



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO
CENTRO DE CIÊNCIAS AGRÁRIAS E ENGENHARIAS
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA

**APLICAÇÃO DE UMA ESTRATÉGIA DE CONTROLE PREDITIVO NÃO LINEAR A
UM REATOR DE POLIMERIZAÇÃO COM MÚLTIPLOS CATALISADORES**

LUIZ FELIPE NEIVA DA SILVA

ALEGRE, ES

2021

LUIZ FELIPE NEIVA DA SILVA

**APLICAÇÃO DE UMA ESTRATÉGIA DE CONTROLE PREDITIVO NÃO LINEAR A
UM REATOR DE POLIMERIZAÇÃO COM MÚLTIPLOS CATALISADORES**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-graduação em Engenharia Química do Centro de Ciências Agrárias e Engenharias da Universidade Federal do Espírito Santo, como parte das exigências para obtenção do Título de Mestre em Engenharia Química.

Área de Concentração: Engenharia Química

Linha de Pesquisa: Modelagem, Otimização e Análise de Processos

Orientador: Prof. Dr. Julio Cesar Sampaio Dutra.

Coorientador: Prof. Dr. Wellington Betencurte da Silva.

ALEGRE, ES
MAIO DE 2021

Ficha catalográfica disponibilizada pelo Sistema Integrado de
Bibliotecas - SIBI/UFES e elaborada pelo autor

D111a da Silva, Luiz Felipe Neiva, 1996-
Aplicação de uma Estratégia de Controle Preditivo não linear a
um Reator de Polimerização com Múltiplos Catalisadores / Luiz
Felipe Neiva da Silva. - 2021.
95 f. : il.

Orientador: Julio Cesar Sampaio Dutra.

Coorientador: Wellington Betencurte da Silva.

Dissertação (Mestrado em Engenharia Química) - Universidade
Federal do Espírito Santo, Centro de Ciências Agrárias e
Engenharias.

1. Controle de processo. 2. Controle de processos químicos. I.
Dutra, Julio Cesar Sampaio. II. da Silva, Wellington Betencurte.
III. Universidade Federal do Espírito Santo. Centro de Ciências
Agrárias e Engenharias. IV. Título.

CDU: 66.0

LUIZ FELIPE NEIVA DA SILVA

**APLICAÇÃO DE UMA ESTRATÉGIA DE CONTROLE PREDITIVO NÃO LINEAR A
UM REATOR DE POLIMERIZAÇÃO COM MÚLTIPLOS CATALISADORES**

Dissertação apresentado ao Programa de Pós-graduação em Engenharia Química do Centro de Ciências Agrárias e Engenharias da Universidade Federal do Espírito Santo, como parte das exigências para obtenção do Título de Mestre em Engenharia Química.

Defendido em 25 de maio de 2021.

(assinado eletronicamente)

Prof.^a Dr.^a Ariany Binda Silva Costa
Universidade Federal do Espírito Santo

Prof.^a Dr.^a Lilian Gasparelli Carreira
Universidade Federal do Espírito Santo

(assinado eletronicamente)

Prof. Dr. Julio Cesar Sampaio Dutra
Universidade Federal do Espírito Santo

Prof. Dr. Wellington Betencurte da Silva
Universidade Federal do Espírito Santo



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO

PROTOCOLO DE ASSINATURA



O documento acima foi assinado digitalmente com senha eletrônica através do Protocolo Web, conforme Portaria UFES nº 1.269 de 30/08/2018, por
JULIO CESAR SAMPAIO DUTRA - SIAPE 2016917
Departamento de Engenharia Rural - DER/CCA
Em 02/08/2021 às 20:12

Para verificar as assinaturas e visualizar o documento original acesse o link:
<https://api.lepisma.ufes.br/arquivos-assinados/241280?tipoArquivo=O>



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO

PROTOCOLO DE ASSINATURA



O documento acima foi assinado digitalmente com senha eletrônica através do Protocolo Web, conforme Portaria UFES nº 1.269 de 30/08/2018, por
ARIANY BINDA SILVA COSTA - SIAPE 2419883
Departamento de Engenharia Rural - DER/CCA
Em 02/08/2021 às 21:37

Para verificar as assinaturas e visualizar o documento original acesse o link:
<https://api.lepisma.ufes.br/arquivos-assinados/241325?tipoArquivo=O>

RESUMO

DA SILVA, Luiz Felipe Neiva. **Aplicação de uma Estratégia de Controle Preditivo não linear a um Reator de Polimerização com Múltiplos Catalisadores**. 2021. Dissertação (Mestrado em Engenharia Química) – Universidade Federal do Espírito Santo, Alegre, ES. Orientador: Julio Cesar Sampaio Dutra. Coorientador: Wellington Betencurte da Silva.

A produção de materiais poliméricos é uma das áreas mais importante nas indústrias, devido ao seu grande impacto econômico e social. O polipropileno, obtido pela formação de longas cadeias de monômero de propileno, na atualidade é a 2ª resina plástica mais comercializada, representando quase dois terços do consumo global de propileno, com diversas aplicações em engenharia e na vida cotidiana. Devido ao forte interesse econômico, a busca por ganho efetivo de produtividade com redução de custos é inerente às atividades produtivas. Vários métodos de polimerização, combinados a tecnologias de produção e mistura de diferentes catalisadores são usados na fabricação de diferentes produtos. Isso tem levado ao projeto de processos ou equipamentos multipropósitos que devem ser capazes de produzir de materiais com vários tipos de qualidade. Em plantas reais de polimerização, mudanças frequentes dos objetivos de controle, a dinâmica não linear do processo, a entrada de perturbação e a ocorrência de falhas representam desafios operacionais importantes. Por isso, sem um sistema de controle e monitoramento estratégico e eficiente, a operação multipropósito não seria possível. Neste contexto, este trabalho propõe um esquema de controle preditivo baseado em um modelo não linear (NMPC), o qual é aplicado à simulação de um reator de polimerização multifuncional de propileno com a utilização de uma mistura de 3 diferentes catalisadores. Este esquema compreende uma camada de controle supervisão (NMPC) referente à especificação da qualidade do polímero e outra camada de controle regulatório (PID) para garantir a estabilidade do processo. Os resultados mostraram o esquema de controle NMPC - PID possibilitou melhorias no controle do processo em todos as misturas de catalisadores, fornecendo bons desempenhos e consistência no controle além de evitar certos problemas no âmbito industrial, o que se destaca seu potencial para aplicação prática.

Palavras-chave: Equipamentos Multipropósitos, Controle Preditivo Baseado em Modelo não linear, Simulação, Polimerização.

ABSTRACT

DA SILVA, Luiz Felipe Neiva. **Application of a Nonlinear Model Predictive Control Strategy to a Polymerization Reactor with Multiple Catalysts**. 2021. Dissertation (Master in Chemical Engineering) – Espírito Santo Federal University, Alegre, ES. Adviser: Julio Cesar Sampaio Dutra. Co-adviser: Wellington Betencurte da Silva.

Polymeric materials production is one of the most important areas in industrial activities, due to its great economic and social impact. Polypropylene, obtained by forming long chains of propylene monomer, is currently the 2nd most marketed plastic resin, representing almost two thirds of global propylene consumption, with several applications in engineering and daily life. Such economic interest forces the search for effective productivity gains while reducing costs is inherent to productive activities. Several polymerization methods, combined with production technologies and mixing of different catalysts, are used to manufacture different products. This has led to the design of multi-purpose equipment or processes that must be able to produce materials with different types of quality. In real polymerization plants, frequent changes in control objectives, nonlinear dynamics of the process, input of disturbances and the occurrence of faults pose serious operational challenges. Therefore, without a strategic and efficient control and monitoring system, multi-purpose operation would not be possible. In this context, this work proposes a predictive control scheme based on a non-linear model (NMPC), which is applied to the simulation of a propylene multi-purpose polymerization reactor with the use of a mixture of 3 different catalysts. This scheme comprises a layer of supervisory control (NMPC) referring to the specification of the quality of the polymer and another layer for regulatory control (PID) to guarantee process stability. The results showed the NMPC - PID control scheme allowed improvements in the process control in all catalyst mixtures, providing good performance and consistency in the control, in addition to avoiding certain problems in the industrial scope, which highlights its potential for practical application.

Keywords: Multi-Purpose Equipment, Predictive Control Based on Nonlinear Model, Simulation, Polymerization.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1: Esquema simplificado do processo <i>Unipol</i> . Fonte: MCAULEY <i>et al.</i> (1994).	11
Figura 2: Esquema de polimerização <i>Novolert</i> ®. Fonte: MCAULEY <i>et al.</i> (1994). ...	12
Figura 3: Esquema simplificado processo <i>Spheripol</i> . Fonte: REGINATO (2001).	17
Figura 4: Modelo da polimerização utilizando tecnologia LIPP. Fonte: PRATA (2009).	18
Figura 5: Formulação do problema de Rosenbrock.	29
Figura 6: Esquema dos tipos de solução do modelo. Fonte: Autor (2021).	31
Figura 7: Fluxograma simplificado do processo. Fonte: (DUTRA <i>et al.</i> , 2014). Adaptada.	41
Figura 8: Esquema da integração das camadas de controle. Fonte: Autor (2021). ...	50
Figura 9: Comportamento dinâmico do controle de MFI e XS através da manipulação da vazão de alimentação de hidrogênio e da razão de cocatalisadores, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 0.02$; $\beta\% = 10.83$ e $\gamma\% = 89.15$	57
Figura 10: Comportamento dinâmico do controle de T_r e T_w através da manipulação da vazão de saída de monômero do condensador e da vazão de água utilizada no condensador, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 0.02$; $\beta\% = 10.83$ e.....	58
Figura 11: Comportamento dinâmico do controle de MFI e XS através da manipulação da vazão de alimentação de hidrogênio e da razão de cocatalisadores, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 0.18$; $\beta\% = 4.07$ e $\gamma\% = 95.75$	60
Figura 12: Comportamento dinâmico do controle de T_r e T_w através da manipulação da vazão de saída de monômero do condensador e da vazão de água utilizada no condensador, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 0.18$; $\beta\% = 4.07$ e.....	61
Figura 13: Comportamento dinâmico do controle de MFI e XS através da manipulação da vazão de alimentação de hidrogênio e da razão de cocatalisadores, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 23.77$; $\beta\% = 76.23$ e	63
Figura 14: Comportamento dinâmico do controle de T_r e T_w através da manipulação da vazão de saída de monômero do condensador e da vazão de água utilizada no condensador, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 23.77$; $\beta\% = 76.23$ e....	64
Figura 15: Comportamento dinâmico do controle de MFI e XS através da manipulação da vazão de alimentação de hidrogênio e da razão de cocatalisadores, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 1.10$; $\beta\% = 98.90$ e $\gamma\% = 0$	66
Figura 16: Comportamento dinâmico do controle de T_r e T_w através da manipulação da vazão de saída de monômero do condensador e da vazão de água utilizada no condensador, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 1.10$; $\beta\% = 98.90$ e $\gamma\% =$ 0.....	67

LISTA DE TABELAS

Tabela 1: Breve resumo da literatura de trabalhos publicados sobre controle de processos de polimerização.	34
Tabela 2: Catalisadores empregados na polimerização.	42
Tabela 3: Modelo cinético para a polimerização do propileno.	42
Tabela 4: Parâmetros de sintonia do NMPC.....	48
Tabela 7: Critérios de desempenho das variáveis de qualidade calculados para o esquema de controle, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 0.02$; $\beta\% = 10.83$ e.....	59
Tabela 8: Critérios de desempenho das variáveis de qualidade calculados para o esquema de controle, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 0.18$; $\beta\% = 4.07$ e	62
Tabela 9: Critérios de desempenho das variáveis de qualidade calculados para o esquema de controle, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 23.77$; $\beta\% = 76.23$ e $\gamma\% = 0$	65
Tabela 10: Critérios de desempenho das variáveis de qualidade calculados para o esquema de controle, considerando a composição catalítica $\alpha\% = 1.10$; $\beta\% = 98.90$ e $\gamma\% = 0$	68

LISTA DE SÍMBOLOS

Símbolo	Descrição	[Unidades]
a_1	Constante da equação do índice de fluidez	-
a_2	Constante da equação do índice de fluidez	-
Cat	Concentração das espécies catalíticas no reator	$[mol/m^3]$
$c_{p,M}$	Calor específico do monômero	$[cal \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}]$
$c_{p,Pol}$	Calor específico do polímero	$[cal \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}]$
H_2	Concentração de hidrogênio no reator	$[mol/m^3]$
$k_{t,H}$	Constante cinética de transferência de cadeia por hidrogênio	$[L \cdot mol^{-1} \cdot h^{-1}]$
k_d	Constante cinética de desativação do catalisador	$[h^{-1}]$
k_p	Constante cinética de propagação de cadeia	$[L \cdot mol^{-1} \cdot h^{-1}]$
M_{cw}	Massa de água no condensador	$[kg]$
M	Concentração de monômero no reator	$[mol/m^3]$
M_c	Massa de monômero no condensador	$[kg]$
\dot{m}_M	Vazão de alimentação de monômero fresco	$[kg/h]$
\dot{m}_{Cat}	Vazão de alimentação de catalisador	$[mol/h]$
\dot{m}_H	Vazão de alimentação de hidrogênio	$[kg/h]$
MFI	Índice de fluidez	$[g \cdot (10min)^{-1}]$
\dot{m}_{M_c}	Vazão de saída de monômero do condensador	$[kg/h]$
\dot{m}_{TEA}	Vazão de alimentação de TEA	$[kg/h]$
\dot{m}_{PEEB}	Vazão de alimentação de PEEB	$[kg/h]$
\dot{m}_{Pol}	Vazão de saída de polímero	$[kg/h]$
\dot{m}_S	Vazão de saída de lama do reator	$[kg/h]$
\dot{m}_w	Vazão de água de resfriamento utilizada no condensador	$[kg/h]$
$PEEB$	Massa de PEEB no reator	$[kg]$

Símbolo	Descrição	[Unidades]
PM_H	Massa molar do hidrogênio	[<i>kg/mol</i>]
PM_M	Massa molar do monômero	[<i>kg/mol</i>]
Pol	Massa de polímero no reator	[<i>kg</i>]
Q_1	Quantidade de calor total retirada pelo condensador	[<i>cal/h</i>]
Q_2	Quantidade de calor total retirada pela camisa de refrigeração	[<i>cal/h</i>]
R_{Pol}	Taxa de polimerização	[<i>kg/h</i>]
T	Temperatura do reator	[<i>K</i>]
T_c	Temperatura do condensador	[<i>K</i>]
T_e	Temperatura de alimentação de monômero	[<i>K</i>]
TEA	Massa de TEA no reator	[<i>kg</i>]
T_w	Temperatura de saída de água do condensador	[<i>K</i>]
UA	Coefficiente global de transferência de calor	[<i>cal·K⁻¹·h⁻¹</i>]
V	Volume do reator	[<i>m³</i>]
w_M	Fração mássica de monômero no reator	-
w_{Pol}	Fração mássica de polímero no reator	-
XS	Teor de solúveis em xileno	[<i>%p/p</i>]
XS_R	Parâmetro adicional para o cálculo de XS	[<i>%p/p</i>]
ΔH	Calor de reação	[<i>cal/kg</i>]
λ_0	Momento de ordem 0 de uma distribuição de tamanhos de cadeia de um polímero vivo	[<i>mol/m³</i>]
λ_1	Momento de ordem 1 de uma distribuição de tamanhos de cadeia de um polímero vivo	[<i>mol/m³</i>]
λ_2	Momento de ordem 2 de uma distribuição de tamanhos de cadeia de um polímero vivo	[<i>mol/m³</i>]
λ_M	Calor latente de vaporização do monômero	[<i>cal/h</i>]
y_{ref}	Trajectoria de referência no objetivo do NMPC	
Δu	Controle móvel	
\hat{y}	Saída do modelo	
y	Saída real do processo (variável controlada)	

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	1
1.1.	Contextualização: Motivação para o Desenvolvimento do Trabalho	1
1.2.	Objetivos	4
1.3.	Escopo e Organização do Presente Trabalho	5
2.	POLIMERIZAÇÃO DO POLIPROPILENO	7
2.1.	Breve histórico	7
2.2.	Cenário econômico atual	8
2.3.	Processos de obtenção do polipropileno	9
2.3.1.	Polimerização em Fase Gasosa	10
2.3.2.	Polimerização em lama (<i>Slurry</i>)	13
2.3.3.	Polimerização em Solução	14
2.3.4.	Polimerização em <i>massa (Bulk)</i>	14
2.4.	Polimerização do tipo LIPP	17
2.3.	Comentários finais	19
3.	ESTRATÉGIAS DE CONTROLE PREDITIVO NÃO-LINEAR	21
3.1.	Breve Histórico	22
3.2.	Fundamentos de controle preditivo	23
3.2.1.	Modelo de predição	24
3.2.2.	Função Objetivo	24
3.2.3.	Obtenção da Lei de Controle	25
3.3.	Estratégias numéricas de NMPC	26
3.3.1.	Abordagem sequencial	27
3.3.2.	Abordagem simultânea	27
3.3.3.	Abordagem de disparo múltiplo	28
3.4.	<i>Softwares</i> ou pacotes disponíveis	28
3.4.1.	Pyomo	28
3.4.2.	CasADi	29
3.4.3.	JModelica	30
3.4.4.	APMonitor	31
3.5.	Critérios de desempenho	31
3.6.	Aplicações em problemas de polimerização	33
3.7.	Comentários finais	38
4.	METODOLOGIA	39
5.	RESULTADOS E DISCUSSÃO	55
6.	CONCLUSÕES E SUGESTÕES	69
	REFERÊNCIAS	71

1 INTRODUÇÃO

Neste capítulo, uma breve introdução sobre o presente trabalho é apresentada, incluindo a motivação para o desenvolvimento do trabalho e os principais objetivos, de modo a fornecer uma visão geral desta dissertação. Por fim, segue uma descrição da estrutura de organização do texto.

1.1. Contextualização: Motivação para o Desenvolvimento do Trabalho

Os polímeros são macromoléculas produzidas a partir de pequenos segmentos químicos simples denominados monômeros. A reação química pela qual os monômeros são transformados em polímeros é denominada reação de polimerização e seu controle apresenta inúmeros desafios para o engenheiro químico, devido ao fato de que essas reações geralmente são altamente exotérmicas e o meio reacional, em função do crescimento da cadeia, torna-se muito viscoso, o que dificulta o transporte de massa e calor. Além disso, essas reações são bem conhecidas por se comportarem de maneira não linear e vários casos de multiplicidades e oscilações da qualidade dos produtos finais foram relatados na literatura, mesmo para reatores em escala industrial (ALIEV *et al.*, 2019; DELDUGA, 2013).

A produção de polímeros é uma das áreas mais importantes das indústrias químicas, devido ao seu significativo impacto econômico e social. Ao longo dos anos vê-se sua participação efetiva no setor industrial, seja na produção, seja no produto final. Os polímeros como materiais estão presentes em quase todos os campos da atividade humana promovendo uma grande diversidade de produtos, além de possuir aplicações específicas com crescente importância tecnológica e econômica no mercado competitivo. Eles variam de materiais básicos, como polietileno (PE) ou polipropileno (PP), até materiais altamente especializados e caros para liberação de medicamentos ou aplicações relacionadas a embarcações espaciais (ALIEV *et al.*, 2019; DELDUGA; JR, 2014).

O polipropileno (PP) é uma das resinas termoplásticas mais importantes do mundo contemporâneo. Na atualidade, o PP é a 2ª resina plástica mais comercializada, ficando atrás somente do polietileno de baixa densidade (LDPE) (DUTRA *et al.*, 2014; MADDAH, 2016). Em 2018, a demanda mundial de PP foi superior a 19%

(LIN; LIN; BAO, 2020). Existem previsões para aumento da demanda de polipropileno, uma vez que este é um material termoplástico atraente devido a suas características de não toxicidade, peso leve, baixo custo de produção e facilidade de processabilidade, além de ser reciclável (LIN; LIN; BAO, 2020). Portanto, é crucial o desenvolvimento de estudos que levem a busca da evolução na qualidade dos produtos e da eficiência dos sistemas de produção de polipropileno.

Além da margem de produção, a importância do PP deve-se às propriedades como fácil maleabilidade, a produção de peças mais leves e mais rígidas, com boa resistência a impactos e alta resistência à corrosão. As principais aplicações do PP se encontram em múltiplos setores industriais, como na fabricação de peças automotivas, utensílios domésticos, peças para eletrodomésticos, objetos para construção civil e entre outros. Embora o PP seja empregado em diversas áreas, o setor de embalagens é responsável por, pelo menos, a metade do consumo mundial (DIAS; DA SILVA; DUTRA, 2017; DUTRA *et al.*, 2014).

A busca efetiva por ganho de produtividade é inerente às atividades produtivas. No entanto, a busca por ganhos de produção com redução de custos consiste em princípios cada vez mais consolidados na atualidade. A qualidade, que é um desses princípios, tem se tornado o fator mais importante na tomada de decisão dos consumidores e, muitas vezes, concorre com a necessidade de reduzir os recursos empregados no processo. Este cenário no qual a busca de produtos com alto valor agregado, foco na qualidade final do produto e na preocupação com o aumento de produtividade privilegia, conseqüentemente, a utilização da mesma instalação para a fabricação de diferentes produtos. Deste modo, torna-se cada vez mais necessária à busca por equipamentos multipropósitos associados a estratégias de controle mais eficientes (DELDUGA; JR, 2014).

Industrialmente, resinas de PP com diferentes propriedades podem ser obtidas usando uma série de reatores, com condições operacionais de acordo com as características desejadas; ou empregando uma mistura de diferentes catalisadores, como os tipos Ziegler-Natta (ZN) e metalloceno (MC). Sob esta perspectiva, os critérios para determinar as especificações finais do polímero tornam-se desafiadores para o controle de processos, uma vez que surge a necessidade de manter bem controlada a reação de polimerização (LAW; HUSSAIN, 2019; VARSHOUEE *et al.*, 2019). Dessa forma, a busca de estratégias com base no modelo mostra grande potencial.

Convencionalmente, o controlador derivativo proporcional integral (PID) é aplicado no processo em níveis de controle regulatório e supervisório. Embora o controlador PID seja muito aceito no mercado atual devido à sua aplicação direta, este ainda necessita de algumas melhorias em termos de dificuldade de trabalhar na presença de não-linearidades no modelo. Diante disto, o presente trabalho visa contribuir com o estudo de uma estratégia de controle multivariável, empregando a alimentação de uma mistura de catalisadores para alcançar as propriedades finais desejadas para a resina polimérica. Como os sistemas de polimerização são não lineares, propõe-se implementar uma estratégia de controle preditivo não linear (EDWIN; GARCIA, 2019; HERMANSSON; SYAFIIE, 2015; SAKI; FATEHI, 2020).

A abordagem do controle preditivo de modelo não linear (NMPC) é apontada na literatura moderna como uma ferramenta de grande potencial para aplicações em processos não lineares e que são submetidos a grandes variações durante a sua operação. Esta técnica considera intrinsecamente o modelo do processo e as restrições operacionais, a qual estima os estados futuros do processo num intervalo (horizonte de predição) pré-definido. Estas estimativas serão utilizadas para o cálculo das ações de controle. No caso de ocorrer mudanças operacionais ao longo do tempo, possivelmente deve haver mudanças também no conjunto das variáveis controladas, o que pode demandar reconfiguração de malhas da camada de controle regulatório. Este tipo de alteração é indesejável, uma vez que a estabilidade do processo pode ser comprometida (EDWIN; GARCIA, 2019; HERMANSSON; SYAFIIE, 2015; SAKI; FATEHI, 2020).

O controle supervisório (NMPC) deve incluir estratégias para realizar a reconfiguração de controle. Para tanto, a otimização realizada em linha pode incorporar fatores bastante importantes para permitir a consideração de (1) mudança de objetivos de controle, (2) mudança de dinâmica do processo, (3) entrada de perturbações ou (4) ocorrência de condição de falha. Assim, o uso do controle preditivo baseado em modelo é uma boa solução, visto que é uma técnica de controle que considera intrinsecamente as mudanças ocorridas na operação e capaz de reconfigurar o controle do processo a cada instante de amostragem (SCOKAERT; MAYNE; RAWLINGS, 1999).

Na prática, isso é possível devido à natureza multivariável, à atualização do modelo do processo e à definição dos *setpoints* ótimos para as variáveis controladas e dos

valores de referência para as variáveis manipuladas (RISBECK; MARAVELIAS; RAWLINGS, 2019).

1.2. Objetivos

Diante das dificuldades encontradas para um bom monitoramento e controle do processo, a modelagem matemática desempenha um papel fundamental, pois permite a descrição dos fenômenos envolvidos no processo com a previsão de seu comportamento, frente à mudanças e a novas condições operacionais. Neste sentido, o presente trabalho tem como objetivo principal implementar uma estratégia de controle preditivo baseado em modelo não linear (NMPC) para operação de um reator de polimerização multipropósito empregando uma mistura de 3 catalisadores distintos.

