

INFLUÊNCIA DA JAQUETA DE RESFRIAMENTO NO COMPORTAMENTO DINÂMICO DO CSTR

M. M. CAMARA¹, P. A. MELO¹ e J. C. PINTO¹

¹ Programa de Engenharia Química, COPPE, Universidade Federal do Rio de Janeiro
E-mail para contato: mauricio@peq.coppe.ufrj.br

RESUMO – A modelagem tradicional de reatores exotérmicos baseia-se no modelo clássico do reator tanque de mistura perfeita (CSTR) com duas variáveis de estado. Nesse modelo, considera-se válida a suposição de que a dinâmica da temperatura da jaqueta de resfriamento é desprezível, de forma que sua resposta é virtualmente instantânea. Esse trabalho estendeu o modelo clássico do CSTR com dois estados para um modelo com três estados, que considera a dinâmