Acta Agraria Kaposváriensis (2004) Vol 8 No 3, 147-154
Kaposvári Egyetem, Állattudományi Kar, Kaposvár
University of Kaposvár, Faculty of Animal Science, Kaposvár

Folyamatos kristályosítók modell-bázisú irányítása

Moldoványi N., Lakatos G.B., Szeifert F.
Veszprémi Egyetem, Folyamatmérnöki Tanszék, Veszprém, 8200 Egyetem u. 10.

ÖSSZEFOGLALÁS

A kristályosítás a vegyipar széles körben alkalmazott tisztítási, szétválasztási és szemcseképzés-célú művelete. Egy izoterm folyamatos kristályosító momentum modelljében az állapotot hatelemű vektorral írjuk le (az első négy momentum, oldott anyag koncentráció, oldószer koncentráció), melynek időbeli változása a hatdimenziós fázistér egy részében történik. A kristályosító nemlineáris MIMO rendszer, melynek állapotváltozói között csatolás figyelhető meg. A szabályozási vizsgálatok azt mutatják, hogy a lineáris MPC egy a célnak megfelelő szabályzó, beoltással a kristályosító irányíthatósága javul.
(Kulcsszavak: kristályosítás, szabályozás, modellezés)

ABSTRACT

Model Based Control of Continuous Crystallizers

N. Moldoványi, G.B. Lakatos, F. Szeifert
University of Veszprém, Department of Process Engineering, Veszprém, H-8200 Egyetem Street 10.

Crystallization is a widely used cleaning, separation and grain producing technique in the industry. The moment equation model of an isothermal continuous crystallizer forms a dynamical system the state of which is represented by the vector of six variables (: the first four leading moments, solute concentration, solvent concentration) and its time evolution occurs in a region of the six-dimensional phase space. The crystallizer is a nonlinear MIMO system with strong coupling between the state variables. The results of the controlling study have shown that the linear MPC is an adaptable and feasible controller and by seeding, the controllability of the crystallizer increases.
(Keywords: crystallization, controlling, modeling)

BEVEZETÉS

A kristályosítás a vegyipar széles körben alkalmazott tisztítási, szétválasztási és szemcseképzés-célú művelete, melynek egyik legfontosabb minőségi kritériuma a termelt kristályok milyensége, ezen belül is elsősorban méreteloszlása. A kristályméret-eloszlásban fellépő változásokat a populációs mérlegegyenlettel írhatjuk le, amely a méreteloszlásokat reprezentáló populációs sűrűség- vagy eloszlásfüggvényre vonatkozó parciális differenciál-egyenlet – sok esetben parciális integro-differenciálegyenlet, lásd *Hulburt* (1964), *Randolph* (1988), *Tavare* (1995), *Ramkrishna* (2000), *Blickle* (2001). Ez azt jelenti, hogy a kristályosítók dinamikus modellje még a modellezés szempontjából legegyszerűbb esetben, ti. a teljesen kevert, reprezentatív termékelvételű – az általánosan használt angol rövidítéssel **MSMPR**-nek nevezett – kristályosító esetében is közönséges

és parciális differenciálegyenletek vegyes rendszereként alakul ki. Ráadásul a kristályosítási folyamatok többnyire nemlineárisak, ami természetesen tovább növeli a feladat összetettségét. Mindez azt eredményezte, hogy a folyamatos kristályosítók irányítása gyakran a finomszemcsék mennyiségének empirikusan kidolgozott szabályozásán alapul, lásd *Randolph* (1988).

A kristályosítók azonban valójában sokváltozós rendszerek, több bemenettel és több kimenettel, melyek között gyakran erős csatolások vannak (*Rohani* (1995)), így jó minőségű, korszerű irányításuk elsősorban modell-bázisú MIMO szabályozási rendszerek kidolgozásától és alkalmazásától várható. Erre azonban az irodalomban még kevés példát találunk (*Myerson* (1987), *Jager* (1992), *Rohani* (1999)). Az egyik fő probléma az, hogy a kristályméret-eloszlás megfelelő modell-bázisú szabályozása – a populációs mérlegegyenlet említett tulajdonságai miatt – elvileg magasrendű szabályozók alkalmazását igényli, ami komoly nehézségeket jelent. A kristályosítók azonban disszipatív rendszerek (*Lakatos* (1997)), ami a végtelen dimenziós disszipatív dinamikus rendszerekre vonatkozó ismeretek alapján (*Temam* (1988)) a dinamikus rendszerekként kezelt kristályosító modellekben is véges dimenziós globális attraktorok létezésére utal. Ez megfelelő alapot teremt jó minőségű, alacsony rendű modell-bázisú szabályozók szintetizálására és alkalmazására is. Ugyanakkor ez azt is jelzi, hogy a kristályosítók modell-bázisú szabályozási rendszereinek szintetizálásában jó közelítéssel használható fel a populációs mérlegegyenletből generálható – közönséges differenciálegyenlet-rendszerként előálló – momentummodell. Ezt a tulajdonságot használták fel *Chiu és Christofides* (1999) is nemlineáris SISO szabályozó szintézisére.