Especificamente, serão abordados os seguintes temas:

- Estudo preliminares do comportamento dinâmico do processo para definir o modelo matemático para as camadas de controle regulatório e supervisório;
- Implementação computacional do modelo do processo e de uma estratégia de NMPC em um ambiente de simulação livre usando a linguagem Python;
- Comparação do desempenho da estratégia empregada com um esquema de controle multivariável usando apenas controladores proporcional-integral (PI).

1.3. Escopo e Organização do Presente Trabalho

Para a realização da tarefa proposta, este trabalho contém 5 capítulos, distribuindo os assuntos na seguinte forma:

Capítulo 2 – Polimerização do Polipropileno. Neste capítulo, foram pesquisados estudos, iniciando com métodos de polimerização existentes seguido das principais tecnologias para produção do polipropileno no mercado atual.

Capítulo 3 – Estratégias de Controle Preditivo Não Linear. Neste capítulo, fez-se uma análise de um breve histórico, juntamente com os fundamentos do controle preditivo. São apresentados também as principais estratégias numéricas de NMPC em um ambiente computacional gratuito e seus respectivos pacotes para solução do problema.

Capítulo 4 – Metodologia. Neste capítulo, mostra-se o modelo rigoroso usado para polimerização do propileno e suas condições operacionais. Assim, é construído o problema de controle, com destaque para o tempo de amostragem, horizontes de predição e controle, função objetivo, valores de penalização e a estratégia numérica. E, por fim, o esquema de integração do NMPC com a camada inferior e os testes de desempenho são considerados.

Capítulo 5 – Resultados e Discussões. Neste capítulo, são apresentados os principais resultados obtidos de todas as etapas desse trabalho de pesquisa, acompanhados de uma discussão sobre seus significados.

Capítulo 6 – Conclusão. Neste capítulo, são apresentadas as conclusões e sugestões para trabalhos futuros.

2. POLIMERIZAÇÃO DO POLIPROPILENO

2.1. Breve histórico

A resina de polipropileno (PP) é obtida pela reação de polimerização do monômero propileno a nomenclatura IUPAC é propeno, que é provavelmente a matéria-prima mais antiga empregada nos processos petroquímicos. O propileno é um hidrocarboneto insaturado formado átomos de hidrogênio e carbono, no qual é possível promover sua polimerização por técnicas de iniciação física, em presença de catalisadores organometálicos ou outros em condições controladas de temperatura e pressão resultando na obtenção das macromoléculas de PP que, nesse caso, possui estereorregularidade (taticidade) (HOCKING, 2005; MADDAH, 2016).

Em 1954, quando se iniciaram as tentativas de polimerizar o polipropileno, o resultado foi uma substância líquida oleosa sem valor comercial. Já em 1955, com as descobertas da época de Ziegler e Natta, o polipropileno tornou-se o segundo maior material plástico de consumo, com uma taxa de crescimento anual de aproximadamente 6%. O polipropileno é produzido a partir do craqueamento de propano ou de hidrocarbonetos de grande massa molar, na presença de vapor sob condições específicas. O rendimento do propileno aumenta à medida que a severidade do craqueamento do propano aumenta, mas atinge um máximo antes que a conversão máxima de etileno seja alcançada, visto que a craqueamento do propano libera outros gases na saída como etileno e hidrogênio. Assim, mesmo com o uso de propano como matéria-prima para a produção de propileno, é comum haver maior quantidade de etileno que produto de propileno no fluxo de saída para otimizar o processo de craqueamento (HOCKING, 2005; MADDAH, 2016).

O propileno também pode ser recuperado como subproduto de outras operações de processos petroquímicos, principalmente a partir do craqueamento catalítico dos gasóleos e, em menor grau, dos produtos voláteis do coque (um resíduo do refino de petróleo). Todas as correntes de refinaria que contêm uma fração significativa de recuperáveis de propileno são combinadas em um misturador para posteriormente ser realizada a separação deste elemento (HOCKING, 2005).

Em torno de 45% do propileno produzido é utilizado para a produção de polipropileno isotático, no qual os grupos metila se encontram no mesmo plano

especial. O restante é usado para produção de acrilonitrila (cianeto de vinila), preparação dos "oxoálcoois", álcool isopropílico (isopropanol), para óxido de propileno e produção de cumeno (isopropilbenzeno) e fenol. A tecnologia de produção do polipropileno (PP) em específico tem evoluído nos últimos 50 anos, desde os primeiros catalisadores Ziegler-Natta até os modernos metalocênicos proporcionando aumento de produção e propriedades diferenciadas (HOCKING, 2005; MADDAH, 2016).

2.2. Cenário econômico atual

As poliolefinas fazem parte do cotidiano da sociedade contemporânea e são usadas em aplicações que incluem desde a fabricação de itens mais simples, como embalagens descartáveis, recipientes e mangueiras, até o desenvolvimento de aplicações de engenharia, como componentes automobilísticos e acessórios de aeronaves. Os produtos são apresentados sob a forma de filmes, folhas, fibras ou até mesmo como graxas e líquidos viscosos (DIAS; DA SILVA; DUTRA, 2017; DUTRA *et al.*, 2014; ODIAN, 2004).

Hoje os derivados de polietileno (PE) e polipropileno (PP) se destacam no mercado, no qual são os dois plásticos mais produzidos no mundo. Em 2015, a demanda mundial de polipropileno foi estimada em cerca de 62 milhões de toneladas por ano, com uma participação de mercado, entre todos os materiais termoplásticos, de cerca de 26%, perdendo apenas para o polietileno, que representa 37% da participação de mercado. (CATHELIN *et al.*, 2018).

A importância do polipropileno no cenário econômico mundial é tão grande que a indústria de polipropileno foi estimada em cerca de US\$ 110 bilhões em 2019 e deve chegar a US\$ 155 bilhões em 2030 (LIN; LIN; BAO, 2020; MADANI; KESHAVARZ MORAVEJI; SHARIFI, 2021).

A facilidade do acesso ao monômero propileno é uma das causas principais do sucesso comercial do polipropileno, o qual é obtido a partir do gás natural, além de muitas outras vantagens como excelentes propriedades mecânicas/térmicas, resistência a fusão e alta processabilidade, alta capacidade de reciclagem, peso leve, alta flexibilidade e boa resistência química. Tais propriedades mostram como o polipropileno está presente em diversos segmentos da indústria têxtil, na forma de fibras, filamentos e carretéis; automobilística, como chapas termoformadas para

consoles e painéis, revestimentos internos e peças tecnológicas; de bens de consumo doméstico, como móveis e eletrodomésticos; de construção civil, como monofilamentos, tubos e chapas; e de embalagens de modo geral (ATASHROUZ *et al.*, 2020; DIAS; DA SILVA; DUTRA, 2017; DUTRA *et al.*, 2014).

2.3. Processos de obtenção do polipropileno

Desde a década de 90, no século XX, a busca pela eficiência operacional ganhou espaço ainda maior no segmento de produção de PP. Cada tecnologia disponível no mercado possui características próprias de produtos/propriedades. Dentre os processos produtivos, por exemplo, destacam-se os processos em lama (*slurry*), solução, massa (*bulk*) e fase gasosa (MAIER; BIDELELL; SHAMIRI, 2016). No Quadro 1, encontram-se as tecnologias mais recentes referentes ao processo produtivo do polipropileno.

Quadro 1: Processos de obtenção de PP.

Processo	Fornecedores de tecnologia
Fase gasosa	<i>Targor (Novolen), Union Carbide (Unipol), Ineos (Innovene).</i>
Slurry (lama)	<i>Hercules</i>
Solução	<i>Eastman</i>
<i>Bulk</i> (massa)	<i>Mitsui (Hypol), LyondellBasell (Spheripol), Exxon Mobile</i>

É importante destacar que cada processo usa o sistema mais adequado para sua necessidade, na forma solúvel ou dispersa. Um exemplo que pode ser citado é dos catalisadores metallocênicos homogêneos, que podem ser adequados ao processo em solução, mas apenas uma pequena parcela da produção mundial de polietileno e uma fração praticamente desprezível da produção de polipropileno são sintetizadas em solução. Já nos processos em lama ou em leito fluidizado, os catalisadores metallocênicos homogêneos podem provocar problemas operacionais como a incrustação do polímero nas partes internas do reator, que pode ser explicada pelo aumento da viscosidade do meio reacional e à produção excessiva de partículas

finas de polímero (SILVA A., ROCHA M., 2001). Abaixo são mostrados os principais tipos de polimerização e algumas de suas tecnologias.

2.3.1. Polimerização em Fase Gasosa

O método da polimerização em fase gasosa, o meio reacional é composto por uma mistura de catalisadores muito bem agitados e o monômero na fase gasosa. A agitação pode ser realizada tanto de forma mecânica ou por fluidização das partículas. O catalisador é adicionado de forma contínua no leito catalítico, enquanto o polímero que vai sendo formado é retirado do sistema onde pode ser separado facilmente do monômero não reagido por um vaso de *flash*. A reação de polimerização ocorre no centro ativo do catalisador por difusão do reagente através dos poros. Como nesse processo não há presença de um solvente, apresenta grande economia em relação ao processo em lama e solução. O controle de temperatura é crucial; porém é dificultado pelas elevadas taxas de reação e baixas taxas de transferência de calor e massa. Contudo, no ponto de vista prático é comum adicionar líquidos voláteis no meio reacional com o intuito de melhorar a troca térmica (ASUA, 2007; ODIAN, 2004).

A seguir, são apresentados três processos industriais que utilizam a técnica de polimerização em fase gasosa.

Union Carbide (Unipol)

É um processo que foi, inicialmente, desenvolvido para a produção de polietileno, sendo, posteriormente, adaptado à produção de polipropileno. Uma das vantagens do processo sobre os sistemas de fase líquida é a variedade de produtos que podem ser produzidos em um mesmo reator, ou seja, de diferentes índices de fluidez e densidades. O reator consiste de duas zonas, uma zona de reação e uma zona de expansão. A zona de expansão tem como principal função, impedir que partículas sólidas sejam carregadas pelo fluxo de gás para a linha de reciclo de gás. Para manter um leito fluidizado viável, a taxa de fluxo mássico através do leito deve estar acima da vazão mínima requerida para fluidização. E esta se encarrega de misturar o catalisador injetado com a massa de polímero, evitando a formação de pontos quentes no reator, no qual podem gerar aglomerados de polímero e,

consequentemente, paradas por entupimento. Antes de se iniciar o fluxo do reciclo de gás, na partida do reator, é necessário a existência de um leito inicial de polímero. Abaixo do leito há uma placa que faz a distribuição do gás de reciclo de modo a evitar o assentamento das partículas e posterior aglomeração das mesmas (ASUA, 2007).

Este processo contém a particularidade de possuir uma zona superior nos reatores mais larga que permite reduzir a velocidade do gás. É um processo onde a alimentação de monômero, hidrogênio e dos catalisadores ocorre de forma contínua ao reator. No processo *Unipol*, a temperatura de reação é inferior a 88 °C e a pressão inferior a 4 MPa (CHADWICK, 2011).

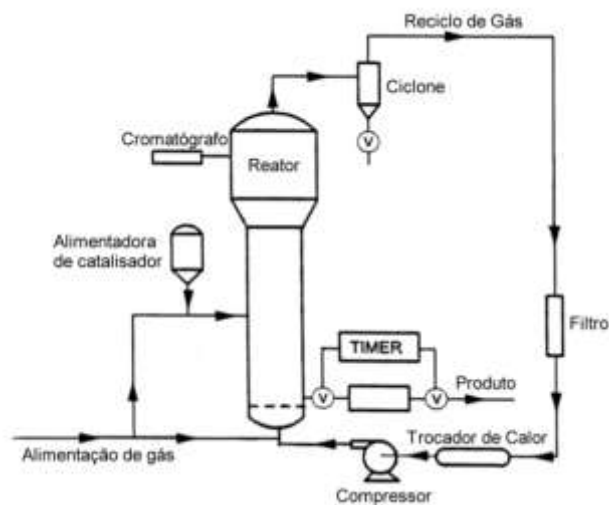


Figura 1: Esquema simplificado do processo *Unipol*. Fonte: MCAULEY *et al.* (1994).

Targor (Novolen)

O processo *Novolen*® foi patenteado pela BASF, tendo a patente sido adquirida mais tarde pela *Novolen*® *Technology Holdings* (NTH). Neste processo recorre-se a um reator verticalmente agitado para nele proceder à polimerização do polipropileno. Trata-se de um processo similar ao processo *Unipol*, mas com um sistema simples de descarga do polímero. A NTH classifica como aquele de menor custo de operacionalidade e o que requer baixo investimento (ASUA, 2007).

Uma característica marcante do processo é sua habilidade em operar o reator à produção de homopolímeros, copolímeros de impacto e copolímeros randômicos de propileno-etileno utilizando catalisadores de alta atividade e grande especificidade. Os reatores apresentam um volume de 25, 50 ou 75 m³ e são equipados com agitadores helicoidais que conferem uma agitação com elevada qualidade. A

polimerização ocorre no reator onde os componentes são introduzidos no sistema. Os componentes devem ser bem dispersos de modo a evitar a sua acumulação. A reação ocorre entre 70 e 80 °C e a uma pressão entre 3 e 4 MPa, de modo a garantir que o monômero se encontre na fase gasosa no reator. São utilizadas baixas concentrações de hidrogênio para controlar a massa molar. A temperatura é controlada removendo propileno gasoso a partir do topo do reator, condensando-o com água de arrefecimento e recirculando-o para dentro do reator, em que a sua evaporação fornece o controle de temperatura devido, assim como, o arejamento dos componentes no reator. Cada tonelada de polímero produzido requer cerca de 6 toneladas de propileno líquido para ser evaporado como refrigerante. O sólido obtido e o gás são descarregados continuamente num ciclone de baixa pressão. O propileno é reciclado após compressão e liquefação. O polímero em pó passa para silos, sendo depois transformado e estabilizado para passar por um processo de extrusão de modo a obter grânulos de polímero como produto final. Também é possível, neste processo, eliminar resíduos oxidados e oligômeros (materiais de baixa massa molar), por intermédio de um sistema de arrastamento de vapor, quando o polímero é requerido para comercializações específicas. A reação ocorre entre 70 e 80 °C e a uma pressão entre 3 e 4 MPa, de modo a garantir que o monômero se encontre na fase gasosa no reator (CHADWICK, 2011). Na Figura 2 encontra-se o esquema *Novolen*®.

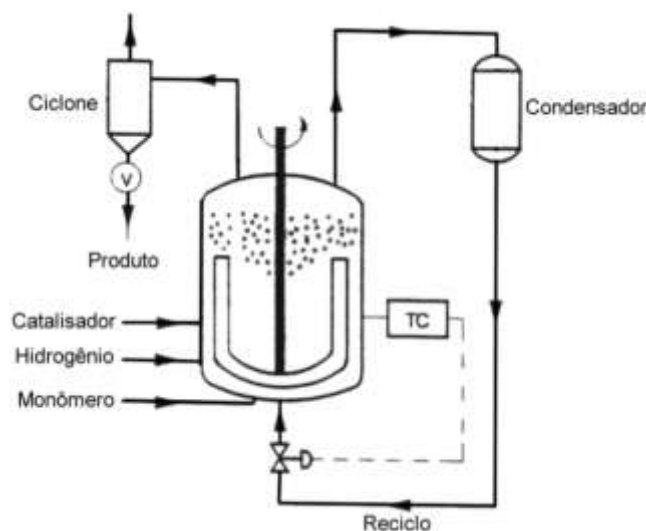


Figura 2: Esquema de polimerização *Novolen*®. Fonte: MCAULEY *et al.* (1994).

Ineos (Innovene)

O processo *Innovene* é baseado em um reator de leito agitado horizontal. A tecnologia foi desenvolvida pela Amoco e Chisso que obtiveram o registro da patente conjunta em 1985. Neste processo, os dois reatores estão no mesmo nível, exigindo um sistema de transferência de pó. Este processo pode ser executado no modo cascata ou paralelo (ASUA, 2007; CHADWICK, 2011).

2.3.2. Polimerização em lama (*Slurry*)

Os processos de polimerização em lama são aqueles em que o monômero se encontra solubilizado no solvente, que pode ser alifático ou aromático enquanto o polímero formado é insolúvel no meio. Os catalisadores utilizados nesse processo podem ser solúveis ou heterogêneos. Normalmente, é um processo que ocorre em séries de reatores CSTR, o qual é comum para produção comercial de homopolímeros, copolímeros aleatórios e copolímeros de impacto com catalisadores Ziegler-Natta (DA SILVA ROSA; MELO; PINTO, 2012; REGINATO; ZACCA; SECCHI, 2003).

Uma forte característica desse processo é que permite um excelente controle da temperatura de reação e a obtenção de polímeros com diferentes propriedades finais. Este método de polimerização exhibe um elevado custo de produção e baixa taxa de polimerização em virtude do inchamento das partículas de polímero com o solvente, mas devido à sua flexibilidade de operação, esta tecnologia é amplamente utilizada. Normalmente, a conversão média é igual a 85%. Ao final da reação, a lama polimérica contém cerca de 40% em massa de polímero, que se encontra suspenso no meio e deve ser totalmente precipitado, separado, lavado, seco e purificado (DA SILVA ROSA; MELO; PINTO, 2012). A tecnologia *Hercules* é um exemplo deste processo de polimerização, principalmente no que diz respeito às etapas de purificação e reciclo de álcool (usado para desativação do catalisador) e querosene (dilúente para o processo). Envolve um grande número de operações unitárias, o que faz deste um processo custoso. Por essas razões, os processos de polimerização em lama de propileno estão sendo parcialmente substituídos por outros economicamente mais vantajosos.

2.3.3. Polimerização em Solução

A única tecnologia que opera em solução é a *Eastman*, que normalmente é conduzida em reatores autoclave agitados, usando um solvente geralmente de hidrocarboneto alifático pois o polipropileno é solúvel no mesmo. As reações de polimerização são conduzidas a pressão constante e acima de 100 bar e temperaturas entre 130 e 250 °C, condições suficientes para manter o polímero formado em solução. O tempo médio de residência no reator é pequeno, em torno de 5 a 10 minutos. Como se trata de um processo que opera em altas temperaturas, o processo exige espécies de catalisadores Ziegler-Natta e metallocênicos (MC) que resistam a essas condições, mas normalmente são utilizados catalisadores de Lítio (DA SILVA ROSA; MELO; PINTO, 2012; REGINATO; ZACCA; SECCHI, 2003).

O controle térmico do reator é mais simples nesse tipo de polimerização em solução, pois o solvente aumenta a capacidade calorífica, sem contribuir para a evolução do calor de polimerização. Consequentemente, a taxa de geração de calor por unidade de volume do reator é menor. Além disso, este processo permite um bom controle sobre a massa molar e a distribuição de massas molares, além de fácil remoção de calor. No entanto, a viscosidade pode aumentar rapidamente com o crescimento da cadeia polimérica, dificultando a obtenção de resinas de altas massa molares, assim solvente adicional é alimentado para reduzir a viscosidade da solução, facilitando a remoção dos resíduos catalíticos por filtração. O elevado gasto de energia para reciclar o solvente e a custosa separação do polímero da solução, muitas vezes gera um impacto também as propriedades finais, fizeram este processo ser gradualmente substituído por outros, tais como a polimerização em massa ou em fase gasosa (ASUA, 2007; DA SILVA ROSA; MELO; PINTO, 2012; REGINATO; ZACCA; SECCHI, 2003).

2.3.4. Polimerização em massa (*Bulk*)

A polimerização em massa é o método mais simples e direto de converter o monômero em polímero em altas proporções, devido ao fato de não requerer um diluente como ambiente de polimerização, mas sim o próprio monômero no estado líquido. Esta polimerização pode ser realizada em reatores contínuos de tanque agitado (CSTR) ou em reatores tubulares tipo *loop*, nos quais a alimentação consiste

de monômero líquido e um sistema catalítico. Caso os monômeros sejam gasosos em condições normais de temperatura e pressão (CNTTP), estes devem ser condensados. Na polimerização em massa de propileno, com o objetivo de manter o monômero em fase líquida, os reatores são geralmente operados em torno de 30 bar. As principais vantagens deste processo são a pureza do material sintetizado e a elevada taxa de produção por unidade de volume do reator devido à alta concentração de monômero na mistura reacional (ASUA, 2007; DA SILVA ROSA; MELO; PINTO, 2012).

Para esse tipo de método, basicamente têm-se componentes cruciais como o monômero e iniciador, podendo ocasionar em dificuldades do controle térmico do meio reacional. Monômeros vinílicos como as olefinas, por exemplo, são extremamente exotérmicos, quando passam pelo processo de polimerização. Como sistemas orgânicos têm baixa capacidade calorífica, a temperatura pode aumentar rápido, assim descontrolando o sistema. Além disso, o aumento da viscosidade do meio reacional gera dificuldades para a transferência de calor, conhecido como auto aceleração (ODIAN, 2004). Logo é esperado que os coeficientes de transferência de calor globais sejam pequenos, tornando o processo de remoção do calor gerado pela reação mais complexo. Se o meio for heterogêneo, o coeficiente de transferência de calor depende pouco da quantidade de polímero suspensa no meio reacional (BRAZEL, C. S. E ROSEN, 2012).

O problema de aquecimento acelerado em polimerizações em massa podem ser contornado de diferentes formas, tais como manter uma menor dimensão do reator, facilitando assim a remoção de calor no processo, operar em temperaturas mais moderadas e com baixas concentrações de catalisador ou iniciador, e iniciando a reação com uma mistura de polímero e monômero (BRAZEL, C. S. E ROSEN, 2012).

Mitsui (Hypol)

Este processo foi desenvolvido pela *Mitsui Petrochemical* que, em parceria com a *Himont*, desenvolveu os sistemas catalíticos em suporte. Trata-se de um processo de baixo custo baseado na polimerização em massa com catalisadores em suporte. Este processo consiste em dois reatores de autoclave agitados em série que trabalham sob condições de “piscinas líquidas” do propileno, seguidos por dois reatores de fase gasosa de leito fluidizado. São utilizados dois reatores agitados em

série com remoção de calor do propileno líquido nos reatores. Os reatores de fase gasosa são reatores de leito fluidizado agitado com raspadores de parede, a fim de eliminar problemas de incrustação e cobertura. Os dois reatores em fase gasosa também podem ser utilizados para a produção de homopolímeros com uma ampla gama de propriedades de polímeros. No processo *Hypol II*, as autoclaves agitadas são substituídas por reatores em *loop*, permitindo um rendimento maior e uma redução dos custos de capital. A mistura resultante é recolhida em estrutura própria na qual o propileno residual é recuperado do polímero (CHADWICK, 2011).

Podem ser utilizados mais dois reatores de fase gasosa para a polimerização, melhorando as propriedades do polímero obtido. Este processo opera a cerca de 65 a 75 °C, 30 a 35 bar e apresenta um tempo de residência no reator de cerca de 2 horas (ASUA, 2007).

LyondellBasell (Spheripol)

O processo dominante nesse segmento de mercado é o processo *Spheripol* da *LyondellBasell*, no qual aproximadamente um terço do polipropileno consumido é produzido. Consiste em um a dois reatores de circuito fechado cheios de propileno líquido para a produção de homopolímero. Um reator de *loop* pequeno é usado para pré-polimerizar o catalisador antes de entrar no reator de *loop* principal. Normalmente, dois reatores de *loop* são usados para restringir a distribuição do tempo de residência, tornando o produto polimérico mais uniforme. Para a produção de copolímero de impacto, um reator de leito fluidizado é conectado em série, devido à solubilidade limitada do etileno no propileno líquido. Entre a seção de fase líquida e gasosa, é instalada uma separação de alta temperatura para despressurizar e liberar a pasta de propileno/PP e remover H₂ para um melhor controle da distribuição da massa molar no reator de copolímero. O monômero não reagido é recuperado do sistema e é completamente reciclado de volta para os reatores. Um diagrama de fluxo típico do processo *Spheripol* é mostrado na Figura 3. Em 2005, a *Exxon Mobile* anunciou que estava licenciando um processo a granel de propileno com base no reator *de circuito fechado*. A extremidade frontal do processo *Exxon Mobile* é semelhante ao processo *Spheripol* com um *loop* simples ou duplo, mas um reator de fase gasosa de leito fluidizado é usado para copolímero de impacto em vez do reator de fase gasosa de leito agitado em um processo típico de *Spheripol* (ASUA, 2007; KETTNER, 2019).

