser subdividido em vários tipos de controle, tais como o Controle por Matriz Dinâmica (*Dynamic Matrix Control* - DMC, CUTLER e RAMAKER, 1979), o Controle Algorítmico por Modelo (MAC, RICHALET et al., 1978) e o Controle Preditivo Generalizado (*Generalized Predictive Control* - GPC, CLARKE et al., 1987 a e b), dependendo do tipo de modelo utilizado pelo controlador, do tipo de função objetivo empregada e do tratamento das restrições impostas ao processo.

Destas técnicas de controle citadas, a mais difundida tem sido o Controle por Matriz Dinâmica (*Dynamic Matrix Control* -DMC) que, juntamente com o Controle Algorítmico por Modelo (*Model Agorithm Control* - MAC), foram as precursoras das outras técnicas de controle preditivo.

Os algoritmos de controle DMC e MAC diferem-se dos demais no que diz respeito ao modelo interno do processo. Ambos utilizam um modelo de convolução obtido do comportamento dinâmico do sistema frente a perturbações nas variáveis de entrada, enquanto os outros algoritmos utilizam modelos matemáticos paramétricos que precisam ser ajustados ao comportamento do processo. O modelo de convolução é construído a partir do impulso implementado no sistema. Existe, porém, uma relação entre os coeficientes da resposta ao impulso e os coeficientes da resposta ao degrau. Na prática, o modelo baseado na resposta ao degrau é implementado no DMC e o controlador baseado na resposta ao impulso é o MAC. Tanto o DMC quanto o MAC podem lidar com restrições nas variáveis controladas e manipuladas.

Comparado com o controle clássico, o controle preditivo apresenta algumas vantagens, tais como o sucesso no controle de processos multivariáveis, a possibilidade de ser utilizado com restrições de igualdade e desigualdade, tanto nas saídas do processo quanto nas variáveis manipuladas, além do emprego em sistemas com respostas incomuns, como respostas inversas e respostas com tempo morto.

MARCHETTI et al. (1983) compararam a técnica de controle preditivo com o controle clássico PID. As simulações mostraram que a técnica de controle preditivo obteve melhor desempenho do que o controle convencional PID para três processos representativos. Foi concluído que as técnicas de controle preditivo baseadas em modelos de convolução discretos representam uma poderosa ferramenta de projeto, especialmente para aqueles processos de difícil modelagem.

A Figura 5.1 representa a estrutura básica de um controle preditivo (MELEIRO, 2002). No instante de amostragem k, o controlador recebe informação sobre o estado atual do sistema quando, baseado no modelo do processo, calcula as ações de controle futuras. A trajetória de entradas futuras é, então, determinada segundo um critério de otimização, e a primeira ação de controle é implementada até a próxima amostragem.



Figura 5.1 - Estrutura básica de um controle preditivo

## 5.2.Controle por Matriz Dinâmica (DMC)

Dentre os tipos de controladores baseados em modelo, citados acima, o Controle por Matriz Dinâmica (*Dynamic Matrix Control* – DMC), é o mais utilizado na indústria e será empregado nesta tese.

O algoritmo DMC foi originalmente desenvolvido na *Shell Oil Company*. Em 1980, CUTLER e RAMAKER apresentaram pela primeira vez a técnica e ilustraram sua aplicação para um sistema de forno - pré-aquecedor industrial. PRETT e GILLETE (1980) descreveram uma versão multivariável com restrição do controlador, a qual foi aplicada para uma unidade de craqueamento catalítico em uma refinaria. CUTLER (1982) mostrou como o DMC pode ser modificado para aplicações a processos auto-reguladores.

O DMC utiliza um modelo linear, chamado modelo de convolução, o qual é obtido diretamente do sistema a ser controlado, através de perturbações do tipo degrau nas variáveis de entrada (variáveis manipuladas e/ou perturbações medidas). Pode ser aplicado tanto em sistemas monovariáveis (SISO) quanto multivariáveis (MIMO).

COSTA (2000), no estudo do processo fermentativo para produção de etanol, mostrou a eficiência do controlador DMC SISO e MIMO para os casos regulatório e supervisório. Para os casos de controle DMC MIMO, foram mostradas inúmeras vantagens em relação ao controle PID, já que trabalha com as interações entre as variáveis de um forma mais adequada.

DECHECHI (1994) desenvolveu e aplicou o DMC a um processo fermentativo contínuo de múltiplos estágios com reciclo de microorganismos, de porte industrial, apresentando bons resultados na obtenção de altas taxas de produtividade/rendimento, demonstrando ser este um controlador factível para aplicações em níveis industriais.

O algoritmo DMC calcula as futuras mudanças nas variáveis manipuladas que fazem com que as variáveis controladas sigam um caminho ótimo (*set point*). Este caminho ótimo é determinado pela otimização de uma função objetivo.

Dependendo da função objetivo a ser minimizada (quadrática ou linear) e das restrições (igualdade ou desigualdade), o algoritmo DMC apresenta alguns variantes da metodologia original. São eles, o LDMC, o QDMC e o NLDMC/NLQDMC.

O LDMC (*Linear* DMC) resolve o problema da otimização como um problema de Programação Linear (PL) que minimiza o erro absoluto entre a trajetória desejada e a predita. O LDMC suporta restrições, explicitamente, tanto nas saídas controladas quanto nas entradas manipuladas.

O QDMC (*Quadratic* DMC) resolve o problema da otimização como um problema de Programação Quadrática (QP), que minimiza o erro quadrático entre a trajetória desejada e a predita. Havendo restrições de desigualdade, o problema que poderia ser resolvido por mínimos quadrados passa a ser um problema de Programação Quadrática.

O NLDMC (*non linear* DMC) e o NQLDMC (*non linear quadratic* DMC) utilizamse dos mesmos conceitos das duas técnicas citadas anteriormente, porém, introduzindo a aplicação de uma modelagem não linear.

## 5.2.1. Controle DMC para Sistemas Monovariáveis (SISO)

O algoritmo DMC baseia-se no cálculo de NC (Horizonte de Controle) valores futuros da variável manipulada a partir de uma minimização de NP (Horizonte de Predição) valores futuros do quadrado da diferença entre o *set point* e a saída predita pelo modelo de convolução. Sendo que este é formado por NM (Horizonte de Modelo) valores da saída obtida a partir da resposta ao impulso ou ao degrau.

A seguir é apresentado o desenvolvimento do algoritmo DMC para sistemas monovariáveis (SISO).

Para um bom entendimento do controle DMC deve-se partir do projeto de um controlador DMC-SISO, conhecer todas as suas particularidades de implementação, dificuldades de ajuste de seus parâmetros e, finalmente, analisar seu potencial de utilização diante dessas particularidades e dificuldades (DECHECHI, 1998).

Como já foi dito, o algoritmo DMC usa um modelo de convolução discreto, baseado na resposta ao degrau, para representar o processo. Neste modelo, a variável de saída (controlada) se relaciona com a variável de entrada (manipulada) através dos coeficientes de resposta ao degrau *ai*.

Em cada instante de amostragem, o valor da resposta ao degrau da variável de saída é medido e é chamado de coeficiente de resposta ao degrau  $a_i$ . A diferença entre os dois coeficientes de resposta ao degrau sucessivos é chamado de coeficiente de resposta ao impulso e é dado por (NEWELL e LEE, 1989):

$$h_i = a_i - a_{i-1} \tag{5.1}$$

Assim, o valor predito da variável de saída y no instante de amostragem k, pode ser descrito da seguinte forma:

Capítulo 5 – Controle de Processos

$$\hat{y}_{k} = \sum_{i=1}^{NM} h_{i} u_{k-i}$$
(5.2)

onde NM é o chamado horizonte de modelo, correspondente ao número de coeficientes da resposta ao impulso necessário para representar 90-95% da resposta estacionária do sistema.

Reescrevendo-se a equação (5.2) para o instante de amostragem k+1, tem-se:

$$\hat{y}_{k+1} = \sum_{i=1}^{NM} h_i u_{k+1-i}$$
(5.3)

Subtraindo-se a equação (5.3) de (5.2), obtém-se:

$$\hat{y}_{k+1} - \hat{y}_{k} = \sum_{i=1}^{NM} h_{i} (u_{k+1-i} - u_{k-i})$$
(5.4)

Definindo-se  $\Delta u_k = u_k - u_{k-1}$ , a equação (5.4) pode ser reescrita da seguinte forma:

$$\hat{y}_{k+1} = \hat{y}_{k} + \sum_{i=1}^{NM} h_{i} \Delta u_{k+1-i}$$
(5.5)

O modelo de convolução representado pela equação (5.5) pode ser estendido para considerar um horizonte de predição de *NP* instantes futuros:

$$\hat{y}_{k+j} = \hat{y}_{k+j-i} + \sum_{i=1}^{NM} h_i \Delta u_{k+1-i} \quad \text{para} \quad j = 1, \dots, NP$$
(5.6)

onde NP é o chamado horizonte de predição.

O algoritmo DMC corrige a predição do modelo dado pela equação (5.6) através de uma estratégia de realimentação, comparando o valor predito da saída, no instante de amostragem k, com o seu valor medido. O desvio calculado entre os dois valores é utilizado para corrigir as futuras predições.

Por exemplo, no instante de amostragem k+1, tem-se:

$$y_{k+1}^{c} = \hat{y}_{k+1} + (y_{k} - \hat{y}_{k})$$
(5.7)

onde  $y_k$  é o valor medido da variável de saída no instante de amostragem  $k \in y_{k+1}^c$  é o valor predito da variável de saída para o instante de amostragem k+1.

Generalizando para os NP instantes futuros:

$$y_{k+j}^c = \hat{y}_{k+j} + (y_{k+j-1}^c - \hat{y}_{k+j-1})$$
 para  $j=1,...,NP$  (5.8)

Nota-se que para o instante k+j com j=1, o termo  $y_{k+j-1}^c$  da equação (5.8) é correspondente ao termo  $y_k$  (valor medido da saída) da equação (5.7).

Para o instante k+2, a equação (5.8) torna-se:

$$y_{k+2}^{c} = \hat{y}_{k+2} + (y_{k+1}^{c} - \hat{y}_{k+1}) = \hat{y}_{k+2} + (\hat{y}_{k+1} + (y_{k} - \hat{y}_{k}) - \hat{y}_{k+1}) = \hat{y}_{k+2} + (y_{k} - \hat{y}_{k})$$
(5.9)

Para o instante k+NP, tem-se:

$$y_{k+NP}^{c} = \hat{y}_{k+NP} + (y_{k} - \hat{y}_{k})$$
(5.10)

As predições para os instantes k+1 até k+NP, são corrigidas pela diferença entre o valor medido e o valor predito da saída do processo no instante atual de amostragem, k.

Combinando-se as equações (5.6) e (5.8), obtém-se:

$$y_{k+j}^{c} = y_{k+j-1}^{c} + \sum_{i=1}^{NM} h_{i} \Delta u_{k+j-i}$$
 para  $j=1,...,NP$  (5.11)

Para o instante k+1 a equação (5.11) acima pode ser reescrita como:

$$y_{k+1}^{c} = y_{k}^{c} + \sum_{i=1}^{NM} h_{i} \Delta u_{k+1-i} = y_{k} + \sum_{i=1}^{NM} h_{i} \Delta u_{k+1-i} = y_{k} + h_{1} \Delta u_{k} + h_{2} \Delta u_{k-1} + \dots + h_{NM} \Delta u_{k+1-NM}$$
(5.12)

54

Como os valores de  $\Delta u_{k-1}$ ,  $\Delta u_{k-2}$ , ...,  $\Delta u_{k-NM}$  são conhecidos, podem ser agrupados em um único termo, tal como descrito abaixo:

$$S_1 = \sum_{i=2}^{NM} h_i \Delta u_{k+1-i}$$
(5.13)

Assim, pode-se reescrever a equação (5.12) que se torna:

$$y_{k+1}^c = y_k + h_1 \Delta u_k + S_1 \tag{5.14}$$

Repetindo-se o procedimento anterior para o instante de amostragem k+2, tem-se:

$$y_{k+2}^{c} = y_{k+1}^{c} + h_1 \Delta u_{k+1} + h_2 \Delta u_k + \dots + h_{NM} \Delta u_{k+2-NM}$$
(5.15)

Pode-se agrupar novamente os termos conhecidos em um único termo:

$$S_2 = \sum_{i=3}^{NM} h_i \Delta u_{k+2-i}$$

E reescrever a equação (5.15):

$$y_{k+2}^{c} = y_{k+1}^{c} + h_1 \Delta u_{k+1} + h_2 \Delta u_k + S_2$$
(5.16)

Substituindo-se a equação (5.14) na equação (5.16), tem-se:

$$y_{k+2}^{c} = y_{k} + (h_{1} + h_{2})\Delta u_{k} + h_{1}\Delta u_{k+1} + S_{1} + S_{2}$$
(5.17)

Definindo-se termos genéricos:

$$P_{i} = \sum_{m=1}^{i} S_{m}$$
(5.18)

$$S_m = \sum_{i=m+1}^{NM} h_i \Delta u_{k+m-i}$$
(5.19)

$$a_i = \sum_{j=1}^i h_j \tag{5.20}$$

Dessa forma, pode-se escrever, para o instante k+j, a seguinte equação:

$$y_{k+j}^{c} = y_{k} + a_{j} \Delta u_{k} + a_{j-1} \Delta u_{k+1} + \dots + a_{1} \Delta u_{k+j-1} + P_{j}$$
(5.21)

Esta equação (5.21) também pode ser escrita na forma matricial a seguir:

$$\begin{bmatrix} y_{k+1}^{c} \\ y_{k+2}^{c} \\ \vdots \\ y_{k+NP-1}^{c} \\ y_{k+NP}^{c} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_{1} & 0 & \cdots & 0 & 0 \\ a_{2} & a_{1} & \cdots & 0 & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ a_{NP-1} & a_{NP-2} & \cdots & a_{1} & 0 \\ a_{NP} & a_{NP-1} & \cdots & a_{2} & a_{1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta u_{k} \\ \Delta u_{k+1} \\ \vdots \\ \Delta u_{k-NP-2} \\ \Delta u_{k+NP-1} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} y_{k} + P_{1} \\ y_{k} + P_{2} \\ \vdots \\ y_{k} + P_{NP-1} \\ y_{k} + P_{NP} \end{bmatrix}$$
(5.22)

ou ainda:

$$(y^{c})_{NP \times 1} = (M)_{NP \times NP} (\Delta u)_{NP \times 1} + (y^{P})_{NP \times 1}$$
 (5.23)

onde M (NP x NP) é a matriz triangular e  $y^P$  (NP x 1) é o vetor de predições dados pela equação (5.22). Este vetor contém as predições feitas para o horizonte de predição levandose em conta apenas as ações de controle tomadas no passado.

Definindo-se o valor desejado como  $y^d$ , igual ao valor do *set point*,  $y_{sp}$ , obtém-se a seguinte notação matricial:

$$\begin{bmatrix} y_{k+1}^{d} \\ y_{k+2}^{d} \\ \vdots \\ y_{k+NP-1}^{d} \\ y_{k+NP}^{d} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} y_{sp_{k}} \\ y_{sp_{k}} \\ \vdots \\ y_{sp_{k}} \\ y_{sp_{k}} \end{bmatrix}$$
(5.24)

Subtraindo-se a equação (5.23) da equação (5.24) e definindo-se  $e_k = y_{spk} - y_k$ , vem:

$$E = -M\Delta u + E^{\prime} \tag{5.25}$$

onde se tem que:
Capítulo 5 - Controle de Processos

$$E = \begin{bmatrix} y_{k+1}^{d} - y_{k+1}^{c} \\ y_{k+2}^{d} - y_{k+2}^{c} \\ \vdots \\ y_{k+NP-1}^{d} - y_{k+NP-1}^{c} \\ y_{k+NP}^{d} - y_{k+NP}^{c} \end{bmatrix} \qquad e \qquad E' = \begin{bmatrix} e_{k} - P_{1} \\ e_{k} - P_{2} \\ \vdots \\ e_{k} - P_{NP-1} \\ e_{k} - P_{NP} \end{bmatrix}$$
(5.26)

Para que a saída predita seja igual à desejada, E = 0 e, conseqüentemente:

$$\Delta u = M^{-1} E^{\prime} \tag{5.27}$$

A solução dada pela equação (5.27) é obtida a partir de um sistema determinado, de solução única e é baseada na imposição de que a variável controlada seja igual à trajetória desejada ao longo de um Horizonte de Controle, *NC*, o que é fisicamente impossível, muitas vezes.

A estratégia DMC consiste em obter um sistema indeterminado reduzindo a dimensão do vetor  $\Delta u$  de acordo com o tamanho do Horizonte de Controle. Para isso, considera-se que  $\Delta u_{k+j} = 0$  para  $j \ge NC$ , sendo que NC > NP (PINTO, 1990).

Com base nessas considerações, pode-se reescrever a equação (5.22):

$$\begin{bmatrix} y_{k+1}^{c} \\ y_{k+2}^{c} \\ \vdots \\ y_{k+NP-1}^{c} \\ y_{k+NP}^{c} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_{1} & 0 & \cdots & 0 \\ a_{2} & a_{1} & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{NP-1} & a_{NP-2} & \cdots & a_{NP-NC} \\ a_{NP} & a_{NP-1} & \cdots & a_{NP-NC+1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta u_{k} \\ \Delta u_{k+1} \\ \vdots \\ \Delta u_{k-NC-2} \\ \Delta u_{k+NC-1} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} y_{k} + P_{1} \\ y_{k} + P_{2} \\ \vdots \\ y_{k} + P_{NP-1} \\ y_{k} + P_{NP-1} \\ y_{k} + P_{NP} \end{bmatrix}$$
(5.28)

ou ainda,

$$(y^{c})_{NP \times 1} = (A)_{NP \times NC} (\Delta u)_{NC \times 1} + (y^{P})_{NP \times 1}$$
(5.29)

Na equação (5.29), a matriz A ( $NP \times NC$ ) é chamada de Matriz Dinâmica que relaciona as entradas com as saídas do processo e através dela é possível calcular analiticamente o vetor ótimo de ações de controle (através da solução de um problema de

mínimos quadrados), (QIN e BADGWELL, 1997). Observa-se que a matriz dinâmica A é formada pelas primeiras NC colunas da matriz M.

Aquele sistema que não apresenta solução única deve ser resolvido segundo um critério de otimização. O algoritmo DMC calcula o vetor  $\Delta u$  para minimizar o seguinte critério de desempenho:

$$J = (E^T E) \tag{5.30}$$

Cuja solução ótima é dada por:

$$\Delta u = (A^T - A)^{-1} A E^{\dagger} \tag{5.31}$$

A equação (5.31) fornece uma solução que representa um problema de otimização sem restrição o que pode provocar ações de controle muitas bruscas. Porém, isto pode ser evitado pela inclusão de um índice de desempenho modificado que incorpora restrições aos movimentos da variável manipulada, segundo a equação abaixo:

$$J = (E^{T}E) + (\Lambda \Delta u)^{T} (\Lambda \Delta u)$$
(5.32)

onde  $\Lambda(NCxNC)$  é uma matriz dos fatores de supressão, de dimensão NCxNC, cujos elementos são:

 $\lambda_{ij} = f \quad se \; i = j$  onde  $f \notin o$  fator de supressão  $\lambda_{ij} = 0 \quad se \; i \neq j$ 

A lei de controle resultante da função objetivo descrita pela equação (5.32) é dada por (CUTLER e RAMAKER, 1979):

$$\Delta u = (A^T A + \Lambda^T \Lambda)^{-1} A^T E^{\dagger}$$
(5.33)

A equação (5.33) gera as ações de controle para todo o Horizonte de Controle (de k a k+NC), porém, apenas a primeira ação de controle,  $\Delta u_k$ , é implementada. Dessa forma, tem-se que o valor da variável manipulada, no instante k, é calculado como se segue:

$$u_k = u_{k-1} + \Delta u_k \tag{5.34}$$

A solução fornecida pela equação (5.33) é calculada a cada instante de amostragem, determinando um novo valor para a variável manipulada dado pela equação (5.34).

### 5.2.2. Projeto de um Controlador DMC

O projeto de um controlador DMC consiste em estimar os valores dos parâmetros de forma a permitir um melhor desempenho do controlador.

Um deles é o Horizonte de Modelo (NM) que corresponde ao tempo de resposta em malha aberta para atingir 95-99% do estado estacionário. Para a escolha desse parâmetro, a literatura recomenda valores de NM entre 20 e 70.

O Horizonte de Predição (NP) é o número de predições que são usadas nos cálculos de otimização. Um aumento de NP resulta em uma ação de controle mais conservativa, a qual tem um efeito estabilizante, mas também aumenta o esforço computacional.

O Horizonte de Controle (NC) é o número de ações de controle futuras que são calculadas na otimização para reduzir os erros preditos. À medida que NC aumenta, o esforço computacional também é aumentado. Segundo SEBORG et al. (1989), uma recomendação é escolher NC igual ao tempo de resposta em malha aberta para atingir 60% do estado estacionário. Para NC > 5, o valor de NP não é tão crucial já que somente a primeira ação de controle é implementada. Contudo, um valor muito grande de NC resulta

em excessiva ação de controle. Um valor pequeno de NC conduz a um controlador robusto, relativamente sensível a erros de modelagem.

Para problemas de controle SISO sem restrições, MAURATH et al. (1988) recomendam o uso da equação 5.31 (vide item 5.1.1) com NC = 1 e NP como um parâmetro de sintonia. Para se obter uma primeira simulação para NP quando NC = 1, NP multiplicado pelo tempo de amostragem deve corresponder a 50% do tempo de resposta em malha aberta. Esta aproximação resulta em um procedimento de projeto simples e efetivo que requer somente um parâmetro de sintonia.

O fator de supressão (f) também é um parâmetro a ser estimado. Valores grandes desse parâmetro penalizam muito a magnitude de  $\Delta u$  ocasionando, então, um controle menos vigoroso. Quando f = 0, o ganho do controlador é muito sensível a NC, principalmente devido ao mau condicionamento da matriz A<sup>T</sup>A, e NC deve ser tomado como um valor baixo. A aproximação de MAURATH et al. (1988) utiliza o método da decomposição do valor singular para eliminar o mau condicionamento de A<sup>T</sup>A com f = 0, mas este não é um problema sério com NC = 1.

O tempo de amostragem  $\Delta t$  deve ser também selecionado como parte do procedimento do projeto do controlador. Devendo ser pequeno o suficiente para assegurar que informação dinâmica importante não seja perdida. Por outro lado, se  $\Delta t$  é muito pequeno, NM deve ser muito maior, o que é indesejável. O tempo de amostragem não é considerado um parâmetro de sintonia devido ao ajuste de NC, NP e f serem, usualmente, suficientes para obter desempenho satisfatório em malha fechada. Contudo, pode ser útil para checar a sensibilidade da resposta a  $\Delta t$ .

