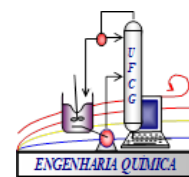




UNIVERSIDADE FEDERAL DE CAMPINA GRANDE

CENTRO DE CIÊNCIAS E TECNOLOGIA

UNIDADE ACADÊMICA DE ENGENHARIA QUÍMICA



PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA

LUCAS DE MELO JUREMA GUIMARÃES

**Controle do Processo TPCSD para a Separação da Mistura
Acetonitrila/Benzeno/Metanol**

Campina Grande - PB

Fevereiro de 2022

LUCAS DE MELO JUREMA GUIMARÃES

**Controle do Processo TCPSD para a Separação da Mistura
Acetonitrila/Benzeno/Metanol**

Dissertação apresentada ao programa de Pós-Graduação de Engenharia Química, da Universidade Federal de Campina Grande, como parte dos requisitos exigidos para a obtenção do título de Mestre em Engenharia Química.

Orientador: Prof. Dr. Wagner Brandão Ramos

Campina Grande - PB

Novembro de 2021

G963c Guimarães, Lucas de Melo Jurema.
Controle do processo TCPSD para a separação da mistura acetoneitrila/benzeno/metanol / Lucas de Melo Jurema Guimarães. – Campina Grande, 2022.
86 f. : il. color.

Dissertação (Mestrado em Engenharia Química) – Universidade Federal de Campina Grande, Centro de Ciências e Tecnologia, 2022.
“Orientação: Prof. Dr. Wagner Brandão Ramos”.

Referências.

1. Processos de Destilação. 2. TCPSD. 3. Controle Plantwide. 4. Controle por Inferência. 5. Processos Químicos. I. Ramos, Wagner Brandão. II. Título.

CDU 66.048(043)

LUCAS DE MELO JUREMA GUIMARÃES

**Controle do Processo TCPSD para a Separação da Mistura
Acetonitrila/Benzeno/Metanol**

Aprovado em: 18 de fevereiro de 2022.

BANCA EXAMINADORA



Prof. Dr. Wagner Brandão Ramos
Orientador - UAEQ-UFCG

ROMILDO PEREIRA
BRITO:41912675404

Digitally signed by ROMILDO
PEREIRA BRITO:41912675404
Date: 2022.03.15 16:26:20
+03'00'

Prof. Dr. Romildo Pereira Brito
Avaliador Interno - UAEQ-UFCG



Prof. Dr. Luis Gonzaga Sales Vasconcelos
Avaliador Interno - UAEQ-UFCG



Prof. Dr. Laércio Gomes de Oliveira
Avaliador Externo - UAEQ-UFCG

Dedico este trabalho, a Deus e a meus pais por todo o amor que me deram, pelos valores que me ensinaram e tudo mais que me ajudou a me tornar o homem que sou hoje.

AGRADECIMENTOS

Primeiramente, agradeço à Deus pela vida e por todas as dádivas e milagres que me deram nos últimos anos. Sem Ele não sou nada, com fé nEle tudo posso.

Aos meus pais e minha avó, Jorge, Marcia e Marlene, agradeço pela inspiração e pelos valores transmitidos desde jovem.

Aos meus irmãos de sangue, Rodrigo e Julia, agradeço por todo o carinho e suporte nos diversos momentos da vida.

Aos meus irmãos de caminhada, os amigos da Pastoral de Crisma e os do tempo de escola, agradeço pela força, acolhimento e suporte.

Aos meus colegas da pós-graduação e de laboratório (LARCA/LABFREN) e ao meu orientador Prof. Wagner, agradeço pelos diversos conselhos e companheirismo durante mais essa etapa da minha vida profissional.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) agradeço pelo apoio financeiro oferecido.

À minha namorada, Geniele, agradeço por ser a companheira mais gentil e paciente que poderia ter pedido à Deus.

Ao um dos meus melhores amigos que infelizmente não conseguiu me acompanhar até o final dessa etapa da minha vida, agradeço a Beri, por ser o melhor cão e o guerreiro mais teimoso que eu poderia ter.

"Porque a história da evolução é de que a vida escapa a todas as barreiras. A vida se liberta. A vida se expande para novos territórios. Dolorosamente, até perigosamente. A vida encontra um jeito."

Michael Crichton

GUIMARÃES, L. M. J. **Controle do Processo TCPSD para a Separação da Mistura Acetonitrila/Benzeno/Metanol**, 2022, 86 p. Mestrado em Engenharia Química. Universidade Federal de Campina Grande. Campina Grande, PB.

RESUMO

A separação via *Triple-Column Pressure-Swing Distillation* (TCPSD) pode ser utilizada para separar diferentes solventes da indústria de química fina, e devido ao grande número de variáveis envolvidas, juntamente com integrações térmicas e correntes de reciclo, a definição de uma estrutura de controle eficaz se torna um problema complexo. Neste contexto, este trabalho tem como principal objetivo o desenvolvimento e avaliação de estruturas de controle *plantwide* para o processo TCPSD, utilizado para separação da mistura acetonitrila/benzeno/metanol. Utilizando os softwares Aspen Plus® e Aspen Plus Dynamics®, foram avaliadas duas estruturas de controle, nas quais as composições dos produtos são controladas por inferência, através do controle da temperatura de pratos sensíveis. A principal diferença entre as duas estruturas se deve pelo fato de a Estrutura de Controle 1 possuir uma malha de controle de soma dual de temperatura de pratos sensíveis na coluna de baixa pressão, manipulando a razão de refluxo enquanto a Estrutura de Controle 2 possui um controle por inferência através da manipulação da carga térmica na mesma coluna. Ao avaliar os resultados das composições dos produtos ao atingir estado estacionário e valores de ISE, concluiu-se que ambas as estruturas são capazes de controlar distúrbios do tipo degrau na vazão e composição de alimentação do processo. Contudo, observaram-se melhores resultados na Estrutura de Controle 1. Ao comparar ambas as estruturas de controle com estruturas utilizando controle direto obtidas na literatura, observa-se uma que a última obtém vantagem no que diz respeito ao tempo de resposta, porém ambas estabilizam em resultados satisfatórios.

Palavras-chave: TCPSD; Controle *Plantwide*; Controle por Inferência.

GUIMARÃES, L. M. J. **TCPDS Process Control for the Separation of the Acetonitrile/Benzene/Methanol Mixture**, 2022, 86 p. Master's in chemical engineering. Federal University of Campina Grande. Campina Grande, PB.

ABSTRACT

The separation via Triple-Column Pressure-Swing Distillation (TCPDS) can be used to separate different solvents from the fine chemical industry, and due to the large number of variables involved, along with thermal integrations and recycle streams, the definition of a control structure effectively becomes a complex problem. In this context, this work has as main objective the development and evaluation of plantwide control structures for the TCPDS process, used to separate the acetonitrile/benzene/methanol mixture. Using Aspen Plus[®] and Aspen Plus Dynamics[®] software, two control structures were evaluated, in which the product compositions are controlled by inference, through the temperature control of sensitive dishes. The main difference between the two structures is due to the fact that Control Structure 1 has a dual summation control loop of temperature of sensitive plates in the low-pressure column, manipulating the reflux ratio while Control Structure 2 has a control by inference by manipulating the heat load on the same column. When evaluating the results of the product compositions when reaching steady state and ISE values, it was concluded that both structures are able to control step-type disturbances in the flow and feed composition of the process. However, better results were observed in Control Structure 1. When comparing both control structures with structures using direct control obtained in the literature, it is observed that the latter has an advantage in terms of response time, but both stabilize in satisfactory results.

Keywords: TCPDS; Plantwide Control; Control by Inference.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1: Processo de destilação extrativa.....	18
Figura 2: Diagramas x vs y de azeótropos de mínimo e máximo ponto de ebulição.....	18
Figura 3: Processo de destilação via <i>pressure-swing</i>	19
Figura 4: Abordagem hierárquica do controle <i>plantwide</i>	24
Figura 5: Diagramas ternários da mistura A-M-B	30
Figura 6: Fluxograma AMB de TCPSP com reciclo modificado	31
Figura 7: Fluxograma TCPSP configuração AMB	34
Figura 8: Variação de temperatura na Colunas 1 (a), Coluna 2 (b) e (c) e Coluna 3 (d).....	36
Figura 9: Estrutura de Controle 1 utilizada para TCPSP	37
Figura 10: Estrutura de Controle 2 para TCPSP	38
Figura 11: Respostas dinâmicas após distúrbios de vazão - Estrutura de Controle 1	40
Figura 12: Respostas dinâmicas após distúrbios de composição - Estrutura de Controle 1	43
Figura 13: Respostas dinâmicas após distúrbios de vazão - Estrutura de Controle 2	45
Figura 14: Respostas dinâmicas após distúrbios de composição - Estrutura de Controle 2	46
Figura 15: Estrutura de controle proposta por Luyben (2017) utilizando controle direto	51
Figura 16: Respostas da Estrutura de Controle proposta por Luyben (2017) para controle direto com distúrbio na alimentação.....	51
Figura 17: Respostas dinâmicas para a Estrutura de Controle 1, (a) resposta em distúrbio positivo e (b) resposta em distúrbio negativo.	52
Figura 18: Respostas dinâmicas para a Estrutura de Controle 2, (a) resposta em distúrbio positivo e (b) resposta em distúrbio negativo.	52

LISTA DE TABELAS

Tabela 1: Parâmetros de interação via regressão para o método de Wilson	31
Tabela 2: Valores dos distúrbios efetuados	32
Tabela 3: Dados de cargas térmicas e razão de refluxo das colunas	34
Tabela 4: Composições e vazões das correntes de processo	34
Tabela 5: Dimensões dos <i>sumps</i> e vasos de refluxos	35
Tabela 6: Parâmetros dos controladores da Estrutura de Controle 1.	38
Tabela 7: Parâmetros dos controlados da Estrutura de Controle 2.....	39
Tabela 8: Parâmetros dos Controladores de Nível e Pressão.	39
Tabela 9: Valores de ISE referentes às Estruturas de Controle 1 e 2.....	48
Tabela 10: Valores finais de composição mássica dos produtos referentes às Estruturas de Controle 1 e 2	49

LISTA DE QUADROS

Quadro 1: Passos do controle <i>plantwide</i>	23
Quadro 2: Procedimentos para projeto de estruturas de controle <i>plantwide</i>	25

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO	14
2. OBJETIVOS	16
2.1. OBJETIVO GERAL	16
2.2. OBJETIVOS ESPECÍFICOS	16
3. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA	17
3.1. PROCESSOS DE DESTILAÇÃO	17
3.1.1. Destilação Extrativa	17
3.1.2. Destilação via Pressure-Swing	18
3.2. CONTROLE DE PROCESSOS	19
3.3. CONTROLE <i>PLANTWIDE</i>	21
3.3.1. Procedimento de Luyben	22
3.3.2. Procedimento de Skogestad	24
4. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	27
5. SIMULAÇÃO EM REGIME ESTACIONÁRIO	30
5.1. CASO ESTUDADO	30
5.2. SIMULAÇÃO DO PROCESSO	30
6. SIMULAÇÃO EM REGIME TRANSIENTE	32
6.1. PROCEDIMENTOS DE DIMENSIONAMENTO	32
6.2. DEFINIÇÃO DA ESTRUTURA DE CONTROLE	32
7. RESULTADOS E DISCUSSÕES	34
7.1. SIMULAÇÃO EM REGIME ESTACIONÁRIO	34
7.2. DIMENSIONAMENTO E ESTRATÉGIAS DE CONTROLE	35
7.3. AVALIAÇÃO DAS ESTRUTURAS DE CONTROLE	37
7.3.1. Implementação das Estruturas de Controle	37
7.3.2. Avaliações das Estruturas de Controle	40
8. CONCLUSÕES	53
9. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS	54
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	55
ANEXO A	58
ANEXO B	60
ANEXO C	62
ANEXO D	64
ARTIGO PUBLICADO	66

1. INTRODUÇÃO

Nos últimos anos, devido a crises econômicas, aumentos nos valores de insumos energéticos (combustíveis e energia elétrica) e alta concorrência estrangeira, torna-se cada vez maior a necessidade de desenvolver processos economicamente viáveis, não afetando a segurança, a qualidade dos produtos, nem o meio-ambiente.

Dentro deste contexto, a destilação se destaca por ser um dos processos mais utilizados na indústria para separação de misturas, porém é um processo que demanda um consumo de energia bastante elevado.

Três solventes orgânicos muito comuns nas indústrias química e farmacêutica, segundo ZHU *et al.* (2016), são a acetonitrila, o benzeno e o metanol, devido às suas excelentes propriedades físico-químicas. Logo, torna-se interessante investigar o comportamento deste ternário de azeótropos com comportamento sensível à pressão.

Primeiramente sugerido por KNAPP e DOHERTY (1992) como uma alternativa para a separação de misturas azeotrópicas ternárias sem o uso de destilação extrativa, a TCPSD (*Triple-Column Pressure-Swing Distillation*) tem como objetivo a separação completa dos três componentes da mistura trabalhando apenas com colunas de destilação em diferentes pressões, o que evita o uso de um solvente. Contudo, é destacável que se necessita de uma avaliação para obter um processo eficiente de separação considerando posição de alimentação, a sequência em que os componentes serão retirados e as pressões ideais de cada coluna, por isso poucos sistemas na literatura foram trabalhados até então.

Na literatura, tal processo apresenta diversas modificações visando separar a 99,9% de pureza todos os componentes e visando uma redução cada vez maior de custos. No trabalho de ZHU *et al.* (2016) foram apresentadas diferentes configurações do processo, com foco nas pressões de operação e sequenciamento das colunas. Em LUYBEN (2017) a aplicação de controle *plantwide* é avaliada. Nos trabalhos de ZHU *et al.* (2017a) e ZHU *et al.* (2017b) foram avaliados a integração térmica e configurações de reciclo, respectivamente, enquanto ZHANG *et al.* (2019) avaliaram a combinação da integração térmica com o reciclo.

Malhas de controle robustas são cada vez mais necessárias dentro de um processo, sendo um ponto chave tanto na questão da segurança para os colaboradores quanto para a qualidade de especificação dos produtos, ou seja, a pureza deles. Contudo, apesar de valerem-se de metodologias de controle

consideradas de ponta, alguns estudos encontrados na literatura ainda fogem da realidade, quando se utilizam de distúrbios simples para avaliação e sensores que medem diretamente a composição nas correntes de produto, o que não é economicamente viável no campo industrial. Neste sentido, este trabalho se propõe a estabelecer e avaliar estruturas de controle aplicáveis ao processo TCPSD, para a separação da mistura acetonitrila/benzeno/metanol, nas quais as purezas dos produtos são controladas por inferência.

2. OBJETIVOS

2.1. OBJETIVO GERAL

Avaliar estruturas de controle aplicadas ao processo TCPD para a separação da mistura acetonitrila/benzeno/metanol.

2.2. OBJETIVOS ESPECÍFICOS

- Simular o processo TCPD do sistema acetonitrila/benzeno/metanol em regime estacionário utilizando o software Aspen Plus®;
- Selecionar as variáveis de controle;
- Obter o modelo dinâmico no Aspen Plus Dynamics®;
- Implementar estruturas de controle ao processo;
- Avaliar as estruturas de controle qualitativamente e quantitativamente;
- Comparar com os resultados obtidos com resultados da literatura.

3. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

3.1. PROCESSOS DE DESTILAÇÃO

Dentre as diversas misturas que existem no universo de processos de separação, algumas possuem um comportamento não usual, onde a Lei de Raoult não representa de forma satisfatória, comumente sendo exemplificada por misturas onde os componentes possuem pontos de ebulição próximos (SEADER *et al.* 2011). Estas misturas formam azeótropos, e quando isto ocorre, torna-se impossível a separação destas misturas através da destilação convencional.

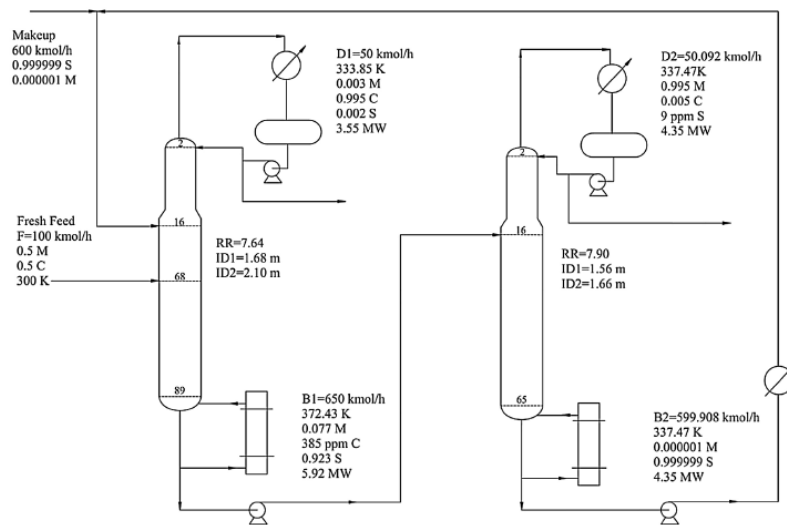
Caso haja, num sistema azeotrópico, a forte presença de forças repulsivas entre as espécies químicas, com coeficiente de atividade maiores que a unidade, tem-se um azeótropo homogêneo de mínimo ponto de ebulição. Se, ao invés de repulsão, existir atração entre os componentes químicos, ou seja, coeficientes de atividade inferiores à unidade, tem-se a existência de um azeótropo de máximo ponto de ebulição LUYBEN (2012).

Algumas metodologias podem ser aplicadas para a separação de misturas azeotrópicas, como a destilação extrativa ou destilação por mudança de pressão (*pressure-swing*).

3.1.1. Destilação Extrativa

O processo de destilação extrativa, composto por duas colunas de destilação, é amplamente utilizado para separar azeótropos e misturas cujos componentes tenham pontos de ebulição próximos (SEADER *et al.* 2011). Tais processos se valem de um solvente de alto ponto de ebulição sendo introduzido próximo ao topo da primeira coluna para extrair um dos componentes do azeótropo, enquanto o outro componente sai praticamente puro no destilado. Enquanto isso, os demais componentes (primeiro componente do azeótropo e o solvente) saem pela base para alimentar uma segunda coluna onde serão separados em alta pureza, sendo na base a saída do solvente (que voltará a alimentar a primeira coluna através de um reciclo) LUYBEN (2012). A Figura 1 ilustra o citado processo de destilação extrativa para o caso do azeótropo metanol/clorofórmio.

Figura 1: Processo de destilação extrativa



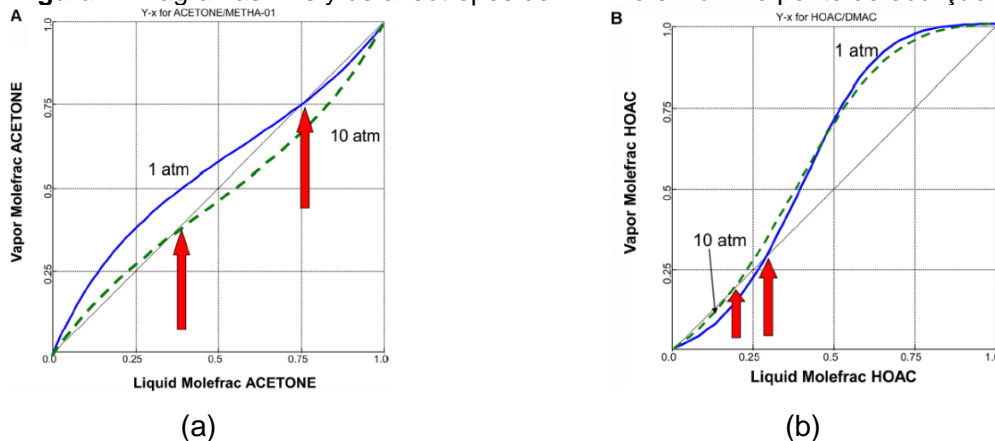
FONTA: CAO *et al.* (2017)

Segundo LUYBEN (2012), as principais dificuldades desse método são a escolha de um solvente apropriado para que o consumo energético e a controlabilidade não sejam afetados.

3.1.2. Destilação via *Pressure-Swing*

Um comportamento comum em azeótropos é a variação do ponto de azeotropia ao alterar-se a pressão do sistema. Desta forma, caso a variação deste ponto seja significativa ao aumentar-se a pressão (acima de 5% em mol, como o que acontece nos exemplos da Figura 2), temos azeótropos sensíveis à pressão, onde o processo via *pressure-swing* pode ser aplicado (SEADER *et al.* 2011).

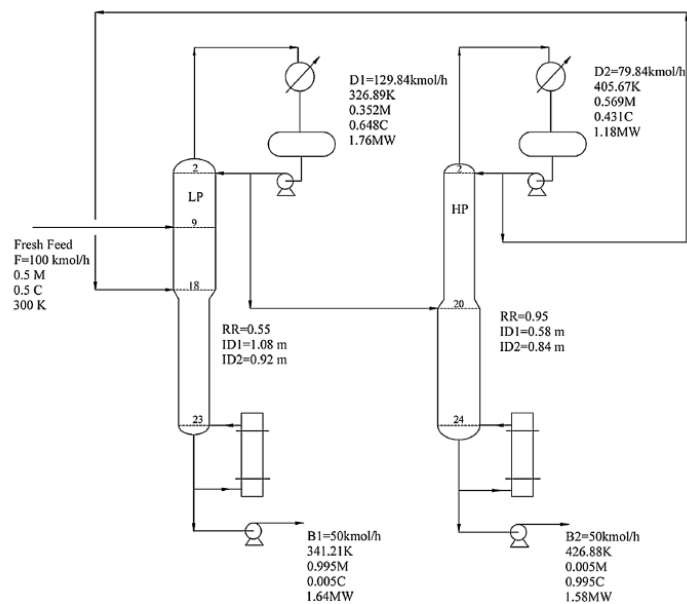
Figura 2: Diagramas x vs y e de azeótropos de mínimo e máximo ponto de ebulição



FONTA: LUYBEN (2012)

Tendo em vista como ocorre o deslocamento do ponto de azeótropo pela variação de pressão, uma das colunas de destilação (trabalhando em um binário) irá operar em alta pressão enquanto outra em baixa, fazendo-se necessário o uso de equipamentos para variar a mesma ao longo do processo, como bombas e compressores para aumentar a pressão e válvulas para redução. A Figura 3 ilustra o caso de um processo de destilação via *pressure-swing* para o azeótropo metanol/clorofórmio:

Figura 3: Processo de destilação via *pressure-swing*



FONTE: CAO *et al.* (2017)

ZHANG *et al.* (2019) explicam que ao utilizar tal método, evita-se a potencial contaminação dos produtos-chave com traços de solventes utilizados na destilação extrativa. Contudo, deve-se destacar a necessidade de alto consumo energético para manter a elevada pressão de uma das colunas; no entanto, o elevado consumo energético pode ser contornado utilizando integrações térmicas, tornando o processo bastante atrativo.

3.2. CONTROLE DE PROCESSOS

Os processos químicos normalmente apresentam variações ao longo do tempo, seja por interferências externas seja por mudanças na operação. Desta forma, é fundamental o monitoramento e ser hábil para introduzir mudanças nas variáveis

chaves dos processos que estão relacionadas a taxas de produção, segurança e qualidade dos produtos.

Existem diversas maneiras de se realizar o controle de qualidade de produtos e intermediários. Quando se fala da indústria química/petroquímica, medições contínuas dos processos tais como temperaturas, vazões e pressões são bastante utilizadas.

Contudo, outras medições, como concentrações e viscosidades, necessitam de técnicas laboratoriais para serem realizadas, o que se faz necessária a amostragem das correntes de processo com certa frequência para monitorar a qualidade dos produtos conforme as especificações.

Colunas de destilação, em geral, constituem uma fração significativa do investimento de capital e do custo de produção de plantas químicas e refinarias. A disponibilidade de técnicas práticas para auxílio ao desenvolvimento de sistemas de controle eficazes e confiáveis para uma operação eficiente e segura é imprescindível. Além disso, a destilação por si só é uma operação unitária de alto consumo energético, necessitando alcançar e manter as condições operacionais ótimas.

O objetivo do controle *Feedback* é cancelar ou minimizar os efeitos de distúrbios sobre as variáveis controladas através de variações nas variáveis manipuladas.

Segundo SEBORG *et al.* (2004), o controle em um processo deve atender três necessidades básicas: manter os balanços de massa e energia, atingir a qualidade desejada e atender às restrições do processo. Porém, o processo também deve ser rentável e o controle adequado à operação. Dessa maneira, a proposta principal de um sistema de controle é rejeitar os efeitos das variações não controladas e restabelecer a qualidade a um ponto desejado.

Uma lei de controle é um conjunto de regras que são utilizadas para determinar os comandos a serem enviados a um sistema baseado no estado desejado de um sistema. Leis de Controle são utilizadas, por exemplo, para ditar como uma temperatura de um determinado estágio de uma coluna de destilação é corrigida para uma temperatura desejada, definida de *setpoint*, enviando comandos para um atuador.

A informação de entrada para o controlador é o erro entre o valor desejado (*setpoint*, ou y_d) e o valor real da variável de saída do processo. O esforço do controlador sempre será o de diminuir esse erro, mantendo a variável de saída do

processo sob controle, motivo pelo qual ela é também denominada variável controlada.

A lei PID (Proporcional, Integral e Derivativo) traduz a ideia de que a variável manipulada será alterada proporcionalmente (P) ao erro que aparece a cada instante, ao acúmulo, integral (I) do erro ao longo do tempo e à taxa de variação do erro da variável controlada (D). Diversas variações do controle PID são utilizadas na prática. As Equações (1) e (2) representam a forma expandida e a condensada das equações de controlador PID, respectivamente.

$$u(t) = k_c(y_d - y(t)) + \frac{k_c}{\tau_i} \int_0^t (y_d - y(t))dt + k_c\tau_d \frac{d(y_d - y(t))}{dt} + u_s \quad (1)$$

$$u(t) = k_c e(t) + \frac{k_c}{\tau_i} \int_0^t e(t)dt + k_c\tau_d \frac{de(t)}{dt} + u_s \quad (2)$$

Onde:

- $u(t)$ é a saída do controlador em função do tempo;
- u_s é a saída do controlador no regime permanente;
- k_c é o ganho da parte proporcional do controlador;
- τ_i é o tempo da ação integral do controlador;
- τ_d é o tempo da ação derivativa do controlador;
- $e(t)$ é o erro entre o processo e o *setpoint*.

Através das determinações dos valores das constantes de ganho e de tempo tem-se um controlador PID. Ao realizar tal ação deve-se considerar a necessidade de um bom desempenho, evitando instabilidades e respeitando os limites do processo. Encontrar tais valores consiste no problema de sintonia do controlador PID.

3.3. CONTROLE *PLANTWIDE*

De acordo com SILVA (2013), toda vez em que há o desenvolvimento de uma estrutura de controle em que exista uma abordagem em toda planta, tem-se uma estrutura de controle *plantwide*. O propósito do controle *plantwide* é prover uma estrutura global para o controle coordenado de muitas variáveis importantes de um processo. Toda essa filosofia de controle surgiu com o objetivo de coordenar

diferentes controladores locais, numa tentativa de redução de custos de estocagem de intermediários (LYMAN e GEORGAKIS, 1995, *apud* HORI, 2005).

Segundo HORI (2005), a solução clássica no passado para resolução de uma problemática envolvendo controle *plantwide* se resumiria a fracionar o problema todo em uma série de problemas menores de controle ao redor das operações unitárias individuais do processo.

Contudo, foram desenvolvidas técnicas para melhorar tal resolução e solucionar de forma heurística ou até matemática quais seriam as melhores variáveis a se utilizar no controle *plantwide*.

Mais à diante veremos dois procedimentos distintos de seleção de estrutura para o controle *plantwide*, mais especificamente os procedimentos propostos por LUYBEN *et al.* (1998) e SKOGESTAD (2000).

3.3.1. Procedimento de Luyben

LUYBEN *et al.* (1998), acaba por utilizar uma abordagem mais heurística e experimental utilizando sistemas de controle simples de forma que seja acessível pelas várias camadas da indústria. Primeiramente, o mesmo estabeleceu algumas metas para um sistema de controle *plantwide* eficaz:

- Operação de processo seguro e suave;
- Controle rigoroso da qualidade do produto em face de perturbações;
- Prevenção de condições inseguras de processo;
- Um sistema de controle de execução automático, não manual, que exige o mínimo de atenção do operador;
- Taxa rápida e transições de qualidade do produto;
- Zerar liberações ambientais inesperadas.

Assim sendo, LUYBEN *et al.* (1998) estabeleceu nove passos para a implementação do controle *plantwide* apresentados no Quadro 1:

Quadro 1: Passos do controle *plantwide*

1	Estabelecer limites de controle
2	Determinar os graus de liberdade do controle
3	Estabelecer o sistema de gestão de energia
4	Definir taxa de produção
5	Restrições ambientais, operacionais, de qualidade de produto e segurança
6	Fixar um fluxo em cada <i>loop</i> de reciclo e controle de estoques (pressões e níveis de líquido)
7	Verificar balanço dos componentes
8	Controle individual das unidades operacionais
9	Otimização econômica e melhoramento da controlabilidade dinâmica

FONTE: Adaptado de LUYBEN *et al* (1998)

De forma sucinta, tais passos podem ser definidos como:

- Passo 1 - trata da avaliação dos objetivos para o processo, que incluem restrições e especificações, por exemplo;
- Passo 2 - é estabelecido o número de variáveis que podem ser controladas no processo para ajuste do mesmo;
- Passo 3 - é relacionado à gestão de energia e tem duas funções, sendo a primeira de que o calor produzido é propriamente dissipado e a segunda de evitar a propagação de perturbações térmicas, caso a integração do calor ocorra entre correntes do processo;
- Passo 4 - as variáveis relacionadas a produtividade e seus objetivos são estabelecidas;
- Passo 5 - tem-se relação com a qualidade do produto e segurança;
- Passo 6 - envolve os controles do balanço de massa total;
- Passo 7 - confere os componentes químicos do processo, isto é, entrada, saída, consumo e geração, fechando a visão global do processo;
- Passo 8 - completa-se o sistema de controle para unidades operacionais individuais;
- Passo 9 - são usados os graus de liberdade para otimizar e implementar a controlabilidade dinâmica do processo.

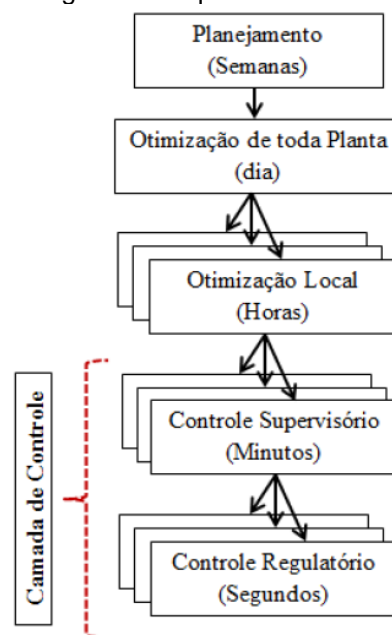
Esse procedimento heurístico irá gerar uma estratégia de controle *plantwide* funcional, que não será necessariamente a melhor solução, visto que o

dimensionamento é um problema aberto, e o procedimento não produz uma única solução.

3.3.2. Procedimento de Skogestad

SKOGESTAD (2000), SKOGESTAD (2004) e HALVORSEN *et al.* (2003) trabalharam para gerar uma metodologia matemática para o controle *plantwide*. A Figura 4 mostra a divisão hierárquica adotada para controle de processo de toda a planta, no qual as etapas são dadas em tempos de escalas diferentes. Esta abordagem se torna comum considerando os vários processos químicos em grande escala e conseqüentemente centenas de variáveis e correntes envolvidas no processo. As camadas apresentadas são interligadas por meio das variáveis controladas, que tem seus *setpoints* (valores encontrados pelas camadas acima) implementados pelas camadas inferiores.

Figura 4: Abordagem hierárquica do controle *plantwide*



FONTE: Adaptado de SKOGESTAD (2000)

Uma questão necessária no projeto da estrutura de controle é quais seriam as variáveis controladas e quais seriam as manipuladas. A ordem de seleção seria a seguinte:

- Seleção de variáveis manipuladas (*inputs*);

- Seleção de variáveis controladas (*outputs*, variáveis com *setpoints*);
- Seleção de variáveis medidas (para fins de controle);
- Seleção da configuração de controle (estrutura de controle *plantwide* que interligará o controlador, as variáveis manipuladas e medidas);
- Seleção dos tipos de controladores (lei de controle, como PID).

Assim, tem-se a discussão acerca de quais variáveis devem ser controladas, quais devem ser medidas, quais entradas devem ser manipuladas e quais ligações entre elas. Com base na seleção de variáveis controladas, SKOGESTAD (2004) sugere um procedimento sistemático para o projeto de estruturas de controle *plantwide*, como mostra o Quadro 2. O procedimento sistemático está dividido em dois pontos principais:

- Análise *top-down*: considera as etapas 1 a 4 observadas no Quadro 2, havendo a abordagem da definição dos objetivos operacionais, a identificação de variáveis manipuladas e graus de liberdade, bem como das variáveis controladas primárias. Faz considerações ainda sobre a taxa de produção e a camada regulatória de controle;
- Análise *botton-up*: etapas 5 a 8 mencionadas a seguir, considera a camada de controle estabilizante, otimização e validação do modelo no processo.

Quadro 2: Procedimentos para projeto de estruturas de controle *plantwide*

Etapa:	
(1)	<i>Análise Descendente</i>
1.	Definição dos objetivos operacionais: Identificação das restrições operacionais e de uma função custo escalar J a ser minimizada.
2.	Variáveis manipuladas u e graus de liberdade: Identificação dos graus de liberdade estacionário e dinâmico (DOF).
3.	Seleção de variáveis primárias de controle: Quais variáveis devem ser controladas? <ul style="list-style-type: none"> • Controle de restrições ativas; • Graus de liberdade remanescentes: Controlar variáveis para as quais valores constantes de <i>setpoints</i> resultem em pequenas perdas (econômicas) quando ocorrem distúrbios (controle auto-otimizável).

4. Taxa de Produção:

Onde a taxa de produção será ajustada? Esta é uma escolha muito importante, pois ela determina a estrutura do sistema de controle regulatório remanescente.

(II) *Projeto Ascendente* (com variáveis manipuladas, u , e controladas, c , dadas

5. Camada de Controle Regulatório:

Propósito: “estabilizar” a planta usando controladores de baixa complexidade (controles PID de malha simples) de forma que:

- A planta não se desvie muito do seu ponto de operação nominal;
- A camada supervisória (ou os operadores) possa lidar com o efeito dos distúrbios nas saídas primárias ($y_1 = c$).

Principal problema estrutural: o que mais (y_2) se deveria controlar?

- Selecionar variáveis controladas secundárias;
- Parear essas variáveis controladas secundárias (y_2) com variáveis manipuladas (u_2).

6. Camada de Controle Supervisório:

Propósito: manter as variáveis (primárias) de *output* controladas ($y_1 = c$) em seus respectivos *setpoints* ótimos, usando como graus de liberdade (entradas), os *setpoints* y_2 para cada camada de controle regulatório e quaisquer outras variáveis não utilizadas (u_1).

Principal problema estrutural: controle centralizado ou descentralizado?

- Controle descentralizado: é possível utilizar simples controladores PI ou PID. O problema estrutural se dá na escolha do pareamento *input-output*;
- Controle multivariável: usualmente com tratamento explícito de restrições. O problema estrutural se dá no tamanho de cada aplicação multivariável.

7. Camada de Otimização:

Propósito: identificar restrições ativas e computar os *setpoints* ótimos, c_3 , para as variáveis controladas.

Principal problema estrutural: é necessária a otimização em tempo real?

8. Validação:

Simulação dinâmica não-linear da planta.

FONTE: Adaptado de SKOGESTAD (2004)

4. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

WANG *et al.* (2016) avaliaram o comportamento e configurações de PSD (Destilação via *Pressure-Swing*) para o binário n-heptano e isobutanol em seu comportamento incomum como azeótropo de mínimo e máximo ponto de ebulição, a depender da pressão, com integração térmica parcial e total, bem como o controle em *Aspen Plus Dynamics*® valendo-se de controle por inferência. De acordo com os resultados, o processo com integração total se mostrou mais viável economicamente e o processo com integração parcial apresentou uma melhor controlabilidade.

O trabalho de CAO *et al.* (2017) apresenta uma comparação entre as metodologias de destilação via PSD e extrativa para o sistema metanol/clorofórmio em colunas de diâmetro variável tanto do ponto de vista econômico, quanto no controle dinâmico em *Aspen Plus Dynamics*®, utilizando controle por inferência. De acordo com os resultados, o uso de colunas de diâmetro variável é mais atrativo para PSD do que para destilação extrativa, sendo economicamente viável e sem haver prejuízos na controlabilidade.

A sequência na qual os produtos devem ser removidos do processo TCPD é importante para definição de um processo viável. ZHU *et al.* (2016) avaliaram uma sequência viável economicamente, em estado estacionário, na separação do ternário acetonitrila/benzeno/metanol com TCPD, utilizando *Aspen Plus*®. A sequência considerada ótima opera com as pressões da primeira e terceira colunas a 6 atm e a segunda coluna a 1 atm com a retirada de produtos na ordem acetonitrila/metanol/benzeno.

Utilizando a metodologia de *Plantwide Control*, LUYBEN (2017) obteve uma estrutura de controle para o mesmo sistema estudado por ZHU *et al.* (2016). Foi desenvolvida uma estrutura que controla uma temperatura para cada coluna, sem a necessidade de medição online da composição.

Visando o uso de integrações térmicas para o mesmo processo, ZHANG *et al.* (2019) avaliam qual a melhor forma de integrar termicamente a configuração de reciclo apresentada por ZHU *et al.* (2017b) sob o ponto de vista econômico. Os autores afirmam que o processo mais viável economicamente utiliza integração térmica parcial integrando as três colunas do processo reduzindo a TAC de $\$8,359 \cdot 10^5$ /ano para $\$6,679 \cdot 10^5$ /ano e reduzindo o consumo energético de 2007,409 kW para 1300,726 kW. Sob o ponto de vista de controle, os autores simularam o processo em *Aspen*

Plus Dynamics® e propuseram uma estrutura de controle que utiliza sensores de composição *online*

Ao estudar o comportamento do ternário tetrahidrofurano/etanol/água bem como uma estrutura de controle *plantwide* utilizando *Aspen Plus Dynamics*® num processo de TCPD, YANG *et al.* (2019) obtiveram a sequência de separação mais viável economicamente (água/etanol/tetrahidrofurano com as pressões das colunas em 0,1; 0,52 e 1 Mpa). A estrutura de controle proposta utiliza controle por inferência com diferença dual de temperatura visando redução de desvios e *offsets* de pureza dos produtos.

Ao trabalhar com o mesmo ternário, WANG *et al.* (2019) testou diferentes configurações para a ordem de separação do sistema utilizando comparações entre a aplicação e não-aplicação de cruzamento de limite de curva ou na integração térmica do processo e analisou a economia obtida através deste método. A configuração mais notável foi a utilizando integração parcial na sequência de separação tetrahidrofurano/água/etanol utilizando a técnica de cruzamento de limite de curva, contudo vale destacar que a metodologia foi comprovada como mais rentável em comparação à não aplicação.

YOU *et al.* (2019) estudaram o binário álcool isopropílico/éter diisopropílico tendo em vista a integração térmica parcial e total, além do uso de pré-aquecimento das alimentações das colunas (HP-PSD) com seus próprios produtos de base como fluidos de aquecimento. Economicamente falando, a utilização da integração térmica total e pré-aquecimento (HP-PSD) forneceram melhores resultados do que a integração parcial e a total apenas, com uma redução de mais de 31% no custo total em relação ao processo convencional.

ZHANG *et al.* (2020) analisaram a controlabilidade em processos de PSD com integração térmica parcial em sistemas de máximo ponto de ebulição (etilenodiamina/água). Os autores observaram o efeito de bola de neve (*snowball*) (situação onde, principalmente em processos com reciclo e integração térmica ocorre um acúmulo dinâmico ou de material ou de energia das quais pode afetar de alguma forma negativamente o processo) e o comportamento de estruturas de controle por inferência a serem utilizadas para reduzir os *offsets* que o acúmulo de material gerado no processo.

Ao comparar num processo TCPD separando água/acetonitrila/isopropanol diversas técnicas de redução de gasto energético e de emissão de gases nocivos,

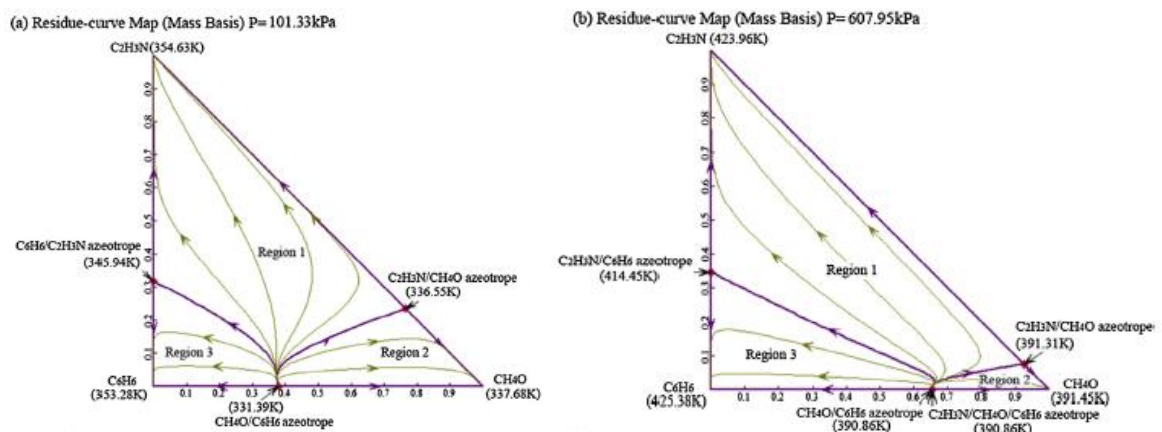
WANG *et al.* (2021) realiza uma investigação a fundo em tal cenário, obtendo como sequência de retirada de produtos água/acetonitrila/isopropanol e utilizando-se de técnicas como integrações térmicas, bombas de calor e rede de trocadores de calor, nota-se que há uma redução de 57,59% na TAC ao comparar o processo utilizando tripla bomba de calor e rede de trocadores de calor (considerado o de custo mais baixo e menores emissões) com o que utiliza apenas a rede de trocadores de calor (considerado o mais alto em custos).

5. SIMULAÇÃO EM REGIME ESTACIONÁRIO

5.1. CASO ESTUDADO

O processo TCPSD (*Triple-Column Pressure-Swing Distillation*), para a separação da mistura ternária de acetonitrila/metanol/benzeno, foi utilizado como estudo de caso para o desenvolvimento deste trabalho, tomando com o base o trabalho de ZHANG *et al.* (2019). A Figura 5 apresenta os diagramas ternários da mistura acetonitrila/metanol/benzeno, em diferentes pressões, onde é possível observar a formação de azeótropos. Como pode ser notado na mesma, os azeótropos formados nessa mistura são sensíveis à mudança de pressão, principalmente pela redução da Região 2 ao aumentar a pressão de 1 para 6 atm, logo, a TCPSD é uma possibilidade.

Figura 5: Diagramas ternários da mistura A-M-B



FONTE: ZHU *et al.* (2016)

5.2. SIMULAÇÃO DO PROCESSO

Para a simulação estacionária, utilizou-se a rotina *Radfrac* para as três colunas de destilação, visto que é uma rotina robusta, possuindo grande verossimilhança com as colunas de destilação reais no que diz respeito aos dados gerados. O fluxograma utilizado como base deste trabalho é apresentado na Figura 6. Para aumento de pressão, valeu-se do uso de bombas e para a redução, válvulas. A simulação base utilizou um *Splitter* para dividir o destilado da coluna de baixa pressão na proporção

mássica 6 para 4, onde 40% retorna, juntamente com o destilado total da terceira coluna, utilizando a rotina *Mixer* (havendo o uso de uma bomba para igualar a pressão), para a 1ª coluna.

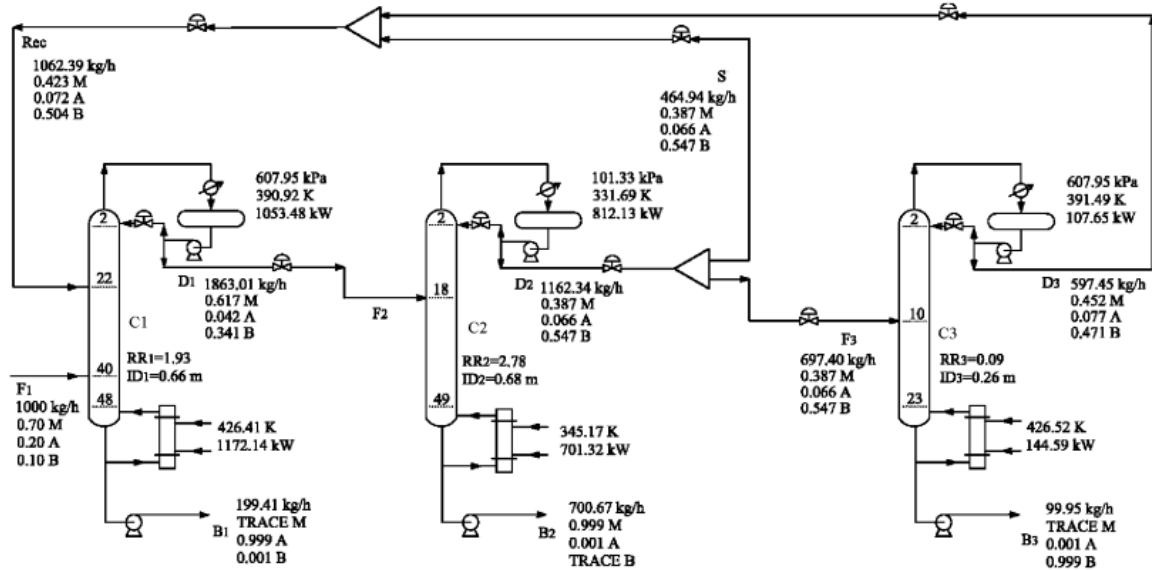
ZHU *et al.* (2016) realizaram um estudo de qual seria a ordem de separação dos componentes da mistura e quais as pressões de operação de cada uma das colunas do processo para obter composições de base, visto que são todos azeótropos de mínimo ponto de ebulição, em 99,9%. ZHU *et al.* (2016) também se valeram de parâmetros de interação a partir de regressão para o modelo termodinâmico de Wilson, utilizado em toda a sequência de trabalhos com o sistema apresentado, tal qual apresentado na Tabela 1.

Tabela 1: Parâmetros de interação via regressão para o método de Wilson

Parâmetro de Interação	CH_4O/C_2H_3N	CH_4O/C_6H_6	C_2H_3N/C_6H_6
A_{ij}	0	-9,70	0
A_{ji}	0	5,07	0
B_{ij}	-97,08	2399,15	-233,59
B_{ji}	-262,83	-1965,61	-179,20
C_{ij}	0	0	0
C_{ji}	0	0	0

FONTE: ZHU *et al.* (2016)

Figura 6: Fluxograma AMB de TCPSD com reciclo modificado



FONTE: ZHU *et al.* (2017b)

6. SIMULAÇÃO EM REGIME TRANSIENTE

6.1. PROCEDIMENTOS DE DIMENSIONAMENTO

Para realizar a exportação para o regime transiente, utilizou-se o modo *Flow Driven* que utiliza as vazões das correntes como variáveis manipuladas na simulação dinâmica.

Neste trabalho, o controle de composição das correntes de produto será feito por inferência. Para isto, faz-se necessário determinar quais estágios das colunas deverão ter a temperatura controlada, de modo a manter o perfil de temperatura da coluna. Para a definição destas variáveis, foi utilizado o critério da sensibilidade, proposta por LUYBEN *et al.* (2013).

6.2. DEFINIÇÃO DA ESTRUTURA DE CONTROLE

As estruturas de controle propostas neste trabalho foram definidas com base na literatura, mais especificamente, a partir dos trabalhos de LUYBEN (2017) e ZHANG *et al.* (2019), utilizando controle *plantwide*. A avaliação das estruturas de controle foi realizada aplicando distúrbios do tipo degrau na alimentação, conforme apresentado na Tabela 2, onde nos distúrbios de composição os valores dos demais componentes foram calculados de forma a compensar proporcionalmente o ganho ou perda de matéria da acetonitrila. Com o objetivo de enfatizar a eficácia do controle por inferência, os distúrbios foram aplicados em malha aberta e em malha fechada de controle de temperatura.

Tabela 2: Valores dos distúrbios efetuados

Natureza do distúrbio	Fluxo (kg/hr)	Composição (wt/wt)		
		Acetonitrila	Metanol	Benzeno
Neutro	1000	20%	70%	10%
Positivo	1100	25%	65,625%	9,375%
Negativo	900	15%	74,375%	10,625%

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Com tais distúrbios produzidos após uma hora de simulação, foi possível obter as respostas dinâmicas das composições dos produtos-chave de cada corrente de

base, valores das temperaturas dos estágios controlados, níveis dos vasos de refluxo e *sump* e pressão de topo de cada uma das colunas.

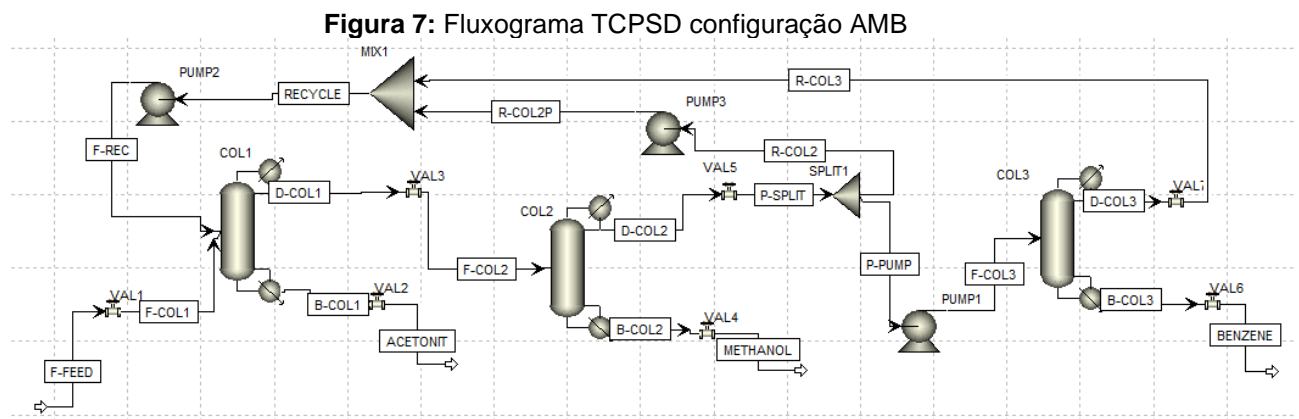
Outro resultado também obtido com tais distúrbios foi o cálculo do ISE (Integral do Erro Quadrático) que mede o quão distante está a composição dos produtos-chave dos valores de referência. A partir de tais valores, torna-se possível avaliar de maneira quantitativa qual estrutura de controle gerou melhor resultado diante dos distúrbios aplicados.

Além dos valores de ISE, também foram obtidos os valores das composições dos produtos após a simulação atingir novo estado estacionário. A avaliação conjunta dos valores de ISE e composição final dos produtos contribui para uma conclusão mais assertiva sobre qual estrutura de controle é mais eficaz.

7. RESULTADOS E DISCUSSÕES

7.1. SIMULAÇÃO EM REGIME ESTACIONÁRIO

A Figura 7 apresenta o fluxograma simulado no Aspen Plus, baseado no trabalho de ZHU *et al.* (2017b). Os principais dados operacionais das colunas e composições das correntes da Figura 7 estão apresentados nas Tabelas 3 e 4.



FONTE: PRÓPRIO AUTOR.

Tabela 3: Dados de cargas térmicas e razão de refluxo das colunas

Equipamento	Carga Térmica (kW)		Razão de Refluxo
	Refrvedor	Condensador	
Coluna 1	1119,7	-1021,91	1,83072
Coluna 2	804,009	-908,759	3,2
Coluna 3	141	-102,441	0,0291359

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Tabela 4: Composições e vazões das correntes de processo

Corrente	F-FEED	D-COL1	ACETONIT	D-COL2	METHANOL	D-COL3	BENZENE
Metanol	0,7000	0,6143	0,0000	0,3841	0,9991	0,4478	0,0000
Acetonitrila	0,2000	0,0408	0,9992	0,0646	0,0009	0,0752	0,0010
Benzeno	0,1000	0,3449	0,0008	0,5513	0,0000	0,4770	0,9990
Vazão (kg/hr)	1000,00	1871,68	199,41	1171,01	700,67	602,66	99,95

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Após alcançar as especificações de produto, conforme verificado na Tabela 4, pode-se iniciar os procedimentos para obtenção do modelo em regime transiente. A

partir dos cálculos de hidráulica das colunas, realizados pelo próprio Aspen Plus, foram obtidos os valores das vazões internas, utilizados para os cálculos dos volumes dos vasos de refluxo e *sumps* das colunas. Os diâmetros das colunas foram calculados utilizando a ferramenta *Column's Internals*, do Aspen Plus®.

Valendo-se das metodologias estabelecidas por LUYBEN e CHIEN. (2010), e usando um tempo de *hold up* de 5 minutos, tal qual também definido pela literatura, foram obtidos os valores para as dimensões dos vasos de refluxo e *sumps* mostrados na Tabela 5.

Tabela 5: Dimensões dos *sumps* e vasos de refluxos.

Coluna	Coluna 1		Coluna 2		Coluna 3	
Equipamento	Sump	Vaso de refluxo	Sump	Vaso de refluxo	Sump	Vaso de refluxo
Diâmetro (m)	0,625174	0,924144	0,73	0,862355	0,252647	0,448922
Altura (m)	5,574801	1,848287	1,848216	1,724711	7,5037324	0,8978436

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

7.2. DIMENSIONAMENTO E ESTRATÉGIAS DE CONTROLE

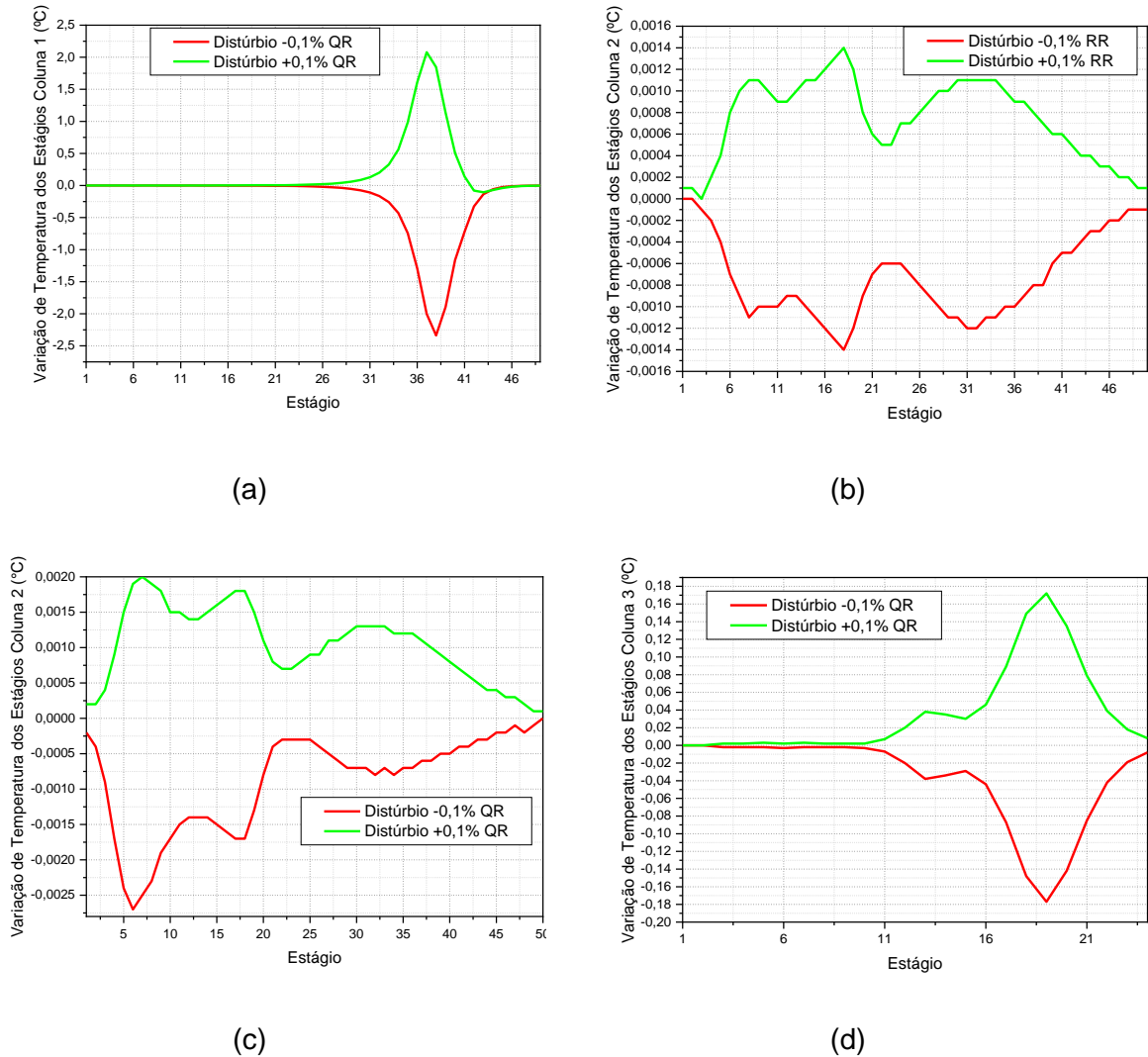
O modelo obtido em regime estacionário, apresentado na Figura 7, foi utilizado para determinação das variáveis controladas, mais especificamente, os estágios para controle de temperatura, utilizando o critério da sensibilidade citado por LUYBEN (2006).