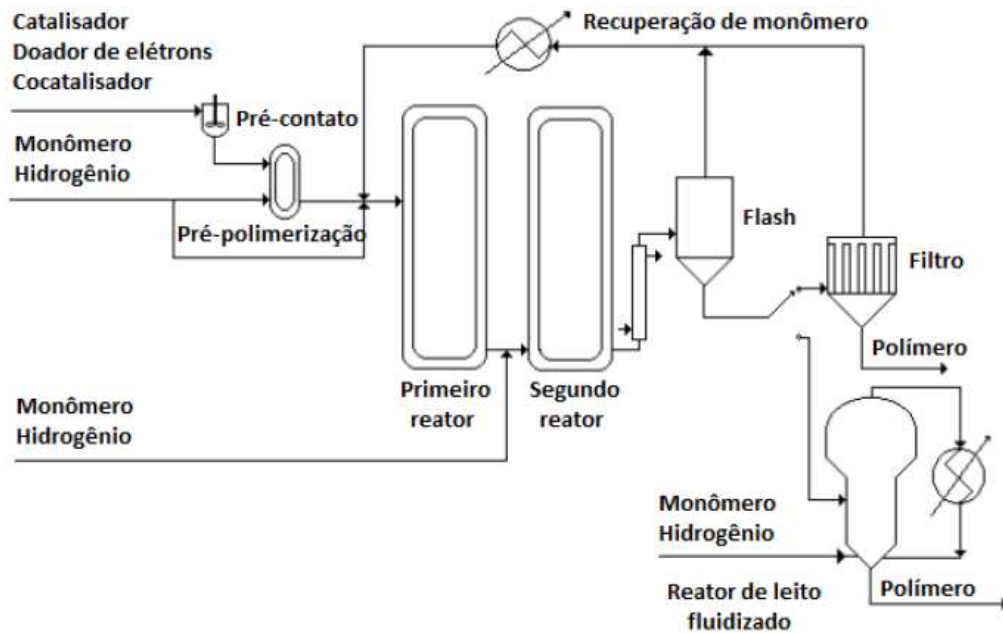


Figura 3: Esquema simplificado processo *Spheripol*. Fonte: REGINATO (2001).

2.4. Polimerização do tipo LIPP

A polimerização do tipo LIPP também ocorre em polimerização em massa. Diferentemente do tipo *loop*, que acontece normalmente em dois reatores tubulares, ou um reator de circuito fechado, a depender do arranjo da indústria, a polimerização em LIPP ocorre em um único reator CSTR ou mais em série ou cascata.

Desde o ano de 2000 realizaram pesquisas sobre a polimerização em massa do PP, utilizando a tecnologia LIPP, em um único reator CSTR. Nesse processo, o polímero sólido formado fica suspenso no líquido, que funciona como uma espécie de piscina (*liquid pool*). O calor gerado no processo é removido por um condensador. A distribuição de massa molar é controlada pela alimentação de hidrogênio, e o processo ocorre em altas pressões, em torno de 30 bar. As dificuldades apresentadas neste processo estão relacionadas ao controle do teor de sólidos, a concentração de propano, que pode prejudicar a produtividade e alterar a qualidade do produto final, quantidade de solúveis no diluente, que interfere na isotacidez final do produto (MATTOS NETO; PINTO, 2001; OLIVEIRA *et al.*, 2003). A Figura 4 mostra o funcionamento de um reator do tipo LIPP.

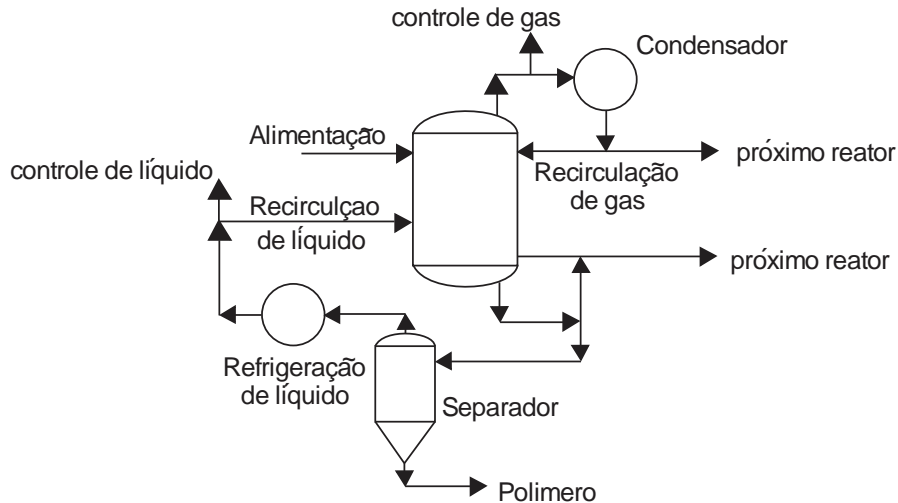


Figura 4: Modelo da polimerização utilizando tecnologia LIPP. Fonte: PRATA (2009).

Por ser uma referência tecnológica de produção de PP, o reator tipo LIPP foi estudado por diversos autores, além de se utilizar diferentes métodos de análise da tecnologia. Inicialmente, Mattos Neto e Pinto (2001) propuseram uma modelagem matemática para o processo para prever as taxas de reação, o fluxo de calor no reator, e analisaram a distribuição do tamanho e massa molar do polímero final. Posteriormente, Oliveira *et al.* (2003) realizaram um estudo de otimização das condições de operação para esse processo, e determinaram que os processos de polimerização em massa do PP são instáveis, mas com adequados controles de processo é possível estabilizar as condições operacionais deste processo. Já Da Silva Rosa (2012) e seus colaboradores fizeram um comparativo da tecnologia LIPP e *loop*, e foi possível observar que as conclusões de estudos passados estavam corretas, e o comportamento era até mais complexo do que o esperado, pois para *loop* ele encontrou comportamento complexo em situações específicas, tais quando a troca de calor era desfavorável; enquanto o LIPP apresentou comportamento complexo em toda a margem de operação. Dutra *et al.* (2014) propuseram a modelagem e o controle para o processo de polimerização em massa de propileno com alimentação de monômero líquido, utilizando a tecnologia LIPP, um único CSTR e três sistemas diferentes de catalisadores incluindo os tipos Ziegler-Natta e Metalloceno. O foco do estudo foi na reconfiguração de controle para considerar a troca de catalisadores em linha e satisfazer as propriedades desejadas do polímero. Dias *et al.* (2017), baseado no mesmo modelo de Dutra *et al.* (2014), propusera um esquema de sensor virtual baseado em uma rede neural artificial e um filtro de partículas aplicado ao mesmo tipo de reator de polimerização. Com este novo esquema de controle, foi possível reduzir incertezas e permitir a observação de

variáveis latentes no processo. A rede neural artificial é usada especialmente para prever as propriedades finais do polímero, com intuito de fornecer informações mais exatas aos controladores.

Já em 2018, foi proposto um estudo da formulação de um problema de otimização dinâmica referente a transição de grades na polimerização em massa de propileno, com intuito de buscar trajetórias ótimas das variáveis manipuladas. O resultado obtido mostrou que houve diminuição significativa do tempo de transição, e influência significativa nas trajetórias ótimas geradas por efeitos de ativação/desativação do catalisador e pelo hidrogênio (SILVA, 2018).

2.3. Comentários finais

O polipropileno é uma resina polimérica muito importante atualmente, presente em diversas indústrias e no dia a dia devido a sua grande versatilidade, ampla aplicação e grande interesse econômico. Visto a importância dessa resina polimérica na sociedade foram criadas várias iniciativas para se alcançar o aumento de produção, novos meios de aplicação, soluções para reciclagem entre outros. Logo, é possível observar que existe espaço para realizar estudos na melhoria nesse processo produtivo.

A produção de polipropileno pode ser obtida por vários métodos de polimerização juntamente com diversas tecnologias e catalisadores. Os dois meios de polimerização mais usuais são os do tipo *loop* e LIPP, os quais consideram o processo em massa, com suspensão do monômero líquido realizado em uma série de reatores tubulares e de tanque agitados, respectivamente. Os processos de polimerização em massa do polipropileno são instáveis, mas com adequado controle de processo é possível estabilizar as condições operacionais. Na polimerização do tipo *loop*, o comportamento complexo é apresentado em situações específicas, tais quando a troca de calor é desfavorável, enquanto na do tipo LIPP apresenta comportamento complexo em praticamente toda faixa de operação.

Em razão disso, a estratégia de controle proposta nesse trabalho busca um melhor desempenho comparado ao controlador convencional pela capacidade de reconfigurar as malhas de controle de acordo com a mistura de catalisadores, e para isso um sistema LIPP é considerado no estudo.

3. ESTRATÉGIAS DE CONTROLE PREDITIVO NÃO-LINEAR

No mercado atual, competitivo, busca-se constantemente a melhoria dos processos industriais, uma vez que estes estão se tornando cada vez mais complexos. Desta forma, o Controle de Processos é essencial para a manutenção da uniformidade da produção e das condições de operação; para a segurança do processo; também para a regulação de processos instáveis (impraticáveis sem a presença de uma malha de controle); além de ser uma das ferramentas tecnológicas mais significativas e fundamentais para garantir a operabilidade e otimização. Um sistema bem controlado implica na melhoria da eficiência dos equipamentos que o compõem, na diminuição de resíduos do processo e no aumento de sua segurança, seja ela material ou pessoal, diminuindo os custos de operação de equipamentos e sua manutenção mecânica (CAMPOS *et al.*, 2009).

Visando ter um produto mais competitivo no mercado, atualmente vê-se a necessidade de aumentar a produção, reduzir custos e maximizar os lucros obtidos dos processos industriais. Mas, isso acaba levando a uma maior complexidade do processo exigindo cada vez mais dos sistemas de controle. Logo, se torna necessária a utilização de sistemas de controle avançado, para atender os requisitos desejados. Poucas ferramentas de controle são comprovadamente capazes de estabilizar com eficiência sistemas na presença de não-linearidades e restrições. Dentre as diversas técnicas de controle avançado destaca-se o controle preditivo baseado em modelo, conhecido como MPC (*Model Predictive Control*). Algumas das principais vantagens do MPC são a possibilidade de tratar sistemas multivariáveis de forma natural e intuitiva, além da capacidade de tratar restrições nas variáveis de processo e controle. O uso do MPC na indústria facilita a tomada de decisões e ainda consegue diminuir a variabilidade das variáveis, possibilitando assim trabalhar mais próximo aos limites de operação. Em muitos processos, isso significa maximizar a produção ou minimizar os custos. A maior quantidade das aplicações industriais de controle avançado está nos processos de refino da indústria do petróleo e petroquímica (CAMPOS *et al.*, 2009).

3.1. Breve Histórico

Em torno de 1960, a principal estratégia de controle utilizada nas indústrias era o Regulador Linear Quadrático (LQR), que consistia num sistema de realimentação proporcional dos estados e buscava minimizar uma determinada função custo, levando em consideração o erro dos estados medidos e o esforço de controle quadráticos ponderados. Era o início dos sistemas de controle ótimo (RUCHIKA, 2013).

No geral, essa estratégia de controle não teve muito impacto nas indústrias. Isso acontece porque o LQR não incluía em sua formulação restrições de variáveis de processo e não levava em consideração as não-linearidades inerentes na grande maioria dos sistemas reais. Além disso, não era da cultura dos engenheiros de controle de processos industriais a utilização de controle ótimo, pois não o achavam prático o suficiente para implementação. Com isso, houve um estudo paralelo no desenvolvimento dos controladores ótimos da indústria de processos e os controladores ótimos de outras áreas (NUNES, 2001; RUCHIKA, 2013).

Por volta de 1970, houve um considerável aumento no número de artigos publicados que mostravam aplicações satisfatórias do controle preditivo baseado em modelo (MPC), porque os controladores convencionais de malhas simples eram incapazes de satisfazer requisitos de desempenho cada vez mais rigorosos (QIN; BADGWELL, 2003).

Historicamente, para a aplicação do MPC, a indústria costuma optar por modelos lineares, no domínio do tempo, do tipo entrada-saída, e nas formas de resposta ao degrau ou ao impulso. Por essa razão, a maior parte dos produtos MPC disponíveis no mercado atualmente são baseados nestes tipos de modelos. Mas, muitos processos nas indústrias apresentam partes não lineares, como por exemplo, colunas de destilação de alta pureza e reatores de polimerização, assim impedindo a aplicação bem-sucedida da tecnologia MPC. Isso levou ao desenvolvimento de controle preditivo de modelo não linear (NMPC), no qual um modelo não linear mais exato é usado para previsão e otimização de processos. Embora o NMPC ofereça o potencial de melhorar a operação do processo, este oferece problemas teóricos e práticos, que são consideravelmente mais desafiadores do que aqueles associados ao MPC. Muitos desses problemas estão associados ao programa de otimização

não linear, que deve ser resolvido *on-line* a cada período de amostragem (HENSON, 1998; QIN; BADGWELL, 2003).

3.2. Fundamentos de controle preditivo

Dentre todas as técnicas de controle avançado, uma que tem recebido muitas contribuições na literatura é o controlador preditivo baseado em modelo, que está atrelado principalmente aos avanços de *hardware* nos computadores digitais, que permitem que esta técnica possa ser implementada em tempo real. Apesar disto, a grande maioria dos trabalhos apresentados no meio acadêmico testam os algoritmos de controle propostos através de simulações.

O MPC é de natureza tão ampla que muitos trabalhos têm sido desenvolvidos, tendo ampla aceitação no mundo acadêmico e na indústria. As principais causas deste êxito devem-se a que: as estratégias de MPC podem ser aplicadas tanto a sistemas monovariáveis (SISO) como multivariáveis (MIMO); as restrições nas variáveis controladas e manipuladas podem ser consideradas no projeto da lei de controle em tempo real; e, pela própria definição dos algoritmos, podem ser usadas para controlar processos com atrasos. Tem como vantagens a capacidade para lidar com plantas industriais de grande dimensão, um reduzido número de parâmetros de sintonia e um melhor desempenho quando comparado aos controladores convencionais (KERRIGAN; MACIEJOWSKI, 2001).

O controle preditivo refere-se a uma classe de algoritmos de controle computacionais que utilizam explicitamente um modelo do processo para prever a resposta futura de uma planta. É necessário um modelo para produzir a saída do processo para instantes de tempo futuro (horizontes de predição), além de calcular uma sequência de ações de controle que minimizam ou maximizam certa função objetivo; e, por fim, uma estratégia retrocedente tal que, a cada intervalo de tempo, um algoritmo tenta aperfeiçoar o comportamento futuro do processo por meio do cálculo de uma sequência futura de ajustes na variável manipulada. Desta forma, o sistema é capaz de responder melhor às mudanças das variáveis controladas reduzindo, por exemplo, a possibilidade de gerar alterações muito abruptas nas variáveis manipuladas para atingir o objetivo do controlador (QIN; BADGWELL, 2003).

Geralmente, todos os algoritmos de controle preditivo possuem elementos comuns. De acordo com Henson (1998) esses elementos são:

- Modelo de predição
- Função objetivo
- Forma de obter a lei de controle

3.2.1. Modelo de predição

O modelo de predição é a essência do controle preditivo; deve incluir os mecanismos necessários para obter o melhor modelo possível, que deve ser completo o suficiente para representar basicamente toda dinâmica do processo e permitir que as previsões sejam calculadas, ao mesmo tempo ser intuitivo e permitir uma análise teórica. O uso do modelo de processo é determinado pela necessidade de calcular a produção prevista em instantes futuros $y(t + k | t)$. Esta notação representa a predição em $t + k$ calculada no instante de tempo t com as informações até k , ou seja, nos instantes de tempo futuros de $t + k$. O NMPC requer a disponibilidade de um modelo dinâmico não linear adequado do processo. Consequentemente, o desenvolvimento de modelos de processos não lineares é de suma importância. Devido à complexidade dos sistemas não lineares, não é possível desenvolver técnicas de identificação destes por extensão direta da teoria linear. Como alternativa, o controlador NMPC pode ser baseado em um modelo fundamental derivado de leis básicas de conservação de massa, energia e momentos e relações constitutivas. As diferentes estratégias do controle preditivo podem usar vários modelos para representar a relação entre as saídas e as entradas mensuráveis, algumas das quais são variáveis manipuladas e outras podem ser consideradas distúrbios que podem ser medidos, sendo compensados por ações antecipadas (HENSON, 1998; QIN; BADGWELL, 2003).

3.2.2. Função Objetivo

Os vários algoritmos de controle preditivo propõem diferentes funções de custo para obtenção da lei de controle, sendo que basicamente a saída futura (y) no horizonte de predição acompanhar um determinado sinal de referência e, ao mesmo tempo, o

esforço de controle ($\Delta \mathbf{u}$) necessário para que isso seja penalizado. A expressão geral para tal função objetivo deve ser:

$$J = \sum_{j=1}^P \mathbf{e}^T(t+j) \cdot \mathbf{R} \cdot \mathbf{e}(t+j) + \sum_{j=1}^M \Delta \mathbf{u}^T(t+j) \cdot \mathbf{Q} \cdot \Delta \mathbf{u}(t+j)$$

$$\mathbf{e}(t+j) = \mathbf{y}(t+j) - \mathbf{y}^{sp}$$

$$\Delta \mathbf{u}(t+j) = \mathbf{u}(t+j) - \mathbf{u}(t+j-1)$$

onde, $\mathbf{u}(t+j)$ é a entrada futura no instante de amostragem $t+j$, $\mathbf{y}(t+j)$ é a saída futura no instante de amostragem $t+j$. M é o horizonte de controle, ou número de ações de controle futuras; P é o horizonte de predição. O significado de P é bastante intuitivo. Ele marca o limite do instante em que é desejável que a saída (\mathbf{y}) siga a referência (\mathbf{y}^{sp}). \mathbf{Q} e \mathbf{R} são matrizes utilizadas para a sintonia do controlador, as quais ponderam o objetivo de atingir o *setpoint*. Os principais parâmetros de ajuste do controlador são M , P , \mathbf{Q} e \mathbf{R} .

3.2.3. Obtenção da Lei de Controle

Os valores $\Delta \mathbf{u}(t+j)$ são obtidos através da minimização da função custo (J), mostrada anteriormente. Para isso, os valores das saídas previstas $\mathbf{y}(t+j)$ são calculados em função dos valores passados das entradas, saídas e dos sinais de controle futuros, fazendo uso do modelo escolhido e substituindo-as na função custo, obtendo assim uma expressão cuja minimização leva aos valores procurados. Nos casos em que não se têm restrições sobre as variáveis, é possível encontrar uma expressão explícita para $\Delta \mathbf{u}(t+j)$. Porém, todos os processos reais possuem restrições nas variáveis de entrada e saída. Normalmente, essas restrições estão associadas a limites operacionais do processo. Seguem as principais restrições das entradas encontradas:

$$u_{\min} \leq \mathbf{u}(t+j) \leq u_{\max}, \quad 0 \leq j \leq M-1$$

$$\Delta u_{\min} \leq \Delta \mathbf{u}(t+j) \leq \Delta u_{\max}, \quad 0 \leq j \leq M-1$$

As restrições de saída geralmente estão associadas a limitações operacionais, como especificações de equipamentos e considerações de segurança. Essas restrições podem ser colocadas como:

$$y_{\min} \leq \mathbf{y}(t+j) \leq y_{\max}, \quad 1 \leq j \leq P$$

Devido às restrições, torna-se necessário a utilização de um algoritmo de otimização para encontrar os valores de $\Delta \mathbf{u}(t + j)$. Como pode ser visto, o controlador calcula um vetor com M ações de controle pelo algoritmo $\Delta \mathbf{u}(t + j)$ para $j = 1 \dots M$. Porém, aplica-se no processo apenas o primeiro elemento desse vetor. Essa prática é conhecida como janela deslizante, ou seja, em cada período de amostragem do controlador, calcula-se todo o vetor de controle futuro $\Delta \mathbf{u}(t + j)$, mas só se aplica a primeira ação de controle calculada. Esta técnica é utilizada porque os processos estão constantemente sob ação de perturbações, sendo necessário corrigir os valores de $\Delta \mathbf{u}$ para rejeitar as perturbações e seguir a referência.

3.3. Estratégias numéricas de NMPC

O NMPC requer a solução *online* repetida de um problema de controle não linear. No caso de MPC linear, a solução do problema de controle pode ser lançada como a solução de um programa quadrático, que pode ser resolvido eficientemente *online*. Essa é uma das razões pelas quais o MPC linear é amplamente utilizado nas indústrias. Para a aplicação do NMPC, é necessário resolver um programa não-linear, que geralmente é computacionalmente caro. Isso é um dos principais fatores limitantes para uma aplicação prática do NMPC. Os métodos de resolução disponíveis do NMPC costumam considerar processos bastante lentos, permitindo tempo de solução suficiente para a otimização. No entanto, o programa não linear que deve ser resolvido no NMPC mostra uma estrutura especial, que pode ser explorada para obter uma solução viável em tempo real para o problema de otimização do NMPC.

Assim, uma solução viável computacionalmente do problema NMPC envolve, além da solução eficiente do problema de otimização, também uma formulação eficiente da estratégia NMPC. Logo podem-se distinguir principalmente três estratégias para a solução do problema de controle ótimo do NMPC usando programação matemática (BIEGLER, 2007).

3.3.1. Abordagem sequencial

O método sequencial envolve a integração numérica repetida das equações diferenciais ordinárias (ODE) para avaliar os gradientes da função objetivo. Para reduzir os requisitos de tempo computacional, o problema é separado em uma rotina de otimização algébrica e em um solucionador de equações diferenciais, em que cada problema é resolvido sequencialmente. As ODE podem ser reduzidas a equações algébricas usando a colocação ortogonal em elementos finitos (VILLADSEN; STEWART, 1967). As equações algébricas resultantes podem ser resolvidas em um *loop* interno, usando um solucionador de equações não linear, para cada elemento finito no horizonte de previsão em sucessão. Este método é popular em campos nos quais a solução de equações diferenciais é extremamente difícil. Ao separar os problemas, o simulador pode ser ajustado com precisão ou envolvido em uma "caixa preta". Como a abordagem sequencial é menos confiável em problemas instáveis ou mal condicionados, ela é frequentemente adaptada a uma abordagem de disparo múltiplo, mostrada posteriormente para melhorar o desempenho. Mas, um benefício da abordagem sequencial é que promove uma solução viável das equações diferenciais, mesmo que o otimizador não consiga encontrar um ótimo (BEAL *et al.*, 2018; BIEGLER, 2007).

3.3.2. Abordagem simultânea

A abordagem simultânea minimiza a função objetivo e resolve todas as restrições (incluindo as equações diferenciais parametrizadas) simultaneamente. Portanto, se o solucionador termina sem atingir a otimização, é provável que as equações não sejam satisfeitas e a dinâmica da solução inviável esteja incorreta, proporcionando uma solução sem valor e não apenas subótima (BIEGLER, 2007).

Um esquema comum de parametrização para essa abordagem é a colocação ortogonal em elementos finitos (VILLADSEN; STEWART, 1967). A colocação ortogonal representa as variáveis de estado e controle com polinômios dentro de cada elemento finito, ou seja, cada tempo de amostragem no horizonte de previsão corresponde a um elemento finito na formulação de colocação. As condições iniciais para variáveis de estado em um elemento finito são obtidas das variáveis de estado

no final do elemento finito anterior. Essa é uma forma de métodos implícitos de Runge-Kutta e, portanto, herda os benefícios associados a esses métodos, como a estabilidade. Uma vantagem do método simultâneo é que as restrições nas variáveis de estado podem ser tratadas explicitamente. O método simultâneo resulta em um grande problema de otimização, envolvendo um grande número de variáveis de decisão e restrições não lineares. As variáveis de decisão incluem todas as variáveis de estado nos pontos de colocação de cada elemento finito no horizonte de previsão, bem como os movimentos de controle. O número de variáveis de decisão é determinado pelos horizontes de previsão e controle e pelo número de pontos de colocação usados na aproximação de colocação (BEAL *et al.*, 2018; BIEGLER, 2007).

3.3.3. Abordagem de disparo múltiplo

Na abordagem disparo múltiplo, o horizonte de otimização de interesse é dividido em um número de subintervalos com discretizações de controle local. As equações diferenciais e a função custo nesses intervalos são integrados de forma independente durante cada iteração de otimização, com base na estimativa atual do controle. A consistência da trajetória do estado final no final da otimização é imposta pela adição de restrições de consistência ao problema de programação não linear. O programa não linear resultante utiliza uma estrutura dispersa especial que pode ser utilizada para uma solução eficiente (BIEGLER, 2007).

3.4. Softwares ou pacotes disponíveis

Atualmente, existem muitos pacotes de software e linguagens de programação disponíveis para otimização e controle. Assim abaixo encontram-se alguns dos recursos disponíveis de cada pacote.