Existem também critérios de avaliação do desempenho dinâmico de um sistema em malha fechada. Um deles é o critério que usa somente poucos pontos de resposta. Ele é simples, mas somente aproximado. Este critério baseia-se em algumas características da resposta em malha fechada do sistema, como o *overshoot*, que é definido como a razão

A/B, onde B é o valor final da resposta e A é o valor máximo pelo qual a resposta excede o valor final.

Outro critério para o projeto do controlador é escolher os valores dos parâmetros que minimizem o erro da resposta em relação *set point* desejado. Esse é um critério de desempenho dinâmico baseado na resposta do processo como um todo, pois sua formulação utiliza a forma da resposta em malha fechada, do tempo igual a zero até que o estado estacionário tenha sido atingido. Podem ser citados três critérios desta categoria:

1. Integral do erro ao quadrado (ISE – Integral of the Square Error):

$$\text{ISE} = \int_{0}^{\infty} \varepsilon^{2}(t) dt$$

2. Integral do valor absoluto do erro (IAE – Integral of the Absolute value of Error):

$$IAE = \int_{0}^{\infty} \varepsilon(t) dt$$

 Integral do tempo vezes o erro absoluto (ITAE – Integral of the Time-weighted Absolute Error):

$$\text{ITAE} = \int_{0}^{\infty} t \left| \mathcal{E}(t) \right| dt$$

Onde  $\varepsilon(t) = y_{sp}(t) - y(t)$  é desvio (erro) da resposta do *set point* desejado.

A escolha dos critérios acima depende das características do sistema a ser controlado e de exigências impostas à resposta do processo controlado. A seguir são mostradas algumas regras gerais.

ISE é melhor do que IAE, quando se deseja evitar erros grandes no processo, pois os erros estão elevados ao quadrado e assim contribuem mais para o valor da integral. Para evitar pequenos erros, IAE é melhor que ISE, pois quando elevamos números pequenos ao quadrado eles se tornam menores ainda. Para evitar erros que persistem por longos tempos, o critério ITAE é o melhor porque grandes tempos ampliam o efeito de erros mesmo pequenos no valor da integral. É importante ressaltar que diferentes critérios levam a diferentes projetos do controlador. Para um mesmo critério, diferentes mudanças na entrada também levam a diferentes projetos (STEPHANOPOULOS, 1984).

### 5.3. Discussão dos Resultados do Controle DMC Monovariável

A seguir são apresentados os resultados gerados do estudo do controlador DMC no processo de hidrogenação do o-cresol.

Com base no estudo do comportamento dinâmico, foram considerados dois esquemas de controle: o controle de temperatura de saída do reator (T) e a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl).

Para o controle da temperatura de saída do reator(T) foi considerada, primeiramente, como variável manipulada, a temperatura de alimentação do reator (Tf) já que, segundo o estudo do comportamento dinâmico, é a que mais influencia a variável controlada. Como perturbação considerou-se a temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf). Também foi considerada como variável manipulada, a temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf), pois esta também tem influência, embora pequena, sobre a temperatura de saída do reator. Neste caso, a perturbação foi considerada como sendo a temperatura de alimentação do reator (Tf).

No controle da concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl) considerou-se como variável manipulada a temperatura de alimentação do reator (Tf) já que sua influência sobre a variável controlada é muito maior que a influência da temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf) e da concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação do reator (Blf). Estas duas outras variáveis foram consideradas perturbações nesse esquema de controle.

Inicialmente, o sistema está em malha aberta. É dada uma perturbação na variável manipulada para cálculo dos coeficientes de resposta ao degrau, que são armazenados em um arquivo. Feito esse procedimento, trabalha-se com o sistema em malha fechada, quando é feita uma perturbação degrau no sistema, chamada perturbação de carga.

Para o controle de cada uma das variáveis, foram feitas várias simulações considerando-se perturbações de  $\pm$  10% nas variáveis de carga e alterando-se os parâmetros do controlador a cada simulação. As principais simulações são mostradas através de gráficos ilustrando o comportamento, tanto das variáveis controladas quanto das variáveis manipuladas, na presença do controlador, em função do tempo. É observado se as variáveis controladas atingem o *set-point*, que para a temperatura de saída do reator (T) é de 539,11828 K e para a concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl) é de 0,00130 Kmol/m<sup>3</sup>. É importante ressaltar que, nas condições de pressão adotadas, não há mudança de fase no sistema.

# 5.3.1. Controle da temperatura de saída do reator (T) manipulando a temperatura de alimentação do reator (Tf)

Para a primeira tentativa de controle, foram feitas perturbações degrau de  $\pm$  10% na temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf). Neste teste, foi considerado um tempo de amostragem igual a 1s e foram escolhidos os valores dos parâmetros do controlador após alguns testes prévios.

```
Tentativa de controle 1 :
Variável controlada: T
Variável manipulada: Tf
Perturbação degrau: Trf
Tempo de amostragem: 1 s
Parâmetros do controlador: NM=27, NP=14, NC=1 e f=7.
```





Figura 5. 2 – Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação de  $\pm 10\%$  em Trf

Figura 5. 3 – Temperatura de alimentação vs tempo para perturbação de  $\pm 10\%$  em Trf

O sistema em malha aberta atinge um novo estado estacionário em aproximadamente 1000s após perturbações  $\pm$  10% em Trf (Figura 5.2). Analisando-se o comportamento da temperatura com o uso do controlador, observa-se que o processo é retornado ao *set point* em aproximadamente 3000s. Com relação à variável manipulada, nota-se que, após aproximadamente 3000s, o seu comportamento deixa de ser oscilatório. Pode-se dizer, então, que o controlador apresentou um bom desempenho.

Para a tentativa abaixo, foram utilizados os mesmos parâmetros anteriores, inclusive o tempo de amostragem, porém, fazendo-se uma alteração no *set point* equivalente a uma perturbação de  $\pm 10\%$  no seu valor.

*Tentativa de controle 2:* Variável controlada: T Variável manipulada: Tf Alteração no Set point Tempo de amostragem: 1 s Parâmetros do controlador: NM=27, NP=14, NC=1 e f=7.





Figura 5.4 - Controle da Temperatura para alteração no set point

Figura 5.5 - Temperatura de alimentação vs tempo para uma alteração no set point

As Figuras 5.4 e 5.5 mostram que, quando ocorreu uma mudança no *set point*, o controlador conseguiu levar o sistema ao novo *set point*, o que caracteriza a eficiência do controlador.

Como forma de testar o desempenho do controlador e possíveis esquemas de controle, foram feitas algumas simulações variando-se os parâmetros do controlador e mantendo-se outros.

Uma delas foi aumentar o tempo de amostragem para 10, 20, 30 e 40s, mantendo-se como parâmetros do controlador NM=27, NP=14, NC=1 e f=7. Porém, para nenhum desses tempos de amostragem o sistema conseguiu atingir o *set point*, sendo que para o tempo de 10s não houve convergência.

Foram feitas, então, algumas simulações variando-se tanto o tempo de amostragem quanto os parâmetros do controlador. Uma dessas simulações está apresentada abaixo.

*Tentativa de controle 3:* Variável controlada: T Variável manipulada: Tf Perturbação degrau: Trf Tempo de amostragem: 10 s Parâmetros do controlador: NM=7, NP=4, NC=1 e f=1.2.



Figura 5. 6 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação de  $\pm$ 10% em Trf

Figura 5. 7 - Temperatura de alimentação vs tempo para perturbação de  $\pm$  10% em Trf

Analisando-se a Figura 5.6, verifica-se que o sistema em malha aberta atinge o novo estado estacionário no tempo de 1200s, aproximadamente. O comportamento da temperatura, com o controlador, apresenta um *overshoot* menor que aquele observado na Figura 5.2. O sistema, porém, permanece com uma leve oscilação em torno do *set point*, o que mostra que o controlador não apresenta bom desempenho. Quanto ao comportamento da variável manipulada, nota-se uma pequena oscilação ao longo do tempo. Um melhor ajuste seria necessário para o tempo de amostragem de 10s.

Considerando-se os valores anteriores dos parâmetros do controlador, inclusive o tempo de amostragem igual a 10s, fez-se uma simulação considerando uma alteração no *set point* equivalente a uma perturbação degrau de  $\pm 10\%$  no seu valor.

*Tentativa de controle 4:* Variável controlada: T Variável manipulada: Tf Alteração no *Set point* Tempo de amostragem: 10 s Parâmetros do controlador: NM=7, NP=4, NC=1 e f=1,2.



Figura 5. 8 - Controle da Temperatura para uma mudança no set point

Figura 5.9 - Temperatura de alimentação vs tempo para uma mudança no set point

Observou-se que o controlador levou a temperatura para os novos valores de *set point* (Figura 5.8) e o sistema deixou de oscilar em torno de 2000s. Porém, permaneceram algumas oscilações tanto na variável controlada quanto na manipulada ao final do tempo estudado. Portanto, esse ajuste não foi adequado para esta estrutura de controle.

Também se tentou manter os parâmetros do controlador usados acima variando os tempos de amostragem para 20, 30 e 40s. Contudo, para nenhum desses tempos o controlador apresentou bom desempenho.

Fixou-se, então, um tempo de amostragem de 1s variando-se cada parâmetro individualmente.

Considerando-se NM igual a 27, o valor usado na Tentativa 1 que mostrou um bom desempenho do controlador, foram feitas simulações com valores acima (NM=30) e abaixo (NM=17) desse valor. Constatou-se que para ambos os valores o controlador mostrou-se eficiente, com um desempenho muito próximo àquele apresentado pela Tentativa 1. Optou-se por usar NM=27.

Tomando-se NP igual a 14, que foi o valor utilizado na Tentativa 1 e que permitiu bom desempenho do controlador, fizeram-se simulações com valores de NP=4 e NP=24. Para ambos os valores, o sistema não foi controlado, o que levou à escolha de NP=14 como sendo o melhor valor para este parâmetro.

Foram feitas ainda simulações variando-se os valores de f, a partir do valor de f=7 que também foi o valor utilizado na Tentativa 1. Notou-se que a partir de f=5 o desempenho do controlador começava a melhorar. Porém, foi para o valor de f=7 que se detectou maior eficiência do controlador.

Finalmente foram feitas simulações aumentando-se o valor de NC, a fim de verificar como o controlador reagia a essa alteração. Observou-se um aumento no *overshoot*, o que nos leva à escolha de NC=1 como melhor valor para esse parâmetro.

Como forma de utilizar e testar o critério do ISE (Integral Square value Error), sugerido na literatura para o projeto do controlador, empregou-o para o caso do parâmetro NP. Considerando-se, então, os valores dos parâmetros escolhidos acima, NM=27, NC=1, f=7 e tempo de amostragem igual a 1s, variou-se os valores de NP e analisou-se a Integral Absoluta dos Erros Quadráticos ou *Integral Square Value Error* (ISE), como mostrado na Tabela 5.1 abaixo.

Onde ISE =  $\sum (y_{\text{setpoint}}(t) - y_{\text{variável controlada}}(t))^2$ 

Perturbação de +10% em Trf		Perturbação de -10% em Trf	
NP	ISE	NP	ISE
10	136817.2	10	137548.6
14	28389.8	14	28327.9
17	12397.8	17	12264.3
24	24147.5	24	21456.1

Tabela 5. 1 – Valores de ISE para variações em NP perturbando-se Trf em  $\pm 10\%$ .

Analisando-se essa tabela verifica-se que o menor erro ocorre quando NP=17, o que justificaria dizer que, segundo o critério do ISE, 17 é o melhor valor para o parâmetro NP. Abaixo está ilustrado o gráfico que apresenta a estrutura de controle na qual NP=17. *Tentativa de controle 5 :* Variável controlada: T Variável manipulada: Tf Perturbação degrau: Trf Tempo de amostragem: 1 s Parâmetros do controlador: NM=27, NP=17, NC=1 e f=7.





Figura 5. 10 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação de  $\pm$ 10% em Trf



Comparando-se a Figura 5.10 com a Figura 5.2, para as quais se tem os mesmos valores dos parâmetros do controlador, diferenciando-se pelo NP que é igual a 17 e 14, respectivamente, nota-se que a Figura 5.10 apresenta um *overshoot* menor, porém com mais oscilações. Como o *overshoot* e a freqüência de oscilação são critérios simples de projeto, sabe-se que conduzem a características conflitantes de resposta, ou seja, diminuindo-se o valor de um deles aumenta-se o valor do outro. Com relação à variável manipulada, nota-se que oscila um pouco mais em torno do estado estacionário do que o que ocorre na Figura 5.3. Assim, em função do aumento das oscilações para NP=17, decidiu-se usar um valor de NP=14 no projeto do controlador.

Finalmente, conclui-se que é possível controlar a temperatura de saída do reator (T) mantendo-a em níveis de operação desejados, tendo como variável manipulada a temperatura de alimentação (Tf), utilizando um conjunto de parâmetros adequados no projeto do controlador.

# 5.3.2. Controle da temperatura de saída do reator (T) manipulando a temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf)

Como uma primeira tentativa de controle, foram feitas perturbações degrau de  $\pm$  10% na temperatura de alimentação do reator (Tf). Para este teste, foi considerado um tempo de amostragem igual 10s e foram escolhidos os valores dos parâmetros do controlador após alguns testes prévios.

```
Tentativa de controle 1 :
Variável controlada: T
Variável manipulada: Trf
Perturbação degrau: Tf
Tempo de amostragem: 1 s
Parâmetros do controlador: NM=23, NP=10, NC=1 e f=0,9.
```



Figura 5. 12 - Controle da temperatura e resposta do sistema em malha aberta para perturbação de  $\pm$  10% em Tf

Figura 5. 13 - Temperatura de alimentação do fluido refrigerante vs tempo para perturbação de  $\pm$  10% em Tf

Nota-se que o sistema em malha aberta atinge um novo estado estacionário em aproximadamente 1000s (Figura 5.12). O controlador faz com que a temperatura retorne ao *set point*, deixando de oscilar em aproximadamente 3500s. Nota-se que a variável manipulada aproxima-se do *set point* em 2000s, mas ainda oscila levemente em torno do mesmo. Novos parâmetros podem levar a uma melhor resposta.

Utilizando a configuração acima, variou-se f, mantendo-se os demais parâmetros. Notou-se que para f < 0.9 o programa não convergiu. Quando f=1,5 o controlador também apresenta um bom desempenho, próximo daquele para f=0,9. Para f=3 e f=5 o sistema ainda atinge o *set point*. Para f > 5, o sistema já não mais atinge o *set point*. Abaixo estão ilustrados os gráficos para  $f=1,5, 3 \in 5$  e as discussões sobre eles.

580 ·

570

```
Tentativa de controle 2 :
Variável controlada: T
Variável manipulada: Trf
Perturbação degrau: Tf
Tempo de amostragem: 1 s
Parâmetros do controlador: NM=23, NP=10, NC=1 e f igual a 1.5, 3 e 5.
```



560 +10% Tf / DMC Set point 550 -10% Tf/DMC 540 T (K) 530 520 510-500 -2000 4000 6000 8000 10000 0 Tempo (s)

Figura 5. 14 - Controle da temperatura para perturbação de  $\pm$  10% em Tf. (NM=23, NP=10, NC=1, f=1,5)

Figura 5. 15 - Controle da temperatura para perturbação de  $\pm$  10% em Tf. (NM=23, NP=10, NC=1, f=3)



Figura 5. 16 - Controle da temperatura para perturbação de  $\pm$  10% em Tf. (NM=23, NP=10, NC=1, f=5)

Analisando-se a Figura 5.14, observa-se um *overshoot* um pouco maior do aquele apresentado na Figura 5.12.

Nas Figuras 5.15 e 5.16, observa-se que a integral do erro é muito grande e o sistema demora muito tempo para atingir o *set point*, o que não é interessante para o processo.

Agora, escolhendo-se f=0,9, mantendo-se NM=23, NC=1 e variando-se NP. Verificou-se que para NP > 10, o programa não convergiu. Para NP=8, tem-se um desempenho muito similar àquele com NP=10.

*Tentativa de controle 3 :* Variável controlada: T Variável manipulada: Trf Perturbação degrau: Tf Tempo de amostragem: 1 s Parâmetros do controlador: NM=23, NP=8, NC=1 e f=0,9.



Figura 5. 17 - Controle da temperatura para perturbação de  $\pm$  10% em Tf

Comparada à Figura 5.12, nota-se que para NP=8 o *overshoot* é um pouco maior, então, tomando-se o *overshoot* como parâmetro, diz-se que a estrutura com NP=10 é mais interessante para o processo.

O comportamento do sistema para uma alteração no *set point* equivalente a  $\pm 10\%$  do seu valor, está mostrado abaixo:

*Tentativa de controle 4 :* Variável controlada: T Variável manipulada: Trf Alteração no *Set point* Tempo de amostragem: 1 s Parâmetros do controlador: NM=23, NP=10, NC=1 e f=0,9.



Figura 5. 18 - Controle da Temperatura para uma alteração no set point



Observa-se que o controle conseguiu levar a variável controlada ao novo *set point*, porém a variável manipulada apresentou muitas oscilações no estado estacionário, portanto, o ajuste não foi adequado a esta estrutura de controle.

Como foi observado nos gráficos referentes à estrutura de controle da temperatura manipulando a temperatura de alimentação de fluido refrigerante, para vários ajustes de parâmetros testados, não se obteve uma estrutura de controle sem a presença de oscilações. Isto nos faz concluir que é mais adequado controlar a temperatura (T) manipulando a temperatura de alimentação dos reagentes (Tf) do que a temperatura de alimentação de fluido refrigerante (Trf). Isto comprova o que foi observado no estudo do comportamento dinâmico do processo que Trf tem influência fraca sobre T, enquanto Tf tem influência forte.

# 5.3.2.Controle da concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl) manipulando a temperatura de alimentação do reator (Tf)

Nas primeiras tentativas de controle, foram feitas perturbações degrau de  $\pm$  10% na concentração de o-cresol na fase líquida na alimentação do reator (Blf). Para estes testes, foi considerado um tempo de amostragem igual a 100s e foram escolhidos os valores dos parâmetros do controlador após alguns testes prévios.

O tempo de amostragem de 100s é possível com o emprego de um espectrofotômetro de infravermelho próximo (NIR – *Near Infrared*), técnica analítica que obtém medidas de concentração praticamente sem atraso (COSTA, 2000).

*Tentativa de controle 1 :* Variável controlada: Bl Variável manipulada: Tf Perturbação degrau: Blf Tempo de amostragem: 100 s Parâmetros do controlador: NM=4, NP=3, NC=1 e f=0,0001.





Figura 5. 20 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação de  $\pm$ 10% em Blf



A Figura 5.20 mostra que o sistema em malha aberta atinge um novo estado estacionário em aproximadamente 1200s, após perturbações de  $\pm$  10% em Blf. Analisandose o comportamento da concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl), observa-se que o processo retorna ao *set point* em aproximadamente 2600s. O comportamento da variável manipulada deixa de ser oscilatório após aproximadamente 2000s. Com base nessas discussões, pode-se concluir que o controlador mostrou-se eficiente neste projeto.

A fim de testar o desempenho do controlador, foram feitas algumas simulações variando-se alguns parâmetros do controlador e mantendo-se outros. Uma delas foi aumentar todos os valores dos parâmetros conjuntamente:

## *Tentativa de controle 2 :* Variável controlada: Bl Variável manipulada: Tf Perturbação degrau: Blf Tempo de amostragem: 100 s Parâmetros do controlador: NM=8, NP=6, NC=1 e f=0,0002.







O sistema em malha aberta atinge um novo estado estacionário em aproximadamente 1100s, após perturbações de  $\pm$  10% em Blf. O comportamento da concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl) mostra que o processo retorna ao *set point* em torno de 3000s. Com relação à variável manipulada, nota-se que após aproximadamente 2500s, é atingido o estado estacionário. Nota-se que o controlador apresentou bom desempenho, porém inferior àquele apresentado na tentativa anterior.

Outra tentativa foi diminuir todos os valores dos parâmetros conjuntamente

10000

*Tentativa de controle 3 :* Variável controlada: Bl Variável manipulada: Tf Perturbação degrau: Blf Tempo de amostragem: 100 s Parâmetros do controlador: NM=2, NP=1, NC=1 e f=0,00005.





Figura 5. 24 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação de  $\pm$ 10% em Blf



Analisando-se a Figura 5.24, percebe-se que Bl tem comportamento muito similar ao apresentado na Figura 5.20, o que leva à conclusão de que uma diminuição nos valores dos parâmetros não resultou em uma melhora significativa no desempenho do controlador. Na Figura 5.25, nota-se que a variável manipulada deixa de oscilar após o tempo de 4000s.

Outra tentativa foi alterar os valores dos parâmetros individualmente, a fim de se testar o efeito no desempenho do controlador. Foram feitas simulações com NP=6, NP=8, NP=12, NP=17 e NP=25, para NM=4, NC=1, f=0,0001 e tempo de amostragem igual a 100s. Para cada simulação calculou-se o IAE (*Integral of the Absolute Value of Error*) a fim de utilizar e testar este critério sugerido na literatura para o projeto do controlador.

IAE =  $\sum (y_{\text{setpoint}}(t) - y_{\text{variável controlada}}(t))$ 

NP	IAE
3	0.00517
6	0.00681
8	0.00812
12	0.01089
17	0,01427
25	0.01976

Nota-se que o IAE aumenta à medida que o valor de NP também aumenta. O que justificaria a escolha de NP=3 como valor para este parâmetro. Para se avaliar melhor se esta seria uma boa escolha seria essencial traçar gráficos para variáveis controlada e manipulada.

Outras simulações foram feitas variando-se os valores de f, para NM=4, NP=3, NC=1 e tempo de amostragem igual a 100s. Os valores de f considerados foram f=0,1 e f=1,0, porém, para nenhum deles o controlador conseguiu levar a concentração ao set point desejado.

Outra tentativa de controle foi feita considerando-se perturbações degrau de  $\pm 10\%$ na temperatura de alimentação do fluido refrigerante, (Trf). Para este teste, também foi considerado um tempo de amostragem igual 100s e os mesmos valores dos parâmetros do controlador usados na Tentativa 1: NM=4, NP=3, NC=1 e f=0.0001.

*Tentativa de controle 4 :* Variável controlada: Bl Variável manipulada: Tf Perturbação degrau: Trf Tempo de amostragem: 100 s Parâmetros do controlador: NM=4, NP=3, NC=1 e f=0,0001.



Figura 5. 26 - Resposta do sistema em malha aberta e com o controlador para perturbação de  $\pm$ 10% em Trf



A Figura 5.26 mostra que o sistema em malha aberta atinge um novo estado estacionário em aproximadamente 1500 s, após perturbações de  $\pm$  10% em Trf. Analisandose o comportamento da concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl), observa-se que o processo retorna ao *set point* em torno de 3000 s. A variável manipulada atinge o estado estacionário após aproximadamente 2600 s. Pode-se, então, dizer que o controlador apresentou bom desempenho.

Também foi feita uma simulação considerando uma alteração no *set point* equivalente a uma perturbação degrau de  $\pm$  10% no seu valor. Para este teste, também foram considerados o tempo de amostragem igual 100s e valores dos parâmetros do controlador, os seguintes: NM = 4, NP = 3, NC = 1 e f = 0.0001.