Valendo-se do fluxograma simulado em estado estacionário, foram registrados os perfis de temperatura das colunas 1, 2 e 3, e foram aplicados distúrbios positivos e negativos de 0,1% no valor da variável manipulada de cada coluna (carga térmica do *reboiler* nas colunas 1, 2 e 3 e razão de refluxo na coluna 2). Os resultados obtidos estão apresentados na Figura 8.

Observa-se na Figura 8(a) que o estágio selecionado para controle de temperatura da Coluna 1 é 38°. Avaliando a Figura 8(b), a metodologia indica o estágio 18 ou o 19 para controle de temperatura da Coluna 2, manipulando a razão de refluxo. Contudo por se tratar de estágios próximos à alimentação, optou-se por controlar a soma das temperaturas dos estágios 8 e 31. De acordo com a Figura 8(c), o 6° estágio é o indicado para o controle de temperatura da Coluna 2 utilizando a carga do

refervedor como variável manipulada, e para a Coluna 3, o 18° estágio é o indicado, conforme Figura 8(d).

Figura 8: Variação de temperatura na Colunas 1 (a), Coluna 2 (b) e (c) e Coluna 3 (d)



FONTE: PRÓPRIO AUTOR

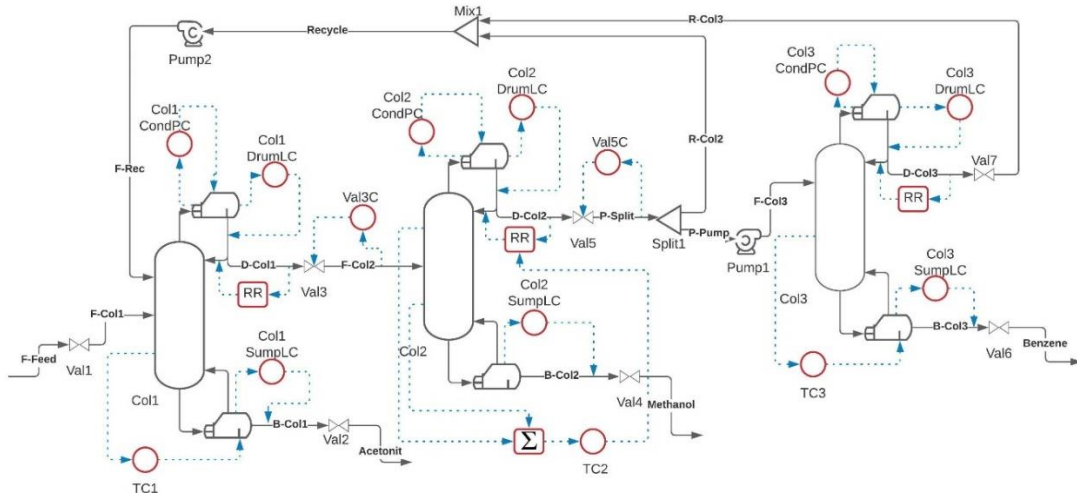
Sendo assim, propõe-se duas estruturas de controle onde a diferença majoritária se dá no controle da segunda coluna: a Estrutura de Controle 1 utiliza um controle de soma de temperatura dual nos estágios 8 e 31 manipulando a razão de refluxo, baseado no trabalho de YANG *et al.* (2019), com a finalidade de reduzir desvios e aumentar a velocidade de resposta, que já se espera ser mais lenta ao se comparar com as demais colunas do processo. A Estrutura de Controle 2 utilizará uma malha de controle de temperatura do estágio 6 manipulando a carga térmica do *reboiler*.

7.3. AVALIAÇÃO DAS ESTRUTURAS DE CONTROLE

7.3.1. Implementação das Estruturas de Controle

Uma vez selecionadas as variáveis controladas (temperatura dos pratos sensíveis) e suas respectivas variáveis manipuladas, deve-se estabelecer como serão as demais malhas de controle do processo (vazão, pressão e nível). Com esse intuito, baseando-se no que já havia na literatura (ZHANG *et al.*, 2019 e YANG *et al.*, 2019), construiu-se a Estrutura de Controle 1, apresentada na Figura 9.

Figura 9: Estrutura de Controle 1 utilizada para TCPSD



FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Os controladores auxiliares (fixando as razões de refluxo das Colunas 1 e 3 e utilizando vazão de refluxo (L) com o variável manipulada), seguem as conclusões de SKOGESTAD (2006) que utiliza uma configuração de controle LV nas colunas 1 e 3, visto que ambas se valem de controle direto nas cargas térmicas dos *reboilers* (indiretamente, V) e possuem um controle proporcional na vazão de refluxo (L), enquanto na coluna 2, somente os controladores padrões de pressão, nível e o controle somatório de temperatura, manipulando a razão de refluxo, foram utilizados.

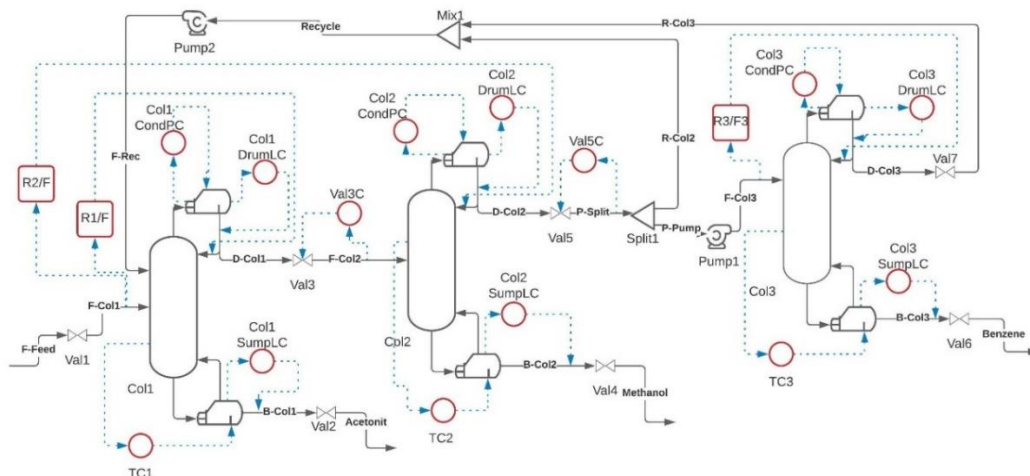
Após a implementação dos controladores, foi realizada a sintonia dos parâmetros. Os dados de sintonia dos controladores se encontram na Tabela 6.

Tabela 6: Parâmetros dos controladores da Estrutura de Controle 1.

	TC1	TC2	TC3	VALC3	VALC5
Variável Controlada	$T_{1,38}$	$T_{2,8} + T_{2,31}$	$T_{3,19}$	P_{F-COL2}	$P_{P-SPLIT}$
Variável Manipulada	Q_{R1}	RR_2	Q_{R3}	Abertura Válvula	Abertura Válvula
Alcance de Transmissor	0-260,64 °C	0-267,47 °C	0-299,94 °C	0-2,38 bar	0-1,02 bar
Alcance de Saída de Controlador	0-2239,41 kW	0-6,4	0-282 kW	0-100%	0-100%
Ganho	0,460734	17,088127	1,589999	0,167951	0,586965
Tempo Integrativo (min)	5,674658	7,879293	3,026681	1,200062	1,200132
Tempo Derivativo (min)	0,559699	0,926067	0,270265	0,300015	0,300033

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Para a Estrutura de Controle 2, seguiu-se estritamente o trabalho de LUYBEN (2017) para fins comparativos com algo já existente na literatura. A Figura 10 abaixo ilustra a Estrutura de Controle 2.

Figura 10: Estrutura de Controle 2 para TCPSD

FONTE: PRÓPRIO AUTOR.

A Estrutura de Controle 2 utilizou como sistema secundário de controle esquemas de razão alimentação/refluxo, relacionando a alimentação do processo com as colunas 1 e 2 e na coluna 3 com a alimentação da mesma. A única diferenciação para o trabalho de LUYBEN (2017) se dá pelo fato de haver um controle por inferência nas composições, sem o uso de analisadores *online*. Mas a característica geral da estrutura se mantém. Os dados de sintonia dos parâmetros dos controladores da Estrutura de Controle 2 estão apresentados na Tabela 7 abaixo.

Tabela 7: Parâmetros dos controlados da Estrutura de Controle 2.

	TC1	TC2	TC3	VALC3	VALC5
Variável Controlada	$T_{1,38}$	$T_{2,6}$	$T_{3,19}$	P_{F-COL2}	$P_{P-SPLIT}$
Variável Manipulada	Q_{R1}	Q_{R2}	Q_{R3}	Abertura Válvula	Abertura Válvula
Alcance de Transmissor	0-260,65 °C	0-125,71 °C	0-299,94 °C	0-2,38 bar	0-1,02 bar
Alcance de Saída de Controlador	0-2239,41 kW	0-1777,78 kW	0-282 kW	0-100%	0-100%
Ganho	0,456878	2,99734	0,475199	0,167951	0,586965
Tempo Integrativo (min)	5,684315	6,205248	12,128418	1,200062	1,200132
Tempo Derivativo (min)	0,561136	0,544014	2,936256	0,300015	0,300033

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Para os controladores de pressão e nível, utilizou-se para ambas as malhas os valores referenciados por LUYBEN (2013). Em controladores do tipo PI para pressão e P para nível, apresentados na Tabela 8.

Tabela 8: Parâmetros dos Controladores de Nível e Pressão.

Controladores	Nível	Pressão
Ganho	20	2
Tempo Integrativo (min)	12	9999

FONTE: LUYBEN (2013)

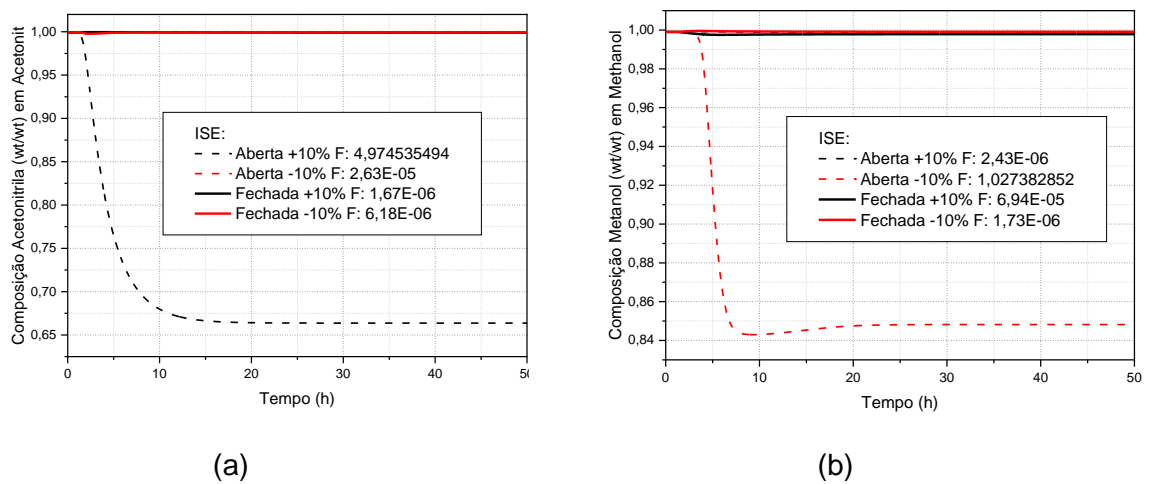
7.3.2. Avaliações das Estruturas de Controle

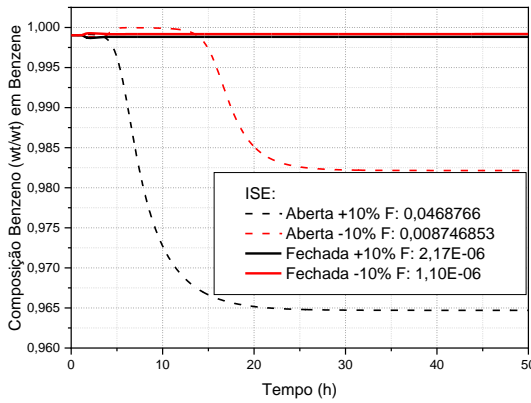
Este tópico apresenta os resultados (respostas dinâmicas) das principais variáveis controladas do processo, mais especificamente, composição dos produtos e temperatura dos pratos sensíveis, após aplicação dos distúrbios na alimentação. Os resultados foram divididos de acordo com a estrutura de controle e os tipos de distúrbios. Os valores de ISE serão discutidos no final do tópico, ao comparar as estruturas de controle.

- Estrutura de Controle 1: Distúrbio na Vazão de Alimentação

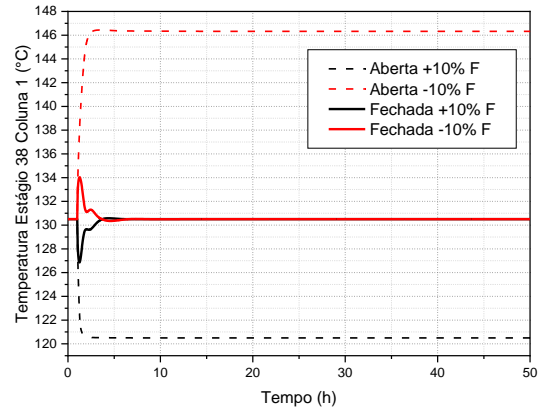
Ao introduzir os distúrbios de vazão no processo TCPSP com Estrutura de Controle 1, foram geradas as respostas dinâmicas da composição referentes aos produtos de base e temperaturas dos pratos sensíveis. Estes resultados estão apresentados na Figura 11.

Figura 11: Respostas dinâmicas após distúrbios de vazão - Estrutura de Controle 1

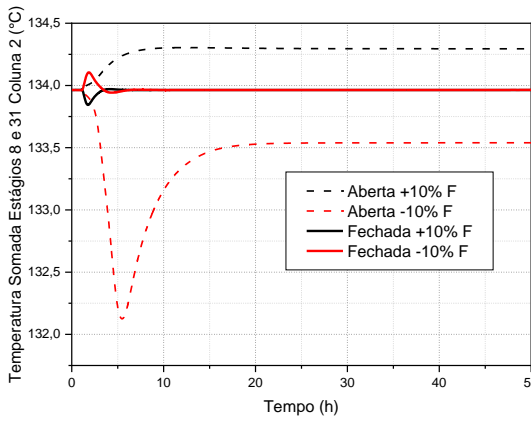




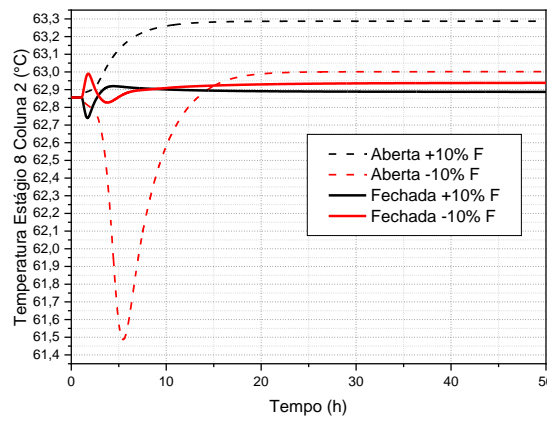
(c)



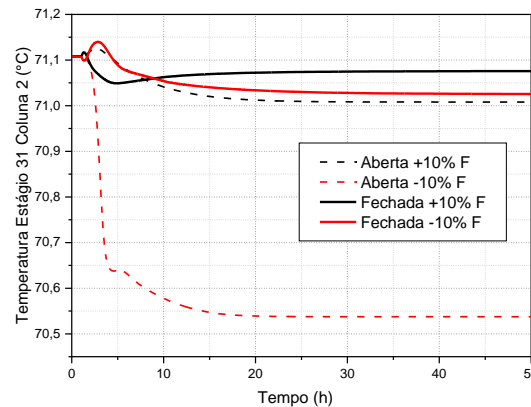
(d)



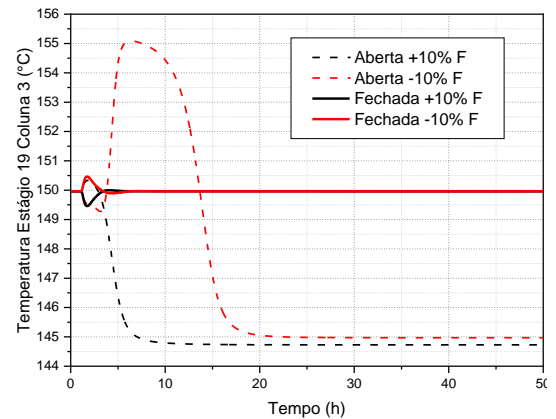
(e)



(f)



(g)



(h)

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Avaliando as Figuras 11a, 11b e 11c, é notável que o controle por inferência (malha fechada de temperatura) foi capaz de manter a pureza dos produtos de interesse próximos aos respectivos valores de referência. Após aplicação dos

distúrbios, as temperaturas dos pratos sensíveis levam um certo tempo para atingir o *setpoint* e, com isso, o sistema alcançar novamente o estado estacionário. Por se tratar de controle por inferência, os valores das composições dos produtos irão apresentar desvios em relação aos valores nominais, após o sistema atingir novamente o estado estacionário. A partir dos gráficos apresentados na Figura 11 não é possível quantificar estes desvios da composição, no entanto, observou-se nos históricos da simulação que o maior desvio resultou em uma composição de 0,99788 para o metanol, após distúrbio positivo na vazão, ao atingir 50 horas de simulação.

Ao avaliar as Figuras 11d, 11e e 11h observam-se rápidas respostas dos controladores, levando em média 3 horas para estabilizar os valores da variável controlada. Contudo, ao observar a decomposição da variável da Figura 11e, representada nas Figuras 11f e 11g, nota-se uma compensação entre ambas em malha fechada, onde uma tende a reduzir seu valor para compensar o ganho de valor da outra parte. O objetivo da malha de controle que gerou a Figura 11e é controlar o somatório das temperaturas dos estágios 8 e 31 da Coluna 2. Por este motivo, observa-se *offset*, após distúrbio em malha fechada, nas Figuras 11f e 11g.

As respostas dinâmicas referentes aos controladores de pressão e nível encontram-se no ANEXO A. É importante destacar a baixa variação nas pressões das colunas durante os distúrbios. Os níveis dos vasos de refluxo e *sumps* das colunas apresentam *offsets*, em malha fechada, devido ao uso de controlador apenas proporcional.

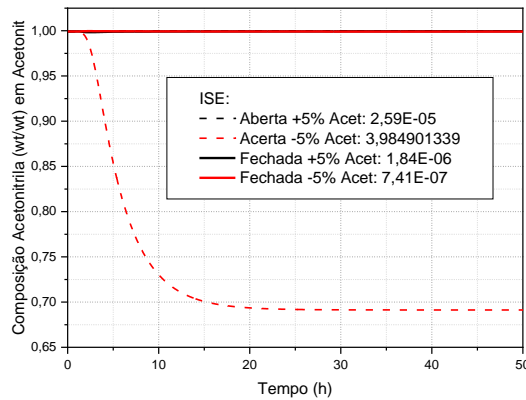
A Estrutura de Controle 1 gerou resultados satisfatórios, atingindo o objetivo principal de manter as composições dos produtos próximos aos respectivos valores de referência.

- Estrutura de Controle 1: Distúrbio na Composição da Alimentação

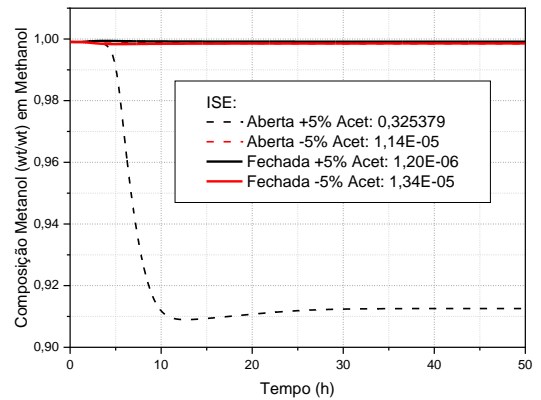
A Figura 12 apresenta as respostas dinâmicas após distúrbios na composição de alimentação do processo TCPD. Ao avaliar as respostas dinâmicas em malha aberta de temperatura, percebe-se nitidamente a influência dos distúrbios de composição na pureza dos produtos. Percebe-se também que esta influência diminui ao longo do processo, ou seja, a influência maior é observada na Coluna 1, na qual a composição da acetonitrila cai para aproximadamente 0,7, seguido da Coluna 2, onde a composição do metanol cai para aproximadamente 0,91, e finalmente, na Coluna 3,

onde a composição de benzeno cai para aproximadamente 0,97 (em base mássica). Esta mesma tendência é observada na Figura 11, com a redução da influência do distúrbio de vazão ao longo do processo.

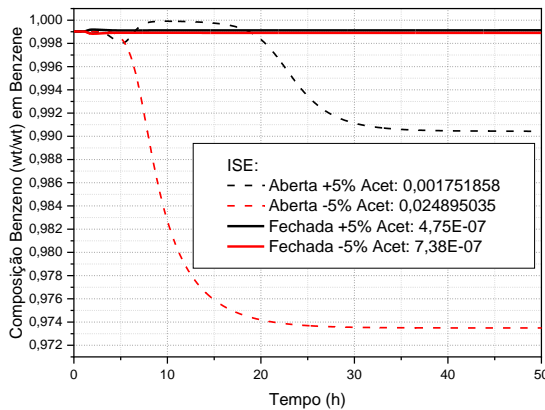
Figura 12: Respostas dinâmicas após distúrbios de composição - Estrutura de Controle 1



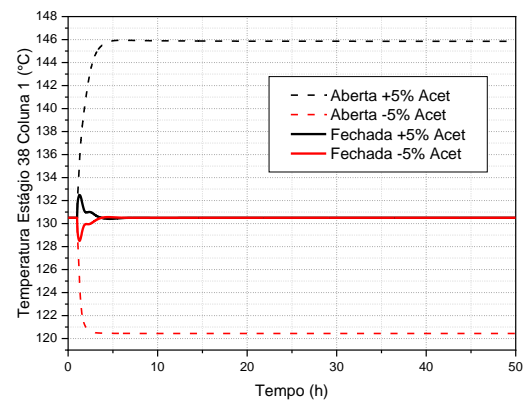
(a)



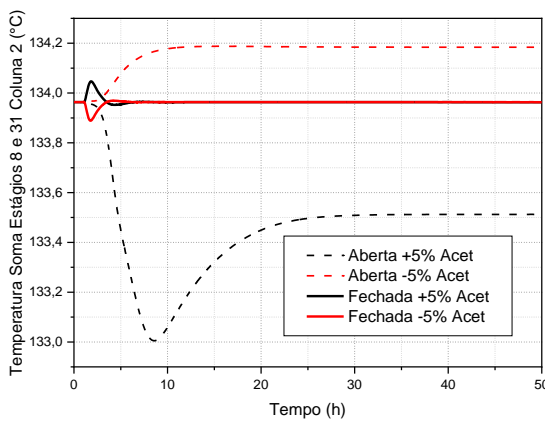
(b)



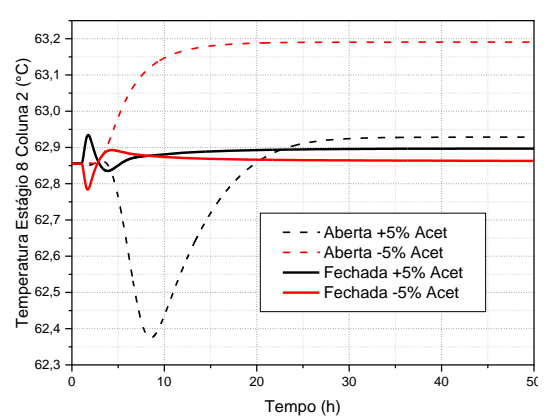
(c)



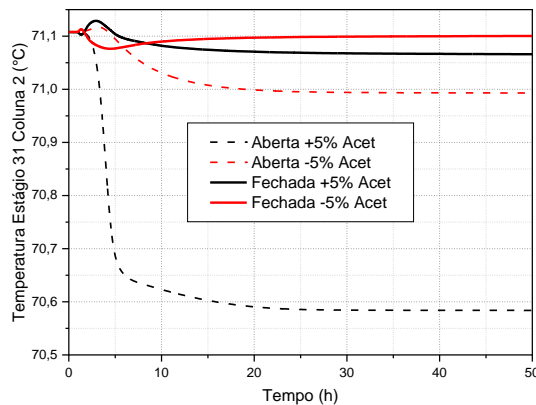
(d)



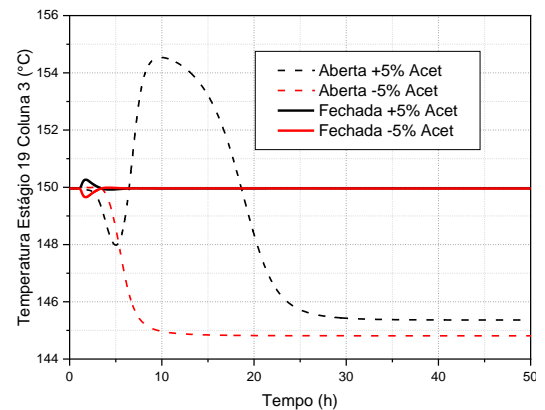
(e)



(f)



(g)



(h)

FONTA: PRÓPRIO AUTOR

Avaliando os históricos das simulações referentes as Figuras 12a, 12b e 12c, observou-se, em malha fechada, que o menor valor encontrado, após atingir novo estado estacionário, foi para o metanol com uma composição 0,998; após distúrbio negativo de composição. As composições da acetonitrila e benzeno permaneceram mais próximos dos valores da especificação (0,999). Estes resultados indicam que a Estrutura de Controle 1 é capaz de realizar um bom controle por inferência da composição dos produtos.

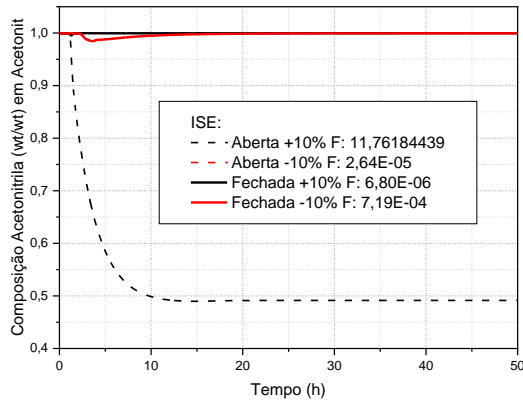
Avaliando as Figuras 12d, 12e e 12h, nota-se tempos de estabilização inferiores a 3 horas, com um comportamento de compensação observado nas Figuras 12f e 12g, tal qual no distúrbio anterior (vazão).