3.4.1. Pyomo

É um pacote *Python* para modelagem e otimização. Ele suporta diferenciação e discretização automáticas de sistemas de equações algébricas diferenciais usando

colocação ortogonal ou diferenciação finita. O problema resultante de programação não linear (NLP) pode ser resolvido usando qualquer uma das várias dezenas de solucionadores suportados pela *AMPL Solver Library* (ASL). É um sistema que suporta todo o ciclo de vida da modelagem de otimização, formulação, teste, implantação e manutenção de maneira integrada, que promove rápido desenvolvimento e resultados confiáveis. Usando uma representação algébrica de alto nível que descreve os modelos de otimização, a AMPL pode fornecer o avanço necessário para implementar com sucesso projetos de otimização em larga escala (BEAL *et al.*, 2018; HART, W.E.; LAIRD, C.; WATSON, J.P.; WOODRUFF, 2012).

3.4.2. CasADi

É uma estrutura que fornece uma linguagem de modelagem simbólica e diferenciação automática eficiente. Não é um pacote de otimização dinâmica propriamente dito, mas fornece blocos de construção para resolver problemas de otimização dinâmica e fazer interface com vários solucionadores, fornecendo assim alternativas as linguagens de modelagem algébrica convencionais, AMPL e Pyomo (ANDERSSON *et al.*, 2019).

No geral, uma formulação abstrata para a formulação de um problema em CasADi é dada pela seguinte forma:

```

1  from casadi import *
2  #Crie um solucionador
3  x = SX.sym('x')
4  y = SX.sym('y')
5  z = SX.sym('z')
6  nlp = {'x':vertcat(x,y,z), 'f':x**2+100*z**2, 'g':z+(1-x)**2-y}
7  S = nlpsol('S', 'ipopt', nlp)
8  print(S)
9  #Após a criação do solucionador, podemos resolver a NLP
10 r = S(x0=[2.5,3.0,0.75],lb=0, ub=0)
11 x_opt = r['x']
12 print('x_opt: ', x_opt)

```

Figura 5: Formulação do problema de Rosenbrock.

Fonte: (ANDERSSON *et al.*, 2019). Adaptada.

CasADi é uma ferramenta de *software* de código aberto para otimização numérica em geral e controle ótimo (ou seja, otimização envolvendo equações diferenciais) em particular. Além de poder ser usado para resolver problemas de controle ótimo (OCP) usando uma variedade de métodos, incluindo métodos diretos (também conhecidos como discretizar-e-otimizar, no qual as variáveis e a função objetivo do problema são aproximadas por uma função apropriada - polinomial ou constante por

partes, cujos coeficientes são tratados como variáveis de otimização) e indiretos (também conhecidos como otimizar-e-discretizar, onde se busca atender os princípios de otimalidade gerando um problema de valor de contorno, o qual demanda uma técnica de discretização para chegar a uma solução aproximada do problema original), métodos *all-at-once* (por exemplo, o método de colocação presente em muito programas) e métodos de disparo que requerem solucionadores incorporados de problemas de valor inicial em ODE ou DAE.

Um solucionador é criado para esse problema, usando um solucionador de programação não-linear em larga escala chamado "*ipopt*", que fornece uma abordagem para implementar o método de tiro único direto, no qual a trajetória de controle é parametrizada usando alguma aproximação suave por partes, normalmente constante por partes. Usando uma expressão explícita para os controles, pode-se então eliminar toda a trajetória de estado do problema de otimização, terminando com uma programação não linear apenas nos controles discretizados. Após a criação desse solucionador, pode-se resolver a programação não linear, usando uma entrada inicial (x_0) e impondo o vetor de restrição (g) de igualdade com limite superior e inferior.

3.4.3. JModelica

É um pacote de modelagem e otimização de código aberto baseado na linguagem Modelica. A plataforma promove interfaces abertas para integração com pacotes numéricos. A integração de equações diferenciais ordinárias por meio da suíte Sundials (conjunto de *solvers* de equações não lineares e diferenciais/algébricas), diferenciação automática por CasADi e soluções de programação não linear por *ipopt* são exemplos de pacotes plataforma reúne vários pacotes de código aberto que estão integrados na plataforma JModelica.org. Os modelos Modelica podem ser compilados e carregados como objetos de modelo usando a interface Python. Esses objetos de modelo podem ser usados para fins de simulação e otimização (ÅKESSON *et al.*, 2010; CASELLA; PARINI, 2017; SCHWEIGER *et al.*, 2017).

3.4.4. APMonitor

O APMonitor é um software de otimização para equações algébricas diferenciais de números inteiros e diferenciais normalmente utilizado com o Gekko, que é uma biblioteca Python orientada a objetos de forma que facilite a execução local do APMonitor. É acoplado a solucionadores de larga escala para programação inteira linear, quadrática, não linear e mista. Os modos de operação incluem reconciliação de dados, estimativa de horizonte móvel, otimização em tempo real, simulação dinâmica e controle preditivo não linear com recursos de solução para equações diferenciais e algébricas de alto índice. É gratuito para uso acadêmico e industrial (BEAL *et al.*, 2018; HEDENGREN *et al.*, 2014). A seguir, é apresentado um esquema dos 6 modos de operação para solução do modelo para o *software* APMonitor.

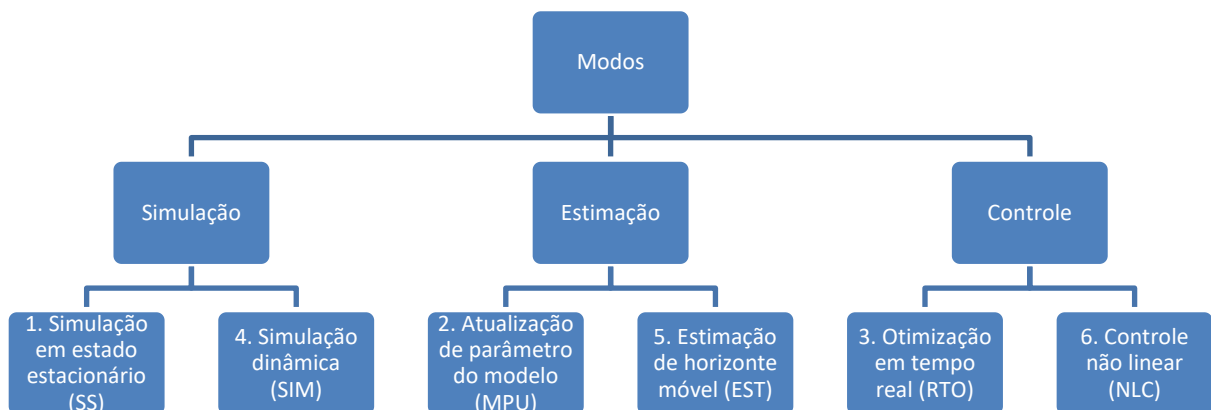


Figura 6: Esquema dos tipos de solução do modelo. Fonte: Autor (2021).

3.5. Critérios de desempenho

Para caracterizar o desempenho do sistema de controle utiliza-se o comportamento da resposta transitória do sistema de controle e índices que refletem o desempenho do sistema. A seguir, pode-se ver os principais critérios utilizados para avaliar o desempenho (PRADHAN *et al.*, 2020).

A característica do índice Integral do erro quadrático (ISE) (Eq. 1) é que este índice penaliza erros grandes mais do que erros menores (já que o quadrado de um erro grande será muito maior). Os sistemas de controle especificados para minimizar o ISE tendem a eliminar grandes erros rapidamente, mas tolerarão pequenos erros

que persistam por um longo período de tempo. Frequentemente, isso leva a respostas rápidas, mas com oscilação considerável de baixa amplitude.

$$ISE = \int e^2 dt \text{ (Eq. 1)}$$

Já um sistema ótimo baseado no índice Integral do erro absoluto (IAE) (Eq. 2) é um sistema que têm um amortecimento razoável e uma característica de resposta transitória satisfatória; entretanto a seletividade deste índice de desempenho não é muito boa. Ele integra o erro absoluto ao longo do tempo. Isso não acrescenta peso a nenhum dos erros na resposta de um sistema. Ele tende a produzir uma resposta mais lenta do que os sistemas ótimos ISE, mas geralmente com menos oscilação sustentada.

$$IAE = \int |e| dt \text{ (Eq. 2)}$$

Tem-se também o índice Integral do erro quadrático multiplicado pelo tempo (ITSE) (Eq. 3), no qual apresenta uma característica que, na resposta ao degrau unitário, um erro inicial grande é ponderado com peso baixo, enquanto que erros que ocorrem mais tarde na resposta transitória são bastante penalizados. Este critério tem melhor seletividade do que o critério ISE.

$$ITSE = \int t e^2 dt \text{ (Eq. 3)}$$

Por fim, assim como no critério apresentado anteriormente, um erro inicial grande em uma resposta a degrau unitário é ponderado com peso pequeno, e erros que ocorrem mais tarde na resposta transitória são bastante penalizadas. Este critério (Eq. 4) possui boa seletividade e constitui uma melhora em relação ao critério IAE.

$$ITAE = \int t |e| dt \text{ (Eq. 4)}$$

Os parâmetros dos controladores PID, e até mesmo os parâmetros da estratégia de controle preditivo (matrizes de ponderação e horizontes de tempo), podem ser sintonizados buscando-se minimizar algum dos critérios apresentados. Conforme Seborg *et al.* (2011), o índice ITAE é o critério preferido, uma vez que leva a configurações de ações de controle mais conservadoras - em contraste, com o critério ISE, que produz sintonias de controle que causam ações mais agressivas, um exemplo é quando se tem uma mudança degrau no início do processo no

setpoint, o critério ITAE vai ponderar com peso pequeno erro iniciais grandes já o ISE não vai ponderar o erro. Os outros dois critérios, IAE e ITSE, tendem a produzir ajustes com efeitos intermediários.

3.6. Aplicações em problemas de polimerização

O controle dos processos de polimerização continua sendo um campo de pesquisa desafiador, principalmente porque esses processos são caracterizados como sistemas não lineares multivariáveis restritos, com uma medição de baixa frequência de suas variáveis controladas pela qualidade, como densidade e índice de fluidez. Atualmente, sistemas avançados de controle não linear multivariável tornaram-se a abordagem mais usada para resolver problemas de controle de processos de polimerização. Dentre as estratégias avançadas de controle disponíveis na literatura, o modelo de controle preditivo tornou-se o método padrão para controlar esse tipo de processo. A Tabela 1 apresenta uma visão geral das publicações nas últimas duas décadas sobre a estratégia de modelo de controle preditivo não linear. E abaixo encontra-se detalhes dos estudos recentes dessa estratégia.

Tabela 1: Breve resumo da literatura de trabalhos publicados sobre controle de processos de polimerização.

Ano dos Autores	Polímero	Variáveis de controle	Esquema	Aplicação
Scheffold; Finkler; Piechottka (2021)	-	F/T	I	S
Ma <i>et al.</i> (2019)	PAM	Mw	LM	S
Joy <i>et al.</i> (2019)	PS	X/CF	LM	E
Jang; Lee; Biegler (2016)	PPGs	F/T	I	S
Bindlish (2015)	-	MoB	I	E
Ali; Ali. (2010)	PE	Mw	LM	S
Fontes; Mendes (2008)	PE	Mw/CF/T	I	S
Park; Rhee (2003)	MMA/MA	Mw/Mf	LM	E
Prasad <i>et al.</i> (2002)	PS	Mw/Ot	LM	S

Polímeros: MMA/MA - Metacrilato de metila/acrilato de metila; PAM – poliacrilamida; PS – Poliestireno; PPGs – polipropilenos glicóis e PE - polietileno. **Variáveis de controle:** T – temperatura; Mf - fração molecular; Mw – massa molar ponderal; MoB - Conteúdo de monômeros e subprodutos; CF - Fração de monômero; F – taxa de alimentação de monômero e Ot - Outros. **Esquema:** LM - Laboratório/Modelo e I - Industrial. **Aplicação:** S – Simulação e E – Experimental.

Fonte: Autor (2021).

Como visto, existem muitos estudos nessa área. Em 2002, Prasad *et al.* propuseram um estudo para o controle de um reator de tanque agitado contínuo (CSTR) de polimerização de estireno, no qual se considerava o controle das propriedades do polímero, como o peso molecular e a polidispersão. Para isso, foi utilizado um filtro Kalman estendido para estimar estados adicionais, quando um número limitado de medições estiver disponível. Assim, foi feito um comparativo do controle quando se tem estimativas de taxas múltiplas versus taxa única, no qual a diferença basicamente é que a na taxa única as atualizações de estimativa são feitas apenas quando as medições lentas estão disponíveis. Além disso, a ação de controle é executada apenas quando são feitas atualizações de estimativa, o que aumenta a deterioração no desempenho do controle. Já na estimativa de taxas múltiplas, presume-se que o vetor de medição disponível (nos instantes de amostragem lenta) seja composto pelas concentrações, momentos de distribuição e as temperaturas. Por fim, foi visto que o desempenho da estratégia de taxas múltiplas é mais eficiente (PRASAD *et al.*, 2002).

Já em 2003, foi apresentado um estudo de controle das propriedades do produto polimérico em um reator semi-batelada de copolimerização. Além do monômero mais reativo, o solvente também é fornecido continuamente para manter a eficácia da mistura, mas também a eficiência da transferência de calor. Assim, o filtro de Kalman estendido (EKF) como estimador de estado e o NMPC baseado em EKF foram implementados no reator e seus desempenhos avaliados. Por fim, foi possível notar uma maior eficácia dessas estratégias para produzir copolímeros com uma composição uniforme e uma massa molar desejada operado com suplementos adicionais de monômero e solvente mais reativos (PARK; RHEE, 2003).

Em 2008 uma estratégia NMPC foi aplicada a um reator de tanque agitado de polimerização em lama (*slurry*) para a produção de polietileno de alta densidade. O desempenho do controle foi analisado no sentido de se obter a massa molar, composição de monômero e temperatura desejados. O algoritmo de controle compreendeu um modelo interno baseado em redes neurais com topologia “*feedforward*”. Os resultados dos testes de simulação apresentaram bom desempenho do algoritmo NMPC baseado em um modelo neural treinado para a previsão da variável de saída apenas um instante de tempo a frente e, ao mesmo tempo, mostraram dificuldade em controlar diretamente as propriedades do polímero com a ocorrência de tempo morto na medição (FONTES; MENDES, 2008).

Posteriormente, em 2010, foi abordado um estudo da transição da qualidade do polietileno em reatores de leito fluidizado em fase gasosa usando controle *feedback*. Em específico, um NMPC foi utilizado para manter a densidade do polímero e toda distribuição de massa molar em valores desejados, por meio da manipulação simultânea das entradas de hidrogênio e comonômeros. Os resultados da simulação revelaram a capacidade do NMPC de regular adequadamente as entradas do processo para atender às metas de qualidade do produto exigidas. Além disso, o desempenho robusto do controle foi atribuído à eficácia do filtro Kalman para neutralizar a influência da incompatibilidade entre plantas e modelos durante os cálculos das ações do controlador (ALI; ALI, 2010).

Um estudo generalizado realizado em 2015 para a aplicação do NMPC de um processo de polimerização explicou que um simples controlador preditivo de modelo linear não seria capaz de atingir os objetivos do processo devido fortes dependências não lineares para atributos de qualidade do polímero. Assim foi proposta a implementação de um algoritmo NMPC, mas antes da implementação do

mesmo, o modelo de processo não linear com cinética da reação foi usado para calcular alvos em circuito aberto para temperaturas do reator que mantinham a viscosidade do polímero em um alvo desejado e mantinham o conteúdo de monômero não reagido com limites de especificação. Os alvos e níveis de temperatura do reator foram então controlados usando controladores convencionais (PI ou PID). Como resultado, foi possível observar que o NMPC conseguiu obter um bom controle de feedback das medidas de qualidade do polímero que mostram-se fortemente não lineares com temperaturas de reação e alimentação (BINDLISH, 2015).

Em 2016, pesquisadores propuseram um esquema NMPC robusto para lidar com vários tipos de incertezas de um exemplo de um processo de polimerização aniônica em larga escala de óxido de propileno com especificações do produto final e restrições de segurança. Foi empregado o NMPC de vários estágios, que serve para garantir a satisfação da restrição na presença de erros de parâmetros modelados. O método de estimativa de mínimos quadrados foi implementado para estimar os parâmetros e estados incertos enquanto filtra o ruído de medição. Além disso, empregaram uma técnica de linearização da incerteza definido com base em derivadas de restrição, usada para contabilizar ruídos. Por fim, foi possível mostrar que esse esquema pode ajudar a satisfazer as restrições, garantir a segurança do processo e da qualidade do produto final em presença de incertezas (JANG; LEE; BIEGLER, 2016).

Recentemente, em 2019, pesquisadores investigaram o esquema de NMPC da copolimerização em emulsão de estireno e acrilato de butila em um reator tubular em escala laboratorial. Foi avaliado experimentalmente o desempenho de um esquema de NMPC e um esquema de controle heurístico para manter a conversão total de monômeros e a composição de polímeros na saída do reator, quando o processo está sujeito a perturbações. O esquema de controle heurístico é uma combinação de controle PI, controle de razão (*ratio*) e controle antecipatório de alimentação (*feedforward*). O esquema de controle heurístico também é baseado em modelo, pois o esquema de controle usa o modelo de processo para a configuração do *loop* de controle de alimentação. Assim, o esquema NMPC teve um desempenho consideravelmente melhor que o controle heurístico ao manter as variáveis controladas mais próximas dos *setpoints* (JOY *et al.*, 2019).

Em 2019, foi proposta a aplicação de um novo esquema de controle baseado em aprendizado por reforço profundo (*Deep Reforço Learning* - DRL) a uma reação de polimerização em semi batelada não linear de múltiplas entradas com grande atraso de tempo e tolerância a ruídos. A aplicação de controladores preditivos e PI se torna difícil devido a um grande esforço computacional para otimização e ajuste fino de parâmetros. A aplicação dessa estrutura é baseada em inteligência artificial, usando DRL. Como resultados, o controlador DRL mostrou-se mais vantajoso sobre os controladores tradicionais na aprendizagem de políticas de controle com exploração de maneira automatizada. Semelhante aos controladores preditivos, o DRL procura uma política de controle na forma de um problema de controle em tempo discreto com custos adicionais. Enquanto os modelos preditivos empregam um modelo analítico da dinâmica do sistema e calculam uma série de políticas de malha aberto, o DRL é um algoritmo de aprendizado sem modelo que infere a política de malha fechada a partir de dados numéricos e custos instantâneos obtidos pela interação com o sistema ou simulação. Além disso, o controlador DRL não requer ajuste de parâmetros nem otimização em tempo real. Portanto, é capaz de controlar sistemas altamente não lineares e tarefas de controle de alta frequência (MA *et al.*, 2019).

Em 2021, foi proposto um estudo da aplicação de um controle preditivo baseado em um modelo não linear de caixa cinza, no qual o modelo de caixa cinza é construído combinando elementos de modelagem caixa branca e caixa preta. Os elementos de caixa branca consistem em balanços de massa e energia relevantes, incluindo relações algébricas que descrevem diferentes fenômenos de comportamento do sistema, enquanto os elementos de caixa preta preenchem ou compensam as lacunas de modelagem ou incertezas. Isso é realizado resolvendo repetidamente um problema de controle ótimo de malha aberta, minimizar a função objetivo ao longo de um horizonte de predição discreto por um conjunto de movimentos de controle discretos. Esse tipo de aplicação forneceu informações mais precisas sobre o comportamento do processo, além de apresentar um desempenho mais rápido, mais robusto e mais suave (SCHEFFOLD; FINKLER; PIECHOTTKA, 2021).

3.7. Comentários finais

Nesta seção, foram apresentados conceitos teóricos gerais importantes para a implementação de sistemas de controle e otimização baseados em modelo não linear. Em especial, foram enfatizados os pacotes mais diretamente relacionados com sistemas de NMPC em um ambiente computacional Python. Embora tenham sido citadas várias estratégias numéricas e *softwares* para auxiliar na solução do NMPC, poucas são as que realmente possuem ampla utilização prática ou vantagens significativas. Além disso, o emprego desses controladores envolve desafios teóricos e práticos como pode ser observado nas diferentes aplicações em problemas de polimerização. Apesar dos diversos estudos não há nenhum estudo recente dessa técnica de controle NMPC para problemas de polimerização de propileno, mostrando a relevância desse tema de estudo para a academia e indústria.

4. METODOLOGIA

O estudo da operação do reator consiste na simulação de um modelo que considera polimerização a partir da alimentação do monômero puro em fase líquida. O modelo completo é obtido via balanços de massa e energia para o reator e equações empíricas caracterizaram a resina quanto ao MFI (índice de fluidez) e ao XS (teor de solúveis de xileno).

A implementação do problema foi efetuada por meio da linguagem *Python*, considerando o *software Spyder* como ambiente integrado de desenvolvimento (IDE) presente na distribuição Anaconda (<https://www.anaconda.com/>) em um computador com processador Intel® Core i5™.

O algoritmo foi realizado importando um pacote de otimização chamado *CasADi*. No qual é usado um solucionador de programação não linear. O mais popular é o “ipopt”, que fornece uma abordagem para implementar um método de tiro único direto de código aberto. A técnica de integração do modelo do processo foi o “BDF”, que é adequado para problemas rígidos (*stiff*), ou seja, problemas que não podem ser resolvidos com métodos explícitos.

Os vetores de condições iniciais, x_0 e u_0 , devem ser diferentes para cada teste, de acordo com as composições catalíticas. Esses vetores são gerados ao simular o problema completo até o “infinito” sem mudanças de *setpoint*. Os valores finais devem assegurar operação estacionária ($\frac{dx}{dt}$ tender a 0). Por fim, serão realizados testes de desempenho (teste servo e regulador) do NMPC que serão comparados com o do controlador convencional (PI).

4.1. Definição do modelo não linear e condições operacionais

O sistema estudado neste trabalho foi baseado no modelo proposto por Dutra *et al.* (2014), que consideraram a polimerização em massa de propileno com alimentação de monômero líquido puro em CSTR operando a alta pressão - tecnologia LIPP. No qual, o processo é exotérmico, um condensador no topo do reator é utilizado para a remoção do calor. Assume-se que são alimentados os cocatalisadores trietilalumínio (TEA) e para-etoxi-etil-benzoato (PEEB), além de hidrogênio como agente

de transferência de cadeia. A corrente de saída é formada por monômero não reagido.

Assume-se que:

- Propileno líquido é utilizado como meio de suspensão para as partículas de polímero;
- A desativação do catalisador Ziegler-Natta ocorre;
- Trietilalumínio (TEA) e benzoato de para-etoxi etila (PEEB) são utilizados como aditivos para um bom controle do teor de solúveis de xileno;
- Hidrogênio participa como agente de transferência de cadeia;
- Como a polimerização é extremamente exotérmica, um condensador de topo controla a temperatura do reator.

É importante destacar as variáveis operacionais e de qualidade do polímero para o reator. Normalmente, a taxa de polimerização é controlada ajustando-se a temperatura do reator, e a produtividade (\dot{m}_{pol}/\dot{m}_M), pela manipulação da vazão de alimentação de catalisador, que interfere também no tamanho da cadeia, que está relacionado com a qualidade e rigidez do polímero. Em relação à qualidade do polímero, a rigidez do polímero e o tamanho da cadeia, que estão relacionados com XS e MFI, são definidos respectivamente pela manipulação da razão de aditivos ($\dot{m}_{TEA}/\dot{m}_{PEEB}$) e hidrogênio gasoso, no caso de se utilizarem catalisadores Ziegler-Natta. Além disso, a temperatura do condensador e o volume e a temperatura do reator são mantidos pela manipulação das taxas: de alimentação do refrigerante para o condensador, de saída de lama do reator e de monômero condensado. Um fluxograma simplificado do processo de polimerização em questão é dado pela Figura 7.

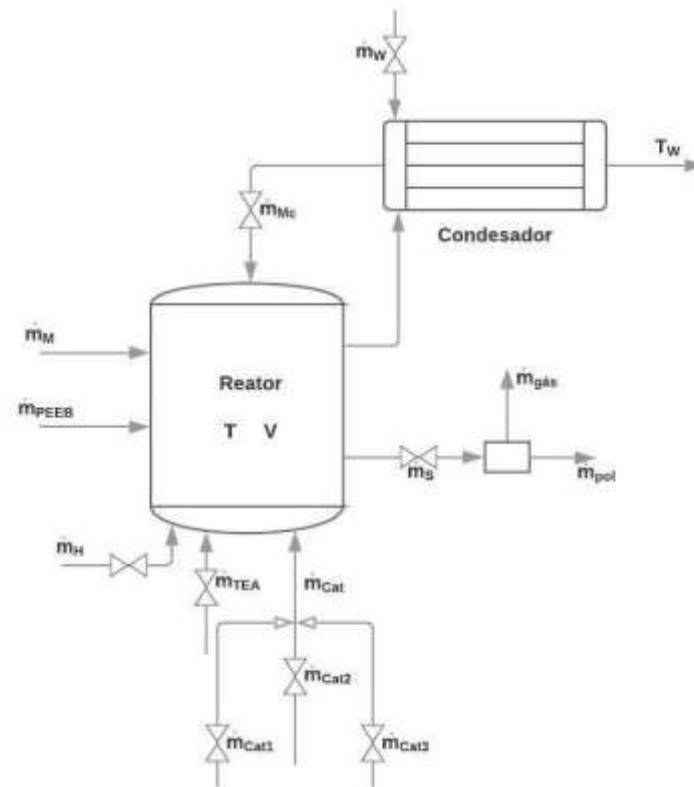


Figura 7: Fluxograma simplificado do processo. Fonte: (DUTRA *et al.*, 2014). Adaptada.