*Tentativa de controle 5 :* Variável controlada: Bl Variável manipulada: Tf Alteração no *Set point* Tempo de amostragem: 100 s Parâmetros do controlador: NM=4, NP=3, NC=1 e f=0,0001.



Figura 5. 28 - Controle da Concentração Bl para uma alteração no set point

Figura 5. 29 - Temperatura de alimentação vs tempo para uma alteração no set point

Observa-se que o controlador permite que a variável controlada (Bl) atinja os novos valores de *set point* e que a variável manipulada (Tf) deixa de oscilar no tempo de 3000 s aproximadamente.

A conclusão final do estudo do controle da concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl) é que esta variável pode ser controlada aos níveis de operação desejados usando como variável manipulada a temperatura de alimentação do reator (Tf) utilizando um conjunto de parâmetros adequados no projeto do controlador.

### 5.4.Conclusões

Como mostrado neste capítulo, foi possível controlar a temperatura de saída dos reagentes e a concentração de o-cresol na saída do reator utilizando o controlador DMC. Porém, a idéia proposta pelas estruturas SISO é encontrar formas simples para controlar o reator que sejam convenientes para implementação prática. Segundo SANTANA (1999), o grande desafio nos reatores trifásicos, é a maior conversão possível do componente líquido.

Assim, uma forma de controle seria sustentar a concentração de o-cresol na saída do reator (Bl) como um valor fixo baixo, manipulando-se a temperatura de alimentação de reagentes (Tf). Porém, segundo JORGENSEN e JENSEN (1989), medidas de concentração em tempo real são dispendiosas, além de ocasionar atrasos significativos. Dessa forma torna-se mais viável controlar a temperatura controlando indiretamente a concentração. Assim sendo, a estrutura de controle mais adequada é baseada no controle da temperatura tendo como variável manipulada a temperatura de alimentação dos reagentes (Tf).

O próximo capítulo traz a otimização do processo de produção de 2-metilciclohexanol considerando-se a técnica da Programação Quadrática Sucessiva (SQP).

# CAPÍTULO 6 - Otimização por Programação Quadrática Sucessiva

Este capítulo trata da otimização do reator trifásico através da técnica da Programação Quadrática Sucessiva (*Successive Quadratic Programming* - SQP) usando o modelo rigoroso do processo e um modelo estatístico representativo do mesmo.

## 6.1. Princípios de Otimização

Otimizar um processo significa encontrar um conjunto de valores que maximizem ou minimizem uma determinada função objetivo e que obedeçam a um conjunto de restrições (igualdade e/ou desigualdade).

Em um problema de programação não linear (PNL), pelo menos uma das equações que compõem o problema de otimização (seja a função objetivo ou uma restrição qualquer) é não linear. O problema tem a seguinte forma geral:

$$\begin{array}{lll} \text{Minimizar} & f(\mathbf{x}) & \text{sendo } \mathbf{x} \in \mathbb{R}^n \\ \text{Sujeito a} & h_j(\mathbf{x}) = 0 & j = 1, 2, ..., m_1 \\ & g_j(\mathbf{x}) \geq 0 & j = 1, 2, ..., m_2 \end{array}$$

Este problema (6.1) não é simples, por isso na obtenção de uma solução para o mesmo, muitas vezes, é suficiente que se encontre uma solução  $x^*$  tal que o conjunto de equações (6.2), abaixo, seja satisfeito. Diz-se que  $x^*$  é uma solução local de (6.1) e a solução global de (6.1) é o ponto  $x^*$  em que f( $x^*$ ) seja o menor possível dentro da região factível (TVRZSKÁ DE GOUVÊA, 1997).

$$f(x^{*}) = \min_{x \in R^{n} \cap B_{\delta}(x^{*})} f(x)$$
  
Sujeito a  $h_{j}(x) = 0$   $j = 1, 2, ..., m_{1}$  (6.2)  
 $g_{j}(x) \ge 0$   $j = 1, 2, ..., m_{2}$ 



81

Onde  $B_{\delta}(x^*)$  é a bola aberta de raio  $\delta$  em torno de  $x^*$ , ou seja, é suficiente que  $f(x^*) \le f(x)$  para todo x suficientemente próximo de  $x^*$ .

Algumas hipóteses podem ser feitas em relação às funções f,  $h_j$  e  $g_j$  para uma melhor caracterização da solução do problema (6.1). Uma hipótese muito usada é que estas funções sejam duplamente diferenciáveis em todos os pontos do domínio de definição. Neste caso, a caracterização da solução ótima pode ser feita através da função Lagrangiana, que associada ao problema (6.1) é definida como:

$$L(x, \lambda, \mu) = f(x) + \lambda h(x) + \mu g(x)$$
(6.1.1)

Onde  $\lambda \in \mu$  são vetores formados pelos multiplicadores de Lagrange das restrições de igualdade e desigualdade, respectivamente.

Foram estabelecidos vários critérios de otimalidade para a caracterização de uma solução para o problema (6.1). Dentre as condições de otimalidade, as mais difundidas são as de Karush-Kuhn-Tucker (KKT) que podem ser definidas da seguinte forma:

## Condição necessária de KKT:

Seja x<sup>\*</sup> uma solução local ou global de (6.1) e f, h e g diferenciáveis em x<sup>\*</sup> e h e g tais que x<sup>\*</sup> seja ponto regular de h e g, ou seja,  $h_j(x^*) = 0$  e  $g_j(x^*) \le 0$  e os componentes de h e g (correspondentes a  $g_j(x^*) = 0$ ) são linearmente independentes em x<sup>\*</sup>. Então o sistema (6.1.2) tem solução:

$$\nabla L_{x} (x^{*}, \lambda^{*}, \mu^{*}) = 0$$

$$h_{j} (x^{*}) = 0$$

$$g_{j} (x^{*}) \leq 0$$

$$\mu_{j} g_{j} (x^{*}) = 0$$

$$\mu_{j} \geq 0$$
(6.1.2)

> Condições suficientes de KKT:

Seja x<sup>\*</sup> uma solução local ou global de (6.1) e f, **h** e **g** duplamente diferenciáveis em x<sup>\*</sup>. Seja ainda I<sub>a</sub> = {i:g(x<sup>\*</sup>)=0; i=1,...,p}, aonde I<sub>a</sub> é o conjunto ativo correspondente à solução ótima do problema. Suponha que alguma qualificação de restrições seja válida. Então x<sup>\*</sup> é a solução do sistema (6.1.2) e d<sup>T</sup>  $\nabla^2$  L<sub>xx</sub> (x<sup>\*</sup>) d ≥ 0 para todo o d⊂ C e C = { d⊂R<sup>n</sup>, d≠0,  $\nabla g^{T_i}(x^*)d \leq 0$ , i ∈ I<sub>a</sub>,  $\nabla h^{T}d=0$ .

A obtenção do ponto x que satisfaça o sistema (6.1.2) é mais fácil do que resolver o problema (6.1), isto faz as condições KKT muito utilizadas. Além disso, os algoritmos numéricos são, em geral, formulados como procedimentos iterativos que visam encontrar uma solução do sistema (6.1.2) denominada de solução estacionária.

Alternativamente aos métodos convencionais de minimização local, métodos considerados não tradicionais estão se tornando populares na solução do problema (6.1) pelo ponto ótimo global. Dentre estes métodos dois estão em evidência pelo potencial de aplicação, a saber: Algoritmos Genéticos e *Simulated Annealing*.

## 6.2. Definição da Otimização por SQP

A otimização por Programação Quadrática Sucessiva (*Successive Quadratic Programming* - SQP) é utilizada na maioria dos casos para a resolução do problema de programação não linear.

O algoritmo SQP corresponde a um método iterativo que gera uma seqüência de valores  $\{x_k, \lambda_k, \mu_k\}$  que converge para a solução do problema (6.2) dado por  $(x^*, \lambda^*, \mu^*)$ . A forma de como esta seqüência de valores é gerada é que diferencia um método de outro.

Deseja-se obter a solução  $(x^*, \lambda^*, \mu^*)$  do sistema (6.2) sabendo-se que a mesma deve satisfazer as condições de KKT. Por outro lado, as condições de KKT nada mais são do que um sistema de equações não lineares. Dessa forma, a obtenção da solução ótima do problema (6.2) nada mais é que do que a resolução de um sistema de equações  $F(x, \lambda, \mu) = 0$ . Assim, os métodos de SQP são essencialmente métodos de Newton ou quasi-Newton de resolução de  $F(x, \lambda, \mu) = 0$  dado pelas condições de KKT.

Os métodos SQP podem ser definidos como aqueles em que para cada iteração do algoritmo efetua-se uma aproximação linear do conjunto de restrições do problema da PNL. Uma função quadrática é então minimizada sobre este conjunto simplificado a fim de se obter novos valores da seqüência  $\{x_k, \lambda_k, \mu_k\}$  (WRIGHT, 1989). Esta minimização de uma função quadrática sujeita a restrições lineares corresponde a um problema de programação quadrática (PQ).

Com base no que foi dito, tem-se que a classe de algoritmos SQP é caracterizada pela geração da seqüência { $x_k$ ,  $\lambda_k$ ,  $\mu_k$ }, como descrito abaixo:

1. Resolver o seguinte problema da PQ para obter dk:

$$\min\frac{1}{2}d_k^T H(x_k,\lambda_k,\mu_k)d_k + \nabla f^T(x_k)d_k$$

$$s.a\nabla h^{T}(x_{k})d_{k} = -h(x_{k})$$

$$(6.3)$$

$$\nabla g^T(x_k)d_k \leq -g(x_K)$$

onde H é uma aproximação do Hessiano (matriz contendo as derivadas segundas de uma função) do Lagrangeano dos problemas (6.1) ou (6.2) avaliado na iteração k e  $d_k$  é um vetor com a mesma dimensão de x. A aproximação linear das restrições na iteração k é obtida expandindo-se as mesmas em série de Taylor e truncando-se os termos de ordem superior.

2.  $x_{k+1} = x_k + d_k$ 

3.  $\lambda_{k+1} \in \mu_{k+1}$  correspondem aos multiplicadores de Lagrange do problema da PQ.

Fica claro que a essência do método SQP é simples. Entretanto, sendo um método de Newton, a seqüência { $x_k$ ,  $\lambda_k$ ,  $\mu_k$ } só irá convergir para a solução ( $x^*$ ,  $\lambda^*$ ,  $\mu^*$ ) quando os valores ( $x_k$ ,  $\lambda_k$ ,  $\mu_k$ ) estiverem suficientemente próximos da solução ótima. Como, a princípio, não se conhece a solução ótima é necessário que sejam feitas mudanças no algoritmo básico de forma a se obter a convergência global de KKT, independentemente do ponto de partida. Para que a propriedade de convergência global do método SQP seja garantida, é definido um problema de minimização em linha (WRIGHT, 1989). Este é o ponto de partida do método SQP, ou seja, é introduzida uma penalidade no passo 2 acima, a qual pode ser definida da seguinte forma:

 $\mathbf{x}_{k+1} = \mathbf{x}_k + \alpha_k \mathbf{d}_k$ 

Onde  $\alpha_k$  é o amortecimento obtido a partir da minimização unidirecional de uma função objetivo adequada a qual é denominada função de mérito.

O bom funcionamento do algoritmo depende das diversas particularidades implícitas na exposição acima e necessárias, a saber (TVRZSKÁ DE GOUVÊA, 1997):

- 1. Cálculo dos gradientes dos mapeamentos f, h e g.
- 2. Obtenção de uma boa aproximação do hessiano da função Lagrangeana.
- Resolução do problema da programação quadrática e estabelecimento da sua solução.
- 4. Definição da função de mérito e resolução do problema de busca unidirecional.
- Estabelecimento de um critério de parada, ou seja, momento em que o algoritmo convergiu para a solução ótima.

Estes tópicos não serão abordados neste trabalho por não fazerem parte do escopo do mesmo.

## 6.3. Resolução do Problema de Otimização do Reator Trifásico por SQP

O objetivo desta etapa do trabalho é otimizar o processo de produção do reator trifásico utilizando a técnica de otimização baseada na Programação Quadrática Sucessiva (SQP).

A otimização consistirá em se encontrar o estado estacionário ótimo do reator trifásico utilizando, inicialmente, o modelo rigoroso desenvolvido por Toledo et al. (2001), no estado estacionário e, posteriormente, um modelo estatístico representativo do processo.

Como já foi dito, problemas de otimização são postulados como aqueles que maximizam ou minimizam uma dada função objetivo obedecendo a um número de restrições que podem ser de igualdade ou de desigualdade. Neste trabalho, a função objetivo será definida como sendo a produtividade máxima do produto formado, 2-metil-ciclohexanol.

A produtividade em um processo pode ser calculada pela seguinte expressão:

$$Pr \ odutividade = \left(\frac{Concentração * Vazão}{Volume}\right) \tag{6.4}$$

As expressões para a vazão e para o volume podem ser escritas, respectivamente, da seguinte forma:

$$Vazão = Velocidade * Área e Volume = Área * Comprimento do reator (6.5)$$

Podendo ser reescritas, para o caso do reator trifásico, como:

$$Vaz\tilde{a}o = u * \frac{\pi D^2}{4}$$
 e  $Volume = \frac{\pi D^2}{4} * L$  (6.6)

Com base nas equações acima, a expressão para a produtividade torna-se:

Produtividade = Concentração do produto formado \* 
$$\frac{u}{L}$$
 (6.7)

86

Neste caso estudo, o produto formado é o componente C, 2-metil-ciclohexanol. Lembrando-se que a reação de formação do 2-metil-ciclohexanol é  $A(g) + vB(l) \rightarrow vC(l)$ , sabe-se que a quantidade de produto C formado é dada pela quantidade do componente B que é consumido. Considera-se que toda a quantidade do componente B (o-cresol) que entrou no reator reagiu, formando o produto C (2-metil-ciclohexanol). Assim, pode-se expressar a concentração do produto C em termos da concentração do componente B. A concentração de o-cresol na fase líquida (Bl), no tempo zero, é igual à concentração de ocresol na fase líquida na alimentação (Blf). No tempo final, a concentração de o-cresol na fase líquida (Bl) é igual à concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator. Dessa forma, a concentração do produto C pode ser expressa como:

$$Concentração de C = Blf - Bl \tag{6.8}$$

Feitas estas considerações, pode-se reescrever a expressão para a produtividade da seguinte forma:

$$Produtividade = \frac{(Blf - Bl(NTZ) * ul)}{L}$$
(6.9)

A produtividade está expressa em kmol/m<sup>3</sup>s. Para expressá-la em gramas/m<sup>3</sup>, basta multiplicá-la por 10<sup>3</sup> e pelo peso molecular do 2-metil-ciclohexanol, 114.2.

A restrição para o problema de otimização é definida como sendo a máxima conversão do componente B (o-cresol). Na fase sólida, existe um pouco de componente B, mas é adotado o critério da conversão baseada na fase líquida. A conversão do componente B dada pela diferença entre a concentração do componente B na alimentação (Blf) e a concentração do componente B na saída do reator (Bl), dividido pela concentração do componente B na alimentação do reator (Blf), ou seja:

$$Conversão = \left(\frac{Blf - Bl}{Blf}\right) > 0.99\tag{6.10}$$

Esse valor de 99% é justificado para que não haja o-cresol não convertido na saída do reator, o que é uma restrição ambiental e um desafio dos reatores trifásicos.

### 6.3.1. Otimização por SQP usando o Modelo Rigoroso do Reator Trifásico

Analisando a função objetivo considerada, nota-se que ela não engloba todas as variáveis definidas no reator estudado e descritas no modelo matemático. Assim, as equações do modelo matemático no estado estacionário, denominado modelo rigoroso, devem ser consideradas como restrições do problema de otimização, de forma que as variáveis de otimização determinadas no ponto ótimo satisfaçam as equações do modelo.

O modelo matemático no estado estacionário, desenvolvido por Toledo et al. (2001), está descrito abaixo:

• Balanço de massa do reagente A (hidrogênio) na fase gasosa:

$$\frac{D_{eg}}{L^2} \frac{\partial^2 A_g}{\partial z^2} - \frac{u_g}{L} \frac{\partial A_g}{\partial z} - (K_{gl})_A a_{gl} (A^* - A_l) = 0$$
(6.11)

Condições de contorno:  $\frac{D_{eg}}{L} \frac{\partial A_g}{\partial z}\Big|_{z=0} = u_g (A_g - A_{gf})$ 

$$\frac{\partial A_g}{\partial z}\Big|_{z=1} = 0$$

• Balanço de massa do reagente A (hidrogênio) na fase líquida:

$$\frac{D_{el}}{L^2} \frac{\partial^2 A_l}{\partial z^2} - \frac{u_1}{L} \frac{\partial A_l}{\partial z} + (K_{gl})_A a_{gl} (A^* - A_1) - (K_{ls})_A a_{ls} (A_1 - A_s) = 0$$
(6.12)

condições de contorno:

 $\frac{D_{el}}{L} \frac{\partial A_l}{\partial z} \bigg|_{z=0} = u_l \left( A_l - A_{lf} \right)$  $\frac{\partial A_1}{\partial z} = 0$ 

$$\frac{\partial A_1}{\partial z}\Big|_{z=1} = 0$$

• Balanço de massa do reagente B (o-cresol) na fase líquida:

$$\frac{D_{el}}{L^2} \frac{\partial^2 B_l}{\partial z^2} - \frac{u_l}{L} \frac{\partial B_l}{\partial z} - (K_{ls})_B a_{ls} (B_l - B_s^s) = 0$$
(6.13)

Capítulo 6 - Otimização por Programação Quadrática Sucessiva

condições de contorno:

$$\frac{D_{el}}{L} \frac{\partial B_{l}}{\partial z} \bigg|_{z=0} = u_{l} (B_{l} - B_{lf})$$
$$\frac{\partial B_{l}}{\partial z} \bigg|_{z=1} = 0$$

• Balanço de energia na fase fluida:

$$\frac{\left(\varepsilon_{g}\lambda_{g}+\varepsilon_{l}\lambda_{l}\right)\partial^{2}T}{L^{2}\partial z^{2}}-\frac{\left(\varepsilon_{g}\rho_{g}C_{pg}u_{g}+\varepsilon_{l}\rho_{l}C_{pl}u_{l}\right)\partial T}{L}+h_{s}a_{ls}(T_{s}^{s}-T)-\frac{4U}{D_{t}}(T-T_{r})=0 \quad (6.14)$$

condições de contorno: 
$$\frac{\left(\varepsilon_{g} \lambda_{g} + \varepsilon_{l} \lambda_{l}\right) \partial T}{L} \bigg|_{z=0} = \left(\varepsilon_{g} \rho_{g} C_{pg} u_{g} + \varepsilon_{l} \rho_{l} C_{pl} u_{l}\right) (T - T_{f})$$

$$\frac{\partial \mathbf{T}}{\partial \mathbf{z}}\Big|_{\mathbf{z}=\mathbf{1}} = \mathbf{0}$$

• Balanço de energia do fluido refrigerante:

$$-\frac{\rho_r C_{pr} u_r}{L} \frac{\partial T_r}{\partial z} + \frac{4U}{D_t} (T - T_r) = 0$$
(6.15)

Condição de contorno:  $T_r = T_{rf}$ , z = 0

• Balanço de massa para o reagente A (hidrogênio) na fase sólida:

$$(K_{ls})_A a_{ls} (A_l - A_s) - \frac{(l - \varepsilon)\rho_s}{A_{ref}} R_W(A_s, B_s, T_s) = 0$$
(6.16)

• Balanço para o reagente B na fase sólida:

$$(K_{ls})_B a_{ls} (B_l - B_s) - \frac{\nu (l - \varepsilon) \rho_s}{B_{ref}} R_W(A_s, B_s, T_s) = 0$$
(6.17)

• Balanço de energia na fase sólida:

$$h_s a_{ls} \left(T_s - T\right) + \frac{\left(I - \varepsilon\right) \rho_s \left(-\Delta H_R\right)}{T_{ref}} R_W(A_s, B_s, T_s) = 0$$
(6.18)

onde:

- *a* área interfacial,  $m^{-1}$ ;
- A concentração do componente A (hidrogênio), kmol/m<sup>3</sup>;
- $A^*$  solubilidade de saturação, kmol/m<sup>3</sup>;
- *B* concentração do componente B (o-cresol), kmol/m<sup>3</sup>;
- *Cp* capacidade calorífica, kJ/kg K;
- De difusividade mássica efetiva, m<sup>2</sup>/s;
- $D_t$  diâmetro do reator;
- h coeficiente de transferência de calor, kJ/m<sup>2</sup> s K;
- K coeficiente de transferência de massa entre fases, cm/s;
- L comprimento do reator, m;
- *Rp* raio da partícula, m;
- $R_w$  taxa de reação, kmol/kg catalisador.s;
- *T* temperatura, K;
- *Tr* temperatura do fluido refrigerante, K;
- *u* velocidade linear, m/s;
- U coeficiente global de transferência de calor, kJ/m<sup>2</sup> s K;
- z posição axial adimensional no reator;
- $\Delta H_R$  calor de reação, kJ/kmol;
- ε porosidade;
- $\lambda$  condutividade térmica, kJ/m s K;
- v coeficiente estequiométrico;
- $\rho$  densidade, kg/m<sup>3</sup>.

## Subscritos:

- *A* componente A (hidrogênio)
- *B* componente B (o-cresol)
- f alimentação;
- g fase gasosa;
- gl gás-líquido;
- *l* fase líquida;

- ls líquido-sólido;
- *p* partícula;
- *ref* valor de referência usado para adimensionalizar as equações;

s sólido.

Sobrescrito:

*s* superfície da partícula.

Definidas a função objetivo e as restrições, o problema de otimização pode ser postulado como a maximização da função objetivo sujeita a uma restrição de desigualdade e a oito restrições de igualdade, assim como ilustrado abaixo:

Maximiza	r: Produtividade	(Equação 6.9)
Sujeita a:	Conversão > 0.99	(Equação 6.10)
L	Equações do Modelo M	latemático no Estado Estacionário(Equações 6.11 a 6.18)

Para se resolver este problema de otimização, propõe-se a utilização da técnica de resolução de problemas não lineares por Programação Quadrática Sucessiva (SQP) através da sub-rotina DNCONF disponível na biblioteca eletrônica IMSL do Fortran.