Jelen munkánk célja, hogy a momentummodell felhasználásával folyamatos kristályosítók modell-bázisú MIMO szabályozási rendszerét szintetizáljuk. Ehhez megfogalmazzuk folyamatos izoterm kristályosító többváltozós nemlineáris – és linearizált – állapottér-modelljét, megvizsgáljuk a kristályosító irányíthatósági és megfigyelhetőségi tulajdonságait, az egyes bemeneti és kimeneti változók közötti csatolásokat, és bemutatjuk *2-manipulált, 2-irányított* változóval rendelkező rendszer szabályozását.

MOMENTUM MODELL

Tekintsünk egy folyamatosan üzemelő izoterm MSMPR kristályosítót, amelyben egyetlen oldott komponens kristályosítása megy végbe. Feltételezve, hogy a folyamat során

a) a kristályos szuszpenzió teljesen kevert és munkatérfogata állandó,
b) a keletkező kristálygócok L_n (lineáris) mérete elhanyagolhatóan kicsi, azaz L_n=0,
c) a kristályok töredezése és agglomerációja elhanyagolható mértékű,
d) nincs kristálynövekedési diszperzió,
e) a termékelvétel reprezentatív, azaz a kimenet ugyanolyan összetételű, mint a kristályosító-ban kialakuló kristályos szuszpenzió összetétele,
f) a kristályok gócképződési sebességét a

$$B_p(c, c^*, \varepsilon) = k_p \varepsilon \exp\left(-\frac{k_e}{\ln^2\left(\frac{c}{c^*}\right)} \right) \tag{1}$$

Volmer modellel írjuk le, ahol ε az oldattérfogat-hányadot jelöli, míg

g) a kristálynövekedés (bruttó) lineáris sebességét a

$$G(c, c^*, L) = \frac{dL}{dt} = k_g (c - c^*)^g (1 + aL) \quad (2)$$

sebességi egyenlettel adhatjuk meg. A kristályosító részletes populációs modellje *Moldoványi* (2002) helyen található. A jelölésjegyzéket és a KCl-os modellezett rendszerre alkalmazott paramétereket az *1. táblázat*ban mutatjuk be.

1. táblázat

Jelölésjegyzék, a kristályosító modell paraméterei

Jelölés	Leírás [mértékegység]	Érték a KCl kristályosítóra
B_p	Gócképződési sebesség [no.m^{-3}s^{-1}]	
C	Kikristályosodó szuszpenzió koncentrációja [kgm^{-3}]	
C*	Szaturációs koncentráció [kgm^{-3}]	108
D_{ap}	Dimenziómentes gócképződési paraméter	5042,5
G	Kristálynövekedési sebesség kitevője	1
G	Kristálynövekedés sebessége [ms^{-1}]	
k_e	Gócképződési sebesség paramétere	0,01
k_g	Kristálynövekedési sebesség állandója [ms^{-1}(m^{3}kg^{-1})^g]	1,2458*10^{-8}
k_p	Kristálynövekedési sebesség állandója [No m^{-4}s^{-1}]	3*10^7
k_V	Térfogati formafaktor	0,525
L	Szemcse lineáris mérete [m]	
L_n	Góc lineáris mérete [m]	
N	Populációs sűrűségfüggvény [no.m^{-4}]	
S	Léptékező paraméterek	
x_m	Dimenziómentes m. momentum (m=0,1,2,...)	
Y	Dimenziómentes szuper-szaturáció	
y_{sv}	Dimenziómentes oldószer koncentráció	
V	Szuszpenzió térfogata [m^3]	10
α	Dimenziómentes paraméter, az oldott anyag sűrűsége és koncentrációja közti különbségre	29,1852
β	Dimenziómentes paraméter, a kristálynövekedési sebesség méretfüggésére	0
E	Oldattérfogat-hányad	
γ	*Dimenziómentes paraméter, a szaturációs koncentrációra*	*1*
τ	Dimenziómentes átlagos tartózkodási idő	0,9
ξ	Dimenziómentes idő	
Indexek		
0	Kezdeti érték	
S	Állandósult érték	
Sv	Oldószer	
In	Bemeneti érték	

Table 1: Notation, parameters of the crystallizer

A részletes – populációs – modellt, kihasználva a rendszer disszipatívitásából eredő tulajdonságokat, véges dimenziós momentumtérre való projekcióval közelítjük.