Neste esquema \dot{m}_{TEA} , \dot{m}_{PEEB} , \dot{m}_H , \dot{m}_{cat} indicam as correntes de alimentação de TEA, PEEB, hidrogênio e catalisador, respectivamente. T e V representam a temperatura e o volume do reator, respectivamente. \dot{m}_{Mc} representa a vazão de troca entre o reator e o condensador no balanço de energia e \dot{m}_s é a vazão de saída de lama do reator, T_w e \dot{m}_w a temperatura e a vazão de líquido refrigerante, que auxilia na troca térmica no condensador.

A Tabela 2 especifica dois catalisadores com cinética de Ziegler-Natta (ZN) (Cat_1 e Cat_2) e um catalisador de metalloceno (MC) (Cat_3). A principal diferença é que o tipo ZN é sensível à presença de hidrogênio para controlar o índice de fluidez (MFI) do polímero, enquanto o MC mostra maior atividade e permite obter propriedades finais mais específicas, como a alta rigidez ligada ao baixo teor de solúveis em xileno (XS). As principais características de qualidade nominais dos polímeros que podem ser obtidos no processo de polimerização considerando uma composição de forma isolada dos catalisadores empregados neste estudo pode ser observado de acordo na Tabela 2.

Tabela 2: Catalisadores empregados na polimerização.

Catalisador	Propriedades finais do polímero
Cat_1	Alta massa molar (baixo MFI) e baixa rigidez (alto XS)
Cat_2	Baixa massa molar (alto MFI) e baixa rigidez (alto XS)
Cat_3	Alta massa molar (baixo MFI) e alta rigidez (baixo XS)

As reações envolvidas são dadas na Tabela 3. Vale ressaltar que esse processo já foi estudado por Dutra *et al.* (2014), Dias *et al.* (2017) e Jonildo (2018), os quais, contudo, não consideraram a alimentação de uma mistura de três catalisadores:

$$m_{cat} = m_{cat_1} + m_{cat_2} + m_{cat_3}.$$

Tabela 3: Modelo cinético para a polimerização do propileno.

Etapa	Reação	Cat ₁	Cat ₂	Cat ₃
Iniciação da cadeia	$C_j + M \rightarrow P_{1,j}$	●	●	●
Propagação da Cadeia	$P_{i,j} + M \rightarrow P_{i+1,j}$	●	●	●
Transferência de Cadeia	$P_{i,j} + H_2 \rightarrow D_{i,j} + C_j$	●	●	○
	$P_{i,j} + M \rightarrow D_{i,j} + C_j$	○	●	○
	$P_{i,j} \rightarrow D_{i,j} + C_j$	○	○	●
Desativação do Sítio	$P_{i,j} \rightarrow D_{i,j}$	○	●	●

(1) C_j são os sítios ativos livres do catalisador j ; M , o monômero; H_2 , o hidrogênio; $P_{i,j}$ e $D_{i,j}$, são cadeias poliméricas ativas e inativas respectivamente, com tamanho de cadeia i a partir do catalisador j . (2) O símbolo “●” indica a presença de uma determinada etapa na cinética de reação do catalisador j e “○” a ausência da mesma.

A partir dessas informações, o modelo matemático para a polimerização do propileno pode ser escrito, considerando os balanços de massa, dos momentos do polímero e de energia.

Balanço de massa global:

$$\rho \frac{dV}{dt} = \dot{m}_M + \dot{m}_H + \dot{m}_{TEA} + \dot{m}_{PEEB} - \dot{m}_S \quad (\text{Eq. 5})$$

Nesta Eq. 5, ρ representa a densidade do meio e V o volume da mistura reacional.

Balanço de massa para o monômero:

$$\rho \frac{d(V \cdot M)}{dt} = \frac{\dot{m}_M - w_M \cdot \dot{m}_S}{PM_M} - V \cdot M \sum_j (k_{p,j} + k_{tM,j}) \text{Cat}_j \quad (\text{Eq. 6})$$

Nesta representação (Eq. 6), M , w_M e PM_M são, respectivamente, a concentração, a fração e a massa molar do monômero no reator além de $k_{p,j}$ e $k_{tM,j}$ são

respectivamente as constantes cinéticas de propagação e de transferência de monômero.

Balanço de massa para o catalisador:

$$\frac{d(V \cdot \text{Cat}_j)}{dt} = \dot{m}_{\text{Cat}_j} - \left(\frac{\dot{m}_S}{\rho}\right) \text{Cat}_j - V \cdot k_{d,j} \cdot \text{Cat}_j \quad (\text{Eq. 7})$$

Nesta representação (Eq. 7), \dot{m}_{Cat_j} , Cat_j e $k_{d,j}$ indicam a vazão de alimentação, concentração e a constante cinética de desativação das espécies catalíticas j .

Balanço de massa para o hidrogênio:

$$\frac{d(V \cdot H_2)}{dt} = \frac{\dot{m}_H}{PM_H} - \left(\frac{\dot{m}_S}{\rho}\right) H_2 - V \cdot H_2 \sum_j (k_{tH,j} \cdot \text{Cat}_j) \quad (\text{Eq. 8})$$

Nesta Eq. 8, PM_H e H_2 representam a massa molar e a concentração de hidrogênio, e $k_{tH,j}$ a constante cinética de transferência de cadeia por hidrogênio.

Balanço de massa para o polímero:

$$\frac{d\text{Pol}}{dt} = R_{\text{Pol}} - \dot{m}_{\text{Pol}} \quad (\text{Eq. 9a})$$

$$R_{\text{Pol}} = -PM_M \cdot V \cdot M \sum_j (k_{p,j} \cdot \text{Cat}_j) \quad (\text{Eq. 9b})$$

O termo R_{Pol} apresentado na Eq. 9a e Eq. 9b, indica a taxa de polimerização e Pol a massa de polímero no reator.

Balanço de massa para os cocatalisadores:

$$\frac{d\text{TEA}}{dt} = \dot{m}_{\text{TEA}} - \frac{\text{TEA}}{\text{Pol}} \cdot \dot{m}_{\text{Pol}} \quad (\text{Eq. 10})$$

$$\frac{d\text{PEEB}}{dt} = \dot{m}_{\text{PEEB}} - \frac{\text{PEEB}}{\text{Pol}} \cdot \dot{m}_{\text{Pol}} \quad (\text{Eq. 11})$$

Balanço de massa nos divisores de corrente:

$$\dot{m}_{\text{Pol}} = \dot{m}_S - \dot{m}_{\text{gas}} \quad (\text{Eq. 12a})$$

$$\dot{m}_{\text{gas}} = (1 - w_M) \dot{m}_S \quad (\text{Eq. 12b})$$

Nas representações acima (Eq.12a e Eq.12b), Pol , TEA e PEEB são as massas de polímero e de cocatalisadores no reator, R_{Pol} , a taxa de polimerização; \dot{m}_{TEA} , \dot{m}_{PEEB} , \dot{m}_{Pol} e \dot{m}_{gas} , as vazões de alimentação de TEA e PEEB e de saída de polímero

produzido e de monômero e outros componentes não reagidos respectivamente.

Densidade do meio reacional:

$$\rho = w_M \cdot \rho_M + w_{pol} \cdot \rho_{Pol} \quad (\text{Eq. 13})$$

Em que w_{pol} , ρ_M e ρ_{Pol} são, respectivamente a fração mássica de polímero no reator e densidade do monômero e do polímero.

Balanços de momentos dos polímeros vivo e morto:

$$\frac{d\lambda_{0,j}}{dt} = \frac{dCat_j}{dt} \quad (\text{Eq. 14})$$

$$\frac{d(V \cdot \lambda_{1,j})}{dt} = - \left(\frac{\dot{m}_S}{\rho} \right) \lambda_{1,j} + V [k_{p,j} \cdot M \cdot Cat_j - (k_{tH,j} \cdot H_2 + k_{tS,j} + k_{d,j}) \lambda_{1,j}] \quad (\text{Eq. 15})$$

$$\frac{d(V \cdot \lambda_{2,j})}{dt} = - \left(\frac{\dot{m}_S}{\rho} \right) \lambda_{2,j} + V [k_{p,j} \cdot M \cdot (Cat_j + 2\lambda_{1,j}) - (k_{tH,j} \cdot H_2 + k_{tS,j} + k_{d,j}) \lambda_{2,j}] \quad (\text{Eq. 16})$$

$$\frac{d(V \cdot \mu_{k,j})}{dt} = - \left(\frac{\dot{m}_S}{\rho} \right) \mu_{k,j} + (k_{tH,j} \cdot H_2 + k_{tS,j} + k_{d,j}) V \cdot \lambda_{k,j} \quad (\text{Eq. 17})$$

Em que $\lambda_{0,j}$, λ_1 , $\lambda_{2,j}$, e $\lambda_{k,j}$ são, respectivamente, os momentos de ordem zero, um, dois e k de uma distribuição de tamanhos de cadeia de um polímero vivo. $\mu_{k,j}$ é o momento de ordem k de uma distribuição de tamanhos de cadeia de um polímero morto das espécies catalíticas j.

Balanço de energia no reator:

$$\frac{dT}{dt} = \frac{\dot{m}_M \cdot c_{p,M}(T_e) \cdot (T_e - T) + (-\Delta H_r) R_{Pol} - Q_1}{PM_M \cdot c_{p,M}(T) \cdot V \cdot M + c_{p,Pol}(T) \cdot Pol} \quad (\text{Eq. 18a})$$

$$Q_1 = \dot{m}_{M_c} [c_{p,M}(T) \cdot (T - T_c) + \lambda_M(T)] \quad (\text{Eq. 18b})$$

Nesta representação (Eq. 18a e Eq. 18b), $c_{p,M}$ e $c_{p,Pol}$ são respectivamente os calores específicos do monômero e do polímero; T_e , a temperatura de alimentação do monômero; e , T e T_c as temperaturas de saída do reator e do condensador respectivamente; ΔH , o calor de reação; λ_M , o calor latente de vaporização do monômero; \dot{m}_{M_c} , a vazão de troca entre o reator e o condensador; Q_1 , a quantidade de calor total retirada pelo condensador de topo.

Equação para a temperatura do condensador:

$$\frac{dT_c}{dt} = \frac{Q_1 - Q_2}{M_c \cdot c_{p,M}(T_c)} \quad (\text{Eq. 19})$$

Equação para a temperatura de refrigeração:

$$\frac{dT_w}{dt} = \frac{\dot{m}_w \cdot c_{p,w}(T_{we}) \cdot (T_{we} - T_w) + Q_2}{M_{cw} \cdot c_{p,w}(T_w)} \quad (\text{Eq. 20a})$$

$$Q_2 = UA(T_c - T_w) \quad (\text{Eq. 20b})$$

Nas representações acima (Eq. 20a e Eq. 20b), T_{we} , T_w e T_c são respectivamente as temperaturas de entrada e saída de água na camisa de refrigeração e a do interior do condensador; \dot{m}_w , a vazão de alimentação de água; M_c e M_{cw} , as massas de monômero e de água respectivamente no condensador e na camisa, admitidas constantes; $c_{p,w}$, o calor específico da água; UA , o coeficiente global de transferência de calor; Q_2 , a quantidade de calor total retirada pela camisa de refrigeração do condensador.

Normalmente, são utilizadas algumas propriedades do polímero para caracterizar sua qualidade final como a massa molar, polidispersão, a composição, o índice de fluidez (MFI) e o teor de solúveis em xileno (XS). Neste trabalho, de forma a quantificar essas propriedades, serão consideradas correlações empíricas para se calcular em termos médios o MFI e o XS apenas.

O índice de fluidez (MFI) fornece uma ideia da facilidade do polímero em fluir quando fundido. Pode ser calculado a partir de correlações empíricas, conforme dado pela Eq. 21 (LATADO et al., 2001), onde a_1 e a_2 são constantes.

$$\log(\text{MFI}) = a_1 \cdot \log(M_w) + a_2 \quad (\text{Eq. 21})$$

O teor de solúveis em xileno está relacionado com a fração de material atático na resina polimérica, fornecendo informação sobre a rigidez do material, e pode ser calculado a partir da Eq. 22 (MACHADO e PINTO, 2011). A variável R_p é a taxa de reação da cadeia polimérica ativa, e XS^R e K_{XS} são parâmetros.

$$\frac{dXS}{dt} = \frac{R_p}{\text{Pol}} \cdot \left[XS^R + K_{XS} \cdot \left(\frac{\text{TEA}}{\text{PEEB}} - 1 \right) - XS \right] \quad (\text{Eq. 22})$$

A representação matemática desse reator resultou então em um modelo não-linear dinâmico rigoroso composto por equações diferenciais combinadas com equações algébricas, o mesmo foi implementado em linguagem Python 3.7, no *software Spyder/Anaconda* uma vez que este ambiente computacional é gratuito e oferece ferramentas muito poderosas para a resolução numérica quanto para visualizações gráficas.

Algumas propriedades físicas, como densidade, calor específico e calor latente

de vaporização, e também constantes cinéticas das reações de polimerização do propeno além dos valores dos parâmetros usados para simulação, valores nominais das entradas e condições iniciais, podem ser encontrados em Dutra *et al.* (2014).

4.2. Formulação do problema de controle

O algoritmo de controle preditivo para o reator do tipo LIPP possui os seguintes recursos:

- Múltiplas entradas e múltiplas saídas (MIMO).
- Resolução simultânea do problema de otimização.

A partir de uma análise foi realizado mudanças do modelo usado pelo NMPC, ao fato desse controlador ser responsável por fazer controle das variáveis de qualidade do polímero. O impacto disso é que se tem um modelo menos rigoroso que do processo, e assim ocasionando um menor esforço computacional. Foram então selecionadas as seguintes malhas de controle para o controle preditivo de modelo não linear, onde a sintaxe $y \leftrightarrow u$ significa que y é controlada pela manipulação de u :

Quadro 2: Malhas de Controle.

Controle supervisório
$MFI \leftrightarrow \dot{m}_H$
$MFI \leftrightarrow T$
$XS \leftrightarrow \dot{m}_{TEA}/\dot{m}_{PEEB}$

Fonte: Autor (2021)

4.2.1. Problema de otimização

Adotando as variáveis controladas e manipuladas listadas anteriormente, o algoritmo de controle preditivo compreende o seguinte problema de programação não linear, que deve ser resolvido a cada período de amostragem para gerar os movimentos de controle. Abaixo encontra-se a função objetivo (Eq. 23):

$$\min_{u(t)} J = \sum_{k=1}^P \|e(t+k)\|_R^2 + \sum_{k=1}^M \|\Delta u(t+k-1)\|_Q^2 \quad (\text{Eq. 23})$$

Os movimentos de controle de cada variável manipulada (MV) são obtidos de acordo com a Eq. 24:

$$\Delta u(k) = u(k) - u(k - 1), \quad k \geq t \text{ (Eq. 24)}$$

Os desvios de uma resposta desejada (Eq. 25), em um horizonte de predição de comprimento P , devem ser calculados para cada variável controlada (CV) ($y = XS$, MFI):

$$e(t + k) = y_{ref}(t + k) - [\hat{y}(t + k) + d], \quad d = y(t) - \hat{y}(t) \text{ (Eq. 25)}$$

onde e são os desvios da trajetória de referência e d o termo de perturbação usado dado pelo desvio da variável controlada no instante de tempo atual, já em relação às variáveis de entrada, as seguintes restrições devem ser consideradas como a Eq. 26^a e Eq. 26^b:

$$u_i \leq u(t + k - 1) \leq u_s, \quad k = 1, \dots, M, \text{ (Eq. 26a)}$$

$$\Delta u_i \leq \Delta u(t + k - 1) \leq \Delta u_s, \quad k = 1, \dots, M. \text{ (Eq. 26b)}$$

Restrições rígidas também são consideradas para as previsões de saída (Eq. 27):

$$y_i \leq \hat{y}(t + k) \leq y_s, \quad k = 1, \dots, P. \text{ (Eq. 27)}$$

4.2.2. Procedimento de ajuste do algoritmo NMPC

Para essa proposta, foi considerado que o tempo de simulação é 35 horas e os tempos de amostragem das camadas inferior e superior são iguais a 1 e 10 minutos respectivamente. O tempo de amostragem é o intervalo de tempo em que um novo sinal de medida é obtido e enviado ao controlador para que seja calculada a nova ação de controle a ser implementada no processo. O intervalo de amostragem deve ser pequeno o suficiente para capturar adequadamente a dinâmica do processo. Não é adequado como parâmetro de ajuste para o NMPC, pois deve ser fixado com base no equipamento instalado e nas limitações do processo. Ele também afeta diretamente os parâmetros especificados em intervalos de amostragem, como os horizontes de previsão e controle.

O horizonte de predição (P) define o limite superior do horizonte de tempo para a previsão do comportamento do processo. Aumentar o horizonte de previsão tem um efeito no desempenho do controle, melhorando sua estabilidade. Deve ser selecionado o maior possível, mas finito. À medida que o horizonte de previsão

aumenta, o tamanho e a complexidade do problema de otimização dinâmica também aumentam. Já o horizonte de controle (M) é o número de ações de controle que são permitidos durante o problema de controle ótimo e é menor ou igual ao horizonte de predição (P) afetando quão agressivo é a ação de controle (TRIERWEILER; FARINA, 2003).

As penalidades nos desvios das saídas (R) são usadas na função objetivo para dimensionar as variáveis e priorizar os diferentes objetivos de acordo com sua importância relativa. Aumentar um peso específico, mantendo o resto constante, direciona o esforço de controle para um controle mais rígido nessa variável. Já os pesos sobre a alteração das entradas (Q) suprimem as mudanças agressivas das variáveis manipuladas, tornando um controlador mais robusto, mas também tornando a resposta nas variáveis controladas mais lenta. Definir uma pequena penalidade nesta parte da função objetivo produz uma resposta mais agressiva e diminui a capacidade do controlador de lidar com mudanças ou distúrbios drásticos (GARRIGA; SOROUSH, 2010).

Na Tabela 4, têm-se os principais parâmetros de sintonia para o controle preditivo de modelo não linear, no qual foram escolhidos levando em consideração a complexidade do problema de otimização, comportamento dinâmico das variáveis de controle e tempo de simulação. Então esses valores visam um controle estável e robusto além de direcionar o esforço de controle e gerar uma resposta mais agressiva para o *MFI* em comparação ao *XS*.

Tabela 4: Parâmetros de sintonia do NMPC.

Horizonte de predição (P)	7
Horizonte de controle (M)	4
Peso nas alterações das entradas (Q)	diag([1, 1, 1, 0.1])
Peso nas alterações das saídas (R)	diag([1.0, 5.0])

Fonte: Autor (2021).

4.3. Integração do NMPC com a camada de controle regulatório

O PID é o controlador mais usado na indústria de transformação, devido à sua simplicidade (facilidade de implementação e uso). Existem três parâmetros de ajuste importantes para um controlador PID: ganho proporcional (K_c), constante de tempo integral (τ_I) e constante de tempo derivado (τ_D). O controlador com as ações proporcional e integral (PI) é a lei de controle mais frequentemente escolhida, pois ele oferece: simplicidade do algoritmo para cômputo da ação de controle; ação imediata a desvios da variável controlada devido à ação proporcional; e eficácia da ação integral em eliminar erros de controle causados por perturbações ou mudanças de valor desejado (*setpoint*). Além disso, pode-se destacar que um controlador mais simples, apenas com ação proporcional, estaria propenso à ocorrência de desvio (*offset*) não-nulo; e a inclusão da ação derivativa, gerando um PID, é normalmente evitada no contexto em que houver presença de ruídos de medição.

A diferença entre o *setpoint* e a variável de controle medida em qualquer momento é o erro de controle ($e(t)$). Na estrutura de controle híbrida NMPC – PID, na Figura 8, ou seja, um controle de duas camadas hierárquicas sendo a camada superior (controle supervísório) composta por um NMPC e a camada inferior (controle regulatório) por um controlador PID, a qual é responsável por garantir a estabilidade do processo e inclui as malhas para o volume e temperatura do reator, temperatura do fluido refrigerante, taxa de produção de polímero e de alimentação de monômero. Os parâmetros do controlador utilizados são propostos por Dutra *et. al.* (2014).

O NMPC foi projetado para garantir o controle de uma mistura de múltiplos catalisadores, garantindo o cumprimento das especificações de qualidade da resina polimérica incluindo as malhas do MFI e XS. O NMPC é baseado na otimização de uma função objetivo dentro de um horizonte móvel. O tipo de função objetivo do NMPC a ser usada para variáveis definidas como variáveis controladas (CV) em aplicativos de controle é erro ao quadrado de uma trajetória de referência, que consiste na soma quadrada ponderada dos desvios das variáveis de controle e na soma quadrada ponderada dos ajustes do controlador. Conforme exigido pelo NMPC, um modelo não linear foi desenvolvido no CasADi usando um modelo de processo detalhado e, em seguida, esse modelo foi importado para o ambiente computacional Python para configuração e design do NMPC. O NMPC usa o modelo não linear desenvolvido para gerar a resposta futura do processo dentro de um

horizonte de previsão e, através da otimização, gera o sinal do atuador dentro de um horizonte de controle (SINGH; IERAPETRITOU; RAMACHANDRAN, 2013).

O desempenho do NMPC depende significativamente de seus parâmetros de ajuste de termos ou restrições da função objetivo que limitam o máximo que a MV pode mover a cada ciclo, penalidade pelo movimento da MV ou definem limites inferior e superior das variáveis manipuladas.

O modo de solução do modelo usado é o controle dinâmico com abordagem simultânea e o solucionador a ser usado na tentativa de encontrar uma solução é o “*ipopt*” que é um pacote de *software* de fonte aberta para grande escala otimização não linear.

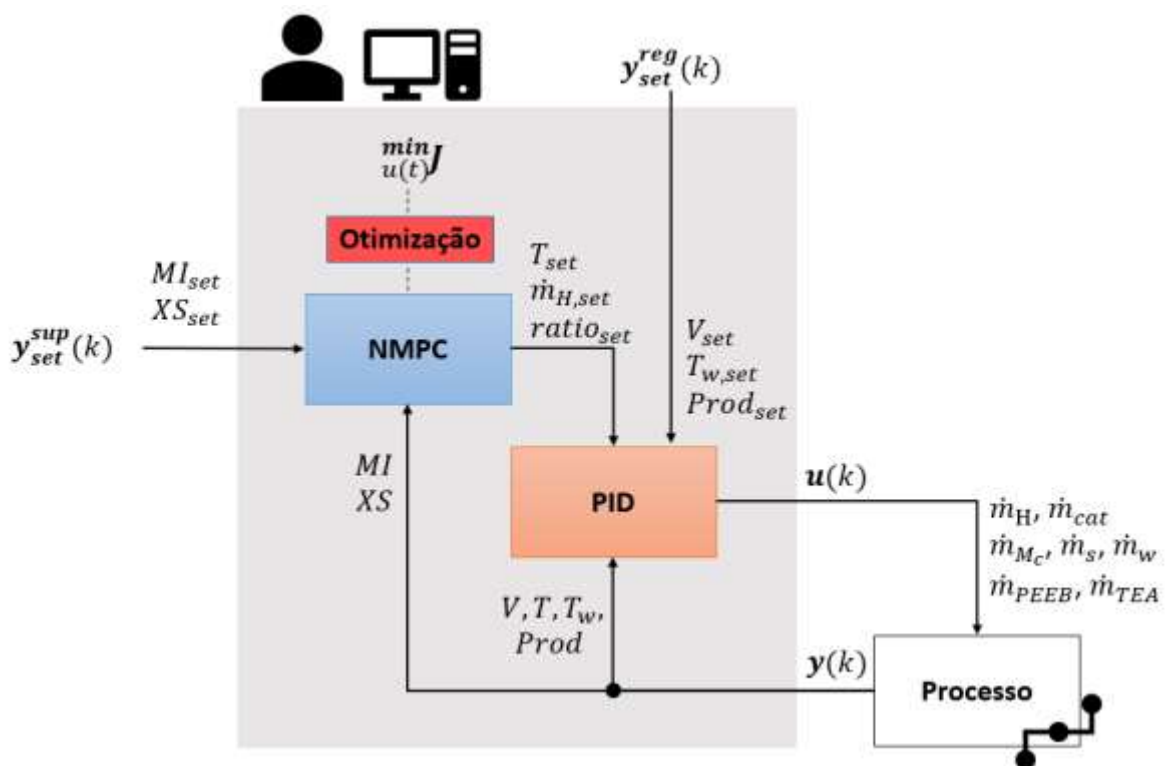


Figura 8: Esquema da integração das camadas de controle. Fonte: Autor (2021).

onde, $y_{set}^{sup}(k)$ e $y_{set}^{reg}(k)$ são os vetores da camada supervisória e regulatória, respectivamente. E $u(k)$ e $y(k)$ são os vetores de entrada e saída do processo de polimerização, respectivamente.