As respostas dinâmicas referentes aos controles de pressão e nível se encontram no ANEXO B, com respostas muito semelhantes às apresentadas no distúrbio anterior para a mesma estrutura de controle. O controle proporcional foi suficiente para manter os níveis dos *sumps* e vasos de refluxo próximos dos respectivos *setpoints*, não sendo observado esvaziamento e nem transbordamento.

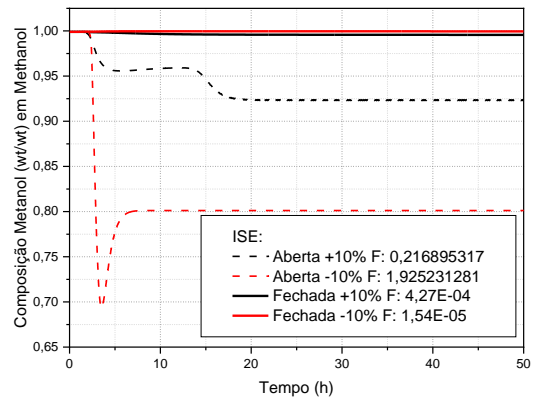
- Estrutura de Controle 2: Distúrbio na Vazão de Alimentação

As repostas dinâmicas das composições dos produtos e temperaturas dos pratos sensíveis, para o sistema TCPSD utilizando a Estrutura de Controle 2, estão apresentadas na Figura 13.

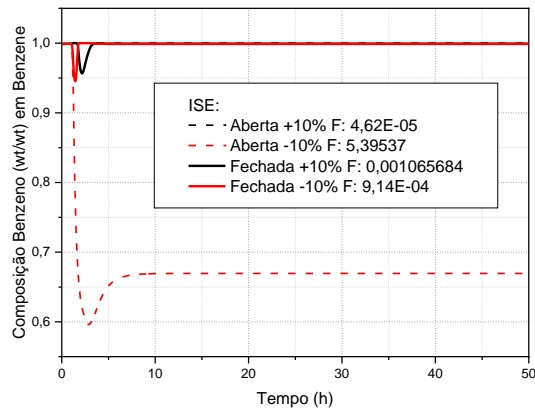
Figura 13: Respostas dinâmicas após distúrbios de vazão - Estrutura de Controle 2



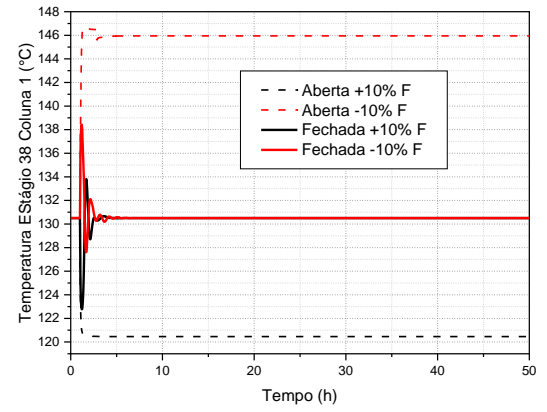
(a)



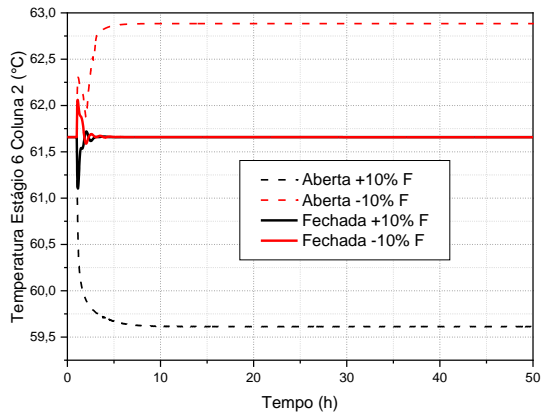
(b)



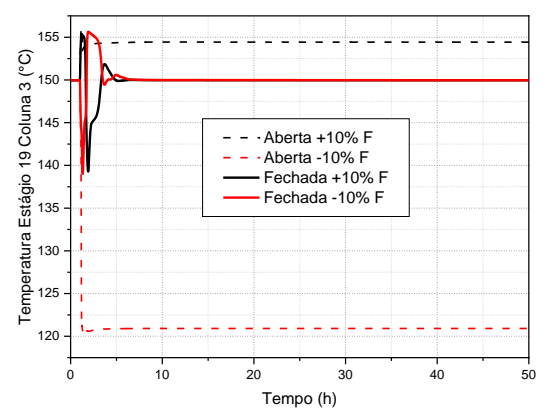
(c)



(d)



(e)



(f)

FONTES: PRÓPRIO AUTOR

Ao avaliar as respostas dinâmicas referentes às composições (Figuras 13a, 13b, e 13c) nota-se a ocorrência de pequenos *overshoots*, após distúrbios em malha fechada de temperatura; em especial no distúrbio negativo, na composição de

acetonitrila, e em ambos os distúrbios, na composição de benzeno; que irão afetar o valor final do ISE calculado, apesar de o menor valor de composição apresentado, após atingir estado estacionário em malha fechada, ter sido de 0,995656 para o metanol após distúrbio positivo. Observou-se um comportamento semelhante nos distúrbios de malha aberta negativos no metanol e no benzeno, provavelmente causado pela completa secagem do vaso de *sump* das colunas 1 e 3 observado durante a simulação.

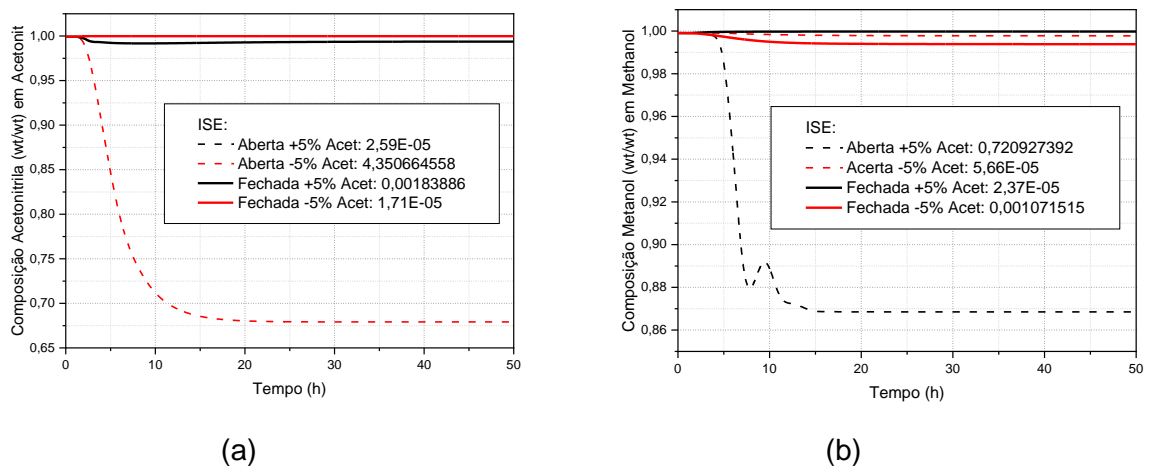
No que diz respeito ao controle de temperatura, evidenciado nas Figuras 13d, 13e e 13f, observou-se um tempo médio de 4,5 horas para a estabilização, sendo um tempo médio superior ao observado na Estrutura de Controle 1, após aplicação do mesmo tipo de distúrbio.

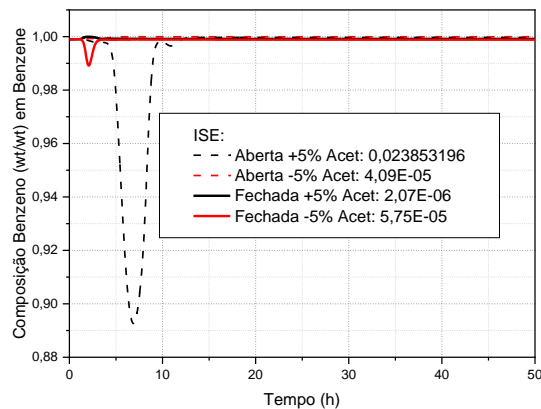
Nas respostas dos controladores de pressão e nível, presentes no ANEXO C, além da secagem de dois vasos de *sump* em um dos distúrbios, observou-se também no distúrbio de malha aberta positivo, o transbordamento do vaso *sump* da coluna, bem como picos repentinos e efeitos oscilatórios na pressão das colunas 2 e 3 após mesmo distúrbio.

- Estrutura de Controle 2: Distúrbio na Composição da Alimentação

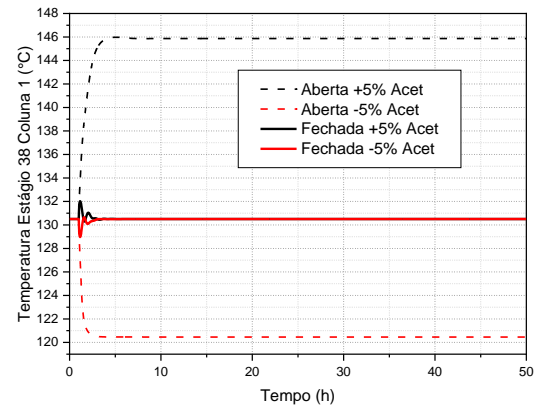
Após aplicação de distúrbios de composição no sistema utilizando a Estrutura de Controle 2, foram geradas as respostas dinâmicas apresentados na Figura 14.

Figura 14: Respostas dinâmicas após distúrbios de composição - Estrutura de Controle 2

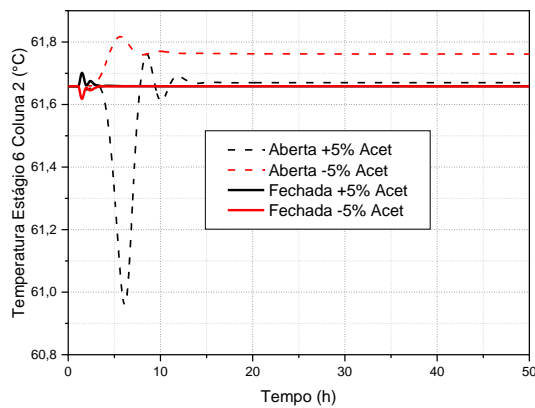




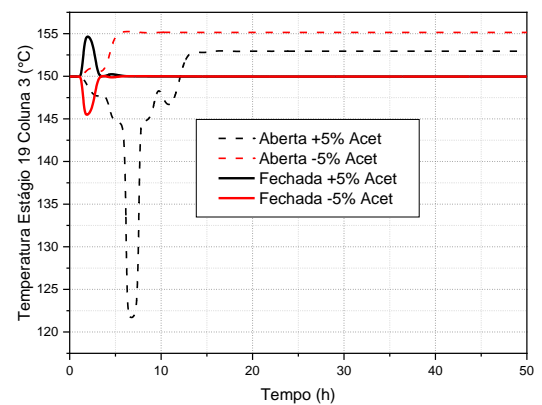
(c)



(d)



(e)



(f)

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Ao avaliar as respostas apresentadas na Figura 14 referentes à composição dos produtos (Figuras 14a, 14b e 14 c), observam-se desvios pequenos em relação aos valores nominais. Analisando os históricos das simulações, a composição da acetonitrila apresentou o menor desvio após atingir estado estacionário, em malha fechada de temperatura, com um valor de 0,993772 após distúrbio positivo. Para malha fechada após distúrbio negativo, a composição do metanol estabilizou em 0,993829 em um tempo relativamente longo (aproximadamente 16 horas).

O pequeno *overshoot* apresentado pela composição de benzeno no distúrbio negativo em malha fechada pode ser considerado insignificante, contudo, pode interferir no valor do ISE.

Ao avaliar as Figuras 14d, 14e e 14f, nota-se que em menos de 3 horas de simulação as temperaturas estão estabilizadas em malha fechada. Entretanto, no distúrbio positivo em malha aberta, nas colunas 2 e 3, observou-se um *overshoot* de

temperatura considerável que pode ser explicado ao observar os gráficos referentes às pressões das mesmas colunas no ANEXO D, pois há uma pequena instabilidade nas pressões que não foi vista de forma tão expressiva em outros distúrbios em malha aberta.

Ao observar as respostas da Estrutura de Controle 1, no que diz respeito ao controle de temperatura da coluna 2, observa-se, tanto no distúrbio de vazão quanto no de composição respostas mais suaves e com menos oscilações em relação ao apresentado pela Estrutura de Controle 2 para o mesmo equipamento.

- Avaliação da Integral do Erro Quadrático (ISE)

Após avaliar o desempenho das estruturas de controle, de forma qualitativa, a partir das respostas dinâmicas, o uso do ISE permite avaliar qual a melhor estrutura de controle de forma quantitativa. Os menores valores de ISE ajudarão a decidir, entre as duas Estruturas de Controle analisadas, a que tem o melhor desempenho em termos de obtenção dos produtos com composições próximas aos valores de referência. Para uma melhor visualização, os resultados de ISE obtidos estão sumarizados na Tabela 9.

Tabela 9: Valores de ISE referentes às Estruturas de Controle 1 e 2

		Estrutura de Controle 1				Estrutura de controle 2		
		Distúrbio	Acetonit	Metanol	Benzeno	Acetonit	Metanol	Benzeno
Distúrbios vazão	Malha	Positivo	4,974	2,43E-06	0,047	11,762	0,217	4,62E-05
	Aberta	Negativo	2,63E-05	1,027383	0,0087	2,64E-05	1,925	5,395
	Malha	Positivo	1,67E-06	6,94E-05	2,17E-06	6,80E-06	4,27E-04	0,0011
	Fechada	Negativo	6,18E-06	1,73E-06	1,10E-06	7,19E-04	1,54E-05	9,14E-04
Distúrbios composição	Malha	Positivo	2,59E-05	0,325	0,0017	2,59E-05	0,721	0,024
	Aberta	Negativo	3,985	1,14E-05	0,025	4,351	5,66E-05	4,09E-05
	Malha	Positivo	1,84E-06	1,20E-06	4,75E-07	0,0018	2,37E-05	2,07E-06
	Fechada	Negativo	7,41E-07	1,34E-05	7,38E-07	1,71E-05	0,0011	5,75E-05

FONTE: PRÓPRIO AUTOR

Ao avaliar os dados apresentados na Tabela 9, observa-se que Estrutura de Controle 1 tem uma tendência a gerar desvios menores em relação à Estrutura de

Controle 2, com exceção do distúrbio de composição em malha aberta negativo para o benzeno e duas igualdades em malha aberta de temperatura para a acetonitrila em distúrbio de vazão negativo e composição positivo. Entretanto, o interesse principal é na resposta obtida em malha fechada de temperatura. De modo geral, ambas as Estruturas de Controle apresentaram bons resultados.

É importante salientar que a presença de *overshoots*, após aplicação dos distúrbios, pode interferir no valor final do ISE. Sendo assim, os valores das composições, após atingir novamente o estado estacionário, é um parâmetro que também deve ser levado em consideração para se determinar qual a melhor estrutura de controle, haja visto que o controle por inferência não é capaz de eliminar o desvio da composição após o distúrbio. Entretanto, o tempo de simulação de 50 horas utilizado neste trabalho ajuda a minimizar a influência dos *overshoots* nos valores de ISE.

- Avaliação das composições ao atingir estado estacionário após distúrbios

Os valores das composições dos produtos, após as simulações atingirem estado estacionário, estão sumarizados na Tabela 10.

Tabela 10: Valores finais de composição mássica dos produtos referentes às Estruturas de Controle 1 e 2

		Estrutura de Controle 1			Estrutura de Controle 2			
		Distúrbio	Acetonit	Metanol	Benzeno	Acetonit	Metanol	Benzeno
Distúrbios vazão	Malha	Positivo	0,66373	0,99876	0,9647	0,49148	0,92349	1
	Aberta	Negativo	0,99999	0,84822	0,98214	0,99999	0,80115	0,66945
	Malha	Positivo	0,99903	0,99788	0,99882	0,99956	0,99566	0,9989
	Fechada	Negativo	0,99951	0,99912	0,99918	0,99943	0,99956	0,99915
Distúrbios composição	Malha	Positivo	0,99998	0,91258	0,99043	0,99999	0,86853	0,99971
	Aberta	Negativo	0,6913	0,99845	0,97349	0,67913	0,99776	0,99997
	Malha	Positivo	0,99938	0,99913	0,99913	0,99377	0,99975	0,99917
	Fechada	Negativo	0,99913	0,99854	0,99891	0,99985	0,99383	0,99888

FONTE: PRÓPRIO AUTOR.

Um ponto de destaque ao avaliar a Tabela 10 é a constatação de que ambas as estruturas de controle mantêm valores de composição de produtos próximos da especificação (considerando a alta pureza necessária e o uso de controle por inferência).

Ao avaliar os valores das composições para distúrbios em malha fechada, observa-se os maiores desvios (valores destacados em negrito na Tabela 10) no sistema que utiliza a Estrutura de Controle 2, mais especificamente, na composição do metanol após distúrbio positivo na vazão e após distúrbio negativo na composição, bem como para a acetonitrila, após distúrbio positivo na vazão.

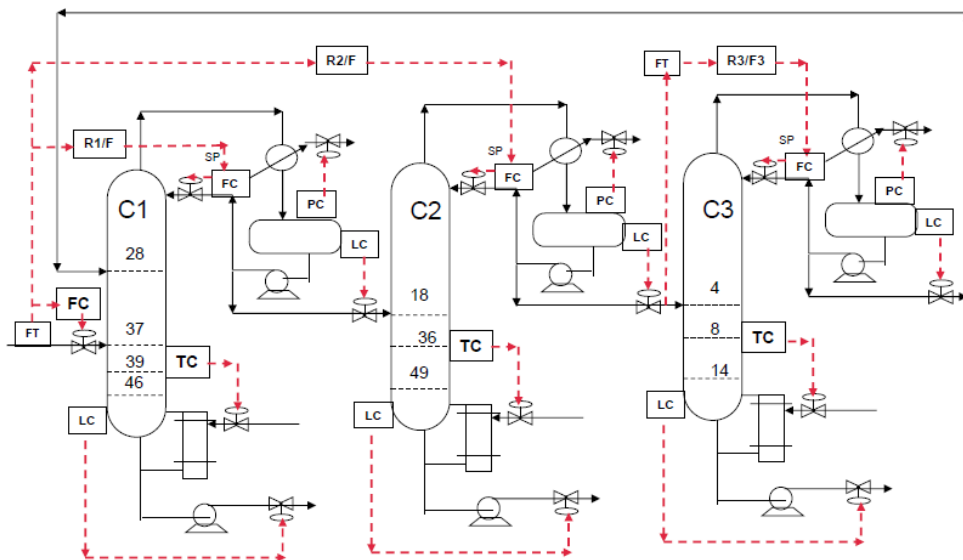
Os resultados apresentados na Tabela 10 corroboram com a conclusão obtida após avaliar os valores de ISE, ou seja, a Estrutura de Controle 1 tende a controlar melhor a composição dos produtos.

Ainda avaliando os resultados da Tabela 10, pode-se concluir que a malha de controle de soma de temperatura dual da coluna 2, utilizada na Estrutura de Controle 1, não só foi capaz de proporcionar um melhor controle da composição do metanol, como de certo modo contribuiu para o melhor controle de composição também da Coluna 1, mais especificamente, a composição da acetonitrila após distúrbio positivo na composição.

- Comparação entre resultados de estruturas de controle utilizando controle direto (encontrado na literatura) e utilizando controle por inferência

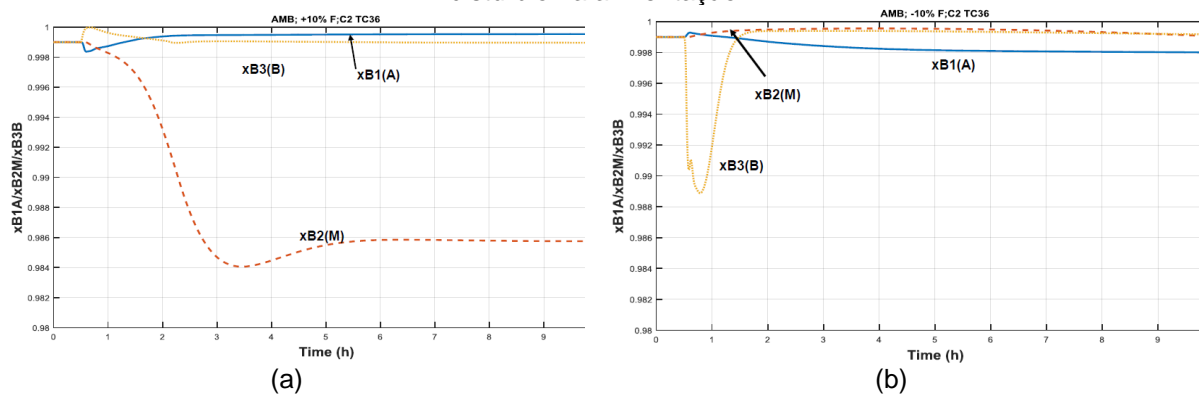
Visando a comparação das estruturas de controle por inferência e controle direto, utilizou-se como referência uma das estruturas de controle do trabalho de LUYBEN (2017) apresentada na Figura 15, no qual foram aplicados distúrbios de 10%, positivos e negativos, na alimentação do processo, para uma simulação de 10 horas. Foram obtidos os gráficos apresentados nas Figuras 16a para o distúrbio de + 10% e 16b para o distúrbio de -10%, respectivamente.

Figura 15: Estrutura de controle proposta por Luyben (2017) utilizando controle direto



FONTE: LUYBEN (2017)

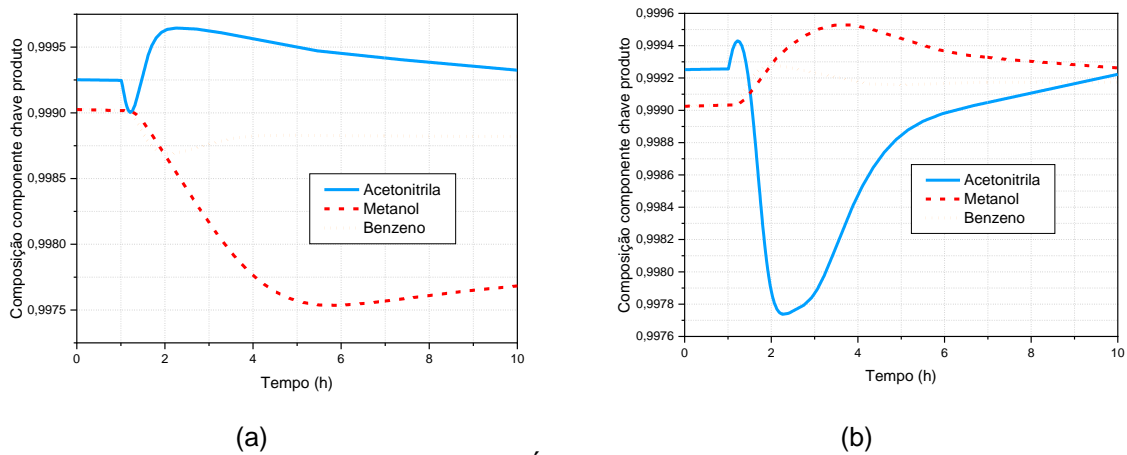
Figura 16: Respostas da Estrutura de Controle proposta por Luyben (2017) para controle direto com distúrbio na alimentação



FONTE: LUYBEN (2017)

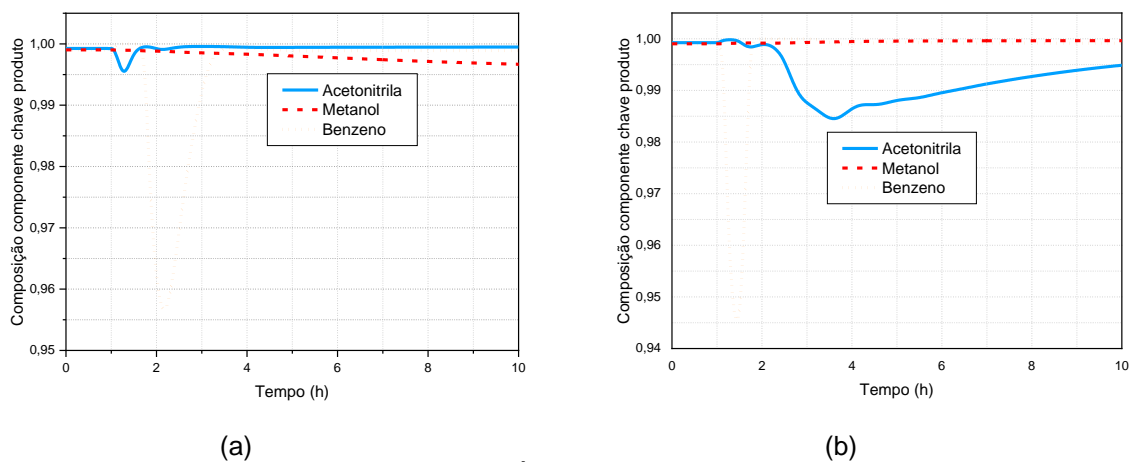
Visando comparar os resultados, foram plotadas as respostas dinâmicas das 10 primeiras horas de simulação para as Estruturas de Controle 1 e 2, utilizando os mesmos distúrbios. Os resultados estão apresentados nas Figura 17 e 18.

Figura 17: Respostas dinâmicas para a Estrutura de Controle 1, (a) resposta em distúrbio positivo e (b) resposta em distúrbio negativo.



FONTE: PRÓPRIO AUTOR.

Figura 18: Respostas dinâmicas para a Estrutura de Controle 2, (a) resposta em distúrbio positivo e (b) resposta em distúrbio negativo.



FONTE: PRÓPRIO AUTOR.

Ao realizar as comparações das respostas obtidas nas curvas representadas tanto pelos distúrbios positivos (Figuras 16a, 17a e 18a) quanto pelos distúrbios negativos (Figuras 16b, 17b e 18b) observa-se uma resposta extremamente mais rápida da estrutura de controle de LUYBEN (2017) visto que a mesma utiliza controle direto enquanto as demais se valem de controle por inferência, levando mais de 10 horas para alcançar o regime estacionário novamente.

Contudo, ambas as estruturas de controle geradas neste trabalho mantiveram os valores das especificações muito próximos dos valores dos *setpoints*, da mesma forma que a estrutura projetada, ao final das 10 horas de simulação.

8. CONCLUSÕES

Foi possível avaliar duas estruturas de controle, contendo malhas de controle de composição por inferência, com respostas satisfatórias, tendo como o valor mais distante obtido das especificações, em malha fechada, superior a 0,993 (base mássica), ou seja, bastante próximo do valor de referência que é 0,999.

Sendo assim, conclui-se que o controle de composição por inferência apresentou bom desempenho quando aplicado ao sistema TCPSD em questão. As demais malhas de controle (pressão e nível) também apresentaram resultados satisfatórios.

Em relação a comparação entre as duas Estruturas de Controle avaliadas, conclui-se que a Estrutura de Controle 1, que utiliza controle de soma de temperatura dual, gera melhores respostas, mediante distúrbios na vazão e composição, quando comparados aos resultados da Estrutura de Controle 2, que utiliza controle de temperatura clássico baseado no trabalho de LUYBEN (2017).

O uso do ISE como parâmetro para avaliar a melhor estrutura de controle pode ser influenciado pela ocorrência de *overshoots*. Sendo assim, o mais indicado é avaliação dos valores de ISE juntamente com o valor da composição dos produtos após atingir novamente o estado estacionário.

Ao comparar estruturas de controle utilizando controle por inferência e controle direto, nota-se que as respostas mais rápidas do controle direto são uma vantagem, contudo, já é possível através de controle por inferência atingir o mesmo patamar de pureza com um investimento inferior em controle.

9. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

- Estudo do processo TCPSD com integração térmica parcial e total com controle por inferência;
- Aplicação das técnicas de *heat-pump* e redes de trocadores de calor para comparativos e avaliação econômica afim de tornar o processo mais atrativo ecologicamente;
- Estudo mais aprofundado através do uso de metodologias como o *kriging* para avaliar pontos-chave como a taxa de *split* utilizada neste processo;
- Estudo da aplicação de redes neurais para este processo;
- Avaliação das Estruturas de Controle com distúrbios sendo aplicados nas alimentações das próprias colunas separadamente para melhor avaliação de pontos específicos das mesmas.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

CAO, Y., HU, J., JIA, H., BU, G., ZHU, Z., WANG, Y., **Comparison of Pressure-Swing Distillation and Extractive Distillation with Varied-Diameter Column in Economics and Dynamic Control.** *Journal of Process Control*. Vol 49, p. 9-25, 2017.

HALVORSEN, I. J.; SKOGESTAD, S.; MORUD, J. C.; ALSTAD, V. **Optimal selection of controlled variables.** *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Trondheim, v. 42, p. 3273-3284, 2003.

HORI, E. S. **Contribuição ao Estudo de Controle “Plantwide”: Controle Indireto e Coordenação de Controladores Descentralizados.** 2005. 180 f. Tese (Doutorado) – Programa de Pós-Graduação em Engenharia Química: Área de Concentração em Pesquisa e Desenvolvimento de Processos Químicos. Universidade Federal de São Carlos. 2005.

KNAPP, J. P., DOHERTY, M. F. **A New Pressure-Swing-Distillation Process for Separating Homogeneous Azeotropic Mixtures.** *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 31(1), 346–357, EUA, 1992.

LUYBEN, W. L.; TYRÉUS, B. D.; LUYBEN, M. L. ***Plantwide process control.*** 1^a ed. **New York:** McGraw-Hill, 1998.

LUYBEN, W. L. **Evaluation of criteria for selecting temperature control trays in distillation columns.** *Journal of Process Control*, v. 16, n. 2, p. 115–134, 2006.

LUYBEN, W. L., CHIEN, I. L., **Design and Control of Distillation Systems for Separating Azeotropes.** 1 ed. **New York:** John Wiley & Sons, 2010.

LUYBEN, W. L., **Pressure-Swing Distillation for Minimum- and Maximum-Boiling Homogeneous Azeotropes.** *Industrial & Engineering Chemical Research*, vol. 51, p. 10881-10886, EUA, 2012.

LUYBEN, W. L., **Distillation, Design and Control Using Aspen Simulation**. 2 ed. **New York**: John Wiley & Sons, 2013.

LUYBEN, W. L., **Control of a Triple-Column Pressure-Swing Distillation Process**. *Sep. Purif. Technol.*, p. 232-244, 2017.

SEADER, J. D., HENLEY, E. J., ROPER, D. K., **Separation Process Principles: Chemical and Biochemical Operations**. 3ed. **New York**: John Wiley & Sons, 2011.

SEBORG, D. E.; EDGAR, T. F.; MELLICHAMP, D. A., **Process dynamics and control**. 2nd edition, **New York**: John Wiley & Sons, 2004.

SILVA, S. K. da. **Utilização de uma Ferramenta para Seleção Automática de Estruturas de Controle para Plantas de Processos**. 2013. 97 f. Tese (Doutorado) – Programa de Pós-Graduação em Engenharia Química. Universidade Federal de Campina Grande-PB. 2013.

SKOGETAD, S. **Plantwide Control: the search for the self-optimizing control structure**. *Journal of Process Control*, Trondheim, v. 10, n. 5, p. 487-507, 2000.

SKOGESTAD, S. **Control structure design for complete chemical plants**. *Computers & Chemical Engineering*, Trondheim, v. 28, n. 1, p. 219-234, 2004.

SKOGESTAD, S. **The Dos and Don'ts of Distillation Column Control**. *Chemical Engineering Research and Design*, v. 85, p. 13-23, 2006.

WANG, Y., ZHANG, Z., XU, D., LIU, W., ZHU, Z., **Design and Control of Pressure-Swing Distillation for Azeotropes with Different Types of Boiling Behavior at Different Pressures**. *Journal of Process Control*, vol 42, p 59-76, 2016.

WANG, C., ZHANG, Z., ZHANG, X., GUANG, C., GAO, J., **Comparison of Pressure-Swing Distillation with or without Crossing Curved-Boundary for Separating a Multiazeotropic Ternary Mixture**. *Separation and Purification Technology*, vol 220, p 114-125, 2019.

WANG, N., YE, Q., CHEN, L., ZHANG, H., ZHONG, J., **Improving the Economy and Energy Efficiency of Separating Water/Acetonitrile/Isopropanol Mixture via Triple-Column Pressure-Swing Distillation with Heat-pump Technology.** Energy, vol 215A, 119126, 2021.

YANG, A., SHEN, W., WEI, S., DONG, L., LI, J., GERBAUD, V., **Design and Control of Pressure-Swing Distillation for Separating Ternary Systems with Three Binary Minimum Azeotropes.** AIChE Journal, vol 65, p. 1281-1293, 2019.

YOU, X., MA, T., QIU, T., **Design and Optimization of Sustainable Pressure-Swing Distillation for Minimum-Boiling Azeotrope Separation.** Industrial & Engineering Chemistry Research, vol 58, p. 21659-21679, 2019.

ZHANG, Q., LIU, M., LI, W., LI, C., ZENG, A., **Heat-integrated triple-column pressure-swing distillation process with multi-recycle streams for the separation of ternary azeotropic mixture of acetonitrile/methanol/benzene.** Separation and Purification Technology, vol 211, p. 40–53, 2019.

ZHANG, Q., ZENG, A., MA, Y., YUAN, X., GAO, J., **Dynamic Control Analyses of Eco-Efficient Partially Heat-Integrated Side-Stream Pressure-Swing Distillation Processes.** Separation and Purification Technology, vol 239, 115853, 2020.

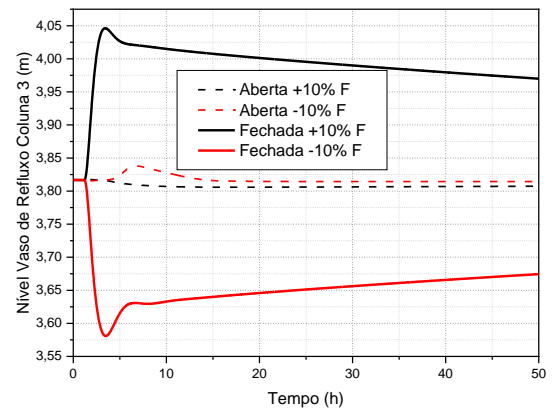
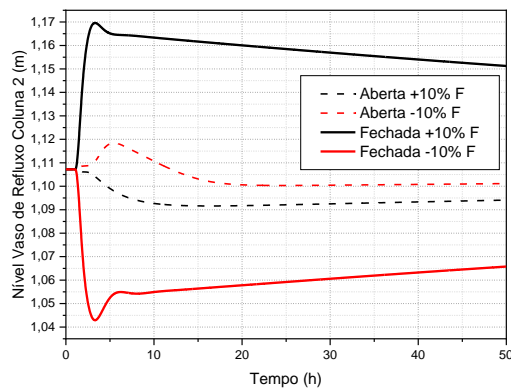
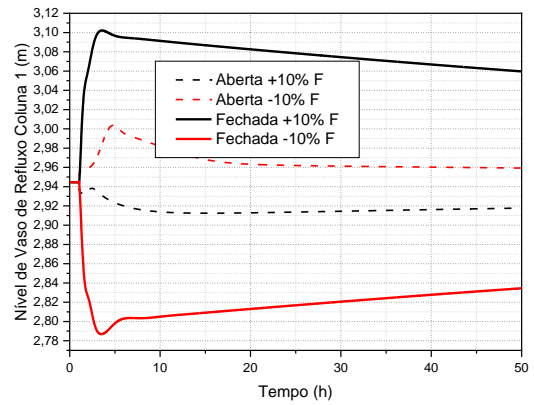
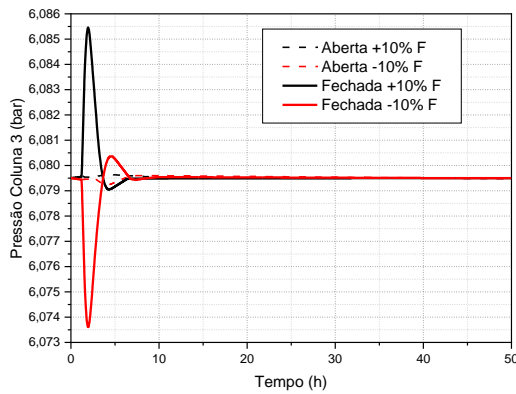
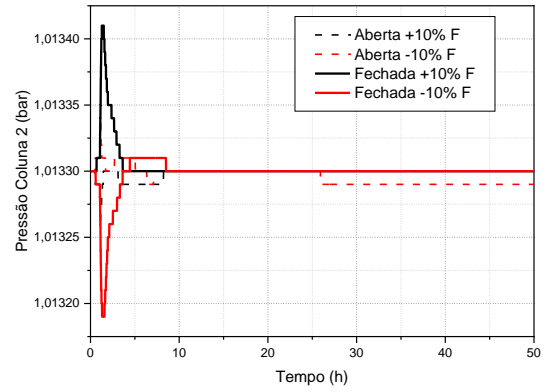
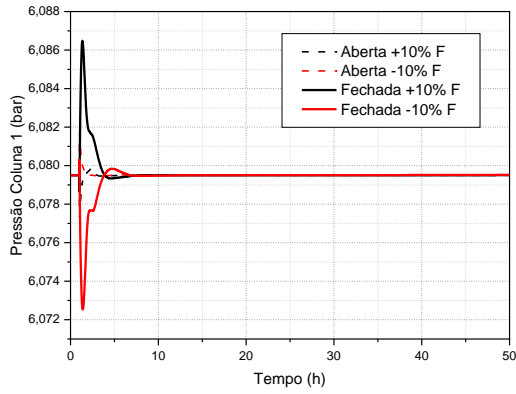
ZHU, Z.; XU, D.; LIU, X.; ZHANG, Z.; WANG, Y. **Separation of acetonitrile/methanol/benzene ternary azeotrope via triple column pressure-swing distillation.** Sep. Purif. Technol, vol 169, p. 66-77, 2016.

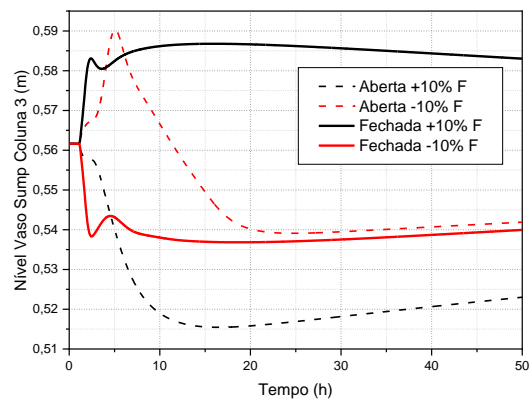
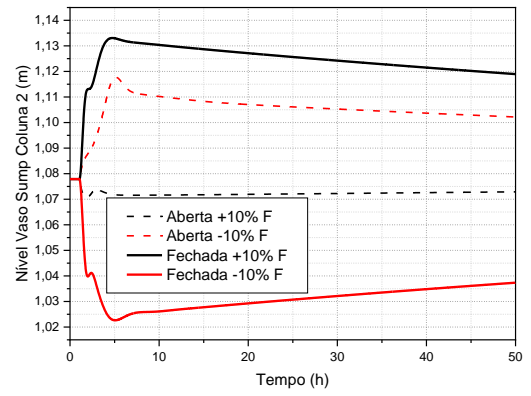
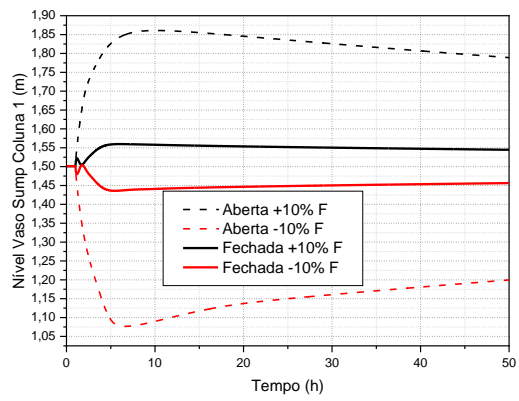
ZHU, Z., XU, D., JIA, H., ZHAO, Y., WANG, Y., **Heat Integration and Control of a Triple-Column Pressure-Swing Distillation Process.** Industrial & Engineering Chemical Research, vol 56, p. 2150-2167, 2017a.

ZHU, Z., XU, D., WANG, Y., GENG, X., WANG, Y., **Effect of multi-recycle streams on triple-column pressure-swing distillation optimization.** Chemical Engineering Research and Design, vol 127, p. 215-222, 2017b.

ANEXO A

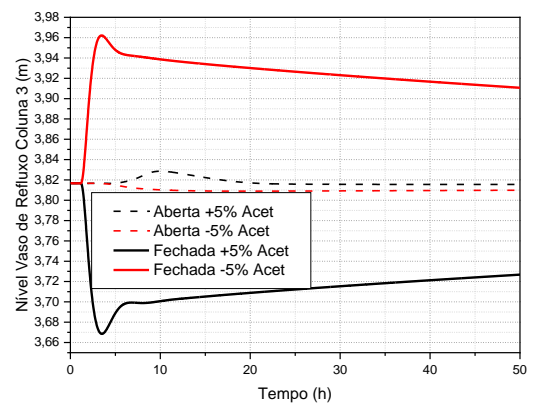
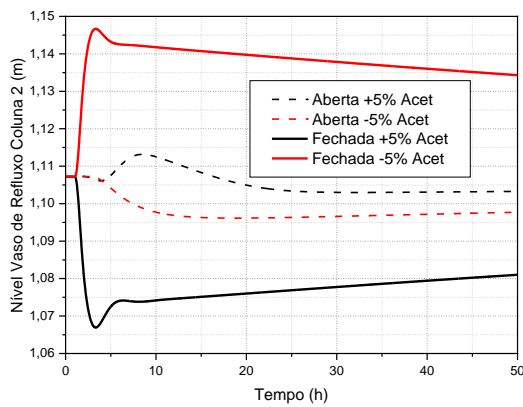
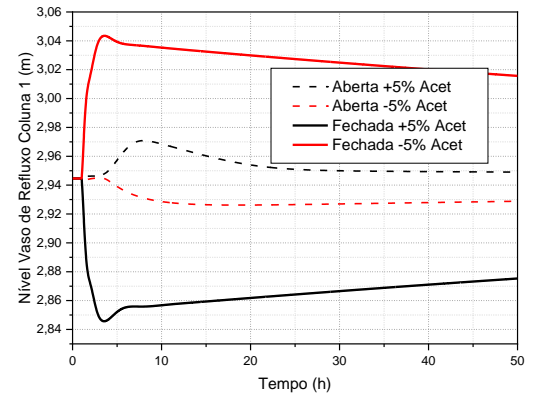
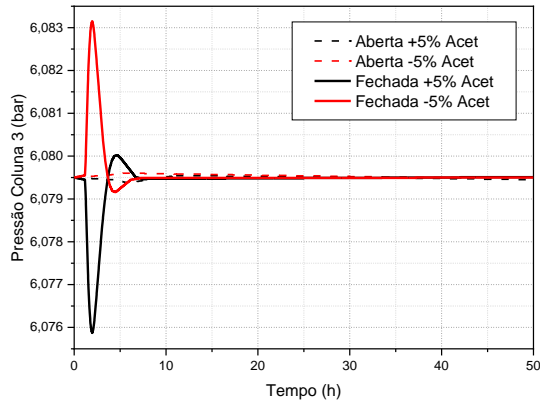
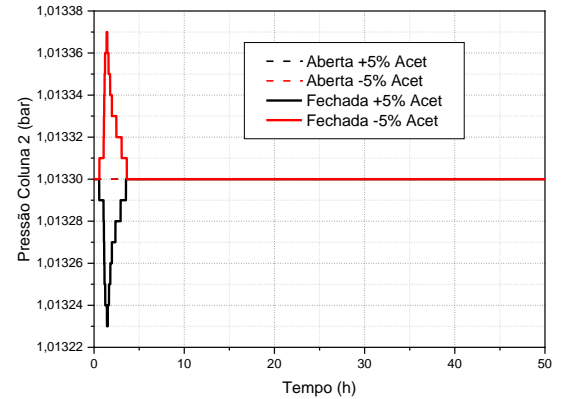
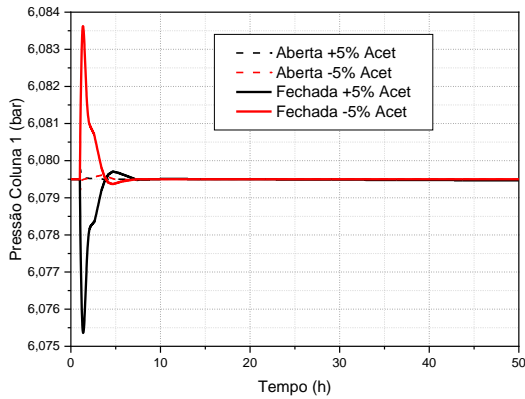
Respostas dinâmicas das variáveis Pressão e Nível das colunas do processo TCPSD, após distúrbios na vazão de alimentação do processo – Estrutura de Controle 1.

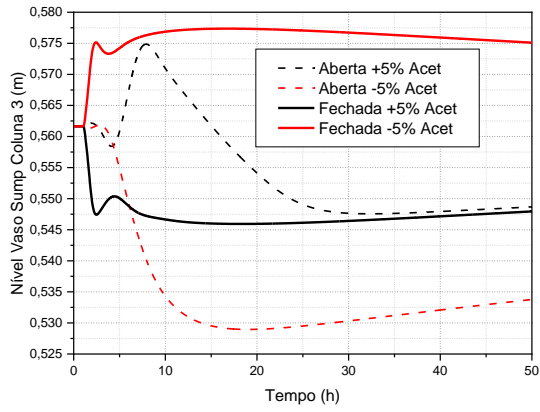
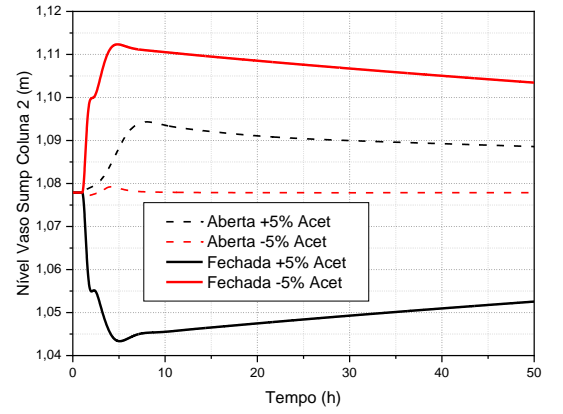
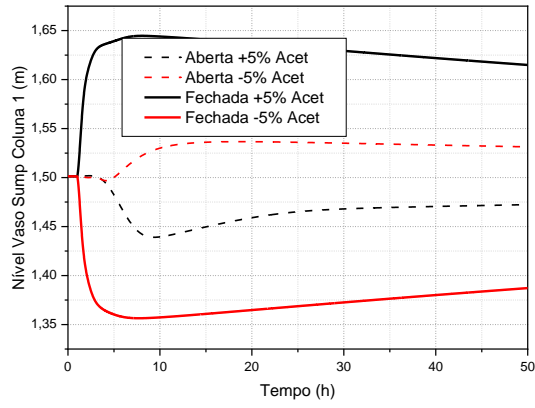




ANEXO B

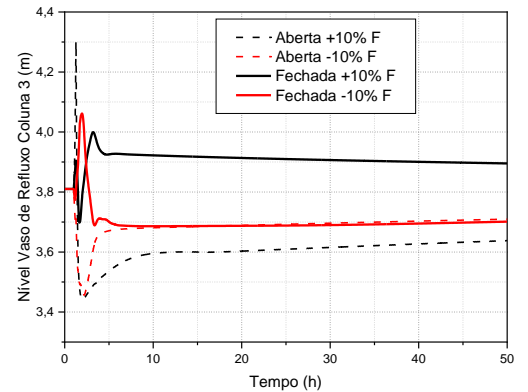
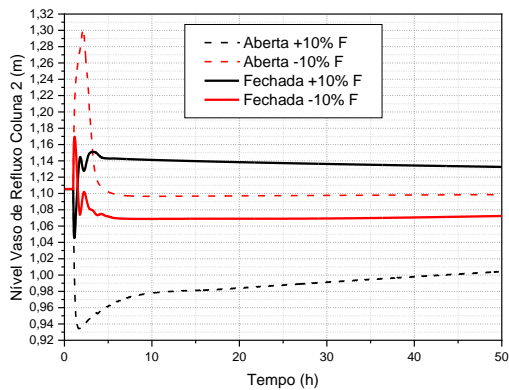
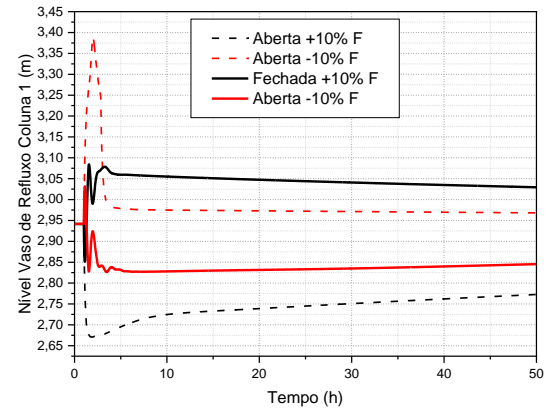
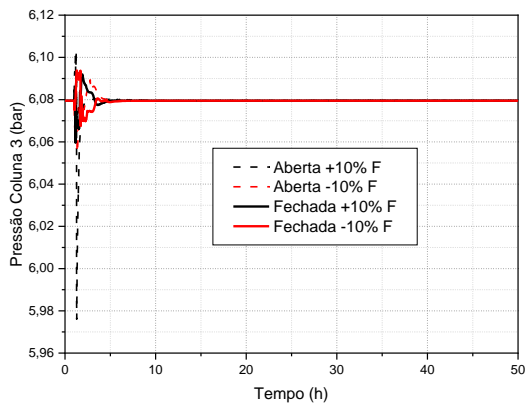
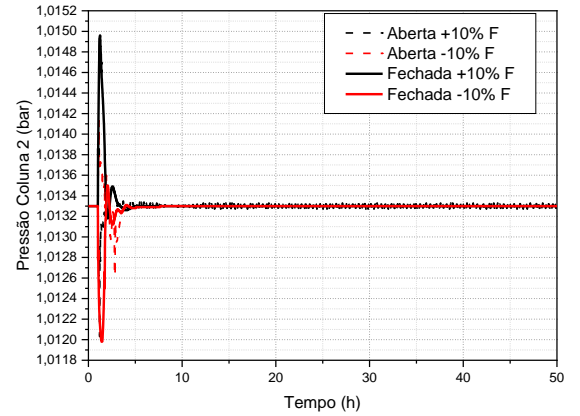
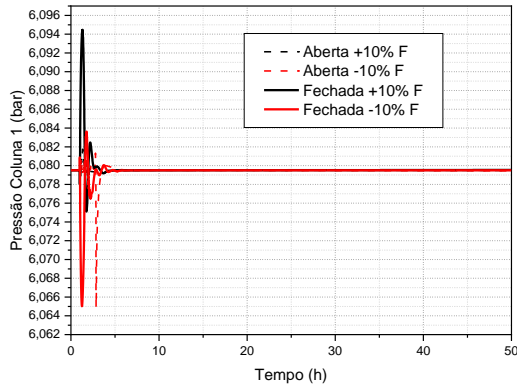
Respostas dinâmicas das variáveis Pressão e Nível das colunas do processo TCPSD, após distúrbios na composição de alimentação do processo – Estrutura de Controle 1.

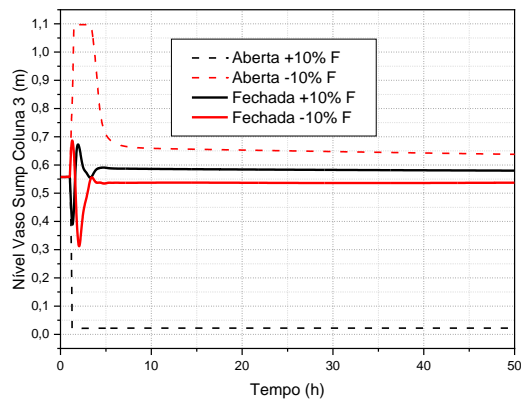
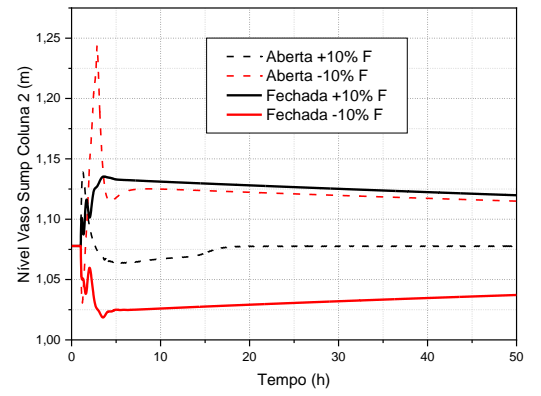
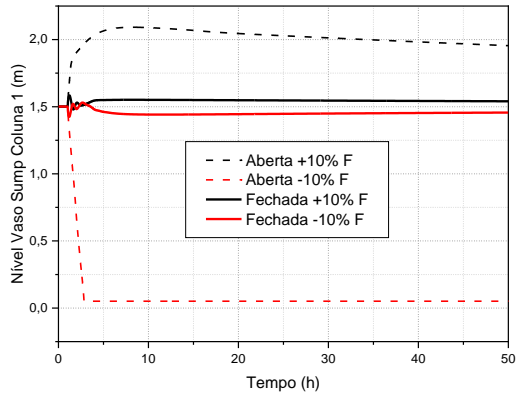




ANEXO C

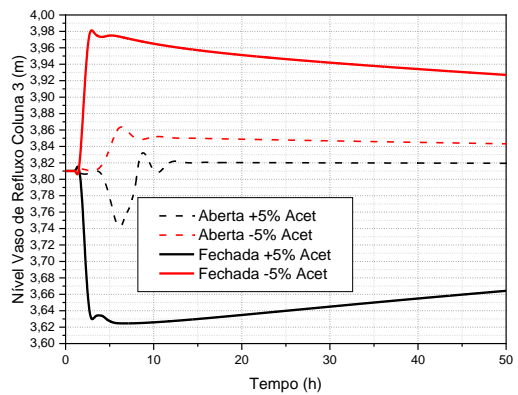
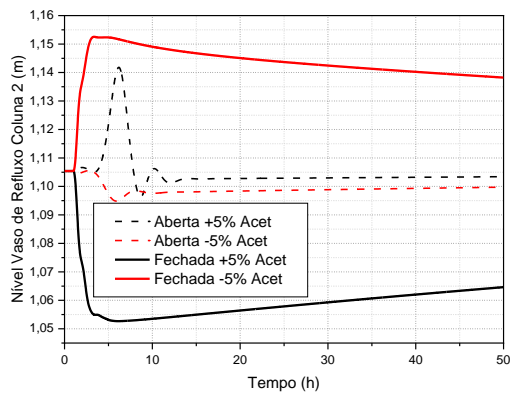
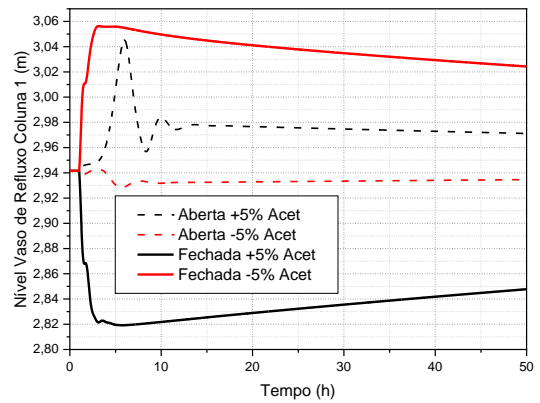
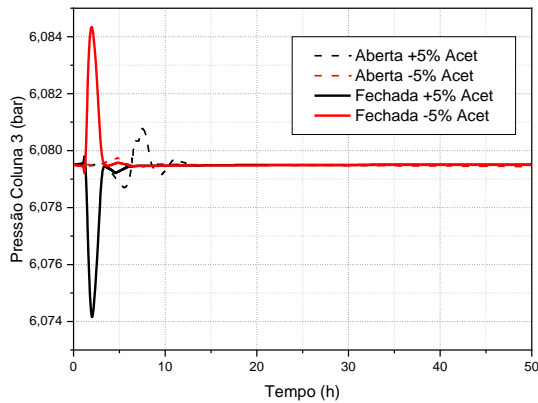
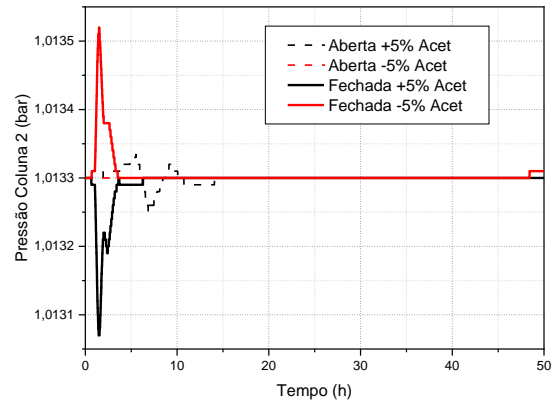
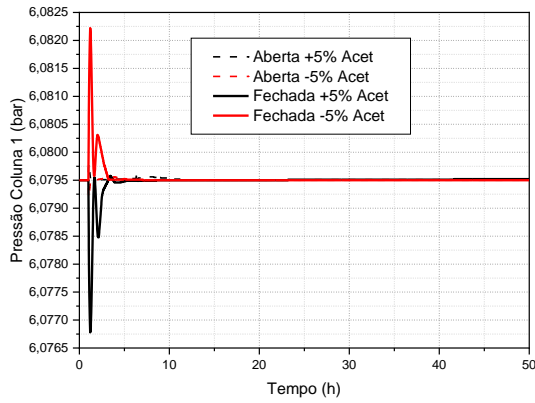
Respostas dinâmicas das variáveis Pressão e Nível das colunas do processo TCPSD, após distúrbios na vazão de alimentação do processo – Estrutura de Controle 2.