A populációs mérlegegyenletből megfelelő átalakításokkal nyerjük a

$$\mu_m(t) = \int_0^\infty L^m n(L,t)dL, \quad m = 0,1,2,3...$$

momentumokra vonatkozó momentumegyenleteket. (Itt az $n(.,.)$ jelöli a kristályok populációs sűrűségfüggvényét, amellyel az $n(L,t)\mathrm{d}L$ kifejezés az $(L,L+\mathrm{d}L)$ méretintervallumba eső kristályok számát adja egységnyi szuszpenzió-térfogatban.) Ez általános esetben a momentumegyenletek végtelen hierarchiájához vezet, lásd *Lakatos* (2002). Itt azonban közelítés nélkül lezárható – rendszer tulajdonságaiból következően – a harmadik momentumra vonatkozó egyenlettel. Az így kapott momentummodellt – a léptékezéshez felhasznált

$$\xi = s_t t,\ x_m = s_m \mu_m,\ m = 0,1,2,3,\ y = s_c(c - c^*),\ y_{in} = s_c(c_{in} - c^*)$$
$$y_{sv} = s_c c_{sv},\ y_{svin} = s_c c_{svin},\ w = s_q q$$

dimenziómentes változók,

$$s_c := \frac{1}{\max\{c_{in}\} - c^*}, \quad s_0 := \frac{6k_V k_g^3}{s_t^3 \gamma^{3g}}, \quad s_1 := \frac{6k_V k_g^2}{s_t^2 \gamma^{2g}}; \quad s_2 := \frac{3k_V k_g}{s_t \gamma^g}, \quad s_3 := k_V, \quad s_t := s_q s_V$$

léptékező paraméterek, valamint

$$\alpha := s_c(\rho - c^*); \quad \beta := \frac{k_g a}{s_t \gamma^g}; \quad \gamma := s_c c^*; \quad \tau := s_t \frac{V}{q} = s_t \bar{t}; \quad D_{ap} := \frac{6k_p k_V k_g^3}{s_t^4 \gamma^{3g}}, \quad \Omega := s_V V$$

dimenziómentes paraméterek bevezetésével a

$$\frac{dx_0}{d\xi} = w\frac{x_{0in} - x_0}{\Omega} + D_{ap}(1 - x_3)\exp\left(-\frac{k_e}{\ln^2\left(\frac{y+\gamma}{\gamma}\right)}\right) \tag{3}$$

$$\frac{dx_m}{d\xi} = w\frac{x_{\min} - x_m}{\Omega} + y^g(x_{m-1} + m\beta x_m), \quad m = 1,2,3 \tag{4}$$

$$\frac{dy}{d\xi} = w\frac{y_{in} - y}{\Omega(1 - x_3)} - \frac{(\alpha - y)y^g(x_2 + 3\beta x_3)}{1 - x_3} \tag{5}$$

$$\frac{dy_{sv}}{d\xi} = w\frac{y_{svin} - y_{sv}}{\Omega(1 - x_3)} - \frac{y_{sv} y^g(x_2 + 3\beta x_3)}{1 - x_3} \tag{6}$$

formában írhatjuk fel az

$$x_m(0) = x_{m0},\ m = 0,1,2,3, \quad y(0) = y_0, \quad y_{sv}(0) = y_{sv0} \tag{7}$$

kezdeti feltételekkel.

Ezzel a transzformációval a kristályosító állapotát – az irányításelméletben általánosan használt jelölésekkel – az $\boldsymbol{x}=(x_0,x_1,x_2,x_3,y,y_{sv})$ hatossal határozzuk meg, amely értékeit az $\boldsymbol{R}^6$ vektortérből veszi fel, és amelynek változásait a (3)-(7) nemlineáris

állapottér-modell írja le. A bemenetet az $\boldsymbol{u}=(x_{0in},x_{1in},x_{2in},x_{3in},y_{in},w)$ vektorral, míg a kimenetet az $\boldsymbol{y}=\boldsymbol{x}$ módon definiáljuk.