Na Figura 8 o NMPC é colocado no nível de supervisão e fornece o *setpoint* para o controlador PI, composto pelos *setpoints* da temperatura do reator (T_{set}), pela vazão de alimentação de hidrogênio ($\dot{m}_{H,set}$) e pela razão de cocatalisadores ($\dot{m}_{TEA,set}/\dot{m}_{PEEB,set}$). O vetor de erro é o desvio da variável de controle prevista do modelo em relação ao ponto de ajuste no horizonte de previsão. Esse vetor de erro é a entrada

para o algoritmo de controle NMPC, no qual a função objetivo deve ser minimizada, levando em consideração a saída do NMPC, restrições de entrada e saída e processo e parâmetros de ajuste do NMPC.

A otimização foi realizada dentro de um horizonte de previsão e a saída NMPC é gerada com um horizonte de controle. O primeiro ponto de dados da saída NMPC fornece o ponto de ajuste do controlador PI e o restante dos pontos de dados é desconsiderado. Os subsistemas do NMPC, que incluem geração do vetor de erro, minimização da função objetivo (J), geração da trajetória do atuador, implementação do primeiro ponto de dados, medição da variável de controle são repetidas para cada etapa do tempo.

A dinâmica do *loop* de controle regulatório deve ser mais fácil e rápida para que um simples controlador PI possa rastrear o *setpoint* gerado pelo controlador NMPC. Assim nessa camada têm-se o fornecimento dos *setpoints* para o controle, e as entradas das variáveis manipuladas no modelo completo do reator e posteriormente as saídas das variáveis controladas, a qual as malhas para o controle supervisorio serão mandadas para o modelo do NMPC que é responsável por manter a especificação de qualidade do polímero, logo nesse modelo pode-se utilizar um modelo reduzido com as balanços e equações algébricas para o cálculo das especificações de qualidade.

4.4. Testes

Os testes de simulação foram realizados em duas etapas, compreendendo os problemas servo e regulatórios. Para os testes de problemas regulatórios, foi verificada a capacidade de rejeitar alguns distúrbios em potencial e manter variáveis controladas em seus *setpoints*. E por fim foi feita a comparação entre o controle PID - PID (controle de duas camadas hierárquicas compostas por PID) e o controlador híbrido NMPC – PID (controle de duas camadas hierárquicas compostas por um NMPC e um PID) considerando diferentes valores de *setpoint* de temperatura do fluido refrigerante e de composições catalíticas como mostrado na Tabela 5.

Tabela 5: Testes considerados para simulação do problema de controle, considerando diferentes valores de *setpoint* de temperatura do fluido refrigerante e de composições catalíticas obtidos como solução ótima estacionária.

Teste	$T_{w_{set}}$ (K)	α (%)	β (%)	γ (%)
1	305.0	0.02	10.83	89.15
2	323.88	0.18	4.07	95.75
3	305.0	23.77	76.23	0
4	305.0	1.10	98.90	0

Fonte: Autor (2021).

4.4.1. Problema servo

Levando em conta as condições de qualidade nominais de cada catalisador foi feito a escolha das alterações no ponto de ajuste de modo que seja viável a mudança no ponto de vista de prático e para uma melhor visualização gráfica das mudanças. Logo nesta seção, alterações simultâneas do *setpoint* nas variáveis controladas foram aplicadas de acordo com a Tabela 6.

Tabela 6: Alterações no ponto de ajuste a partir de 20% e 60% do tempo total de simulação.

Teste	$MI_{inicial}$	$XS_{inicial}$	$MI_{intermediário}$	$XS_{intermediário}$	MI_{final}	XS_{final}
1	5.0	0.5	7.5	3.0	10.0	6.0
2						
3	10.0	3.0	5.0	4.0	2.5	6.0
4	15.0	7.5	10.0	3.0	5.0	1.5

Fonte: Autor (2021).

4.4.2. Problema regulatório

Possíveis distúrbios podem ser considerados como a temperatura de entrada de água na camisa de refrigeração, do interior do condensador e a temperatura de alimentação de monômero. Mas nesse estudo, foi considerado apenas uma redução de 5 graus na temperatura de alimentação de monômero.

4.5. Comentários finais

Nesta seção foi possível definir o modelo rigoroso para o reator de polimerização de propileno, juntamente com as condições operacionais. Em seguida também foi obtido a formulação do problema de controle, com destaque nos principais parâmetros escolhidos de controle como: tempo de amostragem, horizonte de predição e de controle, função objetivo, matrizes de ponderação além de estratégias numéricas para resolução do problema, no qual foram escolhidos baseados na complexidade do problema de otimização, comportamento dinâmico das variáveis de controle e tempo de simulação. Posteriormente foi detalhado a integração do NMPC com a camada regulatória PID.

5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

A rotina de programação do esquema de controle NMPC – PID, foi usado a biblioteca CasADi, responsável por fazer a interface entre o código e o solver (“*ipopt*”). Mesmo o CasADi tendo algumas peculiaridades em sua estrutura (construção de expressões simbólicas), o tempo computacional foi em torno de 3 horas a mais que o do esquema de controle PID – PID em todos os testes, mas não foi prejudicada pela biblioteca e sim pela complexibilidade do problema de otimização e do *solver* utilizado para resolução do mesmo. Em termos gerais mesmo tendo essa diferença relativamente alta, o controle se mostrou estável e melhor operacionalmente em alguns casos que o esquema de controle PID – PID.

Os testes consideraram o rastreamento simultâneo das especificações do polímero com diferentes composições de catalisadores. Abaixo na Tabela 6, encontram-se algumas simulações com composição mássica de catalisadores que permitiu alcançar o PP com a qualidade requerida e minimizar, em estado estacionário, os custos envolvidos na operação. Os resultados obtidos foram descritos no artigo apresentado no I Congresso Brasileiro em Engenharia de Sistemas em Processos, no Rio de Janeiro em 2019. Esse artigo está apresentado como anexo a essa dissertação. Em linhas gerais, espera-se que de acordo com as mudanças da qualidade do polímero às composições com mais Cat_3 , simbolizados por γ (%), tragam maiores desafios operacionais, ao fato de demandar de uma reconfiguração da malha de controle para fazer mudanças na temperatura do reator. Logo, espera-se que o esquema de controles PID - PID seja mais limitado nos testes 1 e 2 que possuem elevada composição de Cat_3 .

Vale ressaltar que esses testes foram pensados para analisar a capacidade de controle com proporções variadas de um tipo de catalisador em relação a outro. Como, por exemplo, os testes 1 e 2 ambos apresentam altas proporções de catalisador de Metaloceno (Cat_3), que traz mais dificuldade para o problema de controle.

As respostas obtidas para cada teste podem ser vistas nas figuras 9 a 16. A manipulação das variáveis de entrada foi suave em alguns casos e ambos os esquemas de controle, PID-PID e NMPC-PID, mostraram que os parâmetros usados na implementação conferem certo grau de robustez ao sistema de controle.

No Teste 1, é possível observar que, na Figura 9, o teste servo implementado no comportamento dinâmico dos parâmetros de qualidade do polímero, que para ambos os esquemas de controle conseguiram fazer o controle adequado de MFI e XS com a manipulação das variáveis de entrada mesmo com a mudança nos *setpoints*.

No contexto industrial temos uma observação importante, que no esquema de controle PID – PID para o controle do MFI foi necessário aumentar muito a quantidade de hidrogênio em relação ao esquema de controle do NMPC – PID na mudança de um MFI = 7,5 g/(10min) para um MFI = 10 g/(10min), tornando o processo custoso.

O aumento de hidrogênio se deve ao fato de que como a proporção de catalisadores de MC é alta, este tipo de catalisador não responde bem às variações de concentração de hidrogênio no reator, forçando o uso de outras variáveis para o controle de MFI. No exemplo considerado nesse trabalho, o único grau de liberdade é a manipulação da temperatura do reator. Com isso, para ser possível realizar o controle do MFI é necessário que o esquema de controle deva ter uma estratégia para realizar a reconfiguração desta malha, ou seja, o esquema NMPC – PID é capaz desse feito como mostrado na Figura 10. Outra observação é que para o controle de XS tanto quanto o de MFI foram mais rápidos no esquema de controle NMPC – PID.

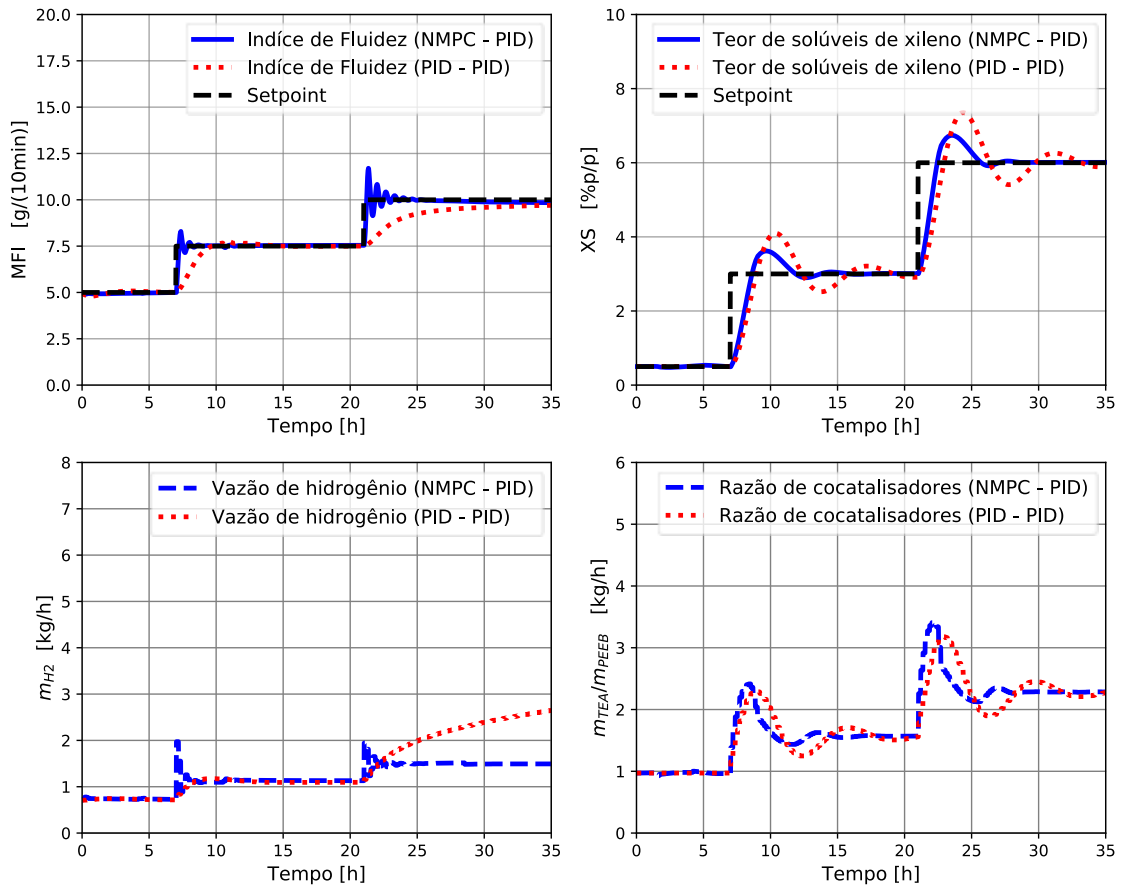


Figura 9: Comportamento dinâmico do controle de MFI e XS através da manipulação da vazão de alimentação de hidrogênio e da razão de cocatalisadores, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 0.02$; $\beta(\%) = 10.83$ e $\gamma(\%) = 89.15$

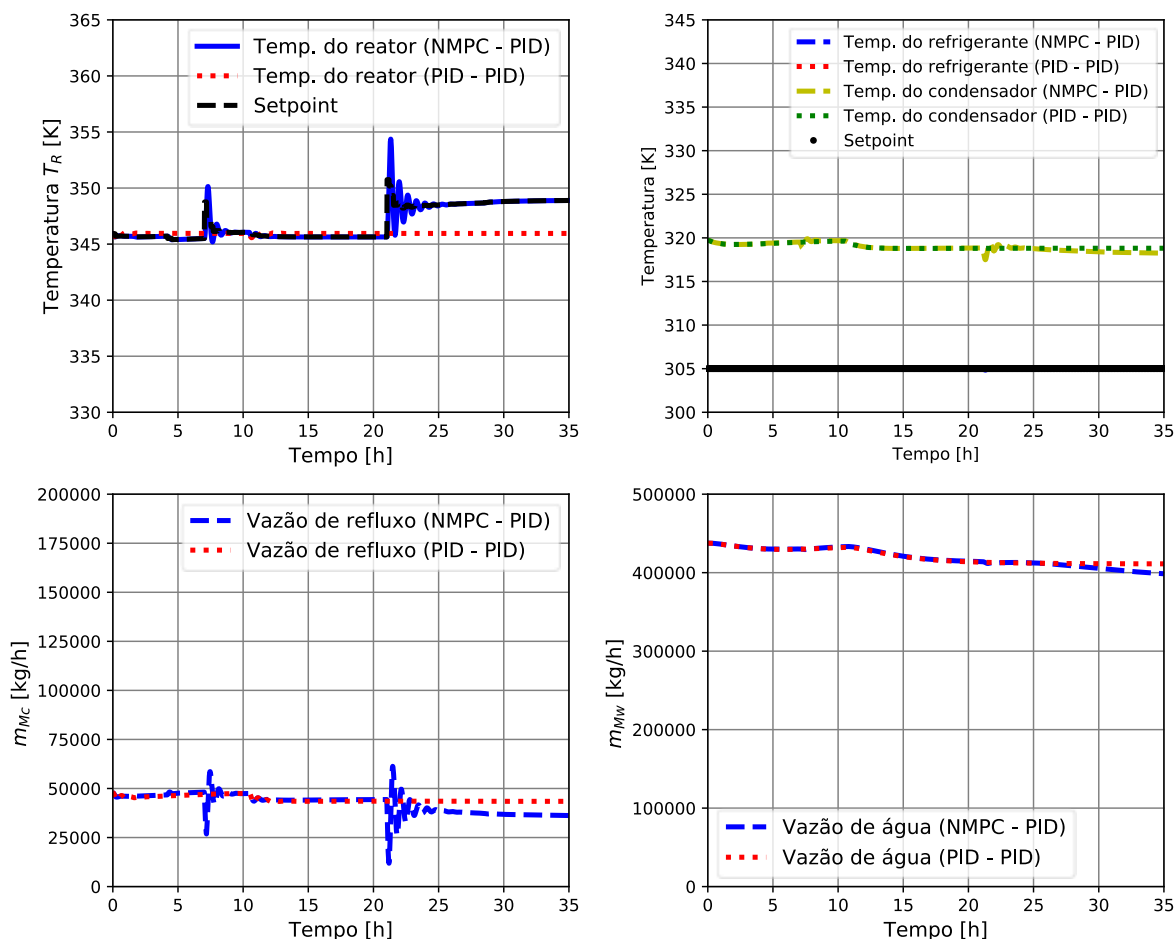


Figura 10: Comportamento dinâmico do controle de T_r e T_w através da manipulação da vazão de saída de monômero do condensador e da vazão de água utilizada no condensador, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 0.02$; $\beta(\%) = 10.83$ e $\gamma(\%) = 89.15$

De acordo, com os critérios de desempenho das variáveis de qualidade apresentados na Tabela 5 pode-se observar que as integrais do erro no tempo foram menores para o esquema de controle NMPC – PID indicando quantitativamente um melhor desempenho comparado ao esquema de controle PID – PID. Considerando especificamente o critério ITAE, percebe-se que o esquema com controle preditivo no ajuste de MFI e XS levou a valores que correspondem, respectivamente, a cerca de 1,35% e a 40%, quando comparado ao esquema formado apenas por controladores PI.

Essa diferença percentual está muito ligada aos valores das matrizes de ponderações da função objetivo (R e Q), onde foi preferível direcionar um maior peso para o MFI devido a sua complexibilidade para se realizar o controle (dependente das taxas de reação dos polímeros vivo e morto) além de uma pequena penalidade

para realizar o reajuste da temperatura do reator, assim produzindo uma resposta mais agressiva. Já o XS foi utilizado um peso bem mais baixo, devido a seu controle menos complexo, pois depende apenas dos cocatalisadores e da taxa de polimerização, assim tendo um controle mais suave.

Tabela 5: Critérios de desempenho das variáveis de qualidade calculados para o esquema de controle, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 0.02$; $\beta(\%) = 10.83$ e $\gamma(\%) = 89.15$.

Esquema	Variável	IAE	ITAE	ISE	ITSE
NMPC – PID	MFI	1.51	24.19	0.15	2.38
	XS	43.05	673.44	54.43	838.16
PID – PID	MFI	86.79	1766.59	105.61	1939.31
	XS	92.71	1680.11	123.60	2109.22

Fonte: Autor (2021).

No Teste 2, de acordo com a Figura 11 o teste servo implementando no comportamento dinâmico dos parâmetros de qualidade do polímero, temos que para o esquema de controle NMPC – PID foi possível fazer o controle adequado de MFI e XS com a manipulação das variáveis de entrada mesmo com a mudança nos *setpoints*.

O esquema de controle PID – PID não consegue realizar o controle na mudança de um MFI = 7,5 g/(10min) para um MFI = 10 g/(10min), mesmo atingindo o limite operacional da vazão de hidrogênio de 3,5 Kg/h. Mostrando a necessidade de ter uma estratégia de controle que possa realizar a reconfiguração da malha de temperatura do reator, como visto a mudança pelo esquema de controle NMPC – PID na Figura 12.

No contexto industrial, se não tiver um controle efetivo da mistura de catalisadores pode ocasionar problemas para a planta, onde temos uma situação que o esquema de controle PID – PID que há um controle efetivo, mostrado no Teste 1 (Figura 7) e outra situação onde teve um aumento de 6,6% de Cat_3 , no qual o esquema de controle PID – PID não há controle efetivo de MFI, mostrado no Teste 2 (Figura 9). Já o esquema de controle NMPC – PID seguiu um controle efetivo em ambas as situações.

Outro ponto importante no contexto industrial é que em situações onde se tenha multiplicidade de sítios catalíticos onde não tenha uma composição fixa de sítios o esquema de controle PID – PID não conseguiria segurar esse controle, devido que não apresenta graus de liberdade suficientes para segurar perturbações internas

que ocorrem no processo, já o esquema de controle NMPC – PID segura o controle em qualquer composição.

O controle de XS tanto quanto o de MFI foram mais rápidos no esquema de controle NMPC – PID, facilmente explicado pela capacidade de previsão do controlador NMPC.

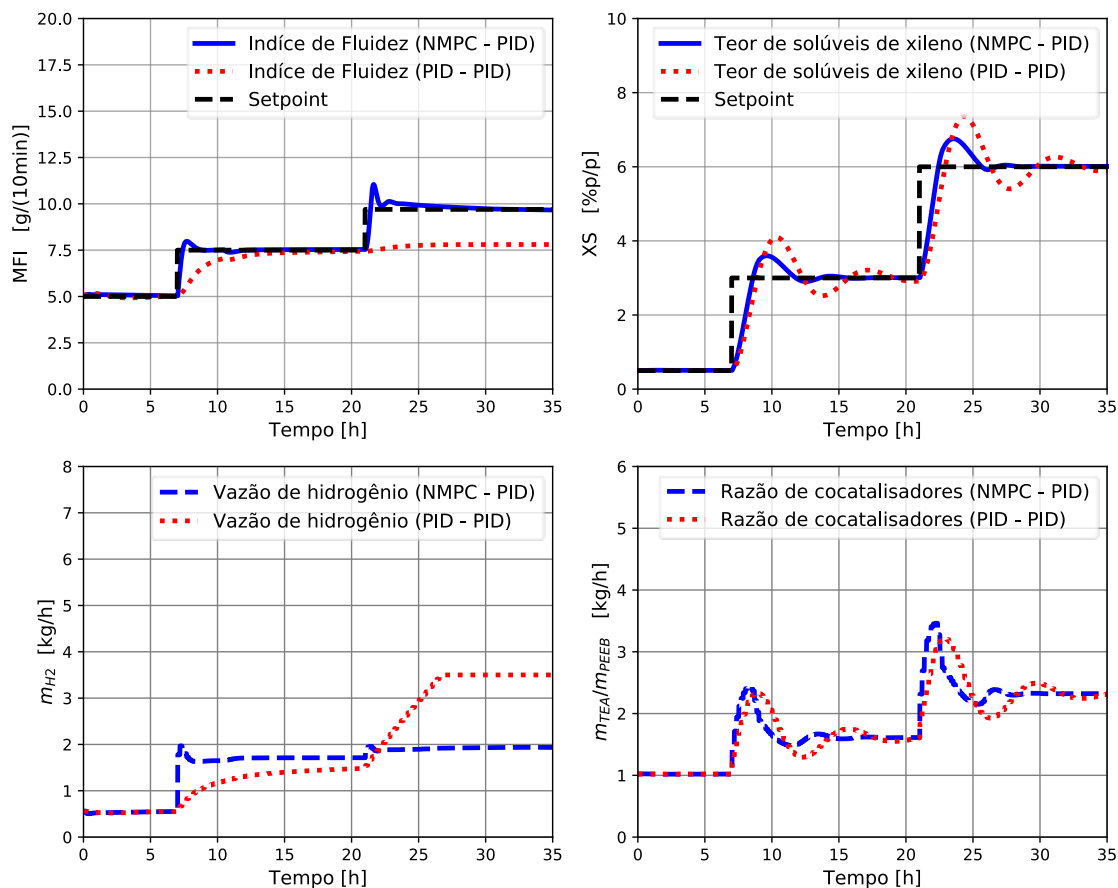


Figura 11: Comportamento dinâmico do controle de MFI e XS através da manipulação da vazão de alimentação de hidrogênio e da razão de cocatalisadores, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 0.18$; $\beta(\%) = 4.07$ e $\gamma(\%) = 95.75$

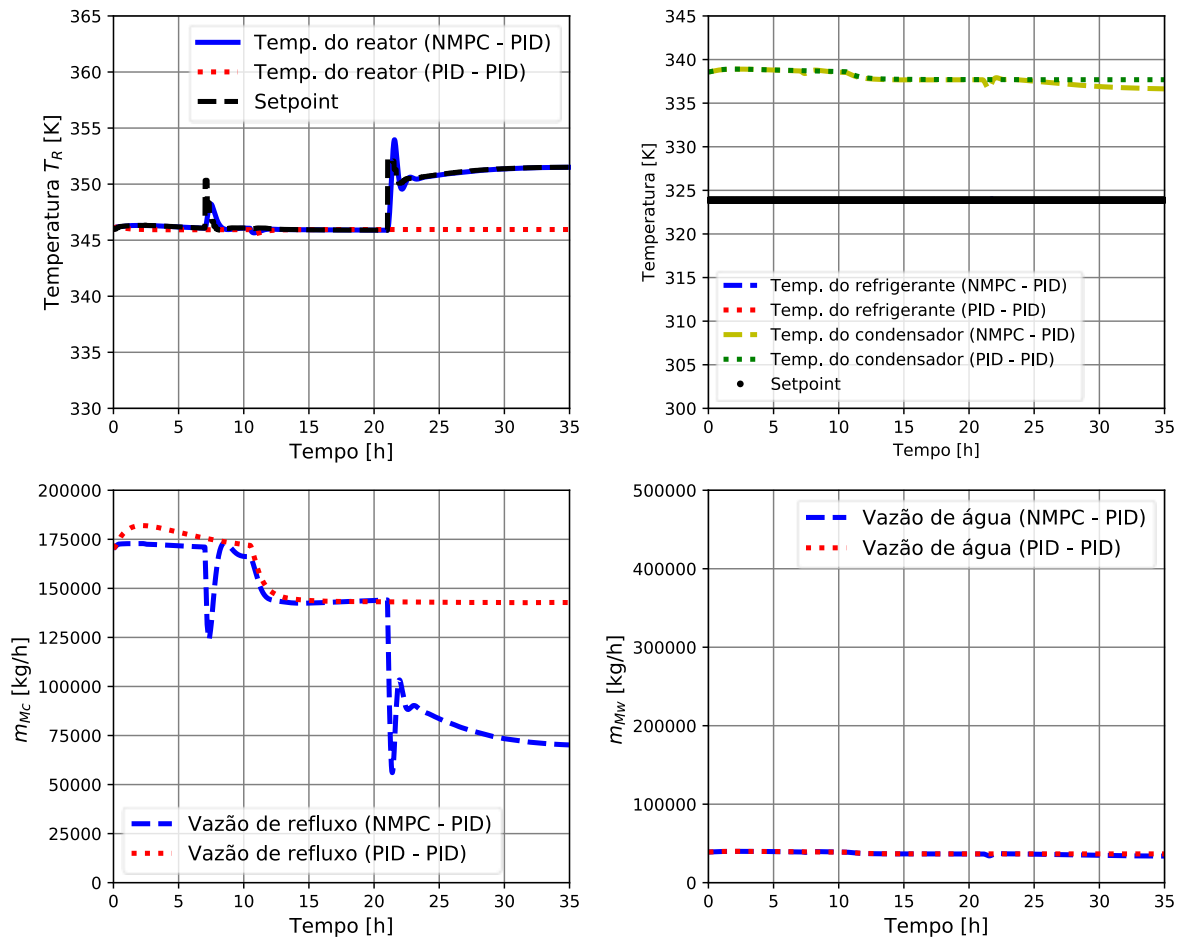


Figura 12: Comportamento dinâmico do controle de T_r e T_w através da manipulação da vazão de saída de monômero do condensador e da vazão de água utilizada no condensador, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 0.18$; $\beta(\%) = 4.07$ e $\gamma(\%) = 95.75$

Os critérios de desempenho das variáveis de qualidade apresentados na Tabela 8 mostram que as integrais do erro no tempo foram menores para o esquema de controle NMPC – PID indicando um melhor desempenho comparado ao esquema de controle PID – PID. Considerando especificamente o critério ITAE, percebe-se que o esquema com controle preditivo no ajuste de MFI e XS levou a valores que correspondem, respectivamente, a cerca de 0,45% e a 40%, quando comparado ao esquema formado apenas por controladores PI.