Foi desenvolvido um programa em Fortran que utiliza a sub-rotina DNCONF para resolver o problema de otimização do reator. A sub-rotina DNCONF requer informações sobre o número de variáveis a serem otimizadas (N), os valores das estimativas iniciais das variáveis a serem otimizadas (XGUESS), dos limites inferiores (XLB) e superiores (XUB) dessas variáveis. Além desses vetores de entrada, ainda requer um argumento definido como XSCALE, que é um vetor de entrada, de tamanho igual ao número de variáveis, contendo a matriz de escalonamento diagonal para as variáveis, no qual todos os valores devem ser maiores do que zero e, na ausência de maiores informações é igual a 1.0 (IMSL – Fortran). O otimizador DNCONF contém uma sub-rotina denominada FCN que resolve as equações do modelo do processo, determina a função objetivo e define as restrições do problema de otimização. Internamente, o que ocorre é que o otimizador DNCONF chama a sub-rotina FCN fornecendo os valores das estimativas iniciais das variáveis do reator e calcula os novos valores dessas variáveis através do conceito da programação quadrática sucessiva. Esse procedimento é repetido até que os novos valores das variáveis consigam maximizar a função objetivo em questão, sem violar a restrição imposta. A escolha da subrotina DNCONF se deu pela comparação de seu desempenho e facilidade de implementação com relação a outros programas (*softwares*) de SQP, como a sub-rotina desenvolvida por Schittkowski (1986), reportada por MELO (2003).

Contudo, resolver o problema de otimização postulado acima através da técnica do SQP não é uma tarefa simples, especialmente pelo fato do mesmo apresentar equações diferenciais como restrições. Uma alternativa é transformar essas equações diferenciais em equações algébricas, através do método de colocação ortogonal. Porém, o emprego deste método eleva consideravelmente o número de variáveis no problema. Isto porque, considerando-se 8 pontos de colocação internos no reator, 1 ponto de colocação na entrada e 1 ponto de colocação na saída do reator, tem-se que o total de pontos de colocação é igual a 10. Sabendo-se que as variáveis de estado T, Tr, Bl, Al, Ag são discretizadas em todos os pontos de colocação, exceto Tr que não é discretizada no ponto de colocação na entrada do reator, e que as variáveis As, Bs e Ts são discretizadas nos pontos de colocação internos do reator, tem-se que o número total de variáveis é:

Número total de variáveis = 5 \* NTZ - 1 + 3 \* NZ = 5 \* 10 - 1 + 3 \* 8 = 73 variáveis

Considerando-se ainda as cinco variáveis de otimização que têm maior influência sobre as respostas de produtividade e conversão, a saber ul, Agf, Blf, Tf e Trf (vide próxima seção 6.3.2), o número total de variáveis de otimização passa a ser igual a 78.

Porém, mesmo se tratando de um problema de dimensão elevada, tentou-se resolvê-lo pela técnica do SQP. Utilizando-se, então, a sub-rotina DNCONF, foram feitas várias simulações estabelecendo-se os limites operacionais das variáveis e alterando-se a cada simulação os valores das estimativas iniciais que, de acordo com a literatura, têm bastante influência nos resultados ótimos. Entretanto, para nenhum caso obteve-se convergência, tendo sido o programa interrompido pela seguinte mensagem de erro: *Error* 2 - *Line search took more than 5 function calls*. Acredita-se que a não convergência é resultante da pequena influência que as variáveis de estado, citadas anteriormente, têm
sobre a função objetivo (produtividade). Dessa forma, há várias direções de busca para os valores ótimos, mas que não conseguem alterar muito o valor da função objetivo não chegando a completar a execução. Porém, essas variáveis de estado precisam ser consideradas como variáveis de otimização, pois os seus valores dependem dos valores ótimos determinados para ul, Agf, Blf, Tf e Trf.

#### 6.3.2. Otimização por SQP usando o Modelo Estatístico do Reator Trifásico

Considerando-se as dificuldades encontradas com relação ao uso do modelo detalhado para resolver o problema de otimização é proposta a utilização de um modelo estatístico, porém que seja representativo do processo em toda a faixa de operação desejada.

Assim, esta etapa mostra a determinação de um modelo estatístico representativo do processo de produção do reator trifásico. Este modelo será utilizado na resolução do problema de otimização por SQP para determinar o estado estacionário ótimo do processo.

Anteriormente foi dito que a função objetivo e a restrição consideradas para o problema de otimização são a produtividade de 2-metil-ciclohexanol e a conversão de ocresol, respectivamente. Portanto, precisa-se definir um modelo estatístico que represente bem cada uma dessas variáveis de saída. Para tanto, foi feito um planejamento fatorial com pontos axiais ou planejamento composto central, que consiste em relacionar as variáveis de entrada com as variáveis de saída que se deseja modelar.

Neste caso, as variáveis de saída são a produtividade e a conversão. Como mostrado anteriormente, ambas são dependentes da variável de saída Bl, que é a concentração do reagente B (o-cresol) na saída do reator. Então, aquelas variáveis de entrada que foram consideradas como as de maior influência sobre a variável de saída Bl serão adotadas como sendo também variáveis de entrada no planejamento composto central que tem como saídas a produtividade e a conversão. Como discutido na seção 4.4, as variáveis de entrada que têm maior influência sobre Bl são: ul, Agf, Blf, Tf e Trf.

O ponto axial do planejamento composto central é dado por  $(2^n)^{1/4}$ , onde n é o número de variáveis de entrada. Assim sendo, o ponto axial é  $(2^5)^{1/4}$  que é igual a 2,378. Dessa forma, a matriz do planejamento composto central será formada pelos níveis ±1, ±2,378 e pelo ponto central (0). Os valores das variáveis de entrada usados no ponto central são os mesmos utilizados no planejamento fatorial fracionário. A partir desses valores de ponto central, foram feitas perturbações para se determinar os valores das variáveis de entrada para os níveis ±1 e ±2,378.

Variáveis	Nível -2.378	Nível -1	Nível 0	Nível +1	Nível +2.378
ul	0,004195	0,0064	0,0080	0,0096	0,011805
Agf	0,000608	0,001125	0,00150	0,001875	0,002392
Blf	0,009732	0,01800	0,02400	0,03000	0,038268
Tf	411,6	486,0	540,0	648,0	796,8
Trf	381,1	450,0	500,0	600,0	737,8

Tabela 6. 1 - Planejamento Composto Central.

Através do *software Statistica 5.0*, no módulo *Experimental Design*, foi feita a matriz de planejamento correspondente ao planejamento composto central, o qual indicou ser necessária a realização de 44 ensaios (simulações) para a construção do modelo empírico, sendo a última simulação uma duplicata do ponto central, que não foi considerada aqui. As 43 simulações, então, foram feitas em um programa Fortran no qual, para cada simulação, os valores das variáveis de entrada passam a ter os valores correspondentes ao nível referente a cada ensaio. Esta matriz está ilustrada na tabela abaixo.

Simul	ul	Agf	Blf	Tf	Trf	Conversão	Produtividade
1	0.0064	0.00112	0.018	486	450	0.12762	0.07351
2	0.0064	0.00112	0.018	486	600	0.40764	0.23480
3	0.0064	0.00112	0.018	648	450	0.72887	0.41983
	0.0064	0.00112	0.018	648	600	0.88756	0 51124
5	0.0064	0.00112	0.030	486	450	0.12951	0.12433
6	0.0064	0.00112	0,030	486	600	0.41164	0 39517
7	0.0064	0.00112	0.030	648	450	0,1101	0.68805
8	0.0064	0.00112	0.030	648	600	0,71072	0.83549
<u>0</u>	0.0064	0.00187	0,018	486	450	0,07000	0.11465
10	0.0064	0.00187	0,018	486	600	0,155655	0.32057
10	0.0064	0.00187	0,018	648	450	0.84301	0.48557
	0.0064	0.00187	0,018	648	600	0.94713	0,10557
12	0,0004	0.00187	0,010	486	450	0,20752	0,19922
1.1	0,0004	0.00187	0,030	486	600	0,20732	0,17722
15	0.0064	0.00187	0,030	648	450	0,95049	0,81853
15	0,0004	0,00187	0,030	648	600	0,03204	0,01035
10	0,0004	0,00187	0,030	486	450	0,94683	0.08207
1/	0,0090	0,00112	0,018	486	600	0,09003	0.21779
10	0,0090	0.00112	0,018	648	450	0,25207	0,21773
20	0,0090	0.00112	0,018	648	600	0,09529	0,00075
20	0,0096	0,00112	0,018	486	450	0,02554	0,71520
21	0,0090	0.00112	0,030	486	600	0,09049	0,15895
22	0,0096	0,00112	0,030	648	450	0,23089	0.93405
23	0,0096	0.00112	0,030	648	600	0,04005	1 10104
25	0,0096	0,00112	0,030	486	450	0,70401	0 13130
25	0,0096	0.00187	0,018	486	600	0,15207	0.32481
20	0,0020	0,00187	0,018	648	450	0,83177	0,52401
20	0,0090	0,00187	0,018	648	400 600	0,02164	0,71805
20	0,0090	0,00187	0,018	186	450	0,92104	0,7568
29	0,0090	0,00187	0,030	486	600	0,13075	0,22308
21	0,0090	0,00187	0,030	648	450	0,56964	1 10125
20	0,0090	0,00187	0,030	648	400	0.01288	1,19125
32	0,0090	0,00187	0,030	540	500	0,91366	0.30088
24	0,00419	0,0015	0,024	540	500	0,39709	0,50088
25	0,01180	6 1E /	0,024	540	500	0,30384	0,21266
26	0,008	0,11-4	0,024	5/0	500	0.60738	0,21200
27	0,000	0,00437	0,024	540	500	0.44460	0.17211
20	0,000	0,0015	0.02977	540	500	0.46504	0,17311
20	0,000	0,0015	0,03047	<u> </u>	500	0.02074	0,71525
39	0,000	0,0015	0,024	706.0	500	0,03974	0.03054
40		0,0015	0.024	190,ð 540	201 1	0.22269	0 22422
41	0,008	0,0015	0,024	540	<u> </u>	0,23308	0.72100
42		0,0015	0,024	540	131,0	0,01400	0,/0190
43	0,008	0,0010	0,024		500	0,43801	0,44027

Tabela 6. 2 - Matriz do Planejamento Composto Central

Definida a matriz de planejamento no *software Statistica*, pode-se conhecer os coeficientes de regressão e construir o modelo empírico para a produtividade e para a conversão em função das cinco variáveis de otimização.

Modelo Empírico para a Conversão (Equação 6.19):

 $Conversão = -6,4769 + 9,3439 \times 10^{-1} \text{ ul} - 8,9434 \times 10^{2} \text{ ul}^{2} + 3,2161 \times 10^{2} \text{ Agf} - 1,0087 \times 10^{5} \text{ Agf}^{2} + 16,6822 \text{ Blf} - 1,9353 \times 10^{2} \text{ Blf}^{2} + 1,2553 \times 10^{2} \text{ Tf} - 6,3189 \times 10^{6} \text{ Tf}^{2} + 6,876 \times 10^{3} \text{ Trf} - 1,2671 \times 10^{-6} \text{ Trf}^{2} + 4,3838 \times 10^{3} \text{ ul}\text{ Agf} - 3,9795 \times 10^{2} \text{ ul}\text{ Blf} + 1,2427 \times 10^{-1} \text{ ul}\text{ Tf} - 1,5188 \times 10^{-1} \text{ ul}\text{ Trf} + 2,5257 \times 10^{3} \text{ Agf}\text{ Blf} + 3,084 \times 10^{-2} \text{ Agf}\text{ Tf} + 6,762 \times 10^{-2} \text{ Agf}\text{ Trf} - 1,331 \times 10^{-2} \text{ Blf}\text{ Tf} - 1,28 \times 10^{-3} \text{ Blf}\text{ Trf} - 5,43 \times 10^{-6} \text{ Tf}\text{ Trf}$ 

Modelo Empírico para a Produtividade (Equação 6.20):

 $\begin{aligned} & \operatorname{Pr} \operatorname{odutivida} = -1.6220 - 2.4486 \times 10^{2} \operatorname{ul} - 4.3364 \times 10^{3} \operatorname{ul}^{2} - 50.2992 \operatorname{Agf} - 9.3598 \times 10^{4} \operatorname{Agf}^{2} - 88.1813 \operatorname{Blf} \\ & -1.4330 \times 10^{2} \operatorname{Blf}^{2} + 5.3203 \times 10^{-3} \operatorname{Tf} - 6.0269 \times 10^{-6} \operatorname{Tf}^{2} + 3.8693 \times 10^{-3} \operatorname{Trf} - 9.8259 \times 10^{-7} \operatorname{Trf}^{2} \\ & + 2.3204 \times 10^{4} \operatorname{ul} \operatorname{Agf} + 1.3687 \times 10^{3} \operatorname{ul} \operatorname{Blf} + 0.5142 \operatorname{ul} \operatorname{Tf} - 4.67 \times 10^{-3} \operatorname{ul} \operatorname{Trf} + 8.5897 \times 10^{3} \operatorname{Agf} \operatorname{Blf} + 0.1092 \operatorname{Agf} \operatorname{Tf} \\ & + 8.157 \times 10^{-2} \operatorname{Agf} \operatorname{Trf} + 0.1225 \operatorname{Blf} \operatorname{Tf} + 4.480 \times 10^{-2} \operatorname{Blf} \operatorname{Trf} - 4.88 \times 10^{-6} \operatorname{Tf} \operatorname{Trf} \end{aligned}$ 

A produtividade da equação 58 é calculada em Kmol/m<sup>3</sup>s e multiplicada por  $10^4$ .

Construídos os modelos, precisa-se avaliar numericamente a qualidade do ajuste dos mesmos. A melhor maneira de se fazer isso é através da Análise da Variância (ANOVA), que consiste de valores das somas de quadrados de desvios (soma quadrática - SQ), do número de graus de liberdade (GL), das médias quadráticas (MQ) e da distribuição normal dos erros (F).

ANOVA	SQ SQ		GL	MQ	MQ	F <sub>calculado</sub>	$F_{calculado}$
	Conv	Prod	Conv/Prod	Conv	Prod	Conv	Prod
Regressão	3,7181	4,4863	20	0,185905	0,224315	73,43	81,97
Resíduo	0,0557	0,0602	22	0,002532	0,002736		<u></u>
Total	3,7738	4,5465	42	· - · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		J	

Tabela 6. 3 – ANOVA (Análise da Variância)

Para avaliar a significância estatística da regressão, deve-se comparar o valor de F calculado com o valor de F tabelado no nível de confiança desejado. O modelo é estatisticamente significativo se o valor de F calculado é maior que o valor de F tabelado.

O F tabelado é encontrado na Tabela A.4 – Pontos de porcentagem da distribuição F, 1%, extraída de Barros Neto (2001) a partir do número de graus de liberdade da regressão e do resíduo. No nível de confiança de 99%, verificou-se que F tabelado é igual a 2,83 que é bem menor que os valores de F calculados para produtividade (81,97) e para a conversão (73,43).

Porém, segundo Barros Neto, nem sempre uma regressão dada como significativa pelo teste F é útil para realizar previsões. Pode acontecer de a faixa de variação coberta pelas variáveis estudadas ser pequena demais, fazendo com que o efeito sobre a resposta fique mascarado pela extensão do erro experimental.

Segundo Box e Wetz (1973) e Box e Draper (1987), uma regra prática para saber se uma equação é estatisticamente significativa é considerar regressão como útil para fins de previsão se o valor de F calculado for, pelo menos, de cerca de dez vezes o valor do ponto da distribuição F com o número apropriado de graus de liberdade, no nível de confiança desejado. Dessa forma, precisa-se ter um valor de F calculado superior a 28,3 e como o valor de F foi de 81,97 para a produtividade e de 73,43 para a conversão, conclui-se que essa condição também é satisfeita e, consequentemente, ambas as regressões são amplamente significativas.

Sendo constatado que são estatisticamente significativas, as equações (6.19) e (6.20) podem ser consideradas como modelos adequados a serem usados no problema de otimização. É importante lembrar que estes modelos estatísticos foram construídos para determinadas condições de operação e parâmetros do reator e que, para condições de operação e parâmetros do reator e setatísticos devem ser construídos.

Considerando, então, a equação (6.20) como função objetivo e a equação (6.19) como a restrição do problema de otimização, pode-se postulá-lo da seguinte maneira:

J	Maximizar	: Produtividade	(Equação 6.19
١	Sujeita a:	Conversão > 0.99	(Equação 6.20)

Agora, o problema é dado por cinco variáveis que se deseja otimizar a fim de maximizar a produtividade de 2-metil-ciclohexanol tendo apenas uma restrição de desigualdade, a restrição da máxima conversão.

Para resolver o problema da otimização, foi desenvolvido um programa em Fortran que utiliza a sub-rotina DNCONF disponível na biblioteca eletrônica IMSL do Fortran.

Foram feitas várias simulações, adotando-se como limites inferiores os valores referentes ao nível mais baixo do planejamento (nível -2,378) e como limites superiores os valores referentes ao nível mais elevado do planejamento (nível +2,378), variando-se as estimativas iniciais das variáveis. É importante saber que os valores para a conversão e a produtividade no estado estacionário, sem o otimizador, são iguais a 0,46 e 0,44x10<sup>-4</sup> Kmol/m<sup>3</sup>s, respectivamente, e que se espera encontrar valores bem acima destes, após a inserção do otimizador.

Os resultados das simulações encontram-se na Tabela 6.4 para melhor visualização e comparação dos mesmos.

Simulação	Função Objetivo	Restrição	XLB	XUB	XGUESS	Solução Ótima	Conversão	Produtividade (x 10 <sup>-4</sup> )
Dandutinidada		ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,0080	ul = 0,011805			
		Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,00150	Agf = 0,002392			
01	Máxima	Conversão > 0.99	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268	Blf = 0,0240	Blf = 0,038268	0,99	2,66
	manna		Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 540	Tf = 796,8		
		Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 500	Trf = 627,8			
		ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,0128	ul = 0,011805			
	Duodutini dodo	Conversão > 0.99	Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,00187	Agf = 0,002392	0,99	2,66
02	Máxima		Blf = 0,009732	Blf = 0,038268	Blf = 0,00668	Blf = 0,038268		
			Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 500	Tf = 796,8		
		Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 500	Trf = 627,8			
03 Máxima			ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,0096	ul = 0,011805		
	Due destinide de		Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,001875	Agf = 0,002392		
	Conversão > 0.99	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268	Blf = 0,0300	Blf = 0,038268	0,99	2,66	
		Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 648	Tf = 796,8			
		Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 600	Trf = 627,8			

Tabela 6. 4- Resultados da Otimização por SQP.

Capítulo 6 - Otimização por Programação Quadrática Sucessiva

Simulação	Função Objetivo	Restrição	XLB	XUB	XGUESS	Solução Ótima	Conversão	Produtividade (x 10 <sup>-4</sup> )
			ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,0064	ul = 0,011805		
	Duo dutivi do do		Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,001125	Agf = 0,002392		
04	Máxima	Conversão>0.99	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268	Blf = 0,01800	Blf = 0,038268	0,99	2,66
			Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 486	Tf = 796,8		
			Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 450	Trf = 627,8		
		Conversão>0.99	ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,004195	ul = 0,011805	0,99	2,66
	Produtividade Máxima		Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,002392	Agf = 0,002392		
05			Blf = 0,009732	Blf = 0,038268	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268		
			Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 796,8	Tf = 796,8		
			Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 381,1	Trf = 627,8		
		dutividade Conversão>0.99	ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,004195	ul = 0,011805		
06	Desident to be		Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,002392	Agf = 0,002392	- 0,99 -	2,66
	Produtividade		Blf = 0,009732	Blf = 0,038268	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268		
	waxima		Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 411,6	Tf = 796,8		
			Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 737,8	Trf = 627,8		

Funçã	Função	Destrição	VID	VIR VIR		Solução Conversão		Produtividade
	Objetivo	Kestriçao		XGUESS	Ótima	Conversao	(x 10 <sup>-4</sup> )	
			ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,0064	ul = 0.011805		
	Decdutividada		Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,001125	Agf = 0,002392		
04	Máxima	Conversão>0.99	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268	Blf = 0,01800	Blf = 0,038268	0,99	2,66
			Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 486	Tf = 796,8		
			Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 450	Trf = 627,8	~	
		Conversão>0.99	ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,004195	ul = 0,011805	0,99	2,66
	Produtividade Máxima		Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,002392	Agf = 0,002392		
05			Blf = 0,009732	Blf = 0.038268	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268		
			Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 796,8	Tf = 796,8		
			Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 381,1	Trf = 627,8		
			ul = 0,004195	ul = 0,011805	ul = 0,004195	ul = 0,011805		
	Due destinities for	C	Agf = 0,000608	Agf = 0,002392	Agf = 0,002392	Agf = 0,002392	0,99	2,66
06	Produtividade	Conversão>0.99	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268	Blf = 0,009732	Blf = 0,038268		
	1414711114		Tf = 411,6	Tf = 796,8	Tf = 411,6	Tf = 796,8		
			Trf = 381,1	Trf = 737,8	Trf = 737,8	Trf = 627,8		

\$ 3

Na simulação 01, as estimativas iniciais corresponderam ao nível zero do planejamento. A restrição da conversão maior que 0,99 foi testada. O programa executou 28 chamadas de função e gerou como respostas para as variáveis de otimização, os próprios valores dos limites superiores, exceto para a temperatura do fluido refrigerante (Trf) que foi um valor menor. O comportamento dessa variável pode ser explicado da seguinte forma: ao se perturbar as cinco variáveis de entrada, sem o otimizador, notou-se que o perfil apresentado pelas saídas (produtividade e conversão), para cada uma das entradas que têm efeito positivo sobre elas, é semelhante, exceto quando se perturba Trf, para a qual o perfil mostra que a produtividade e a conversão levam mais tempo para atingir o estacionário.

Na simulação 02, foram adotados outros valores para as estimativas iniciais, mantendo-se os limites e a restrição de conversão maior que 0.99, para se testar a dependência das estimativas iniciais. A execução fez 30 chamadas de função e as respostas encontradas para as variáveis de otimização foram as mesmas encontradas na simulação 01.

Na simulação 03, considerou-se como estimativas iniciais os valores do nível +1 do planejamento e observaram-se as possíveis respostas ótimas. Analisando-se os resultados obtidos, verificou-se que as respostas foram as mesmas encontradas na simulação 01.

Para a simulação 04, foram usados os valores do nível –1 do planejamento como estimativas iniciais. Após a execução, as respostas obtidas foram as mesmas encontradas nas simulações anteriores.

Como os valores otimizados obtidos até agora encontram os limites superiores, resolveu-se fornecer valores mesclados entre os limites superiores e inferiores como estimativas iniciais, na simulação 05. A análise dos resultados indicou que os valores otimizados também atingiram os limites superiores, para estas estimativas iniciais.

Na simulação 06 forneceram-se também, valores iniciais mesclados entre os limites superiores e inferiores, mantendo-se os demais parâmetros. Os resultados mostraram que os valores otimizados também atingiram os limites superiores. Fazendo-se as estimativas iniciais iguais aos valores dos limites inferiores na simulação 07, verificou-se que as respostas encontradas para as variáveis de otimização foram as mesmas das simulações anteriores.

Na simulação 08, considerou-se como estimativas iniciais os próprios valores dos limites superiores. A resposta dessa simulação mostrou que os valores obtidos para as variáveis otimizadas foram os mesmos encontrados nas simulações anteriores.

Foi possível notar que, para todas as simulações feitas, os valores das respostas das variáveis de otimização foram os mesmos, apesar de se ter usado, a cada simulação, diferentes valores de estimativas iniciais. Isto implica dizer que, para o modelo empregado neste trabalho, o algoritmo de otimização por SQP não é dependente da estimativa inicial.