MEGFIGYELHETŐSÉG ÉS IRÁNYÍTHATÓSÁG

A (3)-(7) modellel leírt kristályosító MIMO-szabályozásának vizsgálatához szabályozott jellemzőkként a kristályméret-eloszlás

$$\upsilon_1 = \frac{x_1}{x_0}, \quad \upsilon_2 = \frac{x_2}{x_0} - \left(\frac{x_1}{x_0}\right)^2, \quad \upsilon_3 = x_3 \tag{8}$$

kifejezésekkel definiált három karakerisztikus jellemzőjét (kristályméret, méreteloszlás szórásnégyzete és produktivitás), míg manipulált változókként a

$$\vartheta_1 = u_5 = y_{in}, \quad \vartheta_2 = u_6 = w \tag{9}$$

bemeneti változókat (bemeneti koncentráció és áramlási sebesség) választottuk. A momentumok bemeneti értékeit az u_k=0, k=1,2,3,4, az oldószer bemeneti értékét pedig az $y_{svin} = \rho_{sv}\left(s_c - u_5/\rho\right)$ módon választottuk meg. (Ahol a KCl kristályosítóra $\rho = 3260 kg/m^3$ és $\rho_{sv} = 1000 kg/m^3$)

A (3)-(7) rendszer megfigyelhetőségét és irányíthatóságát a nemlineáris modell egy-egy munkapontjában, a linearizált modell felhasználásával végeztük el. Ehhez meghatároztuk a linearizált modell rendszer- és bemeneti mátrixait. A rendszermátrix lényegében a (3)-(6) differenciálegyenlet-rendszer Jacobi-mátrixaként adódott, amelyet a rendszer lokális stabilitásának vizsgálatában is felhasználtunk. A numerikus kísérleteket MATLAB fejlesztői környezetben végeztük.

A (3)-(7) modellel leírt kristályosító a teljes paramétertérben egyetlen stacionárius állapottal rendelkezik. Az ugrásfüggvény bemenetekre a paraméterek egyes tartományaiban monoton állapotváltozásokkal, illetve csillapodó vagy állandósult – határciklus – oszcillációkkal válaszolt. A szimulációs vizsgálatokhoz csillapodó válaszokkal jellemzett munkapontokat választottunk, és a kristályosító – a megfigyelhetőségi és irányíthatósági mátrixok rangjainak vizsgálatával (*Rao* (1993)) kapott eredmények alapján – azok mindegyikében megfigyelhetőnek és irányíthatónak bizonyult.

Szimulációs vizsgálatokkal határoztuk meg az (8) és (9) összefüggésekkel definiált bemenetek és kimenetek kapcsolatait mutató relatív erősítési mátrixait is (*Maciejowski* (1989)). Az egyes eltérés-bemenet/eltérés-kimenet párokra az alábbi értékeket kaptuk:

$$\begin{bmatrix}\Delta\upsilon_1\\ \Delta\upsilon_2\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}128.21 & -127.21\\ -127.21 & 128.21\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\Delta\vartheta_1\\ \Delta\vartheta_2\end{bmatrix}, \quad \begin{bmatrix}\Delta\upsilon_1\\ \Delta\upsilon_3\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}1 & 0\\ 0 & 1\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\Delta\vartheta_1\\ \Delta\vartheta_2\end{bmatrix}, \quad \begin{bmatrix}\Delta\upsilon_2\\ \Delta\upsilon_3\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}1 & 0\\ 0 & 1\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\Delta\vartheta_1\\ \Delta\vartheta_2\end{bmatrix}$$

ami azt mutatja, hogy a kristályos termék átlagmérete és a termék méreteloszlásának diszperzitása együtt nagyon nehezen szabályozható. De mivel e két jellemző szabályozásának van a legnagyobb gyakorlati haszna, más megoldást kellett keresni. Kristályok beoltásával a relatív erősítési mátrix már lehetségesnek mutatja a két jellemző együttes szabályozását:

$$\begin{bmatrix}\Delta\upsilon_1\\ \Delta\upsilon_2\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}1.24 & -0.24\\ -0.24 & 1.24\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\Delta\vartheta_1\\ \Delta\vartheta_2\end{bmatrix}$$

A beoltó kristályok mennyiségére a kristályosító szabályozhatósága igencsak érzékeny, mely változást a relatív erősítési mátrixok is jól mutatnak.