Essa diferença percentual em comparação ao Teste 1 do MFI que foi de 1,45% a 0,45% está muito ligada ao aumento percentual da composição de Cat_3 .

Tabela 6: Critérios de desempenho das variáveis de qualidade calculados para o esquema de controle, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 0.18$; $\beta(\%) = 4.07$ e $\gamma(\%) = 95.75$.

Esquema	Variável	IAE	ITAE	ISE	ITSE
NMPC – PID	MI	1.66	25.28	0.20	3.13
	XS	41.54	659.17	53.12	824.48
PID – PID	MI	229.22	5640.46	472.71	12192.30
	XS	92.38	1675.89	122.89	2099.17

Fonte: Autor (2021).

No Teste 3, de acordo com a Figura 13 o teste servo implementando no comportamento dinâmico dos parâmetros de qualidade do polímero, temos que para ambos os esquemas de controle apresentaram um desempenho equivalente para realizar o controle adequado de MFI e XS com a manipulação das variáveis de entrada mesmo com a mudança nos *setpoints*.

A temperatura do reator se manteve constante para os dois esquemas de controle como pode ser visto na Figura 14. A razão disso se deve ao fato de que não temos no sistema catalítico a presença do Cat_3 que ocasiona necessidade de uma reconfiguração da malha de controle do MFI fazendo uma manipulação da temperatura do reator. Uma observação também é que para o controle de XS e o do MFI foram mais rápidos no esquema de controle NMPC – PID.

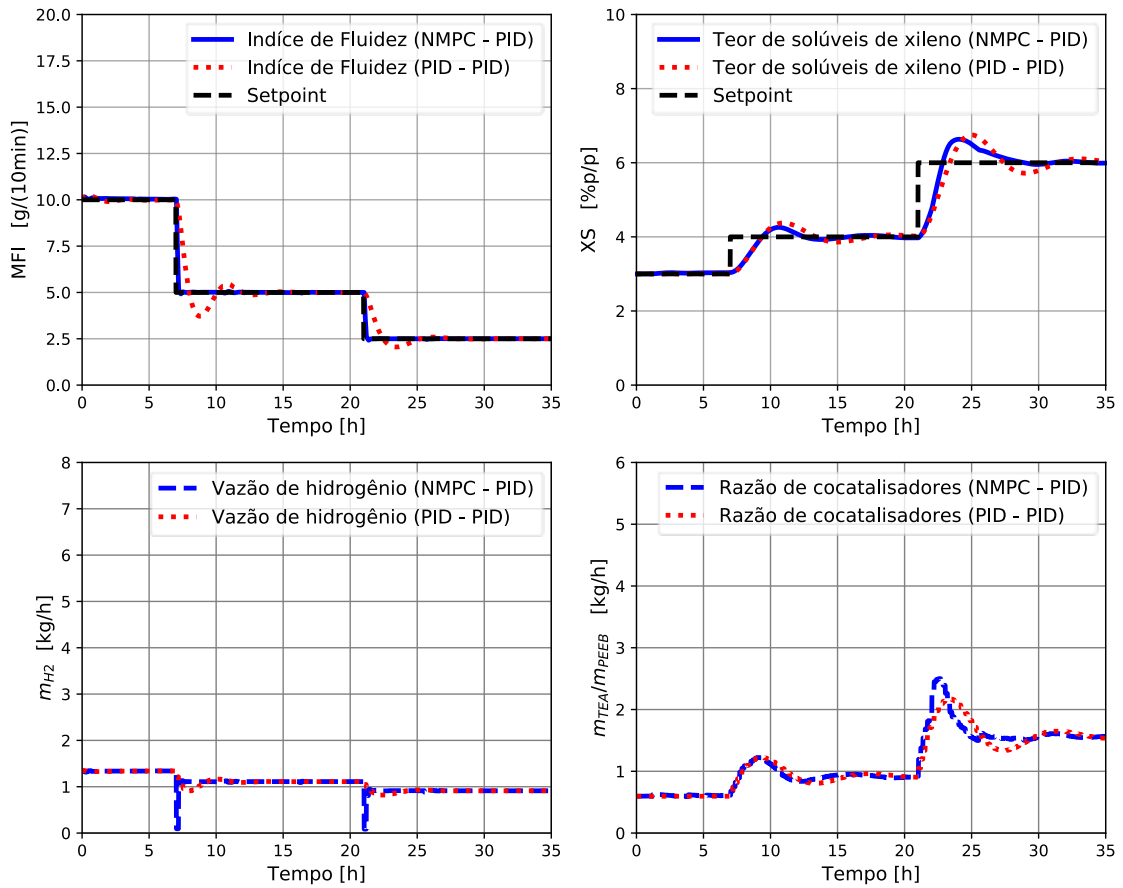


Figura 13: Comportamento dinâmico do controle de MFI e XS através da manipulação da vazão de alimentação de hidrogênio e da razão de cocatalisadores, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 23.77$; $\beta(\%) = 76.23$ e $\gamma(\%) = 0$

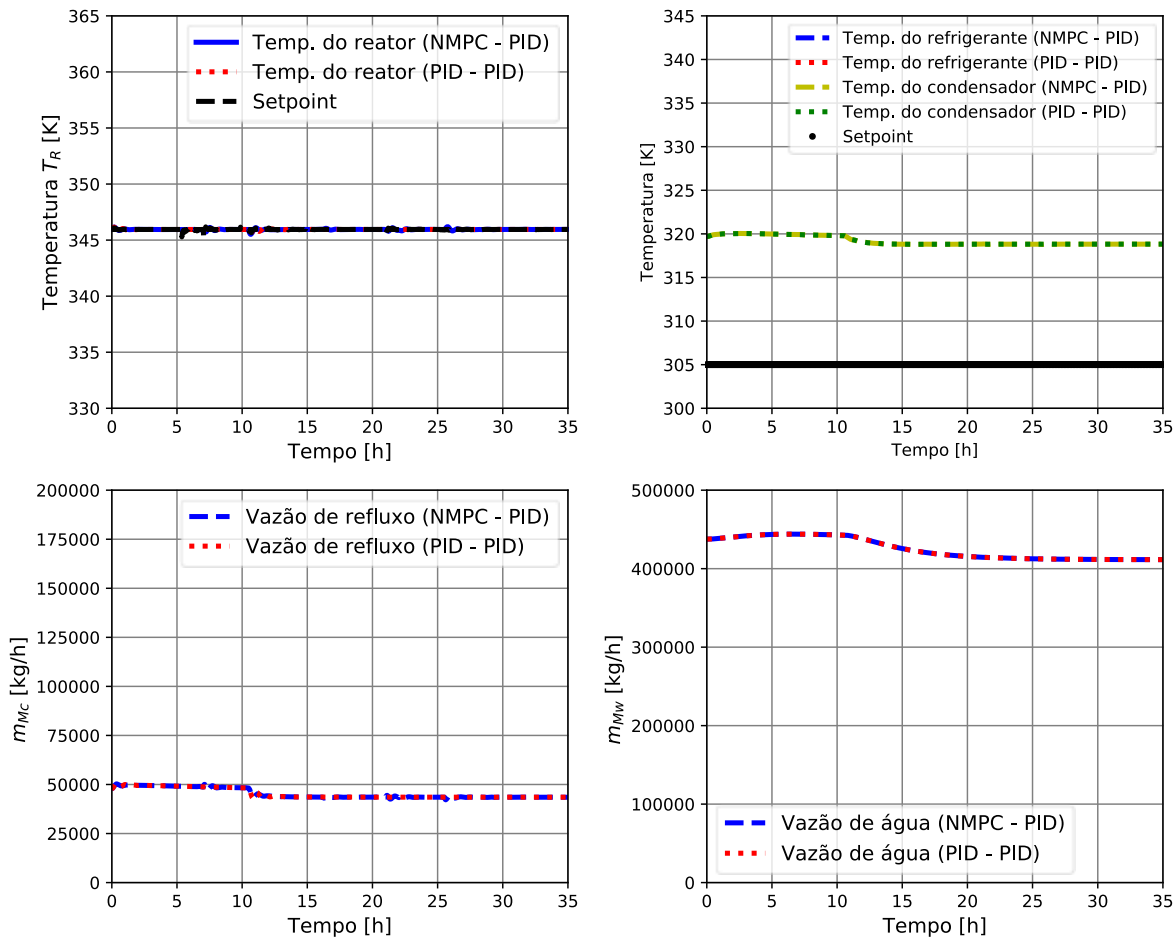


Figura 14: Comportamento dinâmico do controle de T_r e T_w através da manipulação da vazão de saída de monômero do condensador e da vazão de água utilizada no condensador, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 23.77$; $\beta(\%) = 76.23$ e $\gamma(\%) = 0$

De acordo, com os critérios de desempenho das variáveis de qualidade apresentados na Tabela 7 pode-se observar que as integrais do erro no tempo foram menores para o esquema de controle NMPC – PID indicando quantitativamente um melhor desempenho comparado ao esquema de controle PID – PID. Considerando o critério ITAE, vê-se que o esquema com controle preditivo no ajuste de MFI e XS levou a respostas que correspondem, respectivamente, a cerca de 1,20% e a 67,70%, quando confrontado ao esquema formado apenas por controladores PI.

Essa diferença percentual está também muito ligada aos valores das matrizes de ponderações da função objetivo (R e Q), como explicado no Teste 1.

Tabela 7: Critérios de desempenho das variáveis de qualidade calculados para o esquema de controle, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 23.77$; $\beta(\%) = 76.23$ e $\gamma(\%) = 0$.

Esquema	Variável	IAE	ITAE	ISE	ITSE
NMPC – PID	MI	0.48	7.85	0.02	0.35
	XS	36.89	681.88	28.82	554.52
PID – PID	MI	50.94	658.98	98.83	1062.02
	XS	51.12	1007.56	42.04	831.74

Fonte: Autor (2021)

Por fim no Teste 4, é possível observar que na Figura 15 o teste servo implementando no comportamento dinâmico dos parâmetros de qualidade do polímero, temos que para ambos os esquemas de controle conseguiram fazer o controle adequado de MFI e XS com a manipulação das variáveis de entrada mesmo com a mudança nos *setpoints*.

Pode-se observar também que a temperatura do reator se manteve constante para os dois esquemas de controle como pode ser visto na Figura 16. A razão disso se deve ao mesmo fato do Teste 3. Têm-se que o controle de XS tanto quanto o de MFI foram mais rápidos no esquema de controle NMPC – PID, mas em relação ao Teste 3, apresenta um controle mais lento devido a maior proporção de Cat_2 , que se tem uma constante de propagação (k_p) menor em comparação ao Cat_1 .

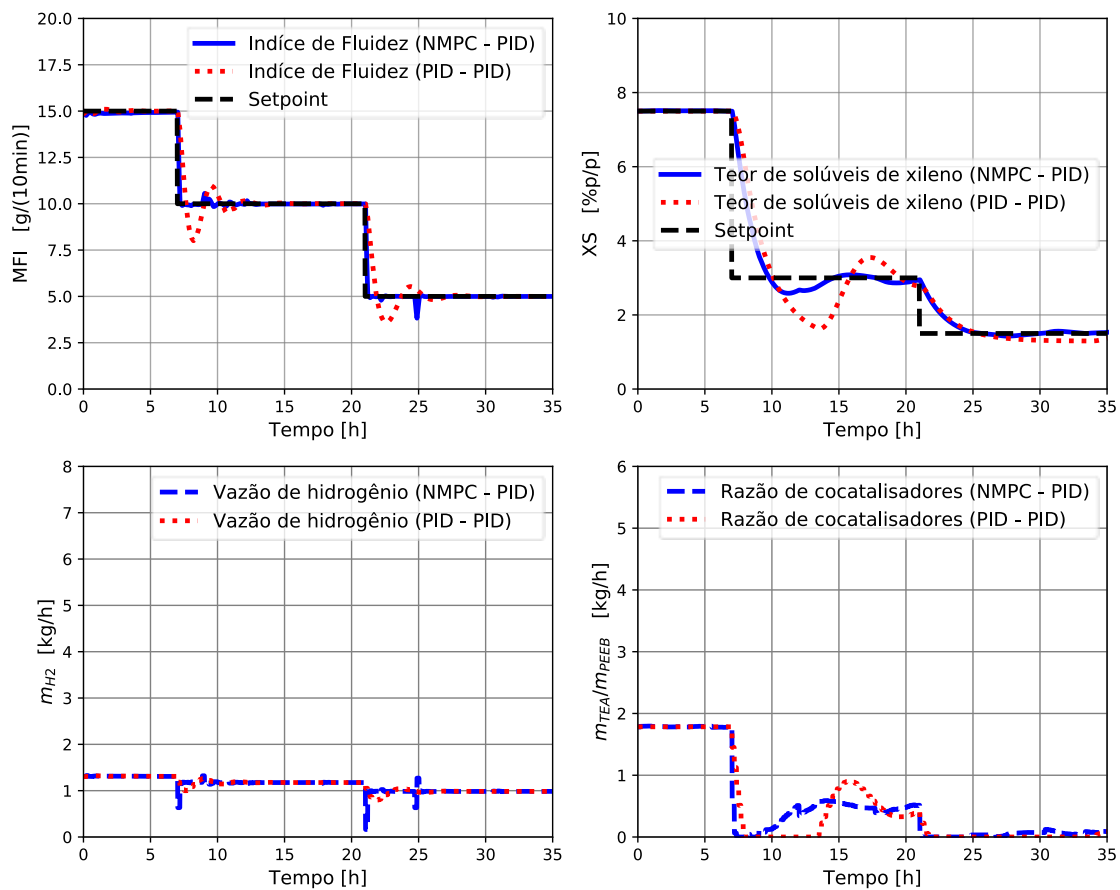


Figura 15: Comportamento dinâmico do controle de MFI e XS através da manipulação da vazão de alimentação de hidrogênio e da razão de cocatalisadores, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 1.10$; $\beta(\%) = 98.90$ e $\gamma(\%) = 0$

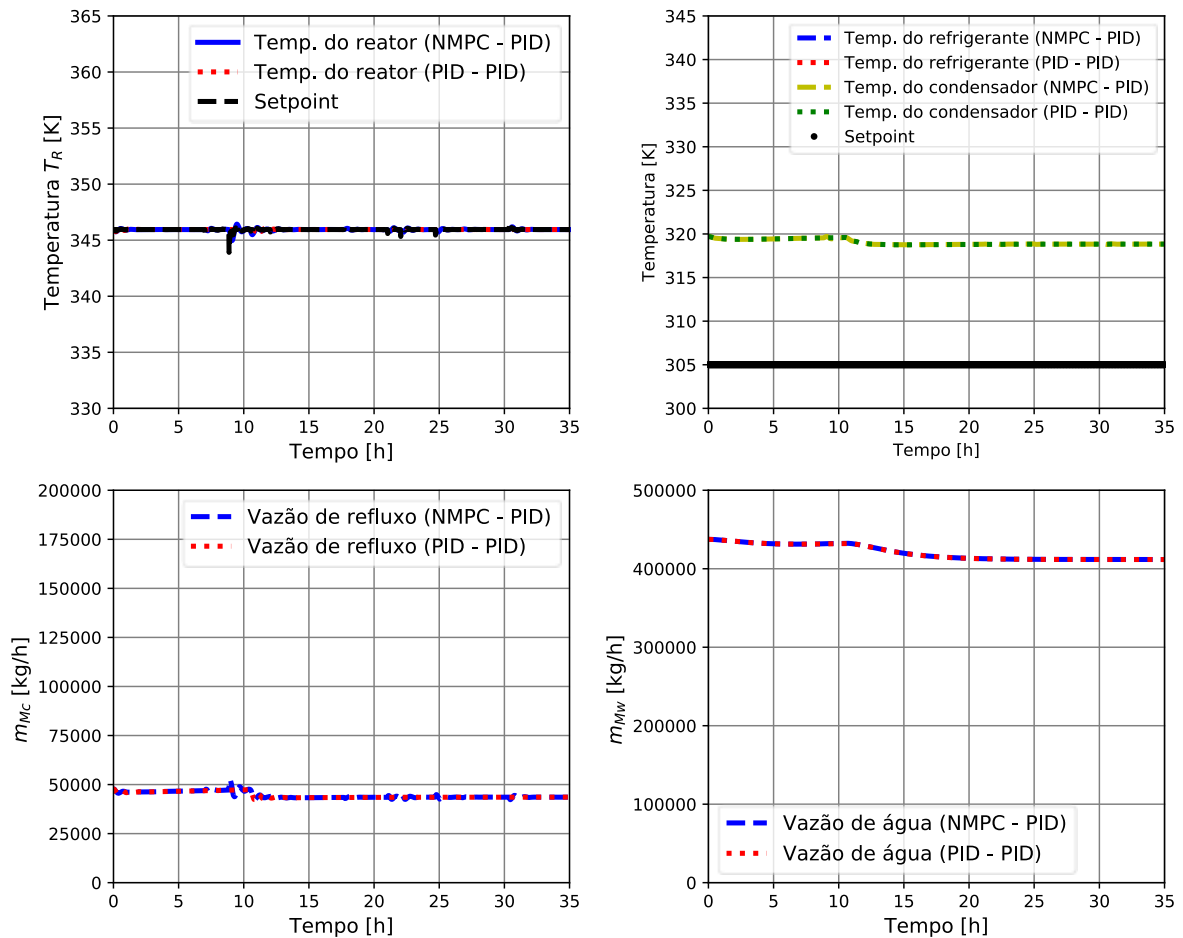


Figura 16: Comportamento dinâmico do controle de T_r e T_w através da manipulação da vazão de saída de monômero do condensador e da vazão de água utilizada no condensador, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 1.10$; $\beta(\%) = 98.90$ e $\gamma(\%) = 0$

De acordo, com a Tabela 10 os critérios de desempenho das variáveis de qualidade, pode-se observar que as integrais do erro no tempo foram menores para o esquema de controle NMPC – PID indicando um melhor desempenho comparado ao esquema de controle PID – PID. Considerando o critério ITAE, vê-se que o esquema com controle preditivo no ajuste de MFI e XS levou a respostas que correspondem, respectivamente, a cerca de 4,90% e a 45%, quando confrontado ao esquema formado apenas por controladores PI.

Essa diferença percentual em comparação ao Teste 3 está muito ligada ao aumento percentual da composição de Cat_2 , ocasionando uma lentidão no processo.

Tabela 8: Critérios de desempenho das variáveis de qualidade calculados para o esquema de controle, considerando a composição catalítica $\alpha(\%) = 1.10$; $\beta(\%) = 98.90$ e $\gamma(\%) = 0$

Esquema	Variável	IAE	ITAE	ISE	ITSE
NMPC – PID	MI	2.20	46.45	1.64	39.76
	XS	50.35	651.78	80.49	741.62
PID – PID	MI	63.40	946.72	138.75	2022.93
	XS	101.89	1449.99	178.02	1763.89

Fonte: Autor (2021)

6. CONCLUSÕES E SUGESTÕES

O polipropileno, material de estudo nesse trabalho, na atualidade é a 2ª resina plástica mais comercializada. Como existe essa forte economia em cima desse material, a busca por melhores desempenhos operacionais e redução de custos é inerente às atividades produtivas. No contexto industrial vários métodos de polimerização, são combinados a tecnologias de produção e mistura de diferentes catalisadores, para fabricação de polímeros de diferentes propriedades. Logo, os equipamentos multipropósitos são capazes de produzir materiais com vários tipos de qualidade vem tendo espaço grande no mercado atual.

Neste trabalho, foi proposto um esquema de controle hierárquico, onde na camada supervisória está presente um controlador preditivo de modelo não linear e na camada regulatória está presente um controlador proporcional-integral (PI). Este esquema de controle permite lidar com processos extremamente não-lineares, muito comuns nas indústrias além de segurar o controle em qualquer composição da mistura de catalisadores, mesmo em casos onde há necessidade de reconfiguração da malha de controle. Apresentando resultados quantitativamente melhores que os controladores convencionais, considerando os critérios de desempenho das variáveis de qualidade. Na literatura, existem vários estudos que reforçam o potencial do esquema de controle preditivo de modelo não linear.

As estratégias de controle para processos de polimerização enfrentam grandes desafios: a complexidade dos processos, a alta dimensão e integração das unidades e o alto grau de não linearidades. A limitação da precisão dos equipamentos existentes são problemas reais enfrentados na indústria que podem ocasionar falhas no processo, afetar a segurança da operação e causar custos extras na produção e danos ambientais. Como resposta, este trabalho propôs um esquema de controle capaz de prever possíveis perdas, promovendo uma melhor ação de controle.

O esquema de controle preditivo de modelo não linear envolveu a utilização de um modelo simplificado do processo de polimerização na camada supervisória e o modelo completo na camada regulatória. O índice de fluidez e o teor de solúveis e xileno, esses parâmetros podem ser relacionados com variáveis de medição disponíveis. Desse modo, também seria possível conhecer os seus valores por meio de sensores inferenciais, não proposto nesse trabalho. Assim, sugere-se aqui como trabalhos futuros a inclusão de um esquema de sensores inferenciais como redes

neurais ou filtro de partículas, para a estimação de variáveis latentes e também para a redução de incertezas de medida, visando melhor ação de controle.

REFERÊNCIAS

- ÅKESSON, J. *et al.* Modeling and optimization with Optimica and JModelica.org- Languages and tools for solving large-scale dynamic optimization problems. **Computers and Chemical Engineering**, v. 34, n. 11, p. 1737–1749, 2010.
- ALI, Emad M.; ALI, Mohammad Al Haj. Control of molecular weight distribution and density of polyethylene in gas phase reactors. **Journal of Chemical Engineering of Japan**, v. 43, n. 10, p. 880–891, 2010.
- ALIEV, Rafik A *et al.* **Advances in Intelligent Systems and Computing 1095** 10th International Conference on Theory and Application of Soft Computing , Computing with Words and Perceptions - ICSCCW-2019. [S.l: s.n.], 2019.
- ANDERSSON, Joel A.E. *et al.* CasADi: a software framework for nonlinear optimization and optimal control. **Mathematical Programming Computation**, v. 11, n. 1, 2019. Disponível em: <<https://doi.org/10.1007/s12532-018-0139-4>>.
- ASUA, José M. **Polymer Reaction Engineering**. [S.l: s.n.], 2007.
- ATASHROUZ, Saeid *et al.* Mathematical modeling of ethylene polymerization over advanced multisite catalysts: an artificial intelligence approach. **SN Applied Sciences**, v. 2, n. 3, p. 1–13, 2020. Disponível em: <<https://doi.org/10.1007/s42452-020-2096-6>>.
- BEAL, Logan D.R. *et al.* GEKKO optimization suite. **Processes**, v. 6, n. 8, 2018.
- BIEGLER, Lorenz T. An overview of simultaneous strategies for dynamic optimization. **Chemical Engineering and Processing: Process Intensification**, v. 46, n. 11, p. 1043–1053, 2007.
- BINDLISH, Rahul. Nonlinear model predictive control of an industrial polymerization process. **Computers and Chemical Engineering**, v. 73, p. 43–48, 2015. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1016/j.compchemeng.2014.11.001>>.
- BRAZEL, C. S. E ROSEN, S. L. **Fundamental principles of polymeric materials**. 3ª ed. [S.l.]: John Wiley & Sons, 2012.
- CAMPOS, Mario C.M. *et al.* **Advanced control and optimization of a natural gas plant - Benefits of the new regulatory control strategy**. [S.l.]: Elsevier Inc., 2009. v. 27. Disponível em: <[http://dx.doi.org/10.1016/S1570-7946\(09\)70671-6](http://dx.doi.org/10.1016/S1570-7946(09)70671-6)>.
- CASELLA, Francesco; PARINI, Pietro. Optimal Control of Power Generation Systems using Realistic Object-Oriented Modelica Models. **IFAC-PapersOnLine**, v.