Os valores das respostas encontrados pelo otimizador para as variáveis ul, Agf, Blf, Tf, Trf no modelo estatístico, foram testados no modelo rigoroso que obteve conversão igual a 0,99 e produtividade igual a 2,24 x  $10^{-4}$  Kmol/m<sup>3</sup>s, confirmando-se os valores da restrição e da função objetivo obtidos pelo modelo estatístico.

Foi possível perceber também que os valores das respostas, encontrados para cada variável, coincidiram com os valores dos limites superiores, exceto a resposta da variável Trf que foi um valor menor. O algoritmo faz várias buscas dos valores ótimos, mas encontrou como solução os limites superiores das variáveis. Isto porque, é neste limite que o otimizador verificou os maiores valores de produtividade que não violaram a restrição. Estas observações fazem acreditar que esses valores otimizados são, na verdade, ótimos locais, mas que podem ser usados para as variáveis de entrada no reator trifásico, já que garantem alta produtividade e alta conversão no estado estacionário.

É importante ressaltar que a pressão do sistema é mantida tal que permita que a temperatura de reagentes atinja o valor do limite superior sem que ocorra mudança de fase do reagente.

As extensivas simulações empregando a otimização por SQP, através da subrotina DNCONF, mostraram um bom desempenho da mesma. Isto está confirmado nos resultados da Tabela 11 e pode ser melhor visualizado nas figuras a seguir, que mostram os gráficos dos perfis da conversão e da produtividade versus o tempo, após a otimização.

A Figura 6.1 foi obtida através de simulações feitas no programa Fortran utilizando-se valores de temperatura de alimentação de reagentes não otimizados, e tomando-se as saídas de conversão no estado estacionário. A Figura mostra uma tendência de aumento na conversão com o aumento da temperatura de alimentação de reagentes.



Figura 6. 1 - Perfil da conversão vs temperatura de alimentação sem otimização

A Figura 6.2 mostra o perfil da produtividade de 2-metil-ciclohexanol obtido a partir dos valores das variáveis gerados pela otimização por SQP, através da sub-rotina DNCONF, comparada com o perfil da produtividade obtida antes da otimização. Podese perceber que o emprego dos valores otimizados é muito mais interessante para o processo do que o emprego de valores não otimizados, pois a Figura 6.2 evidencia o aumento da produtividade ao longo do tempo quando os valores das variáveis de entrada são aqueles determinados pelo otimização é muito baixo, da ordem de 0,44x10<sup>-4</sup> Kmol/m<sup>3</sup>s e após a otimização é aumentado para 2,24x10<sup>-4</sup> Kmol/m<sup>3</sup>s, o que representa uma melhoria de 5 vezes na produtividade. Este resultado denota o sucesso da técnica de otimização por SQP empregada no processo de hidrogenação do o-cresol.

A Figura 6.3 ilustra o perfil da conversão de o-cresol obtido quando as variáveis de entrada assumem os valores gerados pela otimização comparado ao perfil da conversão de o-cresol obtido antes da otimização. O emprego dos valores otimizados no

processo elevou a conversão de 0,46 para 0,99, o que representa uma melhoria de 2 vezes na conversão.

O aumento na produtividade e na conversão comprova a eficiência do uso da técnica de otimização por SQP no processo de produção considerado neste trabalho.



Figura 6. 2 – Comparação do perfil da Produtividade com e sem otimização SQP

Figura 6. 3 – Comparação do perfil da Conversão com e sem otimização SQP

Uma alteração feita no problema de otimização foi a normalização das variáveis, pois como elas apresentam ordens de grandeza diferentes, o otimizador pode provocar pequenas perturbações nas variáveis de otimização que não seriam significativas na ordem de grandeza do seu valor real. Para averiguar essa possibilidade, é proposto normalizar as variáveis para que elas assumam valores entre 0 e 1. No entanto, adaptando-se o programa de otimização de forma a fazer a normalização dessas variáveis, o mesmo não convergiu, tendo sido interrompido por uma mensagem de erro, ora *Error 1 (Search direction uphill)* ora *Error 2 (Line search took more than 5 fucntion calls)*, dependendo da estimativa inicial.

Propõe-se também uma alternativa à sub-rotina DNCONF para a otimização do reator trifásico. Trata-se de uma sub-rotina baseada na Programação Quadrática Sucessiva, denominada EASY! desenvolvida pelo grupo de otimização do Departamento de Matemática da Unicamp (José Mário Martinez, 2003).

No programa que utiliza a sub-rotina EASY!, há um arquivo de entrada, easy.dat, que contém o número de variáveis a serem otimizadas, o número de restrições (igualdade + desigualdade), os valores dos limites inferiores e superiores e as estimativas iniciais. A sub-rotina EASY! foi desenvolvida para permitir apenas

#### Capítulo 6 – Otimização por Programação Quadrática Sucessiva

restrições de igualdade, portanto, é preciso transformar a restrição de desigualdade em uma restrição de igualdade. Para tanto, é acrescentada à restrição uma nova variável de busca, que deve ser somada ao número total de variáveis no arquivo *easy.dat* e, deve assumir como limite inferior um valor baixo (zero, por exemplo) e como limite superior um valor alto (no caso em que se tem uma restrição maior ou igual a zero). No ponto onde o programa chama o otimizador, a sub-rotina EASY! é chamada.

Foram feitas algumas simulações usando a sub-rotina EASY! considerando-se os mesmos valores para os limites inferiores, limites superiores e estimativas iniciais que foram usados nas simulações feitas com a sub-rotina DNCONF, a fim de compará-las.

Feita a mesma simulação 01 da Tabela 6.4, os valores encontrados para as variáveis de entrada foram: ul, Agf, Blf, Tf, Trf, iguais a 1,1805E-02, 2,275E-03, 9,732E-03, 796,8, 540, respectivamente, e um valor muito baixo para a produtividade, igual a  $0,79 \times 10^{-4}$  Kmol/m<sup>3</sup>s.

Considerando-se a mesma simulação 06 da Tabela 6.4, as respostas para as variáveis ul, Agf, Blf, Tf, Trf foram: 1,1805E-02; 2,22E-03; 9,732E-03; 796,8; 381,1 ; respectivamente, e a produtividade igual a  $0,84 \times 10^{-4}$  Kmol/m<sup>3</sup>s, um pouco maior que  $0,79 \times 10^{-4}$  Kmol/m<sup>3</sup>s encontrado na simulação anterior feita com a sub-rotina EASY!.

Para ambas simulações citadas, o programa que utiliza a sub-rotina EASY! convergiu, mas trazendo a seguinte mensagem: A feasible point with the required precision could not be obtained. Probably, the best obtained point is a local minimizer of the squared constraints. O que significa dizer que a sub-rotina EASY! não conseguiu encontrar um ponto viável, ou seja, um ponto que satisfaça a restrição.

Pode-se notar que a função objetivo determinada pela sub-rotina EASY! é muito inferior àquela encontrada pela sub-rotina DNCONF. Dessa forma, a sub-rotina DNCONF mostrou-se mais eficiente na otimização do reator trifásico do que a sub-rotina EASY!.

# 6.4. Conclusões

A forma de resolver o problema de otimização apresentado neste trabalho pode ser ilustrada pelo fluxograma apresentado na Figura 6.4 abaixo.



Figura 6. 4 – Fluxograma usado para resolução do problema de otimização.

Como foi descrito neste capítulo, a otimização aplicada ao modelo detalhado do processo é um problema de difícil solução devido a presença de equações diferenciais e ao elevado número de variáveis, o que dificulta a convergência. Em face dessa dificuldade, um modelo estatístico representativo do processo foi otimizado sendo possível a convergência para condições ótimas. A solução ótima encontrada foi testada no modelo detalhado e um resultado otimizado pôde ser constatado.

A técnica de otimização por SQP permitiu a obtenção de resultados otimizados para o processo, possibilitando uma melhoria acentuada no seu estado estacionário, o que torna o SQP uma técnica eficiente na otimização do processo de hidrogenação de ocresol.

No próximo capítulo, será utilizada uma outra técnica de otimização, alternativa ao método clássico SQP, baseada nos Algoritmos Genéticos.

# CAPÍTULO 7 - Otimização por Algoritmos Genéticos

A otimização do processo de hidrogenação do reator trifásico utilizando Algoritmos Genéticos é apresentada neste capítulo.

# 7.1. Princípios da Otimização por Algoritmos Genéticos

Os algoritmos genéticos são métodos generalizados de busca e otimização que simulam os processos naturais de evolução, aplicando a idéia darwiniana de solução.

Historicamente tem-se que, em 1858 Darwin apresentou a teoria da evolução através da seleção natural. Em 1900, surgiu o princípio básico de Genética Populacional no qual a variabilidade entre indivíduos em uma população de organismos que se reproduzem sexualmente é produzida pela mutação e pela recombinação genética. Nos anos 30 e 40, esse princípio foi desenvolvido por biólogos e matemáticos. Nos anos 50 e 60, foram desenvolvidas simulações computacionais de sistemas genéticos. Em 1975, Holland publicou o livro *Adaptation in Natural and Artificial Systems*, uma importante referência sobre algoritmos genéticos. Nos anos 80, GOLDBERG (1984) conseguiu o primeiro sucesso em aplicação industrial dos algoritmos genéticos.

Sabe-se que na natureza, os indivíduos competem entre si por recursos como comida, água e refúgio. Entre os animais de uma mesma espécie, aqueles que não obtêm êxito tendem, provavelmente, a ter um número reduzido de descendentes tendo, portanto, menor probabilidade de seus genes serem propagados ao longo de sucessivas gerações. A combinação entre os genes dos indivíduos que perduram na espécie pode produzir um novo indivíduo muito melhor adaptado às características de seu meio ambiente. Os algoritmos genéticos utilizam uma analogia ao fenômeno de evolução da natureza onde cada indivíduo representa uma possível solução para um dado problema. A cada indivíduo é atribuída uma pontuação de adaptação dependendo da resposta dada ao problema por este indivíduo. Aos mais adaptados é dada a oportunidade de se reproduzir mediante cruzamentos com outros indivíduos da população produzindo descendentes com características de ambas as partes. Se um algoritmo genético for desenvolvido corretamente, a população (conjunto de possíveis respostas) convergirá a uma solução ótima para o problema proposto. Existem alguns operadores genéticos que contribuem para a evolução, como o cruzamento (*crossover*), a adaptação baseada na

seleção/reprodução e a mutação. Os componentes do algoritmo genético são o espaço de busca (Figura 7.1), onde são consideradas todas as possibilidades de solução de um dado problema, e a função de avaliação, uma maneira de avaliar os membros do espaço de busca.

Uma das razões da popularidade dos algoritmos genéticos é o fato de ser um método diferente dos outros mais tradicionais, pois não requerem que a função objetivo seja contínua e/ou diferenciável, não necessitam de uma extensiva formulação do problema, não são sensíveis ao ponto de partida, normalmente não se prendem a ótimos locais e realizam o processo de pesquisa rapidamente. Estes mecanismos aumentam suas aplicações para uma larga faixa de problemas de otimização e são adequados em muitos problemas de projeto de engenharia (GOLDBERG, 1989). Os algoritmos genéticos são utilizados em muitas otimizações para resolver problemas de programação não linear (PNL), embora ainda não exista prova da convergência matemática.



Figura 7. 1 - Espaço de busca – AG´s x Métodos Convencionais (VICTORINO, 2002).

O problema geral dos Algoritmos Genéticos é a determinação do vetor parâmetro **a** de  $\Omega = \Omega(\mathbf{a}) \rightarrow$  função objetivo (minimização ou maximização). A restrição do espaço  $\Re^L$  do parâmetro é dada pela natureza da tarefa. Os componentes  $a_i$ (i=1,...,L) do vetor parâmetro  $\mathbf{a} \in \Re^L$  são restritos pelo intervalo  $L \leq \mathbf{a}_i \leq U$ . Os limites inferiores e superiores (L,U) são selecionados de acordo o problema em questão. Temse  $B = ([L_1, U_1], ..., [L_L, U_L])^T$ ;  $B \subset \Re^L$  sendo o espaço de busca do parâmetro.

Uma descrição informal de um algoritmo genético usado para determinação de um vetor parâmetro  $\mathbf{a}_i$  realiza as etapas, que são descritas em seguida:

- Criação de uma população inicial (N indivíduos)
- Repetir
- Seleção (pares de indivíduos da população)
- Cruzamento (geração de novos vetores parâmetros codificados por recombinação de outros vetores parâmetros dos indivíduos escolhidos)

• Mutação (um novo vetor parâmetro codificado é obtido por mudança aleatória de um ou mais genes)

• Evolução (o novo indivíduo). Se o valor do ajuste (*fitness*) do novo indivíduo ( $\Omega(\mathbf{a})$ ) é melhor do que o pior ajuste do indivíduo, o indivíduo com pior ajuste é eliminado e o novo indivíduo é inserido na população.

• Recomeço do algoritmo - Até terminar (critério de parada).

A etapa de codificação é uma das mais importantes etapas do problema a ser otimizado. O alvo é criar uma representação de um parâmetro o qual permite sua modificação através do corte (divisão) em alguma posição ficando estas partes das seqüências separadas em condições para unirem-se com outras. Um parâmetro codificado é parecido com um cromossomo em genética, em outras palavras um carreador modificável de informações. Em muitos algoritmos genéticos o método de codificação é baseado em representações de séries binárias de um número, outras formas de codificação podem ser utilizadas, principalmente quando se deseja alta precisão dos parâmetros. Nesse caso é utilizada a codificação em números reais.

#### Capítulo 7 – Otimização por Algoritmos Genéticos

Uma outra etapa que ocorre em um Algoritmo Genético é a reprodução. Selecionam-se indivíduos da população que são recombinados para formar a geração seguinte. Os pares são selecionados aleatoriamente usando um método que favorece os indivíduos melhores adaptados. Assim que os pares são escolhidos, seus cromossomos mesclam-se e se combinam usando cruzamento e mutação. Um método de seleção comumente usado é a seleção proporcional, na qual uma solução na população atual é selecionada com uma probabilidade proporcional ao ajuste da solução. Outro método de seleção, que tem se tornado popular pela sua simplicidade, é a seleção por torneio, na qual duas soluções são escolhidas randomicamente para o torneio e a melhor das duas é selecionada de acordo com o valor do ajuste da solução.

O cruzamento é um processo de criação de novos parâmetros ( $\mathbf{a}^{c}$ ) pela combinação de dois outros parâmetros  $\mathbf{a}^{i} \in \mathbf{a}^{j}$ . O cruzamento seleciona duas estruturas (indivíduos) da geração atual que divide a série de cada um deles em um mesmo ponto determinado aleatoriamente para uma taxa da probabilidade c (valores pequenos). Dois novos parâmetros codificados são gerados por uma combinação alternativa das partes da série de cada indivíduo formando novos indivíduos codificados  $\mathbf{a}^{c}$ . Existem vários tipos de cruzamento. Quando temos parâmetros com codificação binária é utilizado o cruzamento de 1 ou n-pontos e o cruzamento uniforme, na codificação em números reais é utilizado o cruzamento aritmético, geométrico e esférico.

A mutação é um processo de mudança do vetor parâmetro, ou de vários parâmetros que ocorre aleatoriamente. A mudança ocorre em um gene (posição) da estrutura que representa o indivíduo. Cada caracter na cadeia codificada possui uma probabilidade m de mudança aleatória (m, m $\in \Re$ ,  $0.0 \le m \le 1.0$ ). Como no operador de cruzamento, o operador de mutação pode ser de vários tipos, que serão aplicados de acordo com a codificação que é utilizada no problema. Em codificação binária a mutação é aleatória, já em problemas que possuem codificação em números reais as mutações indutiva, gaussiana, uniforme e a não-uniforme são recomendadas. O valor de m é baixo (baixa percentagem) e diminui linearmente com o número de gerações.

A análise da influência de alguns parâmetros no comportamento dos algoritmos genéticos permite que se possa estabelecê-los conforme a necessidade do problema e dos recursos disponíveis.

#### Capítulo 7 – Otimização por Algoritmos Genéticos

O tamanho da população afeta o desempenho global e a eficiência dos algoritmos genéticos. Uma população pequena oferece uma pequena cobertura do espaço de busca causando queda no desempenho. Uma população grande fornece uma melhor cobertura do domínio do problema e previne a convergência prematura para soluções locais. Contudo, com uma população grande tornam-se necessários recursos computacionais maiores ou maior tempo de processamento do problema.

Na taxa de cruzamento, quanto maior o seu valor, mais rapidamente novas estruturas serão introduzidas na população. Por outro lado, isto pode gerar um efeito indesejado, pois a maior parte da população será substituída podendo ocorrer perda de estruturas de alta aptidão. Com um valor baixo, o algoritmo pode se tornar muito lento.

Uma taxa de mutação baixa previne que uma dada posição fique estagnada em um valor, além de possibilitar que se chegue em qualquer ponto de busca. Com uma taxa muito alta a busca se torna essencialmente aleatória.

O intervalo de geração controla a porcentagem da população que será substituída durante a próxima geração.

Uma má formulação do modelo gera um problema no qual os genes de uns poucos indivíduos relativamente bem adaptados, mas não ótimos, possam dominar rapidamente a população causando a convergência a um máximo local. Uma vez que isto ocorre, a habilidade do modelo em buscar melhores soluções é eliminada completamente e o algoritmo genético converte-se em uma busca lenta. Para evitar a convergência prematura, é necessário controlar o número de oportunidades reprodutivas de cada indivíduo. Um outro problema que ocorre é contrário ao anterior. Ao longo de várias gerações, a população haverá convergido, mas não haverá localizado o máximo global. A adaptação será alta e haverá pouca diferença entre o maior e menor indivíduo. Consequentemente, será baixa a tendência da função de adaptação a levar o algoritmo ao máximo global.

A convergência de um algoritmo genético é uma progressão uniforme. Se um algoritmo genético foi devidamente implementado, a população evoluirá ao longo de sucessivas gerações e convergirá para um ótimo global. Um gene será convertido quando em 95% da população tem o mesmo valor. A população converge quando todos os genes de cada indivíduo convergirem.

## 7.2. Trabalhos Encontrados na Literatura

A aplicação dos Algoritmos Genéticos para otimização global, com o objetivo de gerar estimativas para valores de parâmetros vem sendo atualmente a técnica mais utilizada como alternativa de otimização aplicada em sistemas complexos de Engenharia Química. Vários trabalhos têm sido publicados nos últimos anos com grande relevância obtendo resultados satisfatórios, indicando melhores direcionamentos de estratégias de controle, produção, custo, lucro e qualidade dos processos industriais. Em processos reacionais não poderia ser diferente, tendo sido desenvolvidos inúmeros trabalhos objetivando a otimização de diversos parâmetros envolvidos em modelos cinéticos de processos químicos.

MOROS et al. (1996) estudaram o modelo cinético de uma reação catalítica de desidrodimerização oxidativa do metano para otimização de parâmetros cinéticos (estimativas de parâmetros iniciais) com o objetivo de aplicar os algoritmos em combinação com o processo integrado. O modelo cinético foi estudado para dois catalisadores diferentes PbO/Alumina.

SIMANT e DEB (1997) apresentaram estudos de um procedimento de projeto ótimo de um reator de síntese de amônia também utilizando técnicas de pesquisa e otimização baseadas nos algoritmos genéticos como ferramentas simples para otimizar, devido ao sucesso obtido em muitos problemas de otimização de engenharia. O problema consistiu em maximizar uma função objetivo levando em consideração um número de restrições envolvendo soluções de equações diferenciais acopladas para encontrar o comprimento ótimo do reator.

CAO et al. (1999) estudaram a modelagem cinética evolucionária de sistemas complexos de reações químicas. Este trabalho propôs um algoritmo evolucionário híbrido denominado de HEMA para construir modelos cinéticos de sistemas de equações diferenciais ordinárias. A principal idéia do algoritmo é embutir um algoritmo genético dentro de uma programação (genética) onde é empregada para otimizar a estrutura do modelo, enquanto o algoritmo genético foi utilizado para otimização dos parâmetros do modelo cinético, tendo a execução do algoritmo indicado boas precisões.

#### Capítulo 7 - Otimização por Algoritmos Genéticos

BALLAND et al. (2000) desenvolveram trabalhos relativos a um método híbrido de estimativa proposto para estimar parâmetros cinéticos e energéticos simultaneamente de modelos químicos. O método combinou um algoritmo genético com um método de convergência local formando gerações de pontos para inicialização do modelo. O sistema químico complexo estudado foi o de saponificação do acetato de etila, onde a reação foi desenvolvida em um reator calorimétrico o qual determina os perfis experimentais de energia liberada ou absorvida pela massa reacional. O modelo baseado em balanços de massa e energia na massa reacional incluiu os parâmetros cinéticos e energéticos da reação, permitindo calcular os perfis de energia, sendo feita uma comparação entre os dados experimentais e os calculados que foi utilizada como o critério de minimização. Os parâmetros do modelo foram determinados com extremo sucesso, concluindo que o método híbrido determina mais eficientemente e mais rapidamente a solução do problema em relação ao ajuste de várias estimativas com

RAJESH et al. (2001) desenvolveram uma técnica de otimização multi-objetivo que foi aplicada em plantas industriais de hidrogenação. A operação dessas plantas é um caso crítico e central com o objetivo de conservação de energia em indústrias de refinação de petróleo e fertilizantes. Neste trabalho, a planta de hidrogenação inteira é simulada utilizando rigorosos modelos de processo para o reformador de vapor e conversores de troca. Um algoritmo genético foi empregado para executar uma otimização multi-objetivo no desempenho da unidade. A maximização do produto hidrogenado e do transporte das taxas de fluxo de vapor foram considerados como duas funções objetivo para uma taxa de alimentação fixa de metano. Os resultados forneceram condições de operação para atingir um custo efetivo na operação dessas plantas.

VICTORINO (2003) utilizou a otimização por algoritmos genéticos no processo de hidrogenação de fenol encontrando bons resultados quando comparados àqueles do processo sem otimização.

# 7.3. Problemas Envolvendo Restrições

A maior parte dos problemas de otimização envolve algum tipo de restrição que deve ser satisfeita pela solução ótima.

Um problema de programação não linear (PNL), geralmente, é descrito da seguinte forma:

 $\operatorname{Minimizar} f(\vec{x}) \tag{7.1}$ 

Sujeito a  $g_i(\vec{x}) \ge 0$  j = 1,...,J,

$$\begin{array}{ll} \overrightarrow{h_k(x)} = 0 & k = 1, \dots, K, \\ x_i^l \leq x_i \leq x_i^u & i = 1, \dots, n. \end{array}$$

$$(7.2)$$

Um problema de PNL é representado por *n* variáveis (portanto *x* é um vetor de tamanho *n*), por *J* restrições de desigualdade e por *K* restrições de igualdade e pela função objetivo f(x). As variáveis têm limites operacionais máximos e mínimos (*upper* e *lower*) estabelecidos como  $x_i^l e x_i^u$ .