SZABÁLYOZÁSI VIZSGÁLATOK

A paraméterek és bemenetek vizsgált tartományában az objektum közel lineáris, a lineáris modellt leíró **A**, **B** és **c** állandónak tekinthető. Az *1. ábrán* látható, hogy egy hatodrendű modell megfelelően közelíti az objektumot, a MPC-hez alkalmazható.

1. ábra

Az objektum kimenetei (folyamatos) és a lineáris modell kimenetei (pontokkal)

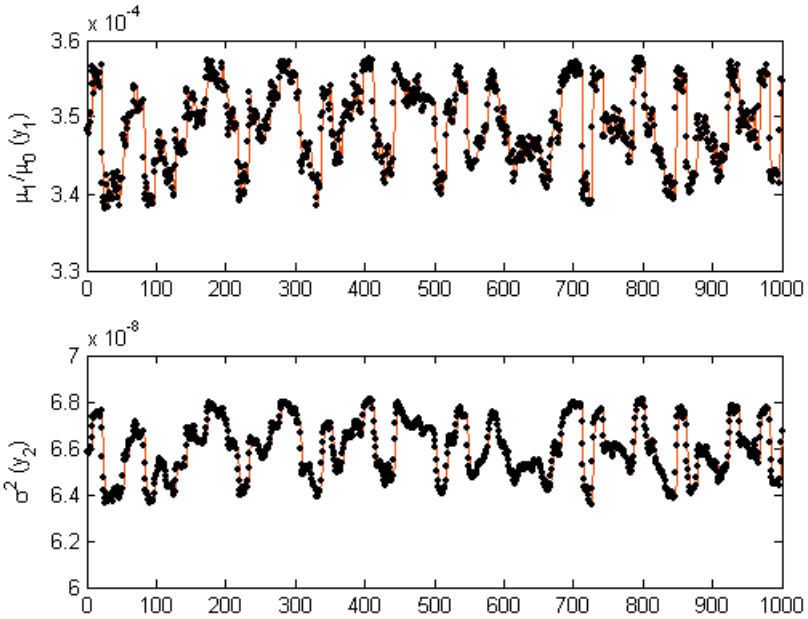

Figure 1: The outputs of the object (solid) and the linear model (dotted)

Modell Prediktív Szabályozásnál (MPC) minden egyes mintavételezési pontban on-line optimalizálási feladat megoldása után kerül sor a szabályozásra. Ez a mozgó horizont elv különbözteti meg az MPC-t a klasszikus szabályozóktól, és teszi alkalmassá bonyolultabb feladatok ellátására. Az MPC a predikciós horizonton belül jósolja a folyamatváltozókat és minimalizálja a predikciós hibát, az alapjel és a kimenet eltérését. A szabályozási horizonton belül változtathatjuk a beavatkozót. A vizsgált esetben hangolás után a predikciós horizont hossza 5, a szabályozási horizontté 3 időegység.

A kristályosítóra kapott szabályozási eredmények a *2. ábrán* láthatóak, a felső két sor a kimenetek (átlagos kristályméret és a szórásnégyzet), az alapjel szaggatott vonallal; az alsó kettő pedig a beavatkozó változók (tartózkodási idő és a bemeneti oldott anyag koncentráció). Megállapítható, hogy a szabályozás megfelelő, az alapjel változásainak követése kitűnő a beavatkozók kivitelezhetetlenül hirtelen változása nélkül.