50, n. 1, p. 11100–11106, 2017. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.ifacol.2017.08.2494>>.

CATHELIN, CAROLINE *et al.* Polypropylene (PP). **Kunststoffe Plast Europe**, v. 88, n. 10, p. 1–27, 2018.

CHADWICK, Sharon S. **Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry**. 7th. ed. [S.l.]: Wiley-VCH, 2011. v. 40.

DA SILVA ROSA, Isaias; MELO, Príamo A.; PINTO, José Carlos. Bifurcation analysis of the bulk propylene polymerization in the LIPP process. **Macromolecular Symposia**, v. 319, n. 1, p. 41–47, 2012.

DELDUGA, Ivan. **Controle de Temperatura em Reatores de Polimerização Baseado em Modelos Simplificados do Balanço de Energia com Estimação de Parâmetros em Tempo Real**. . [S.l: s.n.], 2013.

DELDUGA, Ivan; JR, De Sousa. CONTROLE DE REATORES DE POLIMERIZAÇÃO BASEADO NA ESTIMAÇÃO DE PARÂMETROS EM TEMPO REAL. **ENGEVISTA**, v. 16, n. 3, p. 346–369, 2014.

DIAS, Ana Carolina Spindola Rangel; DA SILVA, Wellington Betencurte; DUTRA, Julio Cesar Sampaio. Propylene Polymerization Reactor Control and Estimation Using a Particle Filter and Neural Network. **Macromolecular Reaction Engineering**, v. 11, n. 6, p. 1–20, 2017.

DUTRA, Julio Cesar Sampaio *et al.* Control of Bulk Propylene Polymerizations Operated with Multiple Catalysts through Controller Reconfiguration. **Macromolecular Reaction Engineering**, v. 8, n. 3, p. 201–216, 2014.

EDWIN, Estofanero L.R.; GARCIA, Claudio. Predictive controller applied to a pH neutralization process. **IFAC-PapersOnLine**, v. 52, n. 1, p. 202–206, 2019. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.ifacol.2019.06.062>>.

FONTES, C. H.; MENDES, M. J. Nonlinear predictive control of an industrial slurry reactor. **Controle y Automacao**, v. 19, n. 4, p. 417–430, 2008.

GARRIGA, Jorge L.; SOROUSH, Masoud. Model predictive control tuning methods: A review. **Industrial and Engineering Chemistry Research**, v. 49, n. 8, p. 3505–3515, 2010.

HART, W.E.; LAIRD, C.; WATSON, J.P.; WOODRUFF, D.L. **Pyomo-Optimization Modeling in Python**. Switzerland: Springer International, Publishing: Cham, 2012. v. 67.

- HEDENGREN, John D. *et al.* Nonlinear modeling, estimation and predictive control in APMonitor. **Computers and Chemical Engineering**, v. 70, p. 133–148, 2014. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1016/j.compchemeng.2014.04.013>>.
- HENSON, Michael A. Nonlinear model predictive control: Current status and future directions. **Computers and Chemical Engineering**, v. 23, n. 2, p. 187–202, 1998.
- HERMANSSON, A. W.; SYAFIIE, S. Model predictive control of pH neutralization processes: A review. **Control Engineering Practice**, v. 45, p. 98–109, 2015.
- HOCKING, Martin B. O Manual de Tecnologia Química e Controle de Poluição. **PETROCHEMICALS**. 3ª edição ed. Victoria: Elsevier Inc., 2005. p. 637–668.
- JANG, Hong; LEE, Jay H.; BIEGLER, Lorenz T. A robust NMPC scheme for semi-batch polymerization reactors. **IFAC-PapersOnLine**, v. 49, n. 7, p. 37–42, 2016. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1016/j.ifacol.2016.07.213>>.
- JOY, Preet *et al.* Model-based control of continuous emulsion co-polymerization in a lab-scale tubular reactor. **Journal of Process Control**, v. 75, p. 59–76, 2019. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.jprocont.2018.12.014>>.
- KERRIGAN, Eric C.; MACIEJOWSKI, Jan M. Robust feasibility in model predictive control: Necessary and sufficient conditions. **Proceedings of the IEEE Conference on Decision and Control**, v. 1, p. 728–733, 2001.
- KETTNER, Joana. **Kinetic investigation of different supported catalysts for the polymerization of propylene under industrially relevant conditions**. [S.l.]: Bod Third Party Titles, 2019.
- LAW, Chew-Sang; HUSSAIN, Mohd Azlan. Modeling of metallocene catalyzed propylene polymerization in fluidized bed reactors. **MATEC Web of Conferences**, v. 268, p. 02002, 2019.
- LIN, Ting An; LIN, Jia-Horng; BAO, Limin. Polypropylene/thermoplastic polyurethane blends: mechanical characterizations, recyclability and sustainable development of thermoplastic materials. **Journal of Materials Research and Technology**, v. 9, n. 3, p. 5304–5312, 2020. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2020.03.056>>.
- MA, Yan *et al.* Continuous control of a polymerization system with deep reinforcement learning. **Journal of Process Control**, v. 75, p. 40–47, 2019. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.jprocont.2018.11.004>>.
- MADANI, Mohammad; KESHAVARZ MORAVEJI, Mostafa; SHARIFI, Mohammad. Modeling apparent viscosity of waxy crude oils doped with polymeric wax inhibitors.

Journal of Petroleum Science and Engineering, v. 196, n. July 2020, p. 108076, 2021. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.petrol.2020.108076>>.

MADDAH, Hisham A. Polypropylene as a Promising Plastic: A Review. **American Journal of Polymer Science**, v. 6, n. 1, p. 1–11, 2016. Disponível em: <<http://article.sapub.org/10.5923.j.ajps.20160601.01.html>>.

MAIER, R.D.; BIDELELL, W.; SHAMIRI, A. **Polypropylene: Gas-Phase Polymerization and Reactor Blends**. [S.l.]: Elsevier Ltd., 2016. v. 1. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-12-803581-8.03757-7>>.

MATTOS NETO, A. G.; PINTO, J. C. Steady-state modeling of slurry and bulk propylene polymerizations. **Chemical Engineering Science**, v. 56, n. 13, p. 4043–4057, 2001.

NUNES, GIOVANI CAVALCANTI. **Design and Analysis of Multivariable Predictive Control applied to an oil-water-gas separator: a polynomial approach**. 2001. 118 f. University of Florida, Gainesville, 2001.

ODIAN, GEORGE. **Principles of Polymerization**. 4^a ed. New York: [s.n.], 2004. v. 37.

OLIVEIRA, André G. *et al.* Steady-state behavior of slurry and bulk propylene polymerization. **Polymer Reaction Engineering**, v. 11, n. 2, p. 155–176, 2003.

PARK, Myung June; RHEE, Hyun Ku. Property evaluation and control in a semibatch MMA/MA solution copolymerization reactor. **Chemical Engineering Science**, v. 58, n. 3–6, p. 603–611, 2003.

PRADHAN, Rosy *et al.* Optimal fractional order PID controller design using Ant Lion Optimizer. **Ain Shams Engineering Journal**, v. 11, n. 2, p. 281–291, 2020. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.asej.2019.10.005>>.

PRASAD, Vinay *et al.* Product property and production rate control of styrene polymerization. **Journal of Process Control**, v. 12, n. 3, p. 353–372, 2002.

QIN, S Joe; BADGWELL, Thomas A. Process Control Dynamic. **Control Engineering Practice**, v. 11, p. 733–764, 2003.

REGINATO, A. S.; ZACCA, J. J.; SECCHI, A. R. Modeling and simulation of propylene polymerization in nonideal loop reactors. **AIChE Journal**, v. 49, n. 10, p. 2642–2654, 2003.

RISBECK, Michael J.; MARAVELIAS, Christos T.; RAWLINGS, James B. Unification of closed-loop scheduling and control: State-space formulations, terminal constraints,

and nominal theoretical properties. **Computers and Chemical Engineering**, v. 129, 2019.

RUCHIKA, Neha Raghu. Model Predictive Control: History and Development. **International Journal of Engineering Trends and Technology**, v. 4, n. 6, p. 2600–2602, 2013. Disponível em: <<http://www.ijettjournal.org>>.

SAKI, Saman; FATEHI, Alireza. Neural network identification in nonlinear model predictive control for frequent and infrequent operating points using nonlinearity measure. **ISA Transactions**, v. 97, p. 216–229, 2020. Disponível em: <<https://doi.org/10.1016/j.isatra.2019.08.001>>.

SCHEFFOLD, Lukas; FINKLER, Tiago; PIECHOTTKA, Uwe. Gray-Box system modeling using symbolic regression and nonlinear model predictive control of a semibatch polymerization. **Computers and Chemical Engineering**, v. 146, 2021.

SCHWEIGER, Gerald *et al.* District heating and cooling systems – Framework for Modelica-based simulation and dynamic optimization. **Energy**, v. 137, p. 566–578, 2017.

SCOKAERT, P. O.M.; MAYNE, D. Q.; RAWLINGS, J. B. Suboptimal model predictive control (feasibility implies stability). **IEEE Transactions on Automatic Control**, v. 44, n. 3, p. 648–654, 1999.

SILVA A., ROCHA M., Guimarães M. *et al.* Desenvolvimento de Materiais à Base de Poliolefinas e Elastômeros Metalocênicos. **Polímeros**, v. 11, n. 3, p. 135–141, 2001.

SILVA, J. S. **Otimização da Transição de Grades na Polimerização em Massa do Propeno**. 2018. Dissertação (Mestrado em Engenharia Química) - Universidade Federal do Rio de Janeiro.

SINGH, Ravendra; IERAPETRITOU, Marianthi; RAMACHANDRAN, Rohit. System-wide hybrid MPC-PID control of a continuous pharmaceutical tablet manufacturing process via direct compaction. **European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics**, v. 85, n. 3 PART B, p. 1164–1182, 2013. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1016/j.ejpb.2013.02.019>>.

TRIERWEILER, J. O.; FARINA, L. A. RPN tuning strategy for model predictive control. **Journal of Process Control**, v. 13, n. 7, p. 591–598, 2003.

VARSHOUEE, Gholam Hossain *et al.* Determination of optimal reaction temperature and hydrogen amount for propylene polymerization by a mathematical model. **Određivanje optimalne temperature reakcije i udjela vodika za polimerizaciju**

propilena matematičkim modelom. **Kemija u industriji**, v. 68, n. 3–4, p. 119–127, 2019.

VILLADSEN, J. V.; STEWART, W. E. Solution of boundary-value problems by orthogonal collocation. **Chemical Engineering Science**, v. 22, n. 24, p. 1483–1501, 1967.

ANEXO



Mistura Ótima de Catalisadores usando Exame de Partículas para o Controle de um Reator de Polimerização de Propileno

Luiz Felipe Neiva da Silva¹, Ana Carolina Spindola Rangel Dias²,
Wellington Betencurte da Silva³, Julio Cesar Sampaio Dutra⁴

¹ Universidade Federal de Espírito Santo, Brasil. E-mail: felipedc.neiva@gmail.com

² Universidade Federal do Rio de Janeiro, Brasil. E-mail: acspdias@gmail.com

³ Universidade Federal de Espírito Santo, Brasil. E-mail: wellingtonufes@gmail.com

⁴ Universidade Federal de Espírito Santo, Brasil. E-mail: julio.dutra@ufes.br

Resumo: As resinas poliméricas representam uma classe de materiais muito importantes. É comum encontrar processos com operação multipropósito para produzir resinas com diferentes propriedades finais. Isto pode ser conseguido, por exemplo, (1) usando uma série de reatores ou (2) aplicando uma mistura de diferentes catalisadores, como os tipos Ziegler-Natta e metaloceno. O objetivo deste trabalho é investigar numericamente a operação dinâmica de um reator de polimerização de propileno e encontrar a composição ótima da alimentação das misturas de catalisadores. Os valores ótimos de composição foram determinados pelo algoritmo Particle Swarm. Os resultados da simulação permitiram encontrar uma região operacional viável, que permite uma operação melhor e estável do processo de polimerização com uma composição de massa ótima do catalisador Cat_1 , Cat_2 e Cat_3 para cada propriedade final desejada.

Palavras-chave: Propileno; Composição ótima; Particle Swarm; Simulação.

1. Introdução

O polipropileno (PP) é uma resina termoplástica muito importante devido às propriedades como fácil maleabilidade, baixo peso e alta resistência a corrosão. Estas características tornam vantajosa a fabricação de produtos para o setor industrial e para a sociedade. Como as propriedades finais da resina são dependentes das condições de produção, é necessário compreender o processo de polimerização, incluindo estudos cinéticos, os sistemas catalíticos e o comportamento dos reatores (Dutra *et al.*, 2014).

Industrialmente, PP com diferentes qualidades finais é obtido usando uma série de reatores, com condições operacionais conforme a resina desejada; ou empregando uma mistura de diferentes catalisadores, como os tipos Ziegler-Natta (ZN) e metaloceno (MC). Este modo representa um processo multipropósito, no qual o tipo de catalisador e as condições operacionais são modificadas para atender às especificações de qualidade. Assim, o conhecimento do comportamento desse sistema é primordial para determinar políticas operacionais adequadas para o controle das propriedades finais da resina (Dutra *et al.*, 2014; Lou *et al.*, 2015).

Neste contexto, este trabalho tem como objetivo principal encontrar a composição ótima da vazão de alimentação da mistura de catalisadores: dois catalisadores com cinética de ZN (Cat_1 e Cat_2) e um catalisador de MC (Cat_3). A principal diferença é que o tipo ZN é sensível

à presença de hidrogênio para controlar o índice de fluidez (MFI) do polímero, enquanto o MC mostra maior atividade e permite obter propriedades finais mais específicas, como a alta rigidez ligada ao baixo teor de solúveis em xileno (XS). Essas propriedades podem ser resumidas na Tabela 1.

Tabela 1 - Catalisadores empregados na polimerização.

Catalisador	Propriedades finais do polímero
Cat_1	Alta massa molar (baixo MFI) e baixa rigidez (alto XS)
Cat_2	Baixa massa molar (alto MFI) e baixa rigidez (alto XS)
Cat_3	Alta massa molar (baixo MFI) e alta rigidez (baixo XS)

Deseja-se determinar então a composição mássica de catalisadores que permita alcançar o PP com a qualidade requerida e minimizar os custos envolvidos na operação. Como os sistemas de polimerização são intrinsecamente não lineares, a busca pela solução ótima é realizada por meio da técnica de Exame de Partículas (Kennedy e Eberhart, 1995). Este método considera que os membros do enxame podem explorar individualmente o espaço de busca (experiência cognitiva) e interagir entre si (experiência social) ao longo das iterações, de modo a determinar o ponto ótimo.

2. Metodologia

O estudo da operação do reator consiste na simulação de um modelo que considera polimerização a partir da alimentação do monômero puro em fase líquida. Como o processo é exotérmico, um condensador no topo do reator é utilizado para a remoção do calor. Assume-se que são alimentados co-catalisadores trietil-alumínio (*TEA*) e para-etoxi-etil-benzoato (*PEEB*) e hidrogênio como agente de transferência de cadeia. As reações envolvidas são dadas na Tabela 2. A corrente de saída é formada por monômero não reagido e resina com a qualidade especificada (m_{pol}). Vale ressaltar que esse processo já foi estudado por Dutra *et al.* (2014) e Dias *et al.* (2017), os quais, contudo, não consideraram a alimentação de uma mistura de três catalisadores: $m_{cat} = m_{cat_1} + m_{cat_2} + m_{cat_3}$. O modelo completo é obtido via balanços de massa e energia para o reator e equações empíricas para caracterizar a resina quanto ao MI (Latado *et al.*, 2001) e ao XS (Machado e Pinto, 2011).

Tabela 2 - Modelo cinético para a polimerização do propileno (Dutra *et al.*, 2014).

Etapa	Reação	Cat ₁	Cat ₂	Cat ₃
Iniciação da cadeia	$C_j + M \rightarrow P_{1,j}$	●	●	●
Propagação da Cadeia	$P_{i,j} + M \rightarrow P_{i+1,j}$	●	●	●
Transferência de Cadeia	$P_{i,j} + H_2 \rightarrow D_{i,j} + C_j$	●	●	○
	$P_{i,j} + M \rightarrow D_{i,j} + C_j$	○	●	○
	$P_{i,j} \rightarrow D_{i,j} + C_j$	○	○	●
Desativação do Sítio	$P_{i,j} \rightarrow D_{i,j}$	○	●	●

(1) C_j são os sítios ativos livres do catalisador j ; M , o monômero; H_2 , o hidrogênio; $P_{i,j}$ e $D_{i,j}$, os polímeros vivos e mortos respectivamente, com tamanho de cadeia i a partir do catalisador j . (2) O símbolo “●” indica a presença de uma determinada etapa na cinética de reação do catalisador j e “○” a ausência da mesma.

Após a implementação do modelo, buscou-se determinar os valores ótimos de composição α , β e γ , que são respectivamente as composições de Cat_1 , Cat_2 e Cat_3 , e também da temperatura de saída T_{wset} para a água de resfriamento. Neste problema, a função objetivo (Equação 1) representa, em estado estacionário, os custos referentes ao resfriamento do fluido refrigerante ($T_w - T_{we}$) e ao bombeamento de monômero aquecido (m_{Mc}) para o condensador de topo, bem como os desvios da qualidade final. Foi necessário incluir também o valor alvo $m_{TEA}/m_{PEEB} = 1$ para alimentação dos co-catalisadores e a penalidade relativa à restrição física $h := 1 - (\alpha + \beta + \gamma) = 0$.

$$F_{obj} = k_1(T_w - T_{we}) + k_2 m_{Mc} + k_3 [(MI - MI_{set})^2 + (XS - XS_{set})^2] + k_4 (m_{TEA}/m_{PEEB} - 1)^2 + k_5 h^2 \quad \text{Equação 1}$$

O valor das constantes k_1 a k_5 representa a importância relativa dos termos da F_{obj} , sendo ajustadas empiricamente. Foram consideradas as restrições: $0 \leq \beta \leq 1$; $0 \leq \gamma \leq 1$; e $305 \leq T_{wset} (K) \leq 330$. Devido à restrição dada por $h(\alpha, \beta, \gamma)$, a composição de Cat_1 foi obtida como $\alpha = \max(0; 1 - (\beta + \gamma))$. Foram feitos três testes com especificações distintas ($MI_{set}; XI_{set}$), partindo da estimativa inicial de 33,33% para α , β e γ e 317,50 K para T_{wset} . Além disso, foram variados os custos de refrigeração e de bombeamento e consideradas 100 partículas, 20 gerações e 5 iterações.

A alimentação dos catalisadores (m_{cat}) é utilizada como variável manipulada para o controle da quantidade de polímero produzido. Além disso, o algoritmo também considera o controle de outras variáveis operacionais, como a temperatura do reator, o volume da mistura de reação, a temperatura da água de resfriamento e a qualidade final do polímero, através de duas camadas hierárquicas de controle compostas por controladores PI. O processo é simulado com a função *ode15s* no MATLAB e a busca ponto ótimo com a função *particleswarm*, que otimiza o problema iterativamente ao tentar melhorar a solução candidata.

3. Resultados e Discussão

Na estimativa inicial, a função objetivo é $F_{obj}^0 = 2,88 \cdot 10^4$ e, quando $k_1, k_2 = 0$, $F_{obj}^0 = 204,88$. Para as qualidades avaliadas, os resultados ótimos estão na Tabela 3.

Tabela 3 - Resultados ótimos da composição e da temperatura do fluido refrigerante.

Teste	MFI _{set}	XS _{set}	Custo	T _{wset} (K)	α (%)	β (%)	γ (%)	F_{obj}/F_{obj}^0 (%)
1	5	0,50	$k_1, k_2 \neq 0$	305,00	0,02	10,83	89,15	53,7
			$k_1, k_2 = 0$	323,88	0,18	4,07	95,74	0,04
2	10	3,00	$k_1, k_2 \neq 0$	305,00	23,77	76,23	0	67,3
			$k_1, k_2 = 0$	313,06	100	0	0	71,0
3	15	7,50	$k_1, k_2 \neq 0$	305,00	1,10	98,90	0	65,9
			$k_1, k_2 = 0$	312,16	0	100	0	29,1

Para baixos valores de MFI e XS (Teste 1), a composição é mais rica em Cat_3 , que proporciona a produção de polipropileno com alta massa molar e alta a rigidez. Para valores médios e altos de MFI e XS (Testes 2 e 3), o otimizador favoreceu os catalisadores ZN, que levam à formação de uma resina de baixa massa molar e baixa rigidez. Esses resultados têm concordância com as características operacionais de cada catalisador (Tabela 1), tendo sido possível reduzir o valor de F_{obj} em todos os casos.

Quando os custos de energia são importantes ($k_1, k_2 \neq 0$), a solução ótima é manter a temperatura de saída T_{wset} em seu valor mínimo (restrição ativa). No caso do Teste 1, desprezando os custos ($k_1, k_2 = 0$), foi determinado o maior valor ótimo de temperatura com Cat_3 em maior proporção. Isto significa que o reator também é operado a uma temperatura maior para controlar o tamanho de cadeia. Mas, manter a temperatura do reator em níveis mais altos, o único grau de liberdade para o catalisador MC, pode ser um fator limitante para aumentar MI . Isso é confirmado nos outros testes, pois, ao aumentar MI_{set} , a solução ótima é a alimentação apenas catalisadores tipo ZN.

Como Cat_2 exibe menor constante cinética da reação de propagação (Dutra *et al.*, 2014), há a vantagem de menor geração de calor. De fato, quando $k_1, k_2 \neq 0$ nos Testes 2 e 3, o emprego de Cat_2 é preferível em relação a Cat_1 . Quando os custos de energia são desprezados, os valores altos de XS são determinantes para a seleção do catalisador. Nesta condição ($k_1, k_2 = 0$), a solução ótima é empregar alimentação pura em Cat_1 e Cat_2 , respectivamente, nos Testes 2 e 3. Ademais, quando se deve reduzir o custo na condição de $XS = 3$, a solução é empregar uma mistura de Cat_1 e Cat_2 , que garantem assim um equilíbrio entre a qualidade e o custo.

4. Conclusão

O problema de otimização permitiu encontrar uma região operacional viável para uma operação ótima e estável do processo de polimerização. A depender da qualidade requerida e dos custos envolvidos, é possível determinar a composição ótima da corrente de catalisadores. Os valores ótimos encontrados podem ser usados na programação da produção ou como valores desejados em problema de controle.

Referências

- Dias, A. C. S. R.; SILVA, W. B.; DUTRA, J. C. S. Propylene Polymerization Reactor Control and Estimation Using a Particle Filter and Neural Network. *Macromolecular Reaction Engineering*, [s.l.], v. 11, n. 6, p.1-20, 16 maio 2017. Wiley. <http://dx.doi.org/10.1002/mren.201700010>.
- Dutra, J. C. S. *et al.* Control of Bulk Propylene Polymerizations Operated with Multiple Catalysts through Controller Reconfiguration. *Macromolecular Reaction Engineering*, [s.l.], v. 8, n. 3, p.201-216, 14 out. 2013. Wiley. <http://dx.doi.org/10.1002/mren.201300139>.
- Kennedy, J.; Eberhart, R.C. Particle Swarm Optimization. In: *The 1995 IEEE International Conference on Neural Networks*. Perth, Australia. Vol. 4, p.1942-1948, 1995.
- Latado, A., Embiruçu, M., Mattos Neto, A. G., Pinto, J. C., 2001, "Modeling of end-use properties of poly(propylene/ethylene) resins". *Polymer Testing*, v. 20, pp.419-439.
- Lou, Haichuan *et al.* Simultaneous optimization and control for polypropylene grade transition with two-layer hierarchical structure. *Chinese Journal Of Chemical Engineering*, [s.l.], v. 23, n. 12, p.2053-2064, dez. 2015. Elsevier BV. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cjche.2015.08.025>.

Machado, F., Pinto, J. C., 2011, "Modeling the Dynamics of the Xylene Soluble Fraction (XS) in a Bulk Propylene Polymerization Process". *Macromolecular Reaction Engineering*, v. 5, n. 2, pp. 129-139.