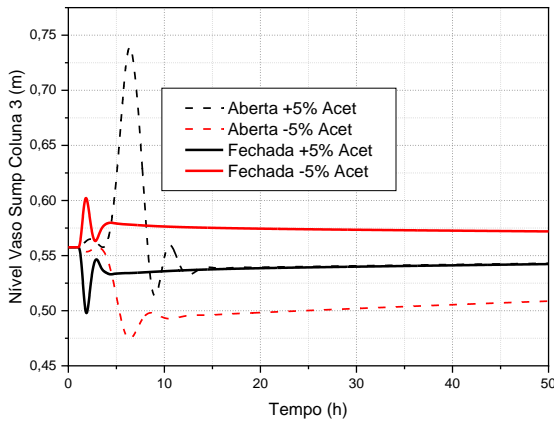
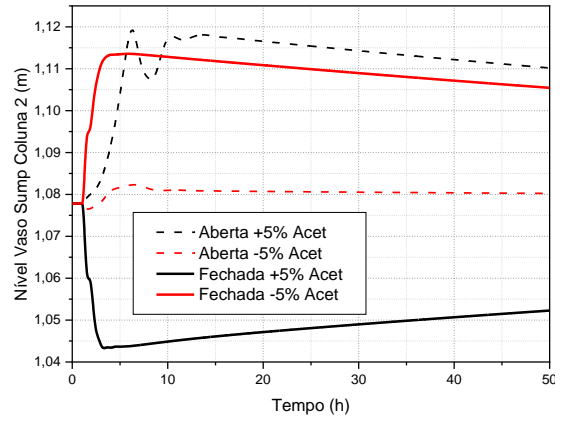
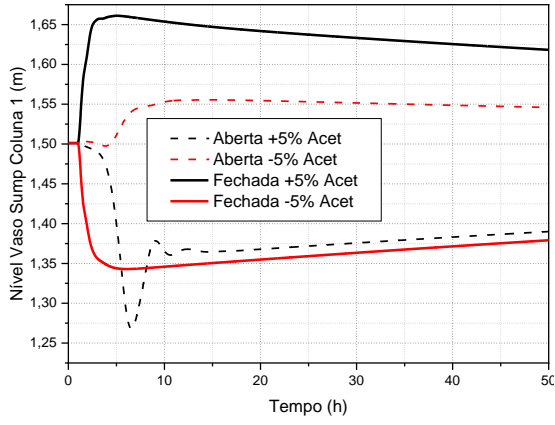




ANEXO D

Respostas dinâmicas das variáveis Pressão e Nível das colunas do processo TCPSD, após distúrbios na composição de alimentação do processo – Estrutura de Controle 2.





ARTIGO PUBLICADO

ARTIGO SUBMETIDO E PUBLICADO NA REVISTA *RESEARCH, SOCIETY AND DEVELOPMENT* V.11, N. 1.

Controle do Processo TCPSD para Separação da Mistura Acetonitrila/Benzeno/Metanol

TCPSD Process Control for Separation of Acetonitrile/Benzene/Methanol Mixture

Control del Proceso TCPSD para la Separación de la Mezcla

Acetonitrilo/Benceno/Metanol

Recebido: 23/12/2021 | Revisado: 01/01/2022 | Aceito: 06/01/2022 | Publicado: 09/01/2022

Lucas de Melo Jurema Guimarães

ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-5031-5412>

Universidade Federal de Campina Grande, Brasil

E-mail: lucas.guimaraes@eq.ufcg.edu.br

Wagner Brandão Ramos

ORCID: <https://orcid.org/0000-00029375-6995>

Universidade Federal de Campina Grande, Brasil

E-mail: wagner.ramos@eq.ufcg.edu.br

Resumo

Visando uma maior economia em custos operacionais, a inclusão de correntes de reciclo e integrações térmicas são rotineiras nos processos químicos, gerando a necessidade de estruturas de controle mais robustas, capazes de impedir perdas devido a distúrbios rotineiros e proporcionar segurança operacional. A separação via *Triple-Column Pressure-Swing Distillation* (TCPSD) pode ser utilizada para separar diferentes solventes da indústria de química fina, e devido ao grande número de variáveis envolvidas, juntamente a integrações térmicas e correntes de reciclo, a definição de uma estrutura de controle eficaz se torna um problema complexo. Neste contexto, este trabalho tem como principal objetivo o desenvolvimento e avaliação de estruturas de controle *plantwide* para o processo TCPSD, utilizado para separação da mistura acetonitrila/benzeno/metanol. Utilizando os *softwares* Aspen Plus® e Aspen Plus Dynamics®, foram avaliadas duas estruturas de controle, nas quais as composições dos produtos são controladas por inferência, através do controle da temperatura de pratos sensíveis. A principal diferença entre as duas estruturas é que a Estrutura de Controle 1 possui uma malha de controle de soma dual de temperatura de pratos sensíveis na coluna de baixa pressão, manipulando a razão de refluxo. Ao avaliar os resultados das composições dos produtos ao atingir estado estacionário e valores de ISE, concluiu-se que ambas as estruturas são capazes de controlar distúrbios do tipo degrau na vazão e composição de alimentação do processo. Contudo, observaram-se melhores resultados na Estrutura de Controle 1.

Palavras-chave: TCPSD; Controle *plantwide*; Controle por inferência.

Abstract

Aiming for greater saving on operating costs, the inclusion of recycle streams and thermal integrations are routine in chemical processes, generating need for more robust control structures capable of preventing losses due to routine disturbances and providing operational safety. The Triple-Column-Pressure-Swing-Distillation (TCPSD) separation can be used to separate different solvents from the fine chemical industry, and due to the large number of variables involved, together with thermal integrations and recycle streams, the definition of an effective control structure becomes a complex problem. At this context, this paper has as main objective the development and evaluation of plantwide control structures for a TCPSD process used to separate the acetonitrile/benzene/methanol mixture. Using the Aspen Plus® and Aspen Plus Dynamics® software, two control structures were evaluated, in which the product compositions are controlled by inference, by controlling the temperature of sensitive plates. The main difference between the two structures is that Control Structure 1 has a dual sum control loop of temperature sensitive plates in the low-pressure column, manipulating the reflux ratio. When evaluating the results of compositions of products when reaching steady state and ISE values, it was concluded that

both structures are capable of controlling step-type disturbances in flow and composition at feed stream of the process. However, the better results were observed in Control Structure 1.

Keywords: TCPSD; Plantwide control; Control by inference.

Resumen

Con el objetivo de lograr mayores ahorros en los costos operativos, la inclusión de corrientes de reciclaje y las integraciones térmicas son rutinarias en los procesos químicos, lo que genera la necesidad de estructuras de control más robustas capaces de prevenir pérdidas debido a perturbaciones rutinarias y proporcionar seguridad operativa. La *Triple-Column-Pressure-Swing-Distillation* (TCPSD) puede ser utilizada para separar diferentes disolventes de la industria química fina y, debido a la gran cantidad de variables involucradas, juntamente con las integraciones térmicas y las corrientes de reciclado, la definición de una estructura de control efectiva se vuelve un problema complejo. En este contexto, este trabajo tiene como objetivo principal el desarrollo y evaluación de estructuras de control *plantwide* para el proceso TCPSD, utilizadas para separar la mezcla acetonitrilo/benceno/metanol. Utilizando el *software Aspen Plus*® y *Aspen Plus Dynamics*®, se evaluaron dos estructuras de control, en las que las composiciones del producto se controlan por inferencia, controlando la temperatura de platos sensibles. La principal diferencia entre las dos estructuras es que la Estructura de Control 1 posee un circuito de control de doble suma de platos sensibles a la temperatura en la columna de baja presión, que manipula la relación de reflujo. Al evaluar los resultados de las composiciones de los productos al alcanzar valores de estado estacionario y de ISE, se concluyó que ambas estructuras son capaces de controlar perturbaciones de tipo escalonado en el flujo y composición de la alimentación del proceso. Aún, se observaron mejores resultados en la Estructura de Control 1.

Palabras clave: TCPSD; Control *plantwide*; Control por inferencia.

1. Introdução

Nos últimos anos, devido a crises econômicas, aumentos nos valores de insumos energéticos (combustíveis e energia elétrica) e alta concorrência estrangeira, torna-se cada vez maior a necessidade de desenvolver processos economicamente viáveis, não afetando a segurança, a qualidade dos produtos, nem o meio-ambiente. Dentro deste contexto, a destilação se destaca por ser um dos processos mais utilizados na indústria para separação de misturas, porém é um processo que demanda um consumo de energia bastante elevado.

Dentre as diversas misturas que existem no universo de processos de separação, alguns possuem um comportamento não usual, onde a Lei de Raoult não representa de forma satisfatória, comumente sendo exemplificada por misturas onde os componentes possuem pontos de ebulição próximos (Seader *et al.* 2011). Estas misturas formam azeótropos, e quando isto ocorre, torna-se impossível a separação destas misturas através da destilação convencional.

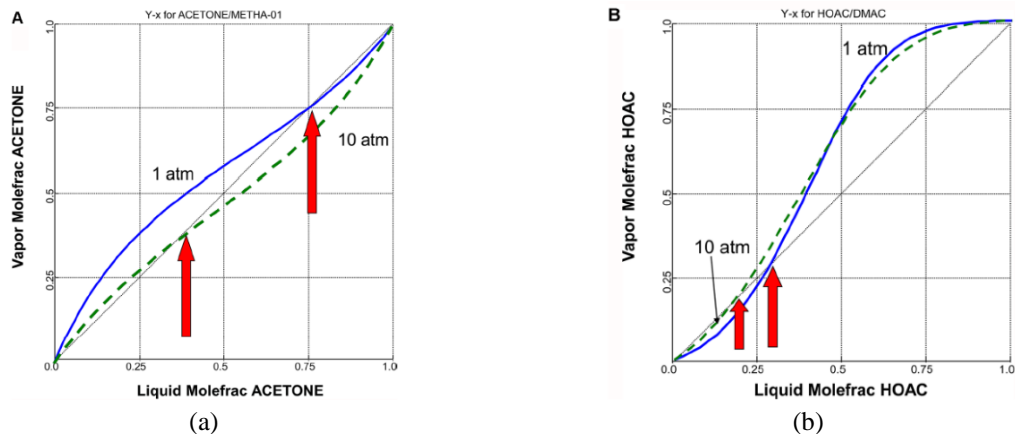
Caso haja, num sistema azeotrópico, a forte presença de forças repulsivas entre as espécies químicas, coeficiente de atividade maiores que a unidade, tem-se um azeótropo homogêneo de mínima fervura. Se, ao invés de repulsão, existir atração entre os componentes químicos, ou seja, coeficientes de atividade inferiores à unidade, tem-se a existência de um azeótropo de máxima fervura Luyben (2012).

Algumas metodologias podem ser aplicadas para a separação de misturas azeotrópicas, como a destilação extrativa ou destilação por mudança de pressão (*pressure-swing*). O processo de destilação extrativa, composto por duas colunas de destilação, é amplamente utilizado para separar azeótropos e misturas cujos componentes tenham pontos de ebulição próximos (Seader *et al.* 2011). Tais processos se valem de um solvente de alto ponto de ebulição sendo introduzido próximo ao topo da primeira coluna para extrair um dos componentes do azeótropo, enquanto o outro componente sai praticamente puro no destilado. Enquanto isso, os demais componentes (primeiro componente do azeótropo e o solvente) saem pela base para alimentar uma segunda coluna onde serão separados em alta pureza, sendo na base a saída do solvente (que voltará a alimentar a primeira coluna através de um reciclo Luyben (2012).

Segundo Luyben (2012), os principais problemas nesse método são a escolha de um solvente apropriado para que o consumo energético e a controlabilidade não sejam afetados.

Um comportamento comum em azeótropos é a variação do ponto de azeotropia ao alterar-se a pressão do sistema. Desta forma, caso a variação deste ponto seja significativa ao aumentar-se a pressão (acima de 5% mol, como o que acontece nos exemplos da Figura 1), temos azeótropos sensíveis à pressão, onde o processo via *pressure-swing* pode ser aplicado (Seader *et al.* 2011).

Figura 1: Diagramas x vs y de azeótropos de mínima e máxima fervura.



Fonte: Luyben (2012)

Zhang *et al.* (2019) explicam que ao utilizar tal método, evita-se a potencial contaminação dos produtos-chave com traços de solventes utilizados. Contudo, deve-se destacar a necessidade de alto consumo energético para manter a pressão em algumas das colunas, que pode ser contornado, para ambas os processos, utilizando integrações térmicas.

Ao estudar o comportamento do ternário tetrahydrofurano/etanol/água bem como uma estrutura de controle *plantwide* utilizando *Aspen Plus Dynamics*© num processo de TCPSD, Yang *et al.* (2019) obtiveram a sequência de separação mais viável economicamente (água/etanol/tetrahydrofurano com as pressões das colunas em 0,1; 0,52 e 1 MPa). A estrutura de controle proposta utiliza controle por inferência com diferença dual de temperatura visando redução de desvios e *offsets* de pureza dos produtos.

Ao trabalhar com o mesmo ternário, Wang *et al.* (2019) testaram diferentes configurações para a ordem de separação do sistema utilizando comparações entra a aplicação e não-aplicação de cruzamento de limite de curva ou na integração térmica do processo e analisou a economia obtida através deste método. A configuração mais notável foi a utilizando integração parcial na sequência de separação tetrahydrofurano/água/etanol utilizando a técnica de cruzamento de limite de curva, contudo vale destacar que a metodologia foi comprovada como mais rentável em comparação à não aplicação.

Outros três solventes orgânicos muito comuns nas indústrias química e farmacêutica, segundo Zhu *et al.* (2016), são a acetonitrila, o benzeno e o metanol, devido às suas excelentes propriedades físico-químicas. Logo, torna-se interessante investigar o comportamento deste ternário de azeótropos com comportamento sensível à pressão.

Primeiramente sugerido por Knapp e Doherty (1992) como uma alternativa para a separação de misturas azeotrópicas ternárias sem o uso de destilação extrativa, a TCPSD (*Triple-Column Pressure-Swing Distillation*)

tem como objetivo a separação completa dos três componentes da mistura trabalhando apenas com colunas de destilação em diferentes pressões, o que evita o uso de um solvente. Contudo, é destacável que se necessita de uma avaliação para obter um processo eficiente de separação considerando posição de alimentação, a sequência em que os componentes serão retirados e as pressões ideais de cada coluna, por isso poucos sistemas na literatura foram trabalhados até então.

Na literatura, tal processo apresenta diversas modificações visando separar a 99,9% de pureza todos os componentes e visando uma redução cada vez maior de custos. No trabalho de Zhu *et al.* (2016) foram apresentadas diferentes configurações do processo, com foco nas pressões de operação e sequenciamento das colunas. Em Luyben (2017) a aplicação de controle *plantwide* é avaliada. Nos trabalhos de Zhu *et al.* (2017a) e Zhu *et al.* (2017b) foram avaliados a integração térmica e configurações de reciclo, respectivamente, enquanto Zhang *et al.* (2019) avaliaram a combinação da integração térmica com o reciclo.

You *et al.* (2019) estudaram o binário álcool isopropílico/éter diisopropílico tendo em vista a integração térmica parcial e total, além do uso de pré-aquecimento das alimentações das colunas (HP-PSD) com seus próprios produtos de base como fluidos de aquecimento. Economicamente falando, a utilização da integração térmica total e pré-aquecimento (HP-PSD) forneceram melhores resultados do que a integração parcial e a total apenas, com uma redução de mais de 31% no custo total em relação ao processo convencional.

Zhang *et al.* (2020) analisaram a controlabilidade em processos de PSD com integração térmica parcial em sistemas de máximo ponto de ebulição (etilenodiamina/água). Os autores observaram o efeito de bola de neve (*snowball*); situação onde, principalmente em processos com reciclo e integração térmica ocorre um acúmulo dinâmico ou de material ou de energia das quais pode afetar de alguma forma negativamente o processo; e o comportamento de estruturas de controle por inferência a serem utilizadas para reduzir os offsets que o acúmulo de material gerado no processo.

De acordo com Silva (2013), toda vez em que há a o desenvolvimento de uma estrutura de controle em que exista uma abordagem em toda planta, tem-se uma estrutura de controle *plantwide*. O propósito do controle *plantwide* é prover uma estrutura global para o controle coordenado de muitas variáveis importantes de um processo. Toda essa filosofia de controle surgiu com o objetivo de coordenar diferentes controladores locais, numa tentativa de redução de custos de estocagem de intermediários (Lyman e Georgakis, 1995, *apud* Hori, 2005). Enquanto Luyben *et al.* (1998) segue uma abordagem mais heurística e experimental para a seleção de tais estruturas, o trabalho combinado de Skogestad (2000), Halvorsen *et al.* (2003) e Skogestad (2004) acabaram por gerar uma metodologia matemática focada no uso álgebra linear de forma extensa e minuciosa afim de produzir uma estrutura de controle mais eficiente.

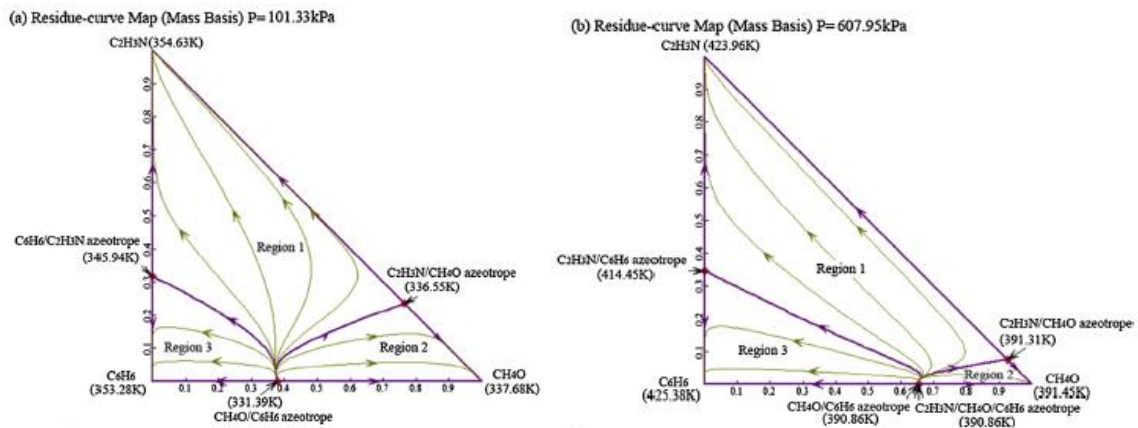
Malhas de controle robustas são cada vez mais necessárias dentro de um processo, sendo um ponto chave tanto na questão da segurança para os colaboradores quanto para a qualidade de especificação dos produtos, ou seja, a pureza deles, visto que, segundo Seborg *et al.* (2004), o controle em um processo deve atender três necessidades básicas: manter os balanços de massa e energia, atingir a qualidade desejada e atender às restrições do processo. Contudo, apesar de valerem-se de metodologias de controle consideradas de ponta, alguns estudos encontrados na literatura ainda fogem da realidade, quando se utilizam de distúrbios simples para avaliação e sensores que medem diretamente a composição nas correntes de produto, o que não é economicamente viável no campo industrial. Neste sentido, este trabalho se propõe a estabelecer e avaliar estruturas de controle aplicáveis ao processo TCPD, para a separação da mistura acetonitrila/benzeno/metanol, nas quais as purezas dos produtos são

controladas por inferência. Neste trabalho, tem-se como objetivo avaliar estruturas de controle aplicadas ao processo TCPSD para a separação da mistura acetonitrila/benzeno/metanol seguindo como etapas básicas: a simulação do mesmo em regime estacionário no *software* Aspen Plus; selecionar as variáveis de controle; obter o modelo dinâmico no Aspen Plus Dynamics; implementar as estruturas de controle ao processo e avaliá-las qualitativa e quantitativamente.

2. Metodologia

O processo TCPSD (*Triple-Column Pressure-Swing Distillation*), para a separação da mistura ternária de acetonitrila/metanol/benzeno, foi utilizado como estudo de caso para o desenvolvimento deste trabalho, tomando como base o trabalho de Zhang *et al.* (2019). A Figura 2 apresenta os diagramas ternários da mistura acetonitrila/metanol/benzeno, em diferentes pressões, onde é possível observar a formação de azeótropos. Como pode ser notado na Figura 2, os azeótropos formados nessa mistura são sensíveis à mudança de pressão, logo, a TCPSD é uma possibilidade.

Figura 2 Diagramas ternários da mistura acetonitrila/metanol/benzeno



Fonte: Zhu *et al.* (2016)

2.1. Simulação em Regime Estacionário

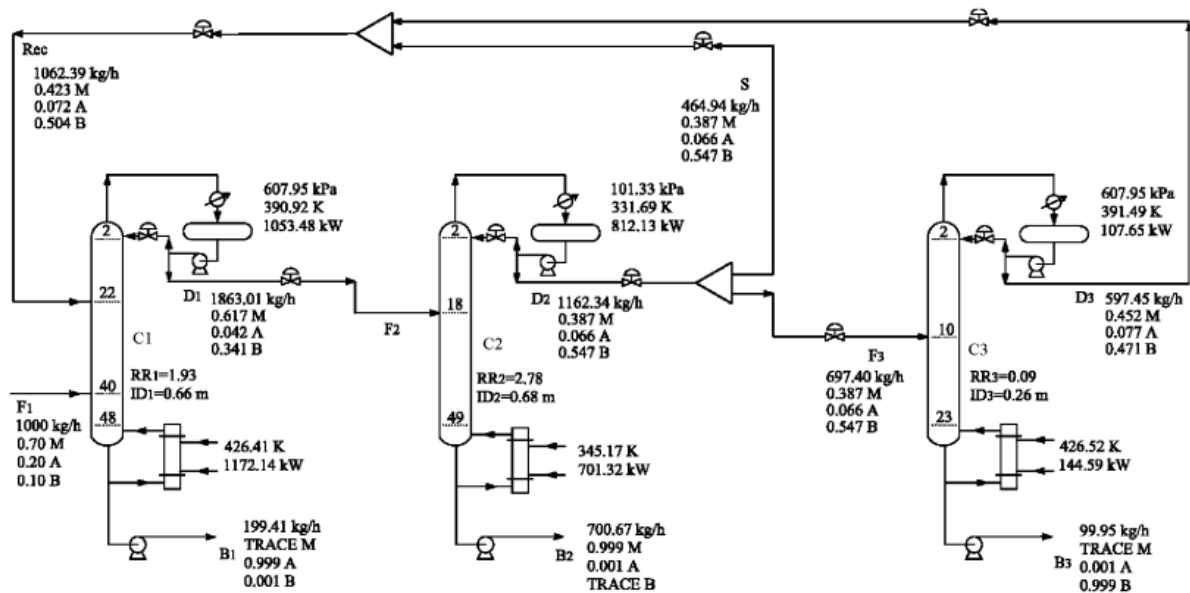
Para a simulação em regime estacionário, utilizou-se a rotina *Radfrac* para as três colunas de destilação, visto que é uma rotina robusta e representa bem as colunas de destilação reais. O fluxograma utilizado como base deste trabalho é apresentado na Figura 3. A simulação base utilizou um *Splitter* para dividir o destilado da coluna de baixa pressão na proporção mássica 6 para 4, onde 40% retornava, juntamente com o destilado total da terceira coluna numa rotina de *Mixer* (havendo o uso de uma bomba para igualar a pressão) para a 1ª coluna.

Zhu *et al.* (2016) realizaram um estudo de qual seria a ordem de separação dos componentes da mistura e quais as pressões de operação de cada uma das colunas do processo para obter composições de base, visto que são todos azeótropos de mínimo ponto de ebulição, em 99,9%. Zhu *et al.* (2016) utilizaram parâmetros de interação a partir de regressão para o modelo termodinâmico de Wilson, tal qual demonstrado na Tabela 1.

Tabela 1: Parâmetros de interação via regressão para o método de Wilson

	CH_4O/C_2H_3N	CH_4O/C_6H_6	C_2H_3N/C_6H_6
A_{ij}	0	-9,70	0
A_{ji}	0	5,07	0
B_{ij}	-97,08	2399,15	-233,59
B_{ji}	-262,83	-1965,61	-179,20
C_{ij}	0	0	0
C_{ji}	0	0	0

Fonte: Zhu *et al.* (2016)

Figura 3: Fluxograma para separação da mistura acetonitrila/metanol/benzeno

Fonte: Zhu *et al.* (2017b)

2.2. Simulação em Regime Dinâmico

Para realizar a exportação para o regime transiente, utilizou-se o modo *Flow Driven* que utiliza as vazões das correntes como variáveis manipuladas na simulação dinâmica.

Neste trabalho, o controle de composição das correntes de produto será feito por inferência. Para isto, faz-se necessário determinar quais estágios das colunas deverão ter a temperatura controlada, de modo a manter o perfil de temperatura da coluna. Para a definição destas variáveis, foi utilizado o critério da sensibilidade, proposta por Luyben (2013).

2.2.1. Definição da Estrutura de Controle

As estruturas de controle propostas neste trabalho foram definidas com base na literatura, mais especificamente, a partir dos trabalhos de Luyben (2017) e Zhang *et al.* (2019), utilizando controle *plantwide*. A avaliação das estruturas de controle foi realizada aplicando distúrbios do tipo degrau na alimentação, conforme apresentado na Tabela 2. Com o objetivo de enfatizar a eficácia do controle por inferência, os distúrbios foram aplicados em malha aberta e em malha fechada de controle de temperatura.

Tabela 2: Valores dos distúrbios efetuados

Natureza do distúrbio	Fluxo (kg/hr)	Composição (wt/wt)		
		Acetonitrila	Metanol	Benzeno
Neutro	1000	20%	70%	10%
Positivo	1100	25%	65,625%	9,375%
Negativo	900	15%	74,375%	10,625%

Fonte: Próprio Autor

Com os distúrbios aplicados após uma hora de simulação, foi possível obter as respostas dinâmicas das composições dos produtos-chave de cada corrente de base, valores das temperaturas dos estágios controlados, níveis dos vasos de refluxo e *sump* e pressão de topo de cada uma das colunas.