2. ábra

MPC-vel szabályozott CMSMPR kristályosító viselkedése

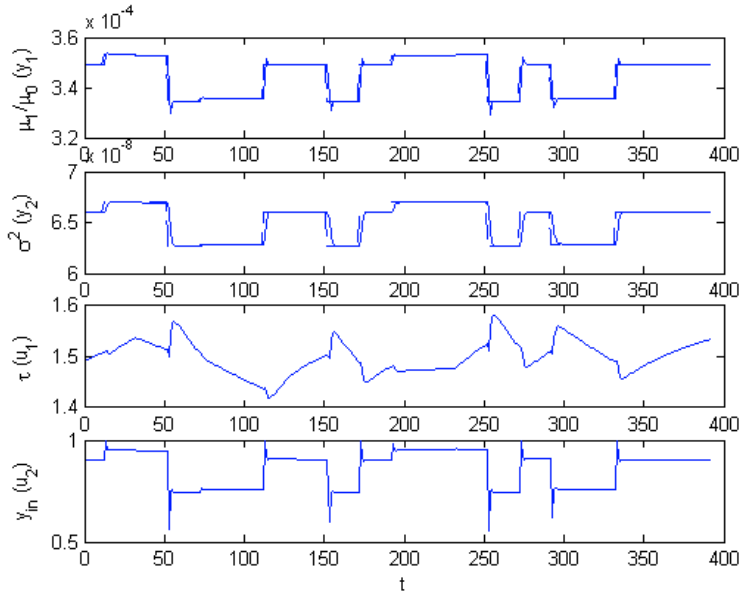

Figure 2: Performance of the MPC of the CMSMPR crystallizer

KÖVETKEZTETÉSEK

A fentiekben bemutatásra került egy izoterm MSMPR kristályosító momentum modellje. Megfigyelhetőségi és szabályozhatósági vizsgálatok után az utóbbiak eredményét mutattuk be. A kristályok átlagmérete és a méreteloszlás szórásnégyzete egymástól közel függetlenül szabályozható a tartózkodási idővel és a bemeneti oldatkoncentrációval külön-külön. Mivel a kristály-szuszpenzió térfogatát állandónak vettük, az átlagos tartózkodási időt a betáplálás sebességével változtattuk. A méreteloszlás szórásnégyzetének szabályozása oltókristályok beadagolásával vált megoldhatóvá. A szabályozási vizsgálatok azt mutatják, hogy a lineáris MPC jól alkalmazható, célszerű szabályozó.

IRODALOM

Blickle, T., Lakatos, B.G., Mihálykó, Cs. (2001). Szemcsés rendszerek matematikai modelljei. A kémia újabb eredményei - 89., Akadémiai Kiadó, Budapest.

Chiu, T. and Christofides, P.D. (1999). Nonlinear Control of Particulate Processes, AIChE Journal, 6. 1279-1297.

Hulburt, H.M. and Katz, S.L. (1964). Some problems in particle technology : A statistical mechanical formulation, Chem. Engng Sci., 8. 555-574.

Jager, J., Kramer, H.J.M., de Jong, E.J., de Wolf, S., Bosgra, O.H. (1992). Control of industrial crystallizers Powder Technology. 1. 11-20.

Lakatos, B.G., and Sapundzhiev, Ts.J. (1997). Populent-balance model of crystallizers Bulg. Chem. Commun., 29. 28-38.
Lakatos, B.G., Mihálykó, Cs., Blickle, T. (2002). A momentum módszer alkalmazásáról: kvalitatív analízis, A MKN'2002 előadásai. KE MÜKKI, Veszprém, 204-209.
Maciejowski, J.M., (1989). Multivariable Feedback Design. Addison-Wesley, Wokingham.
Moldoványi, N., Abonyi, J., Lakatos, B.G. (2002). Folyamatos kristályosítók modell bázisú irányítása. A MKN'2002 előadásai. KE MÜKKI, Veszprém, 311-316.
Myerson, A.S., Rush, S., Schork, F.J., Johnson, J.L. (1987). In: Nyvlt, J. and S. Zacek. (Eds): Proc. 10th Symp. Ind. Cryst. Academia, Praha, 407.
Ramkrishna, D. (2000). Population Balances. Theory and Applications to Particulate Systems in Engineering. Academic Press, San Diego.
Randolph, A.D. and Larson, M.A. (1988). Theory of Particulate Processes. Academic Press, New York.
Rao, M. and Qui, H. (1993). Process Control Engineering. Gordon & Breach, Chemin de la Sallaz, Switzerland.
Rohani, S., (1995). Control of crystallizers. in: CrystallizationTechnology Handbook. Marcel Dekker, New York, 327-357.
Rohani, S., Haeri, M., Wood, H.C. (1999). Modeling and control of a continuous crystallization process Part 1. Linear and non-linear modeling, Computers chem. Engng, 3. 263-277.
Rohani, S., Haeri, M., Wood, H.C. (1999). Modeling and control of a continuous crystallization process Part 2. Model predictive control, Computers chem. Engng., 3. 279-286.
Tavare, N.S. (1995). Industrial Crystallization. Process Simulation, Analysis and Design. Plenum Press, New York.
Temam, R. (1988). Infinite-Dimensional Dynamical Systems in Mechanics and Physics. Springer-Verlag, New York.

Levelezési cím (*corresponding author*):

Moldoványi Nóra
Veszprémi Egyetem, Folyamatmérnöki Tanszék
8200 Veszprém, Egyetem utca 10.
University of Veszprém, Department of Process Engineering
H-8200 Veszprém, Egyetem Street 10.
Tel.: 36-88-422 022/4770, fax: 88-421 709
E-mail: mnora@fmt.vein.hu