Existem na literatura alguns métodos de manipulação de restrição (*Constraint handling methods*) que serão citados aqui.

Os algoritmos clássicos de otimização usam dois tipos de métodos de manipulação de restrição: os métodos genéricos que não exploram a estrutura matemática da restrição e os métodos específicos que são aplicados a um tipo especial de restrição. Dentre os métodos genéricos podem ser citados o método da função penalidade, o método dos multiplicadores de Lagrange e o método de busca complexo. Estes métodos são bastante populares já que podem ser facilmente aplicados a qualquer problema sem muita alteração no algoritmo. Contudo, pelo fato de serem genéricos o desempenho de tais métodos não é satisfatório em alguns casos. Porém, métodos específicos tais como o método do gradiente reduzido e o método de projeção do gradiente, são aplicáveis tanto a problemas tendo somente regiões viáveis (*feasible*) convexas quanto a problemas tendo poucas variáveis, devido ao aumento da carga computacional com um número grande de variáveis. (DEB, 2000).

Os Algoritmos Genéticos (AG's) usam, na maior parte das suas aplicações de problemas de otimização com restrição, o método da função penalidade. Este método é

usado para manipulação de restrições de desigualdade em problemas de minimização, onde a função de ajuste  $F(\vec{x})$  é definida como a soma da função objetivo e um termo de penalidade  $f(\vec{x})$  o qual depende da violação da restrição  $\langle g_j(\vec{x}) \rangle$ , como descrito abaixo:

$$F(\vec{x}) = f(\vec{x}) + \sum_{j=1}^{J} R_j \langle g_j(\vec{x}) \rangle^2$$
(7.3)

A aproximação da função penalidade envolve um número de parâmetros de penalidade os quais são usados para penalizar as soluções inviáveis (*infeasible*). A determinação da solução ótima de  $\vec{F(x)}$  depende dos valores dos parâmetros de penalidade. Uma forma de determiná-los é através de extensivas simulações para encontrar os melhores valores dos parâmetros de penalidade que direcionem a busca para uma região viável.

A inserção de parâmetros de penalidade pode "distorcer" a função objetivo. Valores altos desses parâmetros conduzem o ótimo de  $\vec{F(x)}$  a um valor próximo do ótimo restrito verdadeiro, mas a distorção da função objetivo pode ser tão grande que  $\vec{F(x)}$  tenha soluções ótimas locais. Para valores baixos dos parâmetros de penalidade, a distorção da função objetivo é pequena, mas o ótimo de  $\vec{F(x)}$  pode estar distante do ótimo restrito verdadeiro.

A necessidade de um parâmetro de penalidade é fazer a violação da restrição da mesma ordem de magnitude do valor da função objetivo. No método proposto por DEB (2000), parâmetros de penalidade não são necessários, pois as soluções nunca são comparadas em termos de ambos, valores da função objetivo e informação de violação de restrição. Soluções inviáveis são penalizadas a serem direcionadas para a região de soluções viáveis e quando soluções viáveis são encontradas, um esquema de *niching* (busca de soluções em outras direções utilizando outros cromossomos e comparando com a solução existente ou encontrada anteriormente) é usado para manter a diversidade. Isto auxilia o operador de cruzamento dos AG's a encontrarem melhores soluções a cada geração. Tudo isto é possível nos AG's e não ocorre nos métodos clássicos de otimização ponto a ponto devido à aproximação da população dos AG's e sua habilidade de comparação de soluções *pair-wise* usando o operador de seleção por

torneio, durante o qual os seguintes critérios são sempre enfatizados: (i) quando duas soluções viáveis são comparadas aquela com melhor valor da função objetivo é escolhida, (ii) quando uma solução viável e uma inviável são comparadas, a solução viável é escolhida, (iii) quando duas soluções inviáveis são comparadas, aquela com menor violação da restrição é escolhida (DEB, 2000).

A seguinte função de ajuste ilustra o método de aproximação proposto por DEB (2000) onde as soluções inviáveis são comparadas baseadas somente na violação da restrição:

$$F(\vec{x}) = \begin{cases} f(\vec{x}) \\ f_{max} + \sum_{j=l}^{m} \langle g_j(\vec{x}) \rangle \end{cases} \quad \text{se } g_j(\vec{x}) \ge 0 \quad \forall j = 1, 2, ..., m,$$
(7.4)

Graficamente, o método proposto pode ser ilustrado da seguinte maneira:



Figura 7. 2 - Método de aproximação da função penalidade

Os resultados obtidos pelo autor em problemas de engenharia mostraram soluções ótimas verdadeiras. O uso de AG's de código real com operador de busca controlada mostrou que eles são mais adaptados do que os de AG's de código binário na determinação de soluções descendentes prováveis a partir de soluções de pais prováveis. VICTORINO (2003) obteve semelhante conclusão em aplicações de AG para problemas não lineares e de grande porte.

Para o caso de estudo considerado neste projeto, decidiu-se usar o método da função penalidade com parâmetros de penalidade a serem determinados através de simulações que indiquem os melhores valores dos parâmetros de penalidade que forneçam a solução ótima de  $F(\vec{x})$  a fim de garantir que a restrição não seja violada.

# 7.4. Definição da Função Objetivo

A função objetivo foi definida como sendo a mesma utilizada na otimização por SQP, como forma de comparação entre os dois métodos de otimização.

A função objetivo a ser maximizada é a produtividade do produto formado, 2metil-ciclohexanol, tendo como restrição a conversão do componente B (o-cresol) maior que 0,99, ambas descritas por modelos estatísticos.

Como foi dito antes, será utilizado o método da função penalidade e os parâmetros de penalidade serão testados.

A expressão da função penalidade descrita por DEB (2000), desenvolvida para minimização de problemas, é dada pela Equação 7.3 descrita anteriormente.

Como, para o caso de estudo deste projeto,  $f(\vec{x})$  é dado pela maximização da produtividade e o  $F(\vec{x})$  foi definido para problemas de minimização, é usado um artifício de forma que possa ser escrita a seguinte expressão:

$$f = 1 / produtividade + R * F1 * F1$$
(7.5)

$$F1 = conversão - 0,99 \tag{7.6}$$

onde, R = parâmetro de penalidade F1 = expressão da restrição

Como o código utilizado neste trabalho foi desenvolvido para a maximização da função de avaliação (*funcval*), a mesma pode ser adaptada da seguinte forma:

$$Funcval = 1 / (1+f) \tag{7.7}$$

Esta expressão é uma função de transformação sugerida por DEB (1998) quando se tem um problema de maximização, de forma a minimizar o f e maximizar a *funcval*.

Esta expressão da função penalidade é incorporada na sub-rotina *func* do código que é aqui utilizado.

#### 7.5. Implementação dos Algoritmos Genéticos na Otimização do Reator Trifásico

Para a implementação dos Algoritmos Genéticos, baseou-se no código desenvolvido por CARROLL (2001). A escolha deste código é justificada por se tratar de um programa em Fortran disponível para uso público, pela fácil adaptação do código ao nosso caso de estudo e também por ter sido utilizado com sucesso em trabalhos anteriores como o de VICTORINO (2003).

O código é inicializado por uma população randômica de indivíduos que representam os diferentes parâmetros a serem otimizados pela aproximação por Algoritmos Genéticos. A rotina inclui código binário para os indivíduos, seleção por torneio, mutação uniforme, mutação uniforme de arraste e cruzamento uniforme. Também é adicionado *niching* e opção para o número de descendentes por par de pais. Uma opção para uso de *micro-ga* (algoritmo híbrido) também é incluída.

De uma forma resumida, o software baseado nos algoritmos genéticos, desenvolvido e implementado neste projeto, é apresentado a seguir. O programa principal pode ser descrito da seguinte forma: é chamada a sub-rotina input que contém as informações do arquivo de entrada, ga.inp. A população de indivíduos é inicializada através da sub-rotina *initial* e da leitura de ga-restart, que é um arquivo que contém o tamanho da população a ser inicializada e o tamanho máximo do cromossomo (nchrmax). Os valores das variáveis são então passados para o modelo, dentro da subrotina func, onde ele é chamado. O modelo é resolvido, retornando as suas saídas. A partir dos valores das saídas, é determinada funcval que é a expressão que contém a função objetivo e a restrição. Funcval é definida como sendo o ajuste (fitness) da função objetivo àquele conjunto de variáveis. Os valores dos ajustes são comparados e é decidido se a solução é adaptada ou não. Nesse ponto são aplicados os operadores genéticos, seleção (sub-rotina selectn), cruzamento (sub-rotina crossover) e mutação (sub-rotina *mutate*) que aplica mutações na geração de filhos. A sub-rotina *evalout* é a que avalia a população, atribui o ajuste (*fitnees*) da função objetivo (através da chamada de *func*), escolhe os melhores indivíduos, ou seja, aqueles que dentro da população possibilitaram o melhor ajuste da função objetivo e escreve as informações no arquivo de saída, ga.out. Caso no arquivo de entrada tenha se optado por niching, o programa chama a sub-rotina niche. Através da sub-rotina newgen, o conjunto de filhos gerado é incorporado à nova geração. O arquivo de saída contém informações sobre todas as gerações de cada população, a solução dada para as possibilidades de cada cromossomo,

o ajuste da função objetivo a cada solução, o melhor ajuste da função objetivo encontrado na população, os valores ótimos correspondentes ao melhor ajuste da função objetivo e o número de mutações e cruzamentos efetuados.

A seguir é dado um fluxograma simplificado ilustrativo da seqüência de passos realizados no Algoritmo Genético.



Figura 7.3 - Fluxograma do Algoritmo Genético.

O software desenvolvido e implementado neste projeto contém as seguintes características descritas a seguir:

a) Descrição dos parâmetros do arquivo de entrada *ga.inp*, os quais são passíveis de alteração de acordo com cada tipo de problema e sua necessidade:

- Irestrt = 0 (para evolução particular de uma corrida que se queira realizar, uma nova execução)
- Microga = 0 (para execução do código sem utilização do micro-ga)

- Npopsiz = 50 (tamanho da população que se deseja analisar a cada geração. Representa o número de cromossomos que serão submetidos aos operadores genéticos seleção, cruzamento e mutação e a partir dos descendentes o processo continua até sua finalização, determinada pelo número de gerações máximas, pelo número de indivíduos máximo ou pelo tempo de execução).
- > Nparam = 5 (número de variáveis que se deseja otimizar)
- Pmutate = 0,01d0 (probabilidade de mutação, normalmente dada por valores pequenos como 0,001 até 0,1).
- Maxgen = 500 (número de gerações a serem analisadas, dependendo do tipo de processador utilizado pode-se usar 1000, 10000 ou mais).
- Idum = -1000 (número randômico inicial que inicia a execução do algoritmo. Deve ser um inteiro negativo).
- Pcross = 0,5d0 (valor sugerido para a probabilidade de cruzamento uniforme. Para cruzamento em um ponto é recomendado valor de pcross de 0,6 ou 0,7)
- Itourny = 1 (para seleção por torneio, o algoritmo é ajustado somente para este tipo de seleção)
- Ielite = 1 (quando o elitismo é desejado. O elitismo é recomendado, pois significa que o melhor conjunto de cromossomos será replicado na próxima geração mantendo a possibilidade do bom resultado anterior).
- Icreep = 1 (para consideração de mutação creep. Esta mutação representa uma busca próxima nas melhores soluções até então obtidas, ou seja, verifica-se se a solução instantânea não é um mínimo ou máximo local. Neste teste, caso seja obtida uma solução melhor, ela será considerada e as buscas serão continuadas em torno dela).
- Pcreep = 0,001d0 (probabilidade de mutação creep. Tipicamente é dado por (nchrome/nparam)/npopsiz).
- Iunifrm = 1 (para o emprego de cruzamento uniforme)
- Iniche = 1 (para a busca em "nichos" de regiões, isto é, o programa faz busca em outras regiões, em outras direções utilizando outros cromossomos, e compara com a existente ou encontrada anteriormente. É recomendada sua utilização).
- > Nchild = 2 (para dois descendentes por par de pais).
- > Iskip = 0 (para uma corrida normal de AG. Este é o padrão.)
- Iend = 0 (usado para uma corrida normal de AG. Normalmente usado em conjunto com o iskip).

- > Nowrite = 1 (para que não seja escrita a mutação detalhadamente)
- Kountmx = 5 (valor máximo do contador o qual controla com qual freqüência o arquivo restart é escrito. Normalmente é escrito a cada quinta geração).
- > *Parmin* = conjunto de valores mínimos permitidos dos parâmetros.
- Parmax = conjunto de valores máximos permitidos dos parâmetros.
- > *Npossibl* = conjunto com o número de possibilidades por parâmetro.
- Nichflg = 5\*1 (verificação de "nichos" em cada parâmetro, tendo-se 5 variáveis e desejando-se que para todas elas sejam considerados "nichos", então faz-se 5\*1).

Os operadores utilizados neste trabalho são, então, *crossover* uniforme, mutação uniforme de arraste e seleção por torneio determinístico.

Neste código, há também um arquivo *params.g* no qual são solicitados valores de *indmax* (tamanho máximo da população), *nchrmax* (máximo de cromossomos (bits binários) por indivíduo) e *nparmax* (máximo de parâmetros os quais os cromossomos podem conter).

#### b) Como determinar os parâmetros nposibl e nchrmax

Segundo DEB (1998), em um Algoritmo Genético de código binário, toda variável é codificada em uma *string* binária de tamanho fixo. Para um problema com N variáveis a representação é a seguinte:



Figura 7.4 - Representação de uma string binária

Cada variável é codificada em uma *substring* binária de tamanho li, de modo que o número total de possibilidades permitidas nesta variável é  $2^{li}$ .

O tamanho da substring li, segundo DEB (1998), é dada pela seguinte fórmula:

$$li = \log_2\left(\frac{x_i^{max} - x_i^{min}}{\varepsilon_i}\right) \tag{7.8}$$

onde  $\mathcal{E}_i$  é a precisão requerida para a variável i e  $x_i^{max}$  e  $x_i^{min}$  são, respectivamente, os limites superiores e inferiores das variáveis.

Assim, o tamanho total da string é dada pelo somatório dos  $l_i$ 's:

$$li = \sum_{i=I}^{N} l_i \tag{7.9}$$

Aplicando-se a Equação (7.8) para determinar o tamanho da *substring* (*li*) para cada variável do caso estudo considerado neste trabalho, tem-se:

- > Para a variável ul:
  - **ul** :  $x_i^{min} = 0,004195$  $x_i^{max} = 0,011805$ precisão ( $\varepsilon$ ) = 0,000001

 $li = \log_2(0,007610 / 0,000001) = 7610$ 

 $2^{li} = 7610$ , para permitir essas 7610 possibilidades, *li* tem que ser no mínimo 13 (essa consideração será feita para todas as variáveis abaixo).

Para a variável Agf:

**Agf** :  $x_i^{min} = 0,000608$  $x_i^{max} = 0,002392$ precisão ( $\varepsilon$ ) = 0,000001

 $li = \log_2(0,001784/0,000001) = 1784$ 

 $2^{li} = 1784$ , então li = 11.

> Para a variável Blf:

**Blf** :  $x_i^{min} = 0,009732$ 

 $x_i^{max} = 0,038268$ 

precisão ( $\epsilon$ ) = 0,000001

 $li = \log_2(0,028536 / 0,000001) = 28536$ 

 $2^{li} = 28563$ , então li = 15.

➢ Para a variável Tf:

**Tf** : 
$$x_i^{min} = 411,6$$
  
 $x_i^{max} = 796,8$   
precisão (ε) = 0,001

 $li = \log_2(385, 2 / 0, 001) = 385200$ 

$$2^{n} = 385200$$
, então  $li = 19$ .

Para a variável Trf:

**Trf**:  $x_i^{min} = 381,1$  $x_i^{max} = 737,8$ precisão ( $\varepsilon$ ) = 0,001

$$li = \log_2 \left(356,7 \,/\, 0,001\right) = 356700$$

$$2^{li} = 356700$$
, então  $li = 19$ 

O parâmetro *nposibl* pode ser, então, escrito como: nposibl = 1\*2\*\*13, 1\*2\*\*11, 1\*2\*\*15, 2\*2\*\*19. E o parâmetro *nchrmax* é dado pela Equação 7.9 acima: *nchrmax* = 13+11+15+2\*19 = 77.

# 7.6. Resultados da Otimização por Algoritmos Genéticos usando o Modelo Estatístico do Reator Trifásico

Nesta seção, são apresentados resultados da otimização do reator trifásico, representado pelo modelo estatístico, utilizando os Algoritmos Genéticos. A expressão para *funcval* está descrita a seguir:

Capítulo 7 - Otimização por Algoritmos Genéticos

F1 = conv - 0,99D0	(7.10)
f = 1/prod + R*F1*F1	(7.11)
funcval = 1/(1+f)	(7.12)

Uma outra forma de escrever a restrição é normalizá-la como proposto por DEB (2000). Aplicando a normalização à restrição, a expressão de F1, f e *funcval* a serem utilizadas no código ficam da seguinte forma:

F1 = conv / 0.99d0 - 1.0	(7.13	)
		. 4

$$f = 1/prod + R*F1*F1$$
 (7.14)

$$funcval = 1/(1+f)$$
 (7.15)

O problema de otimização é dado pela maximização da produtividade representada pelo modelo estatístico da Equação (6.20) sujeita à restrição da conversão maior que 0,99, dada pelo modelo estatístico da Equação (6.19), apresentadas na seção 6.3.2 do capítulo 6.

Foram utilizados os seguintes dados de entrada no arquivo *ga.inp*, para iniciação do código, conforme já apresentado anteriormente:

```
Irestrt = 0,
Microga = 0,
Npopsiz = 50,
N param = 5,
Pmutate = 0.01d0,
Maxgen = 500,
Idum = -1000,
Pcross = 0.5 d0,
Itourny = 1,
Ielite = 1,
Icreep = 1,
Pcreep = 0.001 d0,
Iunifrm = 1,
Iniche = 1,
Nchild = 2,
Iskip = 0,
Iend = 0,
Nowrite = 1,
Kountmx = 5,
Parmin = 4,195d-03; 6,08d-04; 9,732d-03; 411,6; 381,1;
Parmax = 1,1805d-02; 2,392d-03; 3,8268d-02; 796,8; 737,8;
Nposibl = 1*8192, 1*2048, 1*32768, 2*524288
Nichflg = 5*1
```

Os valores dos parâmetros usados no arquivo params.g são: indmax = 200, nchrmax = 77 e nparmax = 5.

A forma de definição dos parâmetros *npossibl* e *nchrmax* já foi descrita anteriormente.

As simulações utilizando os Algoritmos Genéticos para otimizar o reator são apresentadas a seguir. A cada simulação, são utilizados diferentes parâmetros de penalidade que são adicionados à função objetivo para penalizar as soluções inviáveis, a fim de deixar a solução mais próxima da região viável. O parâmetro que permite essa condição é escolhido para a expressão da função objetivo.

# i) Para R = 1

Máximo Valor da Função de Avaliação = 0,733 Solução ótima: Variável x1 (parent(1,j)) = ul = 0,01179 Variável x2 (parent(2,j)) = Agf = 0,00239 Variável x3 (parent(3,j)) = Blf = 0,03825 Variável x4 (parent(4,j)) = Tf = 794,5 Variável x5 (parent(5,j)) = Trf = 692,4 **Produtividade** = 2,77x10<sup>-4</sup> **Conversão** = 0,94 Número de *crossovers* = 961 Número de Mutações *Jump* = 28 Número de Mutações *Creep* = 1 Reprodução por Elitismo no Indivíduo = 22

### ii) Para R = 10

Máximo Valor da Função de Avaliação = 0,732Solução ótima: Variável x1 (*parent*(1,j)) = ul = 0,01180Variável x2 (*parent*(2,j))= Agf = 0,00239Variável x3 (*parent*(3,j))= Blf = 0,03822Variável x4 (*parent*(4,j))= Tf = 796,7 Variável x5 (*parent*(5,j))= Trf = 647,7 Produtividade = 2,74x10<sup>-4</sup> Conversão = 0,98 Número de *Crossovers* = 961 Número de Mutações *Jump* = 28 Número de Mutações *Creep* = 1 Reprodução por Elitismo no Indivíduo = 22

# iii) Para R = 100

Máximo Valor da função de Avaliação = 0,732 Solução ótima: Variável x1 (*parent*(1,j))= ul = 0,01180 Variável x2 (*parent*(2,j))= Agf = 0,00239 Variável x3 (*parent*(3,j))= Blf = 0,03825 Variável x4 (*parent*(4,j))= Tf = 796,6 Variável x5 (*parent*(5,j))= Trf = 631,7 **Produtividade** = 2,73x10<sup>-4</sup> **Conversão** = 0,99 Número de *Crossovers* = 961 Número de Mutações *Jump* = 28 Número de Mutações *Creep* = 1 Reprodução por Elitismo no Indivíduo = 22

# iv) Para R = 1000

Máximo Valor da Função = 0,731Solução ótima: Variável x1 (*parent*(1,j)) = ul = 0,01180Variável x2 (*parent*(2,j)) = Agf = 0,00239Variável x3 (*parent*(2,j)) = Blf =0,03821Variável x3 (*parent*(3,j)) = Blf =0,03821Variável x4 (*parent*(4,j)) = Tf = 795,4 Variável x5 (*parent*(5,j)) = Trf = 623,8**Produtividade** =  $2,72x10^{-4}$ **Conversão** = 0,99Número de *Crossovers* = 961 Número de Mutações *Jump* = 28 Número de Mutações *Creep* = 1 Reprodução por Elitismo no Indivíduo = 22

v) Para R = 10000

Máximo Valor da Função = 0,732Solução ótima: Variável x1 (*parent*(1,j)) = ul = 0,01179Variável x2 (*parent*(2,j)) = Agf = 0,00238Variável x3 (*parent*(3,j)) = Blf = 0,03827Variável x4 (*parent*(4,j)) = Tf = 796,7 Variável x5 (*parent*(5,j)) = Trf = 626,3 **Produtividade** =  $2,73x10^{-4}$ **Conversão** = 0,99Número de *Crossovers* = 961 Número de Mutações *Jump* = 28 Número de Mutações *Creep* = 1 Reprodução por Elitismo no Indivíduo = 22

Os resultados acima apresentados são reproduzidos na Tabela 7.1 para facilitar a visualização e a compreensão dos mesmos.
Funcval	Parmin	Parmax	Nposibl	Valor de R	Valor Máximo	Solução Ótima	Produtividade (x 10 <sup>-4</sup> )	Conversão	Nro de Crossovers	Nro de Mutações
					da Função					
F1 = $CONV/0,99DO-1.0$ $f =$ $I/PROD+R*F1*F1$ $FUNCVAL =$ $1/(1+f)$	4,195x10 <sup>-3</sup> 6,08x10 <sup>-4</sup> 9,732x10 <sup>-3</sup> 411,6 381,1	1,1805x10 <sup>-2</sup> 2,392x10 <sup>-3</sup> 3,8268x10 <sup>-2</sup> 796,8 737,8	1*8192 1*2048 1*32768 1*524288 1*524288	1	0,733 0,732	0,01179 0,00239 0,03825 794,5 692,4 0,01180 0,00239 0,03822 796,7	2,77	0,94 0,98	961 961	28
				100	0,732	647,7 0,01180 0,00239 0,03825 796,6 631,7	2,73	0,99	961	28
				1000	0,731	0,01180 0,00239 0,03821 795,4 623,8	2,72	0,99	961	28
				10000	0,732	0,01177 0,00238 0,03827 796,7 626,3	2,73	0,99	961	28

Tabela 7. 1 - Resultados da Otimização por Algoritmos Genéticos.

Analisando-se os resultados das simulações apresentados na Tabela 7.1, verifica-se que a solução está fora da região viável quando os parâmetros de penalidade são iguais a 1 e 10 e que a solução está dentro da região viável quando os parâmetros de penalidade são iguais a 100, 1000 e 10000. Em relação à função objetivo, nota-se que o seu maior valor ocorre quando a solução está mais distante da solução viável. Como o que interessa em problemas de engenharia é que a solução esteja dentro da solução viável, escolhe-se um parâmetro que permita essa condição e que garanta um valor alto para a função objetivo. Como o parâmetro de penalidade igual a 100 já garante a solução dentro da região viável, pois a conversão é maior que 0,99, e a função objetivo atinge um valor alto, pois produtividade é igual a 2,73x10<sup>-4</sup>, então, R = 100 é o parâmetro de penalidade escolhido para a expressão da função objetivo.

Assim, as expressões que definem o ajuste dos indivíduos da população ficam da seguinte forma:

F1 = conversão / 0.99d0 - 1.0	(7.16)
f = 1/prod + 100*F1*F1	(7.17)
funcval = 1/(1+f)	(7.18)

A solução viável para o problema de otimização do reator trifásico resolvido por Algoritmos Genéticos corresponde a:

Variável x<sub>1</sub> (*parent*(1,j)) = ul = 0,01180 Variável x<sub>2</sub> (*parent*(2,j)) = Agf = 0,00239 Variável x<sub>3</sub> (*parent*(3,j)) = Blf = 0,03825 Variável x<sub>4</sub> (*parent*(4,j)) = Tf = 796,6 Variável x<sub>5</sub> (*parent*(5,j)) = Trf = 631,7

Cujos valores da função objetivo e restrição obtidos pela solução ótima são iguais a:

**Produtividade = 2,73 \times 10^{-4}** 

#### Conversão = 0,99

É importante ressaltar que a pressão do sistema é mantida tal que permita que a temperatura de reagentes atinja o valor do limite superior sem que ocorra mudança de fase do reagente.

Os valores encontrados pelo otimizador para as variáveis ul, Agf, Blf, Tf, Trf no modelo estatístico, foram testados no modelo rigoroso que obteve conversão igual a 0,99 e produtividade igual a  $2,24 \times 10^{-4}$ , valores muito próximos dos obtidos pelo modelo estatístico que são 0,99 e  $2,73 \times 10^{-4}$ , respectivamente, o que confirma que as respostas da otimização do modelo estatístico estão corretas.

Foram feitas algumas simulações no código em Fortran utilizando-se valores de temperatura de alimentação de reagentes não otimizados e verificando-se o comportamento da conversão. A Figura 7.5 mostra a conversão obtida no estado estacionário para cada valor de temperatura de alimentação de reagentes não otimizados indicando uma tendência da conversão com o aumento da temperatura de alimentação de reagentes.



Figura 7. 5 – Perfil da conversão vs temperatura de alimentação sem otimização.

Os valores dados pela solução ótima foram usados como valores de entrada das variáveis no modelo rigoroso para o qual foram determinados os perfis da conversão e da produtividade em função do tempo.

A comparação entre o perfil da produtividade obtido pelos valores das variáveis de entrada otimizados pela técnica dos Algoritmos Genéticos e o perfil obtido pelos valores não otimizados é mostrada na Figura 7.6. Pode-se notar que, sem a otimização a produtividade era de apenas 0,44x10<sup>-4</sup> Kmol/m<sup>3</sup>s e que com a otimização por Algoritmos

Genéticos, chegou a 2,24x10<sup>-4</sup> Kmol/m<sup>3</sup>s, o que significa uma melhoria de 5 vezes na produtividade. A obtenção da produtividade máxima mostra a eficiência da otimização por Algoritmo Genético no processo de hidrogenação do o-cresol.

A Figura 7.7 mostra o perfil da conversão de o-cresol obtido quando as variáveis de entrada assumem os valores gerados pela otimização comparado ao perfil obtido antes da otimização. Pode-se verificar que a otimização permitiu uma conversão de 0,99 enquanto sem a otimização, a conversão obtida era de apenas 0,46. Isto significa uma melhoria de 2 vezes na conversão.

A importância da otimização pode ser evidenciada pela máxima produtividade e conversão obtidas, o que coloca os Algoritmos Genéticos como uma eficiente técnica de otimização para o caso de estudo considerado neste trabalho.



Figura 7. 6 – Comparação da Produtividade com e sem otimização por AG's



Foram feitas ainda simulações variando-se os parâmetros de entrada do código do Algoritmo Genético para avaliar a influência dos mesmos sobre as respostas, sendo as constatações descritas a seguir.

Foram feitas simulações variando-se o número de gerações para avaliar a sua influência na estabilidade da função objetivo considerada neste problema. Pode-se perceber que a partir de 300 gerações o valor da função objetivo fica em torno de  $2,73 \times 10^{-4}$ . Como a influência na função objetivo não foi tão significativa a partir de 500 gerações, definiu-se o

parâmetro *maxgen* (número máximo de gerações) igual a 500 para as simulações feitas, pois um número muito alto de gerações aumenta bastante o esforço computacional.



Figura 7.8 – Influência do número de gerações na função objetivo considerada

Considerando-se o parâmetro de penalidade igual a 100, e o tamanho da população igual a 50, foram feitas simulações alterando-se os tamanhos da população para 100 e 200. Porém, os resultados não apontaram nenhum acréscimo considerável no valor da função objetivo.

Outra análise feita foi sobre a influência do parâmetro *pmutate* (probabilidade de mutação), que foi simulado para os valores de 0,001; 0,01 e 0,1; tendo apresentado melhor valor da função objetivo para *pmutate* = 0,01.

Também foi avaliada a alteração do parâmetro idum de -1000 para -10000 e -20000, porém não se observou nenhuma alteração significativa na função objetivo.

Para o parâmetro *pcreep*, também foram feitas alterações que não resultaram em melhoria na função objetivo.

O parâmetro *nchild* que estava sendo considerado igual a 2, foi simulado como sendo igual a 1, mas não se verificou alteração no valor da função objetivo. Porém, acredita-se que com *nchild* igual a 2 a busca é mais refinada.

#### 7.7. Conclusões

Como é possível perceber, os Algoritmos Genéticos mostraram-se eficientes na otimização do reator trifásico, conseguindo encontrar a máxima produtividade dentro do limite da máxima conversão, permitindo, assim, um estado estacionário muito superior àquele que é obtido com valores não otimizados.

Resolvido o problema da otimização das variáveis de entrada do reator, pela técnica dos Algoritmos Genéticos, a próxima etapa é manter o processo otimizado em tempo real, dentro dos limites operacionais, o que poderá ser feito em trabalhos futuros através da estratégia de otimização em uma camada, que será descrita no Capítulo 8.

Comparando-se o desempenho da otimização por Algoritmos Genéticos com o desempenho da otimização por SQP, pode-se verificar que ambos foram eficientes, tendo gerado valores altos para a função objetivo e muito próximos nos dois casos. Com relação ao esforço computacional, como é empregado o modelo reduzido do processo, não há grande esforço durante a execução da otimização nos dois casos. Para o Algoritmo Genético, o esforço computacional pode ser aumentado se há necessidade de um número de gerações alto ou de um tamanho de população grande, mas este não é o caso apresentado aqui. O fato de os Algoritmos Genéticos não serem sensíveis às estimativas iniciais é uma facilidade que não acontece com o SQP. Além disso, como os operadores genéticos garantem uma diversificação na população, e a mesma evolui ao longo de várias gerações, é maior a probabilidade de se encontrar máximos globais na solução do problema de otimização, enquanto que o SQP tem maior tendência a encontrar ótimos locais.

Além de se ter obtido sucesso na otimização do reator trifásico, o emprego das técnicas de otimização por SQP e Algoritmos Genéticos permitiu uma significativa aprendizagem das mesmas e, por conseguinte, uma visão mais ampla do reator de hidrogenação do o-cresol, o que é o objetivo maior deste trabalho.

O próximo capítulo traz as conclusões finais do trabalho e apresenta sugestões para trabalhos futuros.

# CAPÍTULO 8 – Conclusões e Sugestões para Trabalhos Futuros

#### 8.1. Conclusões

Os processos de produção realizados em reatores catalíticos trifásicos são motivo de estudo dada sua importância em Engenharia Química.

O modelo matemático usado neste trabalho é representativo do processo tendo sido usado para estudar o comportamento dinâmico do processo.

O controle do processo foi feito com sucesso estabelecendo uma estrutura de controle viável para o processo.

A otimização do processo foi feita através da técnica do SQP. Não se obteve convergência na otimização por SQP quando se usou o modelo rigoroso do processo. Usando-se um modelo estatístico representativo do processo, obteve-se sucesso na otimização por SQP.

Com este mesmo modelo estatístico do processo, empregou-se também a técnica de otimização por Algoritmos Genéticos, a qual se mostrou eficiente para o processo.

O emprego das técnicas de otimização permitiu um importante aprendizado, além de uma visão mais ampla do processo, o que era o objetivo maior deste trabalho.

O próximo capítulo apresenta uma revisão sobre Integração em Tempo Real com enfoque em uma forma de definir e implementar a estratégia de otimização em uma camada, tendo como objetivo possibilitar a definição do problema de Integração em Tempo Real, seus componentes e as dificuldades a serem vencidas em trabalhos futuros.

#### 8.2. Sugestões para Trabalhos Futuros

Sugere-se, em trabalhos futuros, fazer a Integração do processo em Tempo Real para mantê-lo otimizado, através da abordagem da estrutura em uma camada. Visando este aprofundamento, neste capítulo é feita uma revisão bibliográfica sobre Integração de Processos em Tempo Real, enfocando-se a otimização em uma camada. Este capítulo objetiva apresentar uma forma de definir e implementar a estratégia de otimização em uma camada.

#### 8.2.1. Integração de Processos em Tempo Real

Atualmente são grandes os incentivos para a aplicação de controle avançado e de estratégias de otimização aos processos químicos. A Integração de Processos Químicos em Tempo Real é identificada como uma área de pesquisa de ponta e um dos grandes desafios para o novo milênio (SHOBRYS e WHITE, 2000). Ela consiste na operação da planta industrial inteira ou, até mesmo, de uma rede produtiva continuamente de forma ótima.

Para CUTLER e PERRY (1983), a otimização integrada ao controle em tempo real de uma unidade de processo é uma tarefa complexa, mas que tem compensação nos benefícios que representa para a lucratividade da unidade.

CALBERG et al. (1998) comentam que o sucesso da otimização está vinculado a uma ampla visão do negócio e à escolha adequada das restrições do processo.

Já para WHITE (1997b), o sucesso da otimização depende de fatores como a disponibilidade de mercado para aumento da capacidade de uma unidade, as diferenças de preços entre os produtos, a magnitude do consumo de energia, o número de variáveis manipuladas e restrições, além da precisão do modelo do processo.

Um dos elementos da Integração em Tempo Real é o controle avançado, cuja função principal é não permitir que as variáveis de processo violem suas restrições. O controlador, geralmente, é do tipo multivariável preditivo que utiliza um modelo dinâmico linear de processo obtido através de testes em degrau efetuados na planta.

Outro elemento é a otimização que resolve simultaneamente uma grande quantidade de equações. Os resultados da otimização são enviados para o controle avançado, os quais podem ser: valores de restrições de equipamentos, valores máximos e mínimos das especificações dos produtos, *set points* ótimos para as variáveis manipuladas e/ou controladas, além de parâmetros econômicos para a função econômica linear do controlador.

A integração controle/otimização em tempo real pode ser feita através da otimização em uma, duas ou três camadas (ZANIN, 2001).

Na estratégia em duas camadas, a camada inferior é responsável pelo controle dinâmico. A camada superior determina os *set points* ótimos das variáveis para o estado estacionário e os envia para a camada inferior onde são utilizados como *set points* das variáveis controladas e manipuladas. A maioria das aplicações de controle multivariável implementadas na indústria utiliza esta estratégia (ZANIN, 2001). A figura abaixo ilustra a otimização em duas camadas.



Figura 8. 1- Esquema da estratégia de otimização em duas camadas.

Na otimização em três camadas, a camada superior corresponde ao otimizador não linear com modelo estático rigoroso do processo, a intermediária ao otimizador com modelo estático linear e a camada inferior ao controle multivariável (ZANIN, 2001).

Na otimização em uma camada, os problemas de controle e otimização econômica são resolvidos simultaneamente em um mesmo algoritmo (TVRZSKÁ de GOUVÊA, 1997), como ilustrado na figura abaixo.





Figura 8. 2 - Esquema da estratégia de otimização em uma camada.

A camada do otimizador/controlador serve para calcular as ações de controle que irão conduzir o processo a um ponto de operação ótimo. Assim, não só o modelo econômico aparece embutido, como também um modelo que relaciona as ações de controle com as saídas do processo, ou seja, obtém-se à semelhança do controlador preditivo uma trajetória para as variáveis controladas (TVRZSKÁ DE GOUVÊA, 1997).

Neste caso estudo, da estratégia de otimização em uma camada, é utilizado um Controlador Preditivo baseado em Modelo do tipo *Dynamic Matrix Control* (DMC) como já mencionado anteriormente. O problema de otimização é resolvido por *Successive Quadratic Programming* (SQP) pelo método de otimização global por Algoritmo Genético.

A abordagem em uma camada apresenta algumas sutis diferenças em relação à abordagem em duas camadas. Como o problema resultante do otimizador/controlador corresponde a um problema da Programação Não Linear, restrições podem ser facilmente inclusas, ao contrário do uso de um controlador preditivo irrestrito. Uma outra facilidade desta abordagem reside na possibilidade de se incluir limitações nas ações de controle. Este tipo de restrição é importante para se evitar danos operacionais nas válvulas de controle, causadas por variações abruptas na sua abertura (TVRZSKÁ DE GOUVÊA, 1997).

Alguns trabalhos envolvendo otimização em uma camada são citados abaixo.

ALMEIDA et al. (1996) aplicaram a estratégia de otimização em uma camada para uma unidade de destilação a vácuo, utilizando o algoritmo de controle baseado no LDMC (vide item 5.1), demonstrando os benefícios econômicos gerados.

TVRZSKÁ de GOUVÊA e ODLOAK (1998) aplicaram a estratégia em uma camada para a otimização de gás liqüefeito de petróleo numa unidade de craqueamento catalítico. Os autores compararam a estratégia em uma e duas camadas e concluíram que a estratégia em uma camada assimila mudanças nos objetivos econômicos mais rapidamente e apresenta uma resposta mais suave, o que garante maior estabilidade ao processo. Em contrapartida, a resposta se tornou muito lenta quando perturbações fortes ocorreram no sistema. Outra questão abordada é que erros no modelo do processo podem afetar o ponto ótimo de operação da estratégia em uma camada.

SCHIAVON JR. E CORRÊA (2000), apresentaram uma formulação alternativa para a estrutura em tempo real de controle e otimização não linear em uma camada baseada no QDMC (vide item 5.1) e aplicada a uma coluna de destilação binária. Os valores de saída do processo, a cada tempo de amostragem, eram alimentados em uma estrutura de controle/otimização a qual fornece os novos valores das variáveis manipuladas, já consideradas as melhores condições do processo. As variáveis de otimização eram mudanças no *set point* e ações de controle. As saídas estacionárias futuras e as ações de controle estacionárias futuras tinham ambas uma formulação diferente da estrutura em uma camada convencional sendo calculadas a partir da matriz dos ganhos inversos do processo. Foram consideradas funções econômicas lineares e não lineares. Os resultados apresentados pelos autores demostraram o bom desempenho obtido através dessa estratégia.

ZANIN (2001) comparou as estratégias em uma e em duas camadas e concluiu que a estratégia em uma camada forneceu excelentes resultados nas simulações com as condições normais e as perturbações típicas da operação do conversor da unidade de craqueamento catalítico em leito fluidizado estudada pelo autor.

#### 8.2.2. Otimização em Uma Camada

Na estratégia de otimização em uma camada, o problema de otimização não linear no estado estacionário é resolvido simultaneamente com o problema de controle preditivo multivariável. A formulação do controle dinâmico linear e a equação econômica do sistema no estado estacionário estão incluídas na função objetivo do controlador/otimizador. Esta, juntamente com as restrições estáticas e dinâmicas são resolvidas através de um algoritmo de PNL.

As vantagens desta abordagem, assim como seus pontos negativos, já foram mostrados. No entanto, deve ser ressaltado que esta estratégia pode ser particularmente atraente para situações com constantes alterações nas demandas e é um procedimento que naturalmente introduz um certo caráter adaptativo ao controlador sem as dificuldades inerentes dos mecanismos adaptativos conforme apresentado, por exemplo, nos algoritmos adaptativos propostos por ASTRÖM e WITTENMARK (1989).

A Figura 8.3 representa o esquema da estratégia em uma camada.



Figura 8.3 – Esquema de otimização em uma camada

Para um melhor entendimento da estratégia de otimização em uma camada, é interessante fazer uma descrição de cada um dos componentes que formam o otimizador/controlador, representado na Figura 61 acima.

O caso de estudo considerado é o da hidrogenação de o-cresol sobre catalisador de níquel descrito no capítulo 3.

#### 1) Modelo Estático Rigoroso

A otimização trabalha com um modelo estático não linear do reator trifásico, baseado no modelo dinâmico desenvolvido por TOLEDO (2001). O modelo no estado estacionário consiste de equações de balanço de massa e energia no reator, envolvendo a cinética da reação (Equações 6.11 a 6.18).

#### 2) Modelo Econômico

O modelo econômico é dado por uma função objetivo econômico. Para o caso estudado neste trabalho, foi considerada como função objetivo a máxima produtividade de 2-metilciclohexanol (Equação 6.9), que não foi definida em termos de valor comercial, mas sua maximização garante maior lucratividade no processo. A incorporação de termos levando em conta valores comerciais é direta, sendo o mesmo procedimento adotado.

#### 3) Modelo Dinâmico Linear

É o modelo de convolução do controlador preditivo. É obtido através de perturbações degrau nas variáveis de entrada do modelo dinâmico abordado neste trabalho. O modelo linear do controlador preditivo é utilizado para a predição das variáveis controladas em função das variações nas variáveis manipuladas e perturbações e para a determinação das ações de controle que conduzem as variáveis controladas aos seus valores desejados. Caso um controlador não linear seja utilizado, o modelo interno do controlador também será não linear como apresentado por COSTA e MACIEL FILHO (2003).

#### 4) Restrições do processo

São dadas pelos limites inferiores e superiores das variáveis controladas dinamicamente, manipuladas e das variáveis determinadas pelo modelo estático e controladas no estado estacionário. Os limites inferiores e superiores de uma variável genérica  $x_i$  é representado como:  $x_i^{inf} \le x_i \le x_i^{sup}$ .



143

As restrições do processo também são dadas pelos limites máximos nos movimentos das ações de controle. Para uma variável genérica xi a restrição é dada por:  $-\Delta u_i^{\max} \leq \Delta u_i \leq \Delta u_i^{\max}$ , sendo  $\Delta u_i e \Delta u_i^{\max}$  correspondentes ao incremento e à máxima variação absoluta da ação de controle da variável manipulada i, respectivamente.

As equações do modelo estacionário também precisam ser consideradas como restrições (Equações 6.11 a 6.18).

#### 5) Algoritmo de PNL

É o algoritmo de programação não linear usado para o cálculo da solução ótima do problema de otimização dado pela função objetivo e pelas restrições do processo. O algoritmo de otimização a ser usado pode ser tanto o SQP quanto os Algoritmos Genéticos. A aplicação de técnicas baseadas no algoritmo SQP, para problemas de grande dimensionalidade e fortemente não lineares, tem apresentado problemas tanto de robustez quanto de convergência e a existência de mínimos locais (MELO et al, 2003).

#### 8.2.2.1. Formulação Matemática

A formulação matemática do problema de otimização/controle está descrita abaixo segundo aquela que foi apresentada por ZANIN (2001):

$$\min_{x_{S},\mu_{S},\Delta u(jT_{a}); j=1,...NC} \sum_{i=1}^{NP} \left\| W_{I} \left( y_{p} \left( iT_{a} \right) - y_{sp} \right) \right\|_{2}^{2} + \sum_{j=1}^{NC} \left\| W_{2} \Delta u \left( jT_{a} \right) \right\|_{2}^{2} + W_{3} f_{eco}$$
(8.1)

Sujeito às seguintes restrições:

$$h_{p}(x_{s}, u_{s}, d_{s}) = 0 \tag{8.2}$$

 $h_{e}(f_{eco}, x_{s}, u_{s}, d_{s}) = 0$ (8.3)

$$u_s^{\inf} \le u_s \le u_s^{\sup} \tag{8.4}$$

Capítulo 8 – Conclusões e Sugestões para Trabalhos Futuros

$$x_s^{\inf} \le x_s \le x_s^{\sup}$$
(8.5)

$$-\Delta u^{max}(jT_a) \le \Delta u(jT_a) \le \Delta u^{max}(jT_a) \qquad j=1,...,NC$$
(8.6)

$$u^{inf}(jT_a) \le u_{at} + \sum_{i=1}^{j} \Delta u(iT_a) \le u^{sup}(jT_a) \qquad j=1,\dots,\text{NC-1}$$
(8.7)

$$u_s = u_{at} + \sum_{j=1}^{NC} \Delta u(jT_a)$$
(8.8)

$$y_{p}(iT_{a}) = y_{pf}(iT_{a}) + \sum_{j=1}^{\min(NP,NC)} a_{dmc}((i-j+1)T_{a})\Delta u(jT_{a})$$
(8.9)

onde

- adme matriz dos coeficientes do modelo linear do processo
- ds vetor das perturbações no estado estacionário
- feco função objetivo econômica
- h<sub>e</sub> restrições do modelo econômico
- h<sub>p</sub> restrições do modelo não linear
- NC horizonte de controle
- NP horizonte de predição
- T<sub>a</sub> período de amostragem ou de execução do algoritmo
- u vetor das variáveis manipuladas
- Δu vetor das amplitudes das ações de controle
- u<sub>at</sub> vetor das variáveis manipuladas no instante atual
- us vetor das variáveis manipuladas no estado estacionário
- W<sub>1</sub> matriz diagonal dos pesos das variáveis controladas dinamicamente
- W<sub>2</sub> matriz diagonal dos fatores de supressão das variáveis manipuladas
- W<sub>3</sub> peso da parcela econômica na função objetivo

- x<sub>s</sub> vetor das variáveis do modelo não linear (não incluindo as variáveis manipuladas)
   no estado estacionário
- y<sub>p</sub> vetor da predição linear das variáveis controladas dinamicamente
- y<sub>pf</sub> vetor da predição linear das variáveis controladas dinamicamente, baseada somente
   nas ações de controle passadas
- y<sub>sp</sub> vetor dos *set points* das variáveis controladas dinamicamente

A função objetivo do problema de controle/otimização é composta pelas parcelas do controle dinâmico e da otimização econômica. Os dois primeiros termos da equação (Equação 8.1) são a minimização dos erros preditos das variáveis controladas dinamicamente e a penalização dos movimentos das variáveis manipuladas. O terceiro termo representa a maximização da lucratividade da unidade no estado estacionário.

A Equação 8.2 consiste das restrições de igualdade do modelo estático não linear ou rigoroso. Os limites inferiores e superiores das variáveis do modelo estão representados pelas Equações 8.4 e 8.5. A função objetivo econômica é dada pela Equação 8.3. As Equações 8.6 e 8.7 representam as restrições do problemas dinâmico: limites inferiores, superiores e dos movimentos das ações de controle. A Equação 8.8 relaciona os valores dinâmicos das variáveis manipuladas e seus respectivos estados estacionários. A Equação 8.9 determina a predição das variáveis controladas em instantes futuros ( $y_p$ ) e é formada por dois termos: o primeiro é função somente das ações de controle e perturbações passadas ( $y_{pf}$ ) e o segundo termo é dado pelo conjunto das ações futuras a serem calculadas pelo algoritmo de controle e otimização.

A predição y<sub>pf</sub> pode ser calculada segundo o algoritmo descrito abaixo:

Algoritmo para o cálculo de y<sub>pf</sub>

Para cada instante de amostragem, os seguinte passos ocorrem para atualizar a predição  $y_{pf}$ :

1. Para atualizar a predição das variáveis controladas efetuada no instante de amostragem anterior, adiciona-se em  $y_{pf}$  o efeito de  $\Delta u(o)$ , última ação de controle implementada:

$$y_{pf}(iT) = y_{pf}(iT) + a_{dmc}(iT) \Delta u(o)$$
 (8.10)

onde i=1,...,NM (NM=Horizonte de Modelo)

 Efetua-se a correção através da retroalimentação do processo adicionando ao modelo, para os instantes futuros, a diferença entre o valor medido e o valor da variável controlada e a sua predição no período anterior de amostragem y<sub>pf</sub>(T):

$$y_{pf}(iT) = y_{pf}(iT) + (y - y(T))$$
 i=2,...,NM (8.11)

 Para atualizar a referência de tempo da amostragem anterior para a atual, deslocam-se os valores preditos:

$$y_{pf}(iT) = y_{pf}((i+1)T))$$
  $i=1,...,NM-1$  (8.12)

Como a predição é feita até o estado estacionário,  $y_{pf}$  (nT) já está na sua posição correta.

A equação 8.1 é transformada na equação 8.13. A equação 8.9 é substituída pela equação 8.14 para o cálculo da predição das variáveis controladas.

$$\min_{x_{s}, u_{s}, \Delta u(jT); j=1, \dots, NC} \sum_{i=1}^{NP} \left\| W_{1} \left( y_{p}(iT) - y_{i} \right) \right\|_{2}^{2} + \sum_{j=1}^{NC} \left\| W_{2} \Delta u(jT) \right\|_{2}^{2} + W_{3} f_{eco}$$
(8.13)

$$y_{p}(iT) = y_{pf}(iT) + \sum_{j=1}^{\min(NP,NC)} a_{*}((i-j+1)T)\Delta u(jT) \qquad i = 1,...,NP$$
(8.14)

Onde se tem que: y<sub>1</sub> corresponde aos valores modificados dos *set points* das variáveis controladas e a\* aos valores modificados dos coeficientes do modelo linear.

O algoritmo abaixo calcula y<sub>1</sub> e a<sub>\*</sub>.

#### Algoritmo para o cálculo de y<sub>l</sub> e a\*

 Para a predição da variável controlada maior que o seu limite superior (y<sup>sup</sup>), o *set point* modificado (y<sub>1</sub>) é igualado ao respectivo limite superior e os correspondentes coeficientes do modelo linear da variável não são alterados.

$$y_{pf,c} (iT) \ge y^{sup}_{c}$$
  $y_{l,c} = y^{sup}_{c}$  (8.15)  
 $a_{*} (k) = a_{dmc} (k)$ 

onde c = 1,...nc /  $i = 1,...,NP / k = (i-j+1)T / j=1,...,NC / j \le i$ 

O índice c corresponde às posições da predição, do *set point* e do limite de uma determinada variável controlada nos seus respectivos valores e nc é o número de variáveis controladas.

 Para a predição da variável controlada dentro de seus limites operacionais (y<sup>inf</sup> e y<sup>sup</sup>), o set point modificado (y<sub>1</sub>) acompanha a referida predição e os correspondentes coeficientes do modelo linear são anulados.

$$y_{c}^{inf} < y_{pf,c} (iT) < y_{c}^{sup}$$
  $y_{l,c} = y_{pf,c} (iT)$  (8.16)  
 $a_{*} (k) = 0$   
onde  $c = 1,..., NP / k = (i-j+1)T / j=1,..., NC / j \le i$ 

 Para a predição da variável controlada menor que o seu limite inferior (y<sup>inf</sup>), o set point modificado é igualado ao respectivo limite inferior e os correspondentes coeficientes do modelo linear da variável não são alterados.

$$y_{pf,c} (iT) \le y_{c}^{inf} \qquad y_{l,c} = y_{c}^{inf}$$

$$a_{*} (k) = a_{dmc} (k)$$
onde c = 1,..., NP / k = (i-j+1)T / j=1,..., NC / j ≤ I

(8.17)

#### 8.2.2.2. Implementação do Algoritmo de Otimização Integrada ao Controle

A partir da formulação matemática do problema de controle e otimização, a etapa de implementação do otimizador consiste em substituir o controlador multivariável do reator, baseado na filosofia do DMC, pelo novo algoritmo de controle e otimização.

A seguir é apresentado um fluxograma para representar o algoritmo de otimização integrada ao controle:



Figura 8.4 – Fluxograma da otimização em uma camada.

Na etapa de inicialização, valores iniciais armazenados em arquivo são fornecidos para as variáveis do otimizador/controlador. Também é feita a leitura dos parâmetros do algoritmo em uma base de dados que pode ser alterada dinamicamente se for necessário.

A próxima etapa é a leitura das variáveis do processo que é atualizada pelo sistema de controle. Com estes dados, é realizada a etapa de predição das variáveis controladas que é baseada nas ações de controle passadas e calculada pelo modelo linear do processo (*Algoritmo para o cálculo de y*<sub>pf</sub>) para ser utilizada na função objetivo do algoritmo.

Na etapa de otimização e controle, pode ser usado o SQP ou os Algoritmos Genéticos. Como já foi dito, na primeira vez que o programa é executado, as variáveis do otimizador são inicializadas através de um arquivo. Nas próximas execuções, os valores iniciais são dados pela solução ótima da execução anterior. Finalmente, os *set points* das variáveis manipuladas, depois de validados, são enviados ao controlador DMC do sistema de controle.

### 8.2.2.2.1. Modelo Estatístico

A implementação para o modelo estatístico segue o fluxograma mostrado na Figura 8.4. Porém, o modelo do processo é simplificado, dado pelas Equações 6.19 e 6.20. As variáveis controladas (y) e as manipuladas (u) são:

- $y_1$  = temperatura de saída do reator (T)
- y2 = concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl)
- ul = velocidade linear do líquido (ul)
- u2 = concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator (Agf)
- u3 = concentração de o-cresol na fase líquida na alimentaçãodo reator (Blf)
- u4 = temperatura de alimentação do reator (Tf)
- u5 = temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf)

As variáveis de decisão podem ser:

- velocidade linear do líquido (ul)
- concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator (Agf)
- concentração de o-cresol na fase líquida na alimentaçãodo reator (Blf)
- temperatura de alimentação do reator (Tf)
- temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf)

A função objetivo econômico é dada pela Equação 6.20 e a restrição do modelo econômico é dada pela Equação 6.19.

O algoritmo de otimização a ser usado pode ser tanto o SQP quanto os Algoritmos Genéticos.

#### 8.2.2.2.2. Modelo Rigoroso

A implementação para o modelo rigoroso segue o fluxograma apresentado na Figura 8.4. O modelo rigoroso do processo é dado pelas Equações 3.1 a 3.8 (descritas no Capítulo 3). As variáveis controladas (y) e as manipuladas (u) podem ser:

- y1 = temperatura de saída do reator (T)
- y2 = concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl)
- ul = velocidade linear do líquido (ul)
- u2 = concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator (Agf)
- u3 = concentração de o-cresol na fase líquida na alimentaçãodo reator (Blf)
- u4 = temperatura de alimentação do reator (Tf)
- u5 = temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf)

As variáveis de decisão podem ser:

- velocidade linear do líquido (ul)
- concentração de hidrogênio na fase gasosa na alimentação do reator (Agf)
- concentração de o-cresol na fase líquida na alimentaçãodo reator (Blf)
- temperatura de alimentação do reator (Tf)
- temperatura de alimentação do fluido refrigerante (Trf)
- temperatura de saída do reator (T)
- temperatura de saída do fluido refrigerante (Tr)
- concentração de o-cresol na fase líquida na saída do reator (Bl)
- concentração de H<sub>2</sub> na fase líquida na saída do reator (Al)
- concentração de H<sub>2</sub> na fase gasosa na saída do reator (Ag)
- concentração de H<sub>2</sub> na fase sólida (As)
- concentração de o-cresol na fase sólida (Bs)
- temperatura na fase sólida (Ts)

A função objetivo econômico é dada pela Equação 6.9. As restrições são a do modelo econômico, dada pela Equação 6.10 e as do modelo não linear dadas Equações do Modelo Matemático no Estado Estacionário (Equações 6.11 a 6.18).

O algoritmo de otimização a ser usado pode ser tanto o SQP quanto os Algoritmos Genéticos.

## **Referências Bibliográficas**

ALMEIDA, E.; ZANIN, A.C.; ODLOAK, D. Advanced control and optimization of a crude vacuum unit. XI Congresso Brasileiro de Automática, I Simpósio de Automática Aplicada, São Paulo, 1996, *Anais.* p. 23-28,1996.

ASTRÖM, J. A.; WITTENMARK, B. Adaptative Control. Addison-Wesley Publishing Company, 1989.

BALLAND, L.; ESTEL, L., Cosmao, J. M.; MOUHAB, N. A genetic Algorithm with Decimal Coding for the Estimation of Kinetic and Energetic Parameters. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*. V. 50, p. 121-135, 2000.

BARROS NETO, B.; SCARMINIO, I. S.; BRUNS, R.E. Como fazer experimentos: Pesquisa e desenvolvimento na ciência e na indústria. Campinas: Editora da Unicamp, 2001, 401 p.

BELEW, R.; L. BOOKER, B. Proceedings of the Fourth International Conference on Genetic Algorithms. San Mateo: Morgan Kaufmann, 1991.

CALBERG, N.; COON, A. ; CROWE, T. Computing Optimization. Hydrocarbon Engineering, p. 61-66, November, 1998.

CAO H.; Yu J.; KANG L.; CHEN Y.; CHEN Y. The Kinetic Evolutionary Modeling of Complex Systems of Chemical Reactions. *Computers e Chemistry*, v. 23, p. 143-151, 1999.

CARROLL, D. L. Disponível em < http://cuaerospace.com/carroll/ga.html> .

CLARKE, D.W., MOHTADI, C.; TUFFS, P.S. Generalized Predictive Control, Part I: The Basic Algorithm, *Automatica*, v. 23, p. 137-148, 1987a.

CLARKE, D.W., MOHTADI, C.; TUFFS, P.S. Generalized Predictive Control, Part II: Extensions and Interpretations, *Automatica*, v. 23, p. 149-160, 1987b.

COSTA, A. C. "Controle Ótimo Adaptativo em Processos Fermentativo"s. Rio de Janeiro, RJ: COPPE, 1998. Tese (Doutorado).

COSTA, A. C., "Avaliação de Estratégias de Controle Integradas ao Problema Otimização para o Processo de Produção de Ciclohexanol", Campinas, SP: Universidade Estadual de Campinas, 2001. Projeto de Pós-Doutorado em Andamento.

COSTA, A. C.; MACIEL FILHO, R. Non Linear Predictive Control of a Three-Phase Catalytic Reactor . *Canadian Journal of Chemical Engineering*. In Press

CUTLER, C. R.; RAMAKER, B.L. Dynamic matrix control: a computer control algorithm. In: *AICHE 86<sup>th</sup> National Meeting*, paper 51-B, Houston, April, 1979.

CUTLER, C. R.; PERRY, R.T. Real time optimization with multivariable control is required to maximizes profits. *Computers and Chemical Engineering*, v. 7, n. 5, p. 663-667, 1983.

CUTLER, C. R. DMC of Inbalanced Systens, ISA Trans., v.21, n. 1, p.1

DAVIS L. Handbook of Genetic Algorithms. Van Nostrand Reinbold, New York, 1991.

DEB, K. Optimization for Engineering Desing-Algorithms and Examples. Prentice Hall, 1995.

DEB, K. An efficient constraint handling method for genetic algorithms. *Computer Methods in Applied Mechanics Engineering*. 186 (2000) 311-338.

DECHECHI, E. C. Controle "DMC" de um processo de fermentação alcoólica contínua em escala industrial. Campinas, SP: Universidade Estadual de Campinas, 1996. Tese (Mestrado).

DECHECHI, E. C. Controle avançado preditivo adaptativo DMC multivariável adaptativo. Campinas: Universidade Estadual de Campinas, 1998. Tese (Doutorado).

DUDUKOVIC, M.P.; LARACHI, F.; MILLS, P.L. Multiphase Reactors-Revisited Chem. Engng. Sci., v. 54, p. 1975-1995, 1999.

EDGAR, T.F.; HIMMELBLAU, D. M. Optimization of Chemical Processes. Singapura: McGraw-Hill Book Company, 1989, 652 p.

GIANETTO, A.; SPECCHIA V., Trickle-Bed Reactor: State of Art and Perspectives, *Chem. Engng. Sci.*, v. 47, p. 3197-3213, 1992.

GIANETTO, A.; SILVESTON, P. L. Multiphase Chemical Reactors: Theory, Design, Scale-up, Hemisphere Publishing Corporation, Washington, 1986.

GOLDBERG, D. E. Genetic Algorithms in Search, Optimization, and Machine Learning Addison-Wesley Publishing Company, INC, 1989.

GOUVÊA, M. T. Uso de um algoritmo SQP na otimização de processos químicos contínuos em tempo real. São Paulo: Escola Politécnica, Universidade de São Paulo, 1997. Tese (Doutorado).

GOUVEA, M. T.; ODLOAK, D. One-layer real time optimization of LPG the production in the FCC unit: procedure, advantages and disadvantages *Comp. Chem. Engng.*, v 22, p. S191-198, 1998a. HANIKA, J. Safe Operation and Control of Trickle-Bed Reactor, *Chem. Engng. Sci.*, v. 54, p. 4653-4659, 1999.

HERSKOWITZ, M.; SMITH, M. J. Trickle-Bed Reactors: A Review, AIChE J., v. 29, p. 1-18, 1983.

HICHRI, H.; ARMAND, A.; ANDRIEU, J. Kinetics and slurry type reactor modelling during catalytic hidrogenation of o-cresol on Ni/SiO<sub>2</sub>, *Chem. Eng. Process.*, v. 30, p. 133-140, 1991.

HOLLAND, J. H. Adaptation in Natural and Artificial Systems. University of Michigan Press, 1975.

JORGENSEN, S. B.; JENSEN, N. Dynamic and Control of Chemical Reactors – Selectively Surveyed, IFAC Dynamics and Control of Chemical Reactors, Netherlands, 49-67, 1989.

JULCOUR, C., STÜBER F., LE LANN, J.M., WILHELM, A.M.; DELMAS, H. Dynamics of a Three-Phase Upflow Fixed-Bed Catalitic Reactor, *Chem. Engng. Sci.*, v. 54, p. 2391-2400, 1999.

LANGE, R.; GUTSCHE, R.; HANIKA, J. Forced Periodic Operation of a Trickle-Bed Reactor, *Chem. Engng. Sci.*, v. 54, p. 2569-2573, 1999.

LUYBEN, W. L. Process Modelling, Simulation and Control for Chemical Engineers, fourth edition, McGraw Hill Book Company, 1990.

MARCHETTI, J. L.; MELLICHAMP. D. A.; SEBORG, D. E. Predictive control based on discrete convolution models. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, v. 22, p. 488-495, 1983.

MAURATH, P. R.; LAUB, A. J.; SEBORG, D. E.; MELLICHAMP. D. A. Predictive controller design by principal components analysis. *Ind. Eng. Chem. Res.*, v. 27, p. 1204-1212, 1988.

MEDEIROS, R.V. Modelagem do problema de planejamento da produção da rede de utilidade e do sistema de pré-aquecimento e mistura da unidade de produção de ciclohexanol, Campinas, SP: Universidade Estadual de Campinas, 2001. Tese (Mestrado).

MELEIRO, L. A. C. Projeto e Aplicação de Controladores baseados em Modelos Lineares, Neurais e Nebulosos, Campinas: Universidade Estadual de Campinas, 2002. Tese (Doutorado).

MELO, D.N.C., HASAN, S.D.M., MACIEL FILHO, R. A Two Layer Approach For Large Scale Process/Optimization: Application To Hydrogenation Reactor, *The Sixth Italian Conference on Chemical and Process Engineering*, 08–11 July , 2003, Pisa, Italy

MICHALEWICZ, Z. Genetic Algorithms + Data Structures = Evolution Programs, Springer Verlag, NY.

MORARI, M.; LEE, J.H. Model Predictive Control: Past, Present and Future, *Comp. Chem. Engng.*, v. 23, p. 667-682, 1999.

MOROS, R.; KALIES, H.; REX, H. G.; SCHAFFARCZYK, S. A Genetic Algorithm for Generating Initial Parameter Estimations for Kinetic Models of Catalytic Processs. *Computers Chem. Engineering*, v. 20, n. 10, p. 1257-1270, 1996.

NEWELL, R.B. e LEE, P.L. Applied Process Control – A case study, Prentice Hall, 1989.

PINTO, J.M. Controle por matriz dinâmica em coluna de destilação, Rio de Janeiro - RJ: COPPE – UFRJ, 1990. Tese (Mestrado) PRETT, D. M.; GILLETE, R. D. Optimization and constrained multivariable control of a catalytic craking unit. In: *AICHE 86<sup>th</sup> National Meeting*, paper 51-C, Houston, April, 1979.

QIN, S.J. e BADGWELL, T.A. An overview of industrial model predictive control technology, in J. C. Kantor, C. E. Garcia e B. Carnahan (eds), *Chemical Process Control*, v. 93 of AIChE Symposium Series, pp. 232-256.

RAJESH, J. K.; GUPTA, S. K.; RANGAIAH G. P.; RAY A. K. Multi-Objective Optimization of Industrial Hydrogen Plants. *Chemical Engineering Science*, v. 56, p. 999-1010, 2001.

RAMACHANDRAN, P.A; CHAUDHARI, R. V. Three-Phase Catalytic Reactors. McGraw Hill International Editions, New York, 1983.

RICHALET, J.; RAULT, A.; TESTUD, J. L.; PAPON, J. Model predictive heuristic control: Aplications to industrial process, *Automática*, v.14, n. 5, p. 413-428, 1978.

SALMI, T.; WÄRNÅ, J.; TOPPINEN, S.; RÖNNHOLM, M.; MIKKOLA, J.P. Dynamic Modelling of Catalytic Three-Phase Reactors for Hydrogenation and Oxidation Processes. *Braz. J. Chem. Eng.*, v.17, p. 1023-1035, 2000.

SANTANA, P. L. Modelos matemáticos para reator de lama trifásico aplicados à hidrogenação do o-cresol. Campinas, SP: Universidade Estadual de Campinas, 1995. Tese (Mestrado).

SANTANA, P. L., Modelagem Matemática para Reator Trifásico: Modelos Determinísticos, Neuronais e Híbridos. Campinas, SP: Universidade Estadual de Campinas, 1999. Tese (Doutorado).

SCHIAVON Jr. A.L.; CORRÊA, R.G. Applications of an alternative formulation for onelayer real time optimization. *Braz. J. Chem. Eng.* vol. 17, n.4-7, São Paulo, 2000. SEBORG, D. E. Advances in Control, Springer Verlag, Capítulo: A Prespective on Advanced Strategies for Process Control (Revisited), 1999.

SHOBRYS, D.; WHITE, D.C., Planning, scheduling and control systems: why can they not work together. *Comp. Chem. Engng.*, v. 24, p. 163-173, 2000.

STEPHANOPOULOS, G. Chemical process control: an introduction to theory and practice. Prentice Hall, 1984.

TOLEDO, E. C. V. Modelagem, simulação e controle de um reator de lama catalítico trifásico. Campinas: Universidade Estadual de Campinas, 2000. Pós Doutorado em andamento.

TOLEDO, E. C. V.; SANTANA, P. L.; MACIEL, M. R. W.; MACIEL Filho, R., Dynamic modelling of a three-phase catalytic slurry reactor. *Chem. Eng. Science*, v.56, p.6055-6061 (2001).

TRESMONDI, A Integração de Processos Químicos em Tempo Real: Aplicação para o Processo de Oxidação de Cumeno. Campinas: Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP), 2003. Tese de Doutorado.

UPRETI, S. R.; DEB, K. Optimal Design of na Ammonia Synthesis Reactor Using Genetic Algorithms. *Computers Chem. Engineering*, v. 21, n. 1, p. 87-92, 1997.

VICTORINO, I. *Otimização do reator de ciclohexanol por Algoritmo Genético*. Campinas: Universidade Estadual de Campinas, 2002. Doutorado em andamento.

VICTORINO, I. R. S; MACIEL FILHO, R.; MARTINI, R.F; MACIEL, M.R. Application of Genetic Algorithms to the Optimization of an Industrial Reactor of Production of Cyclohexanol, in Computer Aids for Chemical Engineering Education p. 627-630, 2003.

UNICAMP	
BIBLIOTECA CENTRAL SEÇÃO CIRCULANTE	

WHITE, D. C. On line optimization: what, where and estimating ROI. *Hydrocarbon Processing*, p. 43-51, June, 1997b.

WRIGHT, S. Convergence of SQP – like methods for constrained optimization. SIAM J. on Control and Optimization, v.27. n. 1, p. 13-26, 1989.

ZANIN, A. C. Implementação Industrial de um Otimizador em Tempo Real. São Paulo, SP: Universidade de São Paulo, 2001. Tese (Doutorado).