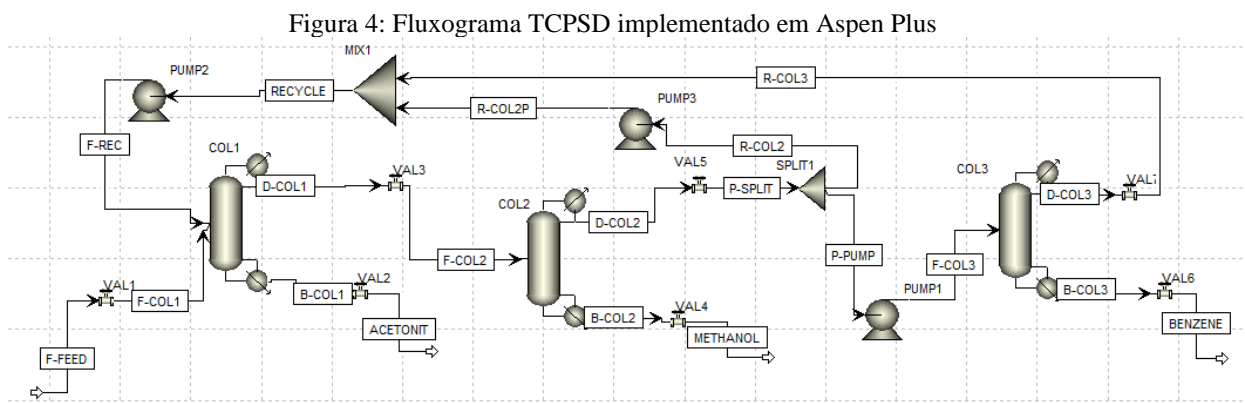
Outro resultado também obtido foi o cálculo do ISE (Integral do Erro Quadrático) que mede o quão distante está a composição dos produtos-chave dos valores de referência. A partir de tais valores, torna-se possível avaliar de maneira quantitativa qual estrutura de controle gerou melhor resultado diante dos distúrbios aplicados.

Além dos valores de ISE, também foram obtidos os valores das composições dos produtos após a simulação atingir novo estado estacionário. A avaliação conjunta dos valores de ISE e composição final dos produtos contribui para uma conclusão mais assertiva sobre qual estrutura de controle é mais eficaz.

3. Resultados e Discussão

3.1. Simulação em Regime Estacionário

A Figura 4 apresenta o fluxograma simulado no Aspen Plus, baseado no trabalho de Zhu *et al.* (2017b). Os dados obtidos na simulação estacionária estão apresentados nas Tabelas 3 e 4.



Fonte: Próprio Autor.

Tabela 3: Cargas térmicas e razão de refluxo das colunas

	Carga Térmica (kW)		Razão de Refluxo
	Refrervador	Condensador	
Coluna 1	1119,7	-1021,91	1,83072
Coluna 2	804,009	-908,759	3,2
Coluna 3	141	-102,441	0,0291359

Fonte: Próprio Autor

Tabela 4: Composições e vazões das correntes de processo

	F-FEED	D-COL1	ACETONIT	D-COL2	METHANOL	D-COL3	BENZENE
Acetonitrila	0,7000	0,6143	0,0000	0,3841	0,9991	0,4478	0,0000
Metanol	0,2000	0,0408	0,9992	0,0646	0,0009	0,0752	0,0010
Benzeno	0,1000	0,3449	0,0008	0,5513	0,0000	0,4770	0,9990
Vazão (kg/hr)	1000,00	1871,68	199,41	1171,01	700,67	602,66	99,95

Fonte: Próprio Autor

Após alcançar as especificações de produto, conforme verificado na Tabela 4, pode-se iniciar os procedimentos para obtenção do modelo em regime transiente. A partir dos resultados dos cálculos de hidráulica das colunas, realizados pelo próprio Aspen Plus, foram obtidos os valores das vazões internas, utilizados para os cálculos dos volumes dos vasos de refluxo e *sumps* das colunas. Os diâmetros das colunas foram calculados utilizando a ferramenta *Column's Internals*, do Aspen Plus.

Baseado nas metodologias estabelecidas por Luyben *et al.* (2010), e usando um tempo de *hold up* de 5 minutos, tal qual também definido pela literatura, foram obtidos os valores para as dimensões dos vasos para mostrados na Tabela 5.

Tabela 5: Dimensões dos *sumps* e vasos de refluxos.

Coluna	Coluna 1		Coluna 2		Coluna 3	
Equipamento	<i>Sump</i>	Vaso de refluxo	<i>Sump</i>	Vaso de refluxo	<i>Sump</i>	Vaso de refluxo
Diâmetro (m)	0,625174	0,924144	0,73	0,862355	0,252647	0,448922
Altura (m)	5,574801	1,848287	1,848216	1,724711	7,5037324	0,8978436

Fonte: Próprio Autor

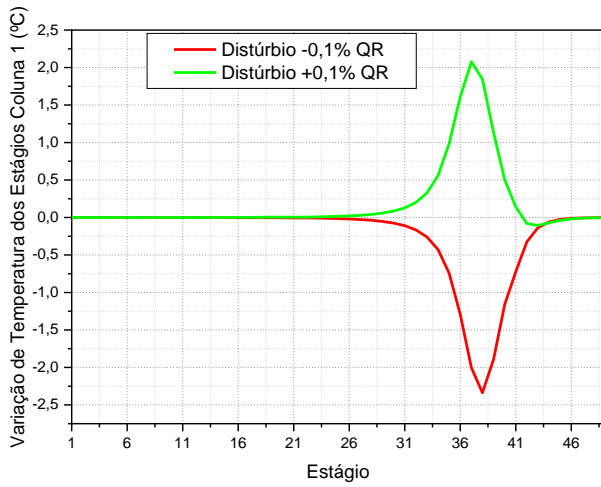
3.2. Dimensionamento e Estratégias de Controle

O modelo obtido em regime estacionário, apresentado na Figura 4, foi utilizado para determinação das variáveis controladas, mais especificamente, as temperaturas dos estágios sensíveis, utilizando o critério da sensibilidade, baseado no trabalho de Luyben (2006).

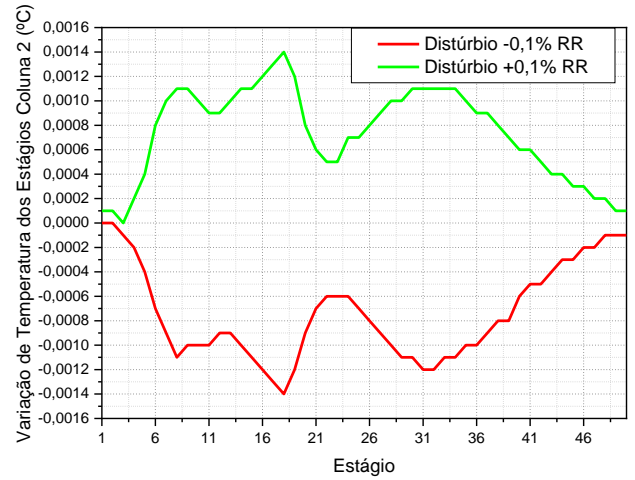
A partir do fluxograma simulado em estado estacionário, foram registrados os perfis de temperatura das colunas 1, 2 e 3, e foram aplicados distúrbios positivos e negativos de 0,1% no valor da variável manipulada de cada coluna (carga térmica do refeedor nas colunas 1, 2 e 3 e razão de refluxo na coluna 2). Os resultados obtidos estão apresentados na Figura 5.

Observa-se na Figura 5(a) que o estágio selecionado para controle de temperatura da Coluna 1 é 38°. Avaliando a Figura 5(b), a metodologia indica o estágio 18 ou o 19 para controle de temperatura da Coluna 2, manipulando a razão de refluxo. Contudo por se tratar de estágios próximos à alimentação, optou-se por controlar a soma das temperaturas dos estágios 8 e 31. De acordo com a Figura 5(c), o 6° estágio é o indicado para o controle de temperatura da Coluna 2 utilizando a carga do refeedor como variável manipulada, e para a Coluna 3, o 18° estágio é o indicado, conforme Figura 5(d).

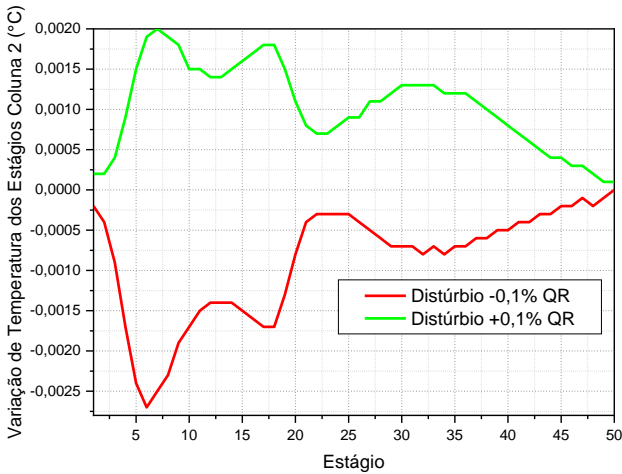
Figura 5: Variação de temperatura na Colunas 1 (a), Coluna 2 (b) e (c) e Coluna 3 (d).



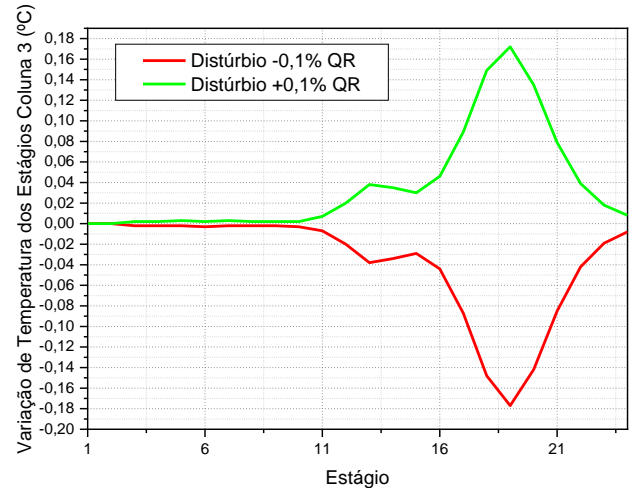
(a)



(b)



(c)



(d)

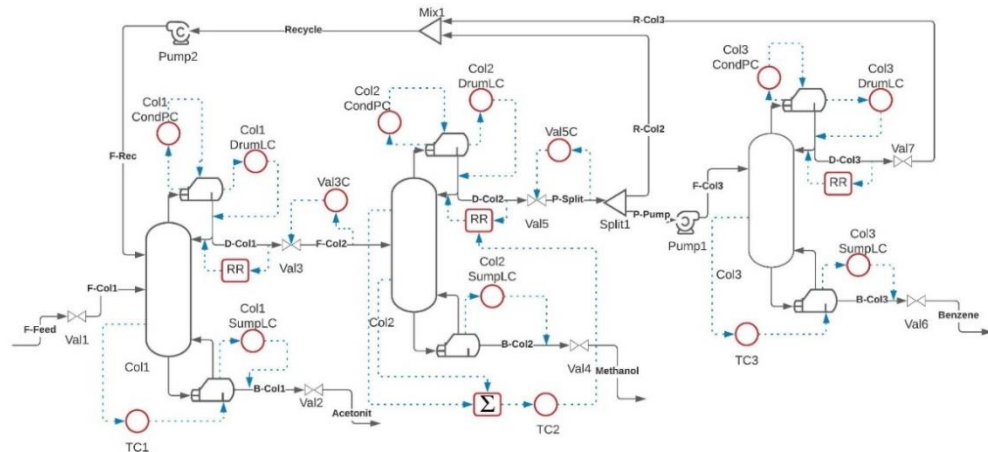
Fonte: Próprio Autor

Sendo assim, propõe-se duas estruturas de controle onde a diferença entre as duas se dá no controle da segunda coluna. A Estrutura de Controle 1 utiliza um controle de soma de temperatura dual nos estágios 8 e 31 manipulando a razão de refluxo, conforme proposto por Yang *et al.* (2019), com a finalidade de reduzir desvios e aumentar a velocidade de resposta, enquanto a Estrutura de Controle 2 utilizará um controle de temperatura do estágio 6 manipulando a carga térmica do refeedor.

3.3. Avaliação das Estruturas de Controle

Uma vez selecionadas as variáveis controladas e manipuladas de cada coluna de destilação, o passo seguinte foi a implementação dos controladores no Aspen Plus Dynamics. Com base na literatura (Zhang *et al.*, 2019 e Yang *et al.*, 2019), e dos resultados obtidos na seleção dos estágios para controle de temperatura, construiu-se a Estrutura de Controle 1, apresentada na Figura 6.

Figura 6: Estrutura de Controle 1 utilizada para TCPSD



Fonte: Próprio Autor

As demais malhas de controle mostradas na Figura 6, foram estabelecidas com base no trabalho de Skogestad (2006) que utiliza uma configuração de controle LV nas colunas 1 e 3, visto que ambas possuem as cargas térmicas dos refeedores como variáveis manipuladas (indiretamente, V) e possuem um controle proporcional na vazão de refluxo (L), enquanto na coluna 2, somente os controladores padrões de pressão, nível e o controle somatório de temperatura, manipulando a razão de refluxo, foram utilizados.

Após a implementação dos controladores, foi realizada a sintonia dos parâmetros. Os dados de sintonia dos controladores se encontram na Tabela 6.

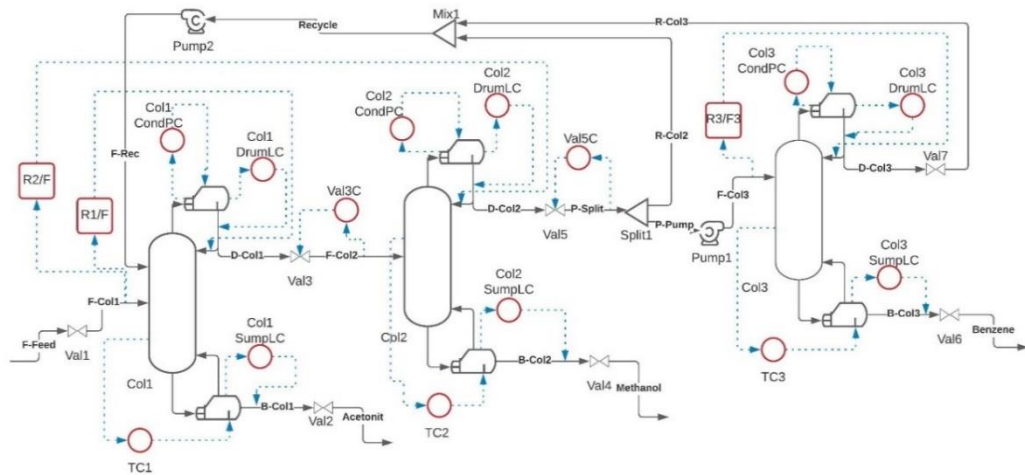
Tabela 6: Parâmetros dos controladores da Estrutura de Controle 1.

	TC ₁	TC ₂	TC ₃	VALC ₃	VALC ₅
Variável Controlada	$T_{1,38}$	$T_{2,8} + T_{2,31}$	$T_{3,19}$	P_{F-COL2}	$P_{P-SPLIT}$
Variável Manipulada	Q_{R1}	RR_2	Q_{R3}	Abertura Válvula	Abertura Válvula
Alcance de Transmissor	0-260,64 °C	0-267,47 °C	0-299,94 °C	0-2,38 bar	0-1,02 bar
Alcance de Saída de Controlador	0-2239,41 kW	0-6,4	0-282 kW	0-100%	0-100%
Ganho	0,460734	17,088127	1,589999	0,167951	0,586965
Tempo Integrativo (min)	5,674658	7,879293	3,026681	1,200062	1,200132
Tempo Derivativo (min)	0,559699	0,926067	0,270265	0,300015	0,300033

Fonte: Próprio Autor

Para a Estrutura de Controle 2, seguiu-se estritamente o trabalho de Luyben (2017) para fins comparativos com algo já existente na literatura. A Figura 7 abaixo ilustra a Estrutura de Controle 2.

Figura 7: Estrutura de Controle 2 para TCPSD



Fonte: Próprio Autor.

A Estrutura de Controle 2 controla a razão alimentação/refluxo, relacionando a alimentação do processo com as colunas 1 e 2 e na coluna 3 com a alimentação da mesma. O que diferencia a Estrutura de Controle 2 com a proposta no trabalho de Luyben (2017) é o controle das composições dos produtos por inferência (sem o uso de analisadores *online*). Os dados de sintonia dos parâmetros dos controladores da Estrutura de Controle 2 estão apresentados na Tabela 7.

Tabela 7: Parâmetros dos controlados da Estrutura de Controle 2

	TC ₁	TC ₂	TC ₃	VALC ₃	VALC ₅
Variável Controlada	$T_{1,38}$	$T_{2,6}$	$T_{3,19}$	P_{F-COL2}	$P_{P-SPLIT}$
Variável Manipulada	Q_{R1}	Q_{R2}	Q_{R3}	Abertura Válvula	Abertura Válvula
Alcance de Transmissor	0-260,65 °C	0-125,71 °C	0-299,94 °C	0-2,38 bar	0-1,02 bar
Alcance de Saída de Controlador	0-2239,41 kW	0-1777,78 kW	0-282 kW	0-100%	0-100%
Ganho	0,456878	2,99734	0,475199	0,167951	0,586965
Tempo Integrativo (min)	5,684315	6,205248	12,128418	1,200062	1,200132
Tempo Derivativo (min)	0,561136	0,544014	2,936256	0,300015	0,300033

Fonte: Próprio Autor

Para os controladores de pressão e nível, utilizou-se para ambas as malhas os valores referenciados por Luyben (2013). Em controladores do tipo PI para pressão e P para nível, apresentados na Tabela 8.

Tabela 8: Parâmetros dos Controladores de Nível e Pressão.

Controladores	Nível	Pressão
Ganho	20	2
Tempo Integrativo(min)	12	9999

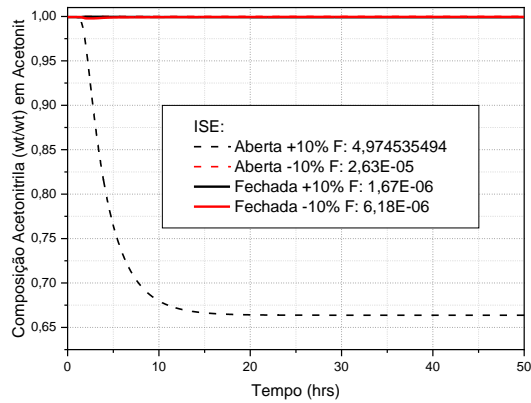
Fonte: Luyben (2013)

3.4. Avaliações das Estruturas de Controle

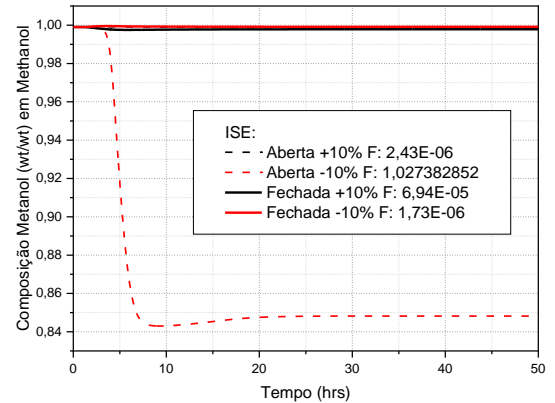
Após as aplicações dos distúrbios, foram obtidas as respostas dinâmicas das principais variáveis controladas do processo, mais especificamente, composição dos produtos e temperatura dos pratos sensíveis. Os resultados foram divididos de acordo com a estrutura de controle e os tipos de distúrbio.

Ao introduzir os distúrbios de vazão no processo TCPSD com Estrutura de Controle 1, foram geradas as respostas dinâmicas da composição referentes aos produtos de base e temperaturas dos pratos sensíveis. Estes resultados estão apresentados na Figura 8.

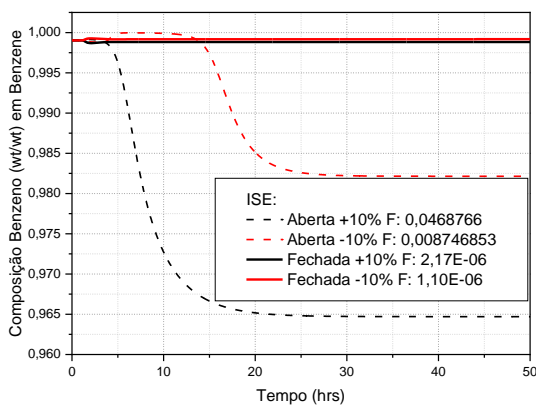
Figura 8: Respostas dinâmicas após distúrbios de vazão - Estrutura de Controle 1



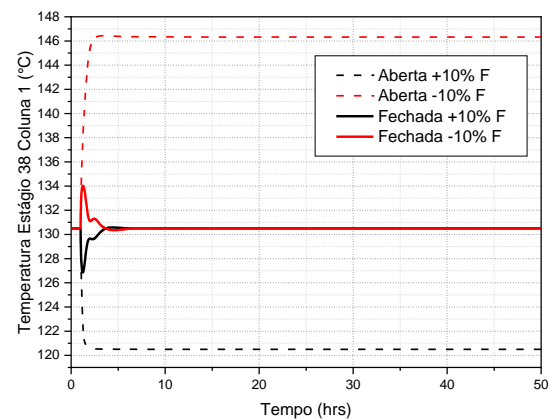
(a)



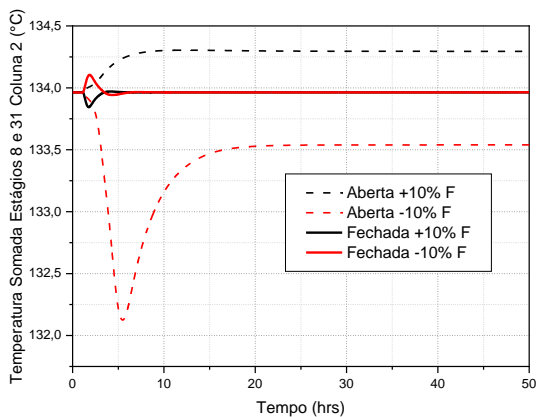
(b)



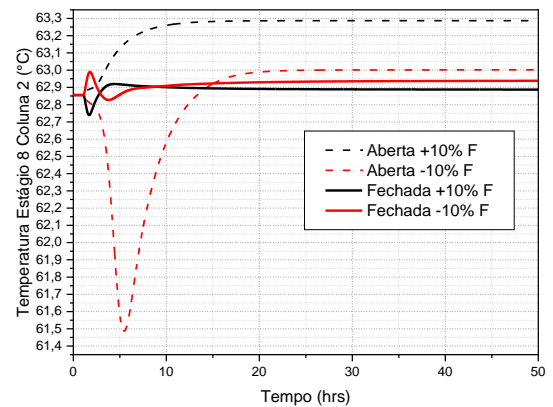
(c)



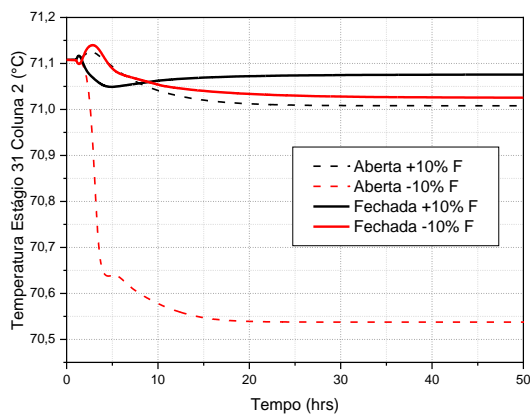
(d)



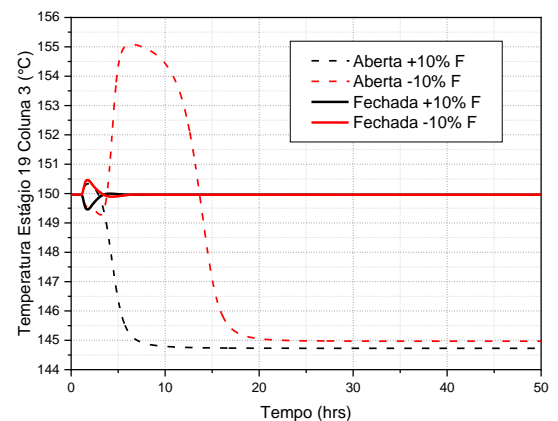
(e)



(f)



(g)



(h)

Fonte: Próprio Autor

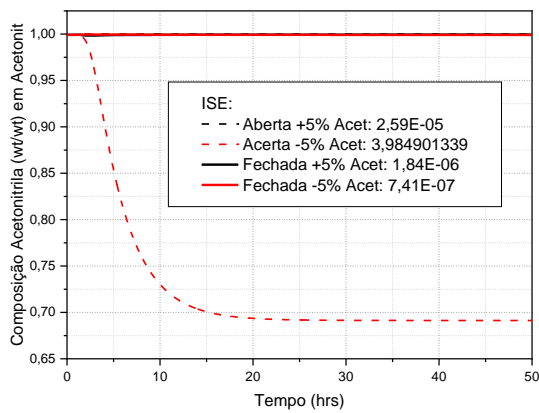
Avaliando as Figuras 8a, 8b e 8c, é notável que o controle por inferência (malha fechada de temperatura) foi capaz de manter a pureza dos produtos de interesse próximos aos respectivos valores de referência. Após aplicação dos distúrbios, as temperaturas dos pratos sensíveis levam um certo tempo para atingir o *setpoint* e, com isso, o sistema alcançar novamente o estado estacionário. Por se tratar de controle por inferência, os valores das composições dos produtos irão apresentar desvios em relação ao valor nominal, após o sistema atingir novamente o estado estacionário. A partir dos gráficos apresentados na Figura 8 não é possível quantificar estes desvios da composição, no entanto, observou-se nos históricos da simulação que o maior desvio resultou em uma composição de 0,99788 para o metanol, após distúrbio positivo na vazão, ao atingir 50 horas de simulação.

Ao avaliar as Figuras 8d, 8e e 8h observam-se rápidas respostas dos controladores, levando em média 3 horas para estabilizar os valores da variável controlada. Contudo, ao observar a decomposição da variável da Figura 8e, representada nas Figuras 8f e 8g, nota-se uma compensação entre ambas em malha fechada, onde uma tende a reduzir seu valor para compensar o ganho de valor da outra parte. O objetivo da malha de controle que gerou a Figura 8e é controlar o somatório das temperaturas dos estágios 8 e 31 da Coluna 2. Por este motivo, observa-se *offset*, após distúrbio em malha fechada, nas Figuras 8f e 8g.

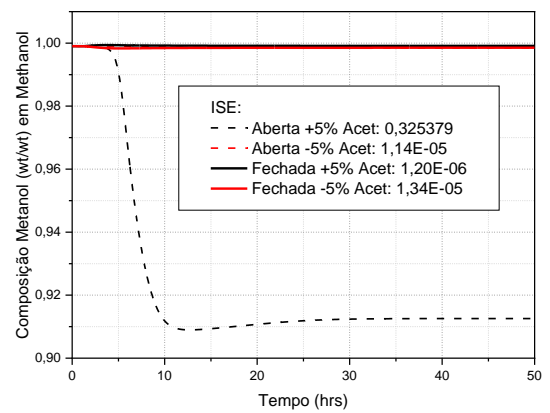
A Estrutura de Controle 1 gerou resultados satisfatórios, atingindo o objetivo principal de manter as composições dos produtos próximos aos respectivos valores de referência.

A Figura 9 apresenta as respostas dinâmicas da Estrutura de Controle 1 após distúrbios na composição de alimentação do processo TCPSD. Ao avaliar as respostas dinâmicas em malha aberta de temperatura, percebe-se nitidamente a influência dos distúrbios de composição na pureza dos produtos. Percebe-se também que esta influência diminui ao longo do processo, ou seja, a influência maior é observada na Coluna 1, na qual a composição da acetonitrila cai para aproximadamente 0,70 molar, seguido da Coluna 2, onde a composição do metanol cai para aproximadamente 0,91 molar, e finalmente, na Coluna 3, onde a composição cai para aproximadamente 0,97 molar. Esta mesma tendência é observada na Figura 8, com a redução da influência do distúrbio de vazão ao longo do processo.

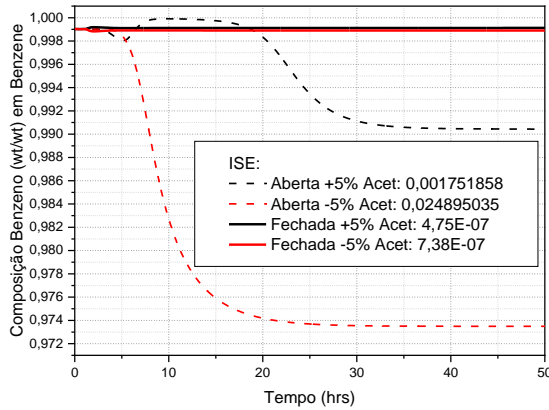
Figura 9: Respostas dinâmicas após distúrbios de composição - Estrutura de Controle 1



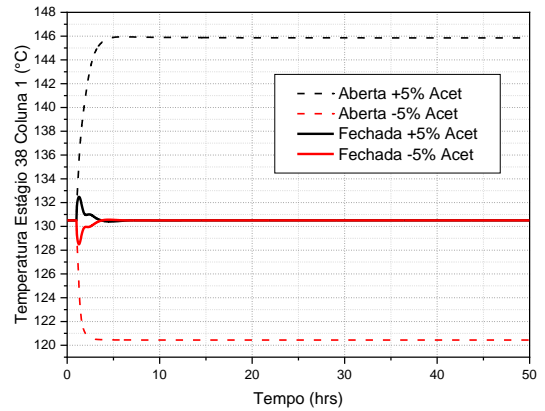
(a)



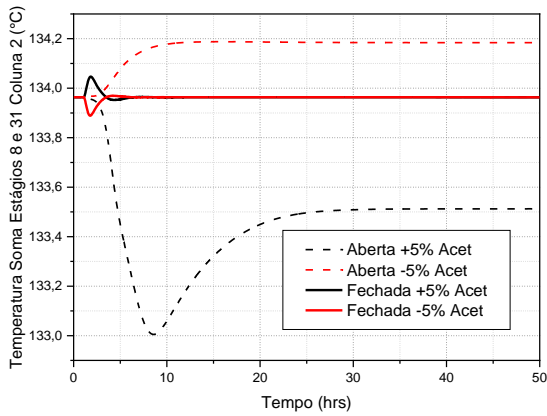
(b)



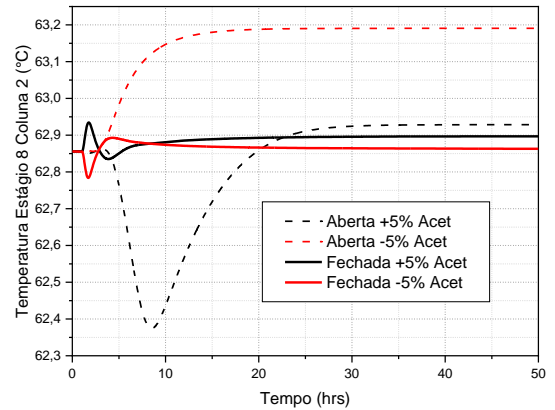
(c)



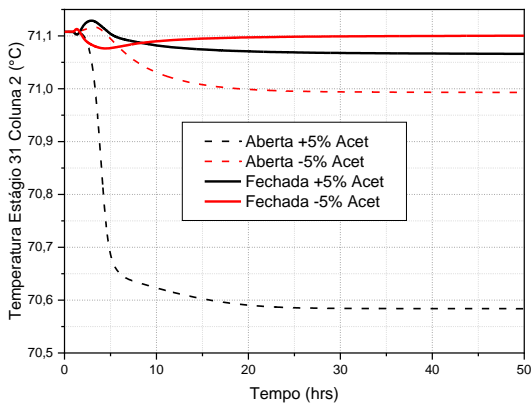
(d)



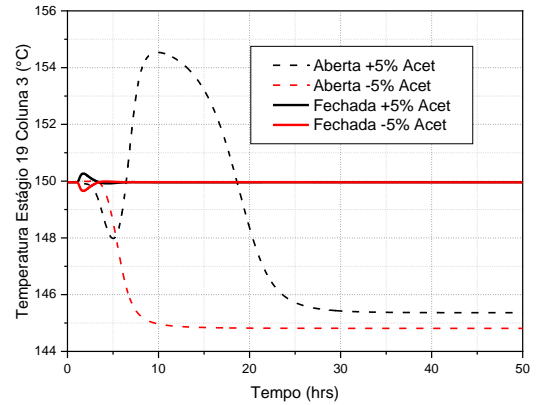
(e)



(f)



(g)



(h)

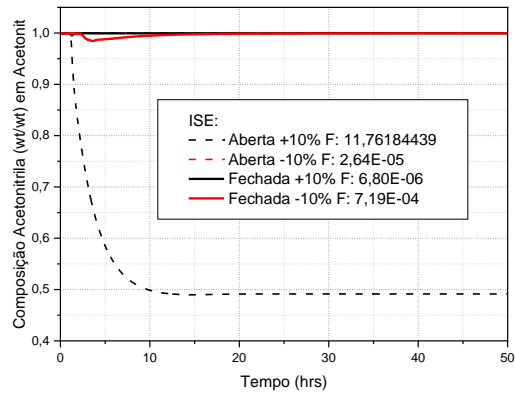
Fonte: Próprio Autor

Avaliando os históricos das simulações referentes as Figuras 9a, 9b e 9c, observou-se, em malha fechada, que o menor valor encontrado, após atingir novo estado estacionário, foi para o metanol com uma composição 0,998 molar, após distúrbio negativo de composição. As composições da acetonitrila e benzeno permaneceram mais próximos dos valores da especificação (0,999). Estes resultados indicam que a Estrutura de Controle 1 é capaz de realizar um bom controle por inferência da composição dos produtos.

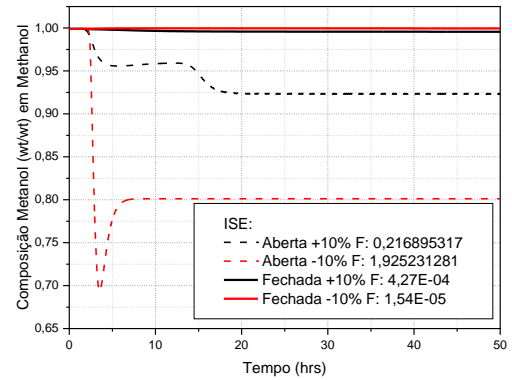
Avaliando as Figuras 9d, 9e e 9h, nota-se tempos de estabilização inferiores a 3 horas, com um comportamento de compensação observado nas Figuras 9f e 9g, tal qual no distúrbio anterior (vazão).

As repostas dinâmicas das composições dos produtos e temperaturas dos pratos sensíveis, para o sistema TCPSD utilizando a Estrutura de Controle 2, estão apresentadas na Figura 10.

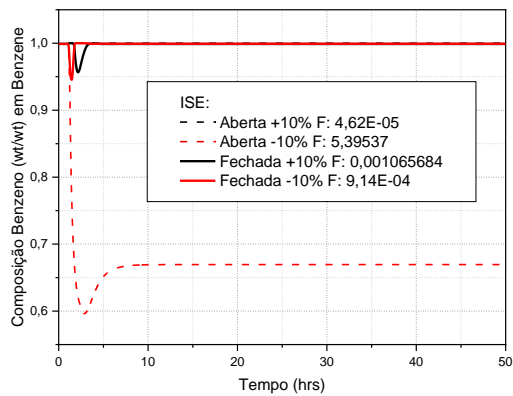
Figura 10: Respostas dinâmicas após distúrbios de vazão - Estrutura de Controle 2



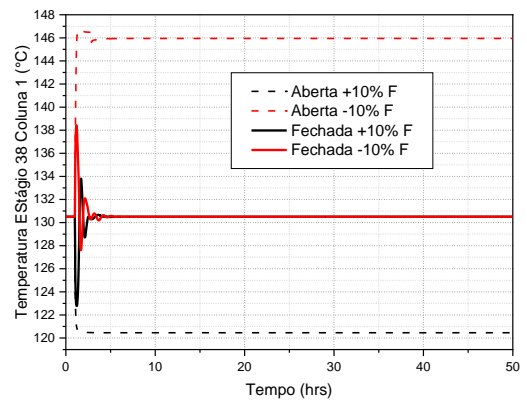
(a)



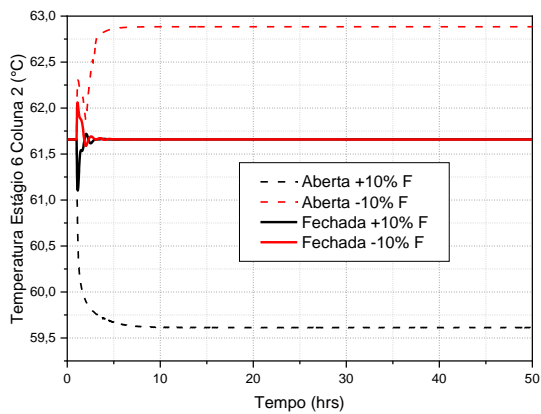
(b)



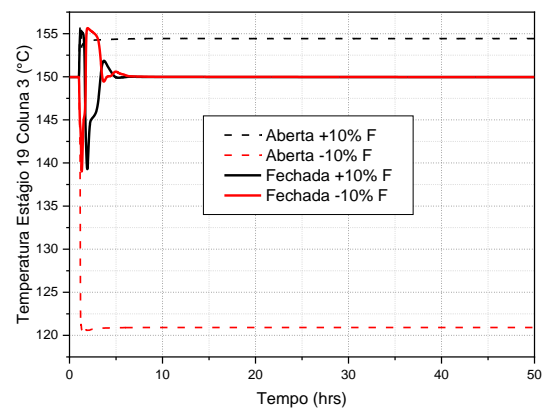
(c)



(d)



(e)



(f)

Fonte: Próprio Autor

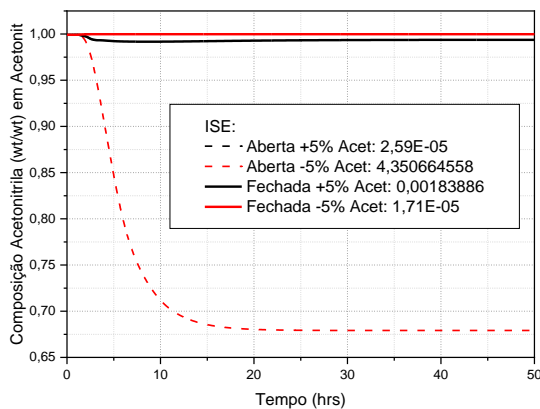
Ao avaliar as respostas dinâmicas referentes às composições (Figuras 10a, 10b, e 10c) nota-se a ocorrência de pequenos *overshoots*, após distúrbios em malha fechada de temperatura; em especial no distúrbio negativo, na composição de acetonitrila, e em ambos os distúrbios, na composição de benzeno. Este comportamento pode afetar o valor final do ISE calculado, apesar de o menor valor de composição apresentado, após atingir estado estacionário em malha fechada, ter sido de 0,995656 para o metanol após distúrbio positivo. Observou-se um comportamento

semelhante nos distúrbios de malha aberta negativos no metanol e no benzeno, provavelmente causado pela completa secagem do vaso de *sump* das colunas 1 e 3 observado durante a simulação.

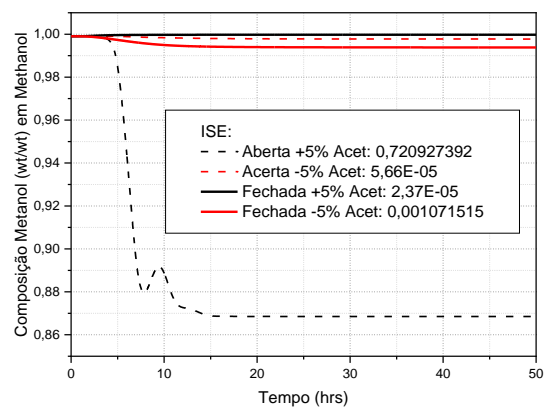
No que diz respeito ao controle de temperatura, evidenciado nas Figuras 10d, 10e e 10f, observou-se um tempo médio de 4,5 horas para a estabilização, sendo um tempo médio superior ao observado na Estrutura de Controle 1, após aplicação do mesmo tipo de distúrbio. Após aplicação de distúrbios de composição no sistema utilizando a Estrutura de Controle 2, foram geradas as respostas dinâmicas apresentados na Figura 11.

Ao avaliar as curvas apresentadas na Figura 11 referentes à composição dos produtos (Figuras 11a, 11b e 11c), observam-se desvios pequenos em relação os valores nominais. Analisando os históricos das simulações, a acetonitrila apresentou o menor desvio após atingir estado estacionário, em malha fechada de temperatura, com um valor de 0,993772 após distúrbio positivo. Para malha fechada após distúrbio negativo, o metanol atingiu o valor de 0,993829 em um tempo relativamente curto (aproximadamente 16 horas). O *overshoot* apresentado pela composição de benzeno no distúrbio negativo em malha fechada pode ser considerado insignificante, contudo, pode interferir no valor do ISE.

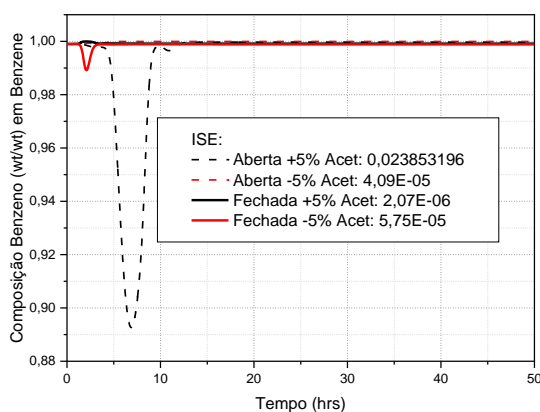
Figura 11: Respostas dinâmicas após distúrbios de composição - Estrutura de Controle 2



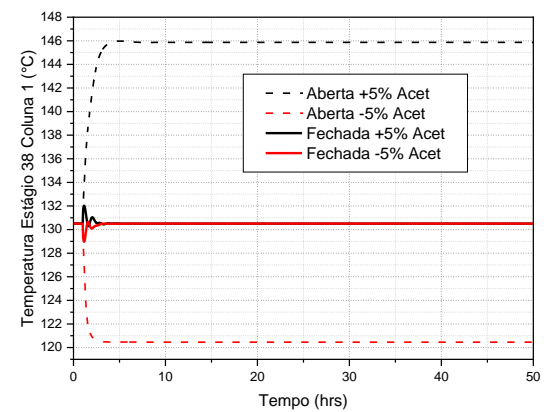
(a)



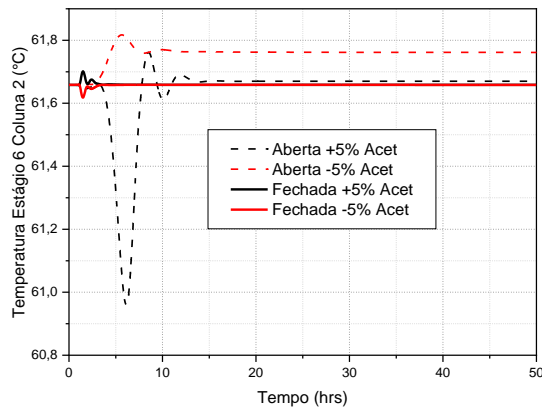
(b)



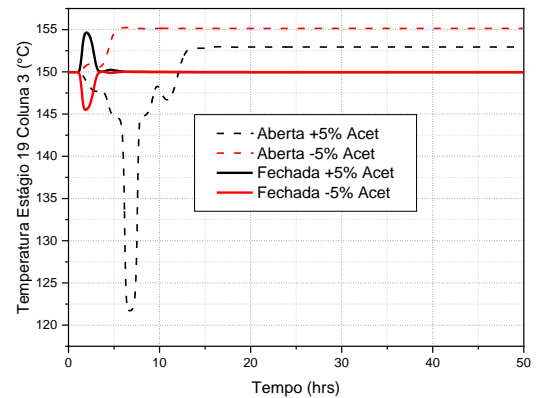
(c)



(d)



(e)



(f)

Fonte: Próprio Autor

Ao avaliar as Figuras 11d, 11e e 11f, nota-se que em menos de 3 horas de simulação as temperaturas estão estabilizadas em malha fechada. Entretanto, no distúrbio positivo em malha aberta, nas colunas 2 e 3, observou-se um *overshoot* de temperatura anormal que pode ser explicado ao observar os gráficos referentes às pressões das mesmas colunas, pois há uma pequena instabilidade nas pressões que não foi vista de forma tão expressiva em outros distúrbios em malha aberta.

Ao observar as respostas da Estrutura de Controle 1, no que diz respeito ao controle de temperatura da coluna 2, observa-se, tanto no distúrbio de vazão quanto no de composição respostas mais suaves e com menos oscilações em relação ao apresentado pela Estrutura de Controle 2 para o mesmo equipamento.

Após avaliar o desempenho das estruturas de controle, de forma qualitativa, a partir das respostas dinâmicas, o uso do ISE permite avaliar qual a melhor estrutura de controle de forma quantitativa. Os menores valores de ISE ajudarão a decidir entre as duas Estruturas de Controle analisadas, a que tem o melhor desempenho em termos de obtenção dos produtos com composições próximas aos valores de referência. Para uma melhor visualização, os resultados de ISE obtidos estão sumarizados na Tabela 9.

Tabela 9: Valores de ISE referentes às Estruturas de Controle 1 e 2.

		Estrutura de Controle 1				Estrutura de controle 2			
		Distúrbio	Acetonit	Metanol	Benzeno	Acetonit	Metanol	Benzeno	
Distúrbios	vazão	Malha	Positivo	4,974	2,43E-06	0,047	11,762	0,217	4,62E-05
		Aberta	Negativo	2,63E-05	1,027383	0,0087	2,64E-05	1,925	5,395
	Fechada	Malha	Positivo	1,67E-06	6,94E-05	2,17E-06	6,80E-06	4,27E-04	0,0011
		Fechada	Negativo	6,18E-06	1,73E-06	1,10E-06	7,19E-04	1,54E-05	9,14E-04
Distúrbios	composição	Malha	Positivo	2,59E-05	0,325	0,0017	2,59E-05	0,721	0,024
		Aberta	Negativo	3,985	1,14E-05	0,025	4,351	5,66E-05	4,09E-05
		Malha	Positivo	1,84E-06	1,20E-06	4,75E-07	0,0018	2,37E-05	2,07E-06
		Fechada	Negativo	7,41E-07	1,34E-05	7,38E-07	1,71E-05	0,0011	5,75E-05

Fonte: Próprio Autor

Ao avaliar os dados apresentados na Tabela 9, observa-se que Estrutura de Controle 1 tem uma tendência a gerar desvios menores em relação à Estrutura de Controle 2, com exceção do distúrbio de composição em malha aberta negativo para o benzeno, distúrbio negativo de vazão em malha aberta de temperatura para a acetonitrila e em distúrbio positivo de composição positivo em malha aberta de temperatura para a acetonitrila. Entretanto, o interesse principal é na resposta obtida em malha fechada de temperatura. De modo geral, ambas as Estruturas de Controle apresentaram bons resultados.

É importante salientar que a presença de *overshoots*, após aplicação dos distúrbios, pode interferir no valor final do ISE. Sendo assim, os valores das composições, após atingir novamente o estado estacionário, é um parâmetro que também deve ser levado em consideração para se determinar qual a melhor estrutura de controle, haja visto que o controle por inferência não é capaz de eliminar o desvio da composição após o distúrbio. No entanto, o tempo de simulação de 50 horas utilizado neste trabalho ajuda a minimizar a influência dos *overshoots* nos valores de ISE. A Tabela 10 apresenta os valores finais das composições dos produtos ao completar 50 horas de simulação.

Tabela 10: Valores finais de composição dos produtos referentes às Estruturas de Controle 1 e 2

		Estrutura de Controle 1				Estrutura de controle 2		
		Distúrbio	Acetonit	Metanol	Benzeno	Acetonit	Metanol	Benzeno
Distúrbios vazão	Malha	Positivo	0,66373	0,99876	0,9647	0,49148	0,92349	1
	Aberta	Negativo	0,99999	0,84822	0,98214	0,99999	0,80115	0,66945
	Malha	Positivo	0,99903	0,99788	0,99882	0,99956	0,99566	0,9989
	Fechada	Negativo	0,99951	0,99912	0,99918	0,99943	0,99956	0,99915
Distúrbios composição	Malha	Positivo	0,99998	0,91258	0,99043	0,99999	0,86853	0,99971
	Aberta	Negativo	0,6913	0,99845	0,97349	0,67913	0,99776	0,99997
	Malha	Positivo	0,99938	0,99913	0,99913	0,99377	0,99975	0,99917
	Fechada	Negativo	0,99913	0,99854	0,99891	0,99985	0,99383	0,99888

Fonte: Próprio Autor.

Foram avaliadas duas estruturas de controle, contendo malhas de controle de composição por inferência, com respostas satisfatórias, tendo como o valor mais distante obtido das especificações, em malha fechada, superior a 0,993 (base mássica), ou seja, bastante próximo do valor de referência que é 0,999.

Sendo assim, pode-se concluir que o controle de composição por inferência apresentou bom desempenho quando aplicado ao sistema TCPSD em questão. As demais malhas de controle (pressão e nível) também apresentaram resultados satisfatórios.

Em relação a comparação entre as duas Estruturas de Controle avaliadas, conclui-se que a Estrutura de Controle 1, que utiliza controle de soma de temperatura dual, gera melhores respostas, mediante distúrbios na vazão e composição, quando comparados aos resultados da Estrutura de Controle 2, que utiliza controle de temperatura manipulando diretamente a carga do refeedor.

O uso do ISE como parâmetro para avaliar a melhor estrutura de controle pode ser influenciado pela ocorrência de *overshoots*. Sendo assim, o mais indicado é avaliação dos valores de ISE juntamente com o valor da composição dos produtos após atingir novamente o estado estacionário.

Como sugestões para trabalhos futuros para esta área, sugere-se: a aplicação de técnicas como bombas de calor, redes de trocadores de calor e integração térmica para avaliação econômica e avaliação de emissão de gases-estufa, estudos da aplicação de redes neurais para este processo; e uso e metodologias como o *kriging* para avaliar pontos-chave que ainda precisam de um melhor refino na literatura.

4. Considerações Finais

Foi possível propor duas estruturas de controle, contendo malhas de controle de composição por inferência, com respostas satisfatórias, tendo como o valor mais distante obtido das especificações, em malha fechada, superior a 0,993 (base mássica), ou seja, bastante próximo do valor de referência que é 0,999.

Sendo assim, conclui-se que o controle de composição por inferência apresentou bom desempenho quando aplicado ao sistema TCPSD em questão. As demais malhas de controle (pressão e nível) também apresentaram resultados satisfatórios.

Em relação a comparação entre as duas Estruturas de Controle avaliadas, conclui-se que a Estrutura de Controle 1, que utiliza controle de soma de temperatura dual, gera melhores respostas, mediante distúrbios na vazão e composição, quando comparados aos resultados da Estrutura de Controle 2, que utiliza controle de temperatura clássico baseado no trabalho de LUYBEN (2017).

O uso do ISE como parâmetro para avaliar a melhor estrutura de controle pode ser influenciado pela ocorrência de *overshoots*. Sendo assim, o mais indicado é avaliação dos valores de ISE juntamente com o valor da composição dos produtos após atingir novamente o estado estacionário.

Referências

- Halvorsen, I. J.; Skogestad, S.; Morud, J. C.; Alstad, V. (2003). Optimal selection of controlled variables. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Trondheim, 42, 3273-3284.
- Hori, E. S. (2005). Contribuição ao Estudo de Controle “Plantwide”: Controle Indireto e Coordenação de Controladores Descentralizados. Tese de Doutorado apresentado a Universidade Federal de São Carlos - UFSCar.
- Knapp, J. P., Doherty, M. F. (1992). A New Pressure-Swing-Distillation Process for Separating Homogeneous Azeotropic Mixtures. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 31(1), 346-357.
- Luyben, W. L.; Tyréus, B. D.; Luyben, M. L. (1998). *Plantwide process control*. 1ª ed. New York: McGraw-Hill.
- Luyben, W. L. (2006). *Evaluation of criteria for selecting temperature control trays in distillation columns*. *Journal of Process Control*, 16(2), 115-134.
- Luyben, W. L., Chien, I. L. (2010). *Design and Control of Distillation Systems for Separating Azeotropes*. 1 ed. New York: John Wiley & Sons.
- Luyben, W. L. (2012). Pressure-Swing Distillation for Minimum- and Maximum-Boiling Homogeneous Azeotropes. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 51, 10881-10886.
- Luyben, W. L. (2013). *Distillation, Design and Control Using Aspen Simulation*. 2 ed. New York: John Wiley & Sons.
- Luyben, W. L. (2017). Control of a Triple-Column Pressure-Swing Distillation Process. *Sep. Purif. Technol.*, p. 232-244.
- Seader, J. D., Henley, E. J., Roper, D. K. (2011). *Separation Process Principles: Chemical and Biochemical Operations*. 3ed. New York: John Wiley & Sons.
- Seborg, D. E.; Edgar, T. F.; Mellichamp, D. A. (2004). *Process dynamics and control*. 2nd edition, New York: John Wiley & Sons.
- Silva, S. K. da. (2013). Utilização de uma Ferramenta para Seleção Automática de Estruturas de Controle para Plantas de Processos. Tese de Doutorado apresentado a Universidade Federal de Campina Grande - UFCG.
- Skogestad, S. (2000). Plantwide Control: the search for the self-optimizing control structure. *Journal of Process Control*, Trondheim, 10(5), 487-507.
- Skogestad, S. (2004). Control structure design for complete chemical plants. *Computers & Chemical Engineering*, Trondheim, 28(1), 219-234.

- Skogestad, S. (2006). The Dos and Don'ts of Distillation Column Control. *Chemical Engineering Research and Design*, 85, 13-23.
- Wang, C., Zhang, Z., Zhang, X., Guang, C., Gao, J. (2019). Comparison of Pressure-Swing Distillation with or without Crossing Curved-Boundary for Separating a Multiazeotropic Ternary Mixture. *Separation and Purification Technology*, vol 220, p 114-125, 2019.
- Wang, N., Ye, Q., Chen, L., Zhang, H., Zhong, J. (2021). Improving the Economy and Energy Efficiency of Separating Water/Acetonitrile/Isopropanol Mixture via Triple-Column Pressure-Swing Distillation with Heat-pump Technology. *Energy*, 215A, 119126.
- Yang, A., Shen, W., Wei, S., Dong, L., Li, J., Gerbaud, V. (2019). Design and Control of Pressure-Swing Distillation for Separating Ternary Systems with Three Binary Minimum Azeotropes. *AIChE Journal*, 65, 1281-1293.
- You, X., Ma, T., Qiu, T. (2019). Design and Optimization of Sustainable Pressure-Swing Distillation for Minimum-Boiling Azeotrope Separation. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 58, 21659-21679.
- Zhang, Q., Liu, M., Li, W., Li, C., Zeng, A. (2019). Heat-integrated triple-column pressure-swing distillation process with multi-recycle streams for the separation of ternary azeotropic mixture of acetonitrile/methanol/benzene. *Sep. Purif. Technol.*, 211, 40-53.
- Zhang, Q., Zeng, A., Ma, Y., Yuan, X., Gao, J. (2020). Dynamic Control Analyses of Eco-Efficient Partially Heat-Integrated Side-Stream Pressure-Swing Distillation Processes. *Sep. Purif. Technol.*, 239, 115853.
- Zhu, Z.; Xu, D.; Liu, X.; Zhang, Z.; Wang, Y. (2016). Separation of acetonitrile/methanol/benzene ternary azeotrope via triple column pressure-swing distillation. *Sep. Purif. Technol.*, 169, 66-77.
- Zhu, Z., Xu, D., Jia, H., Zhao, Y., Wang, Y. (2017a). Heat Integration and Control of a Triple-Column Pressure-Swing Distillation Process. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 56, 2150-2167.
- Zhu, Z., Xu, D., Wang, Y., Geng, X., Wang, Y. (2017b). Effect of multi-recycle streams on triple-column pressure-swing distillation optimization. *Chemical Engineering Research and Design*, 127, 215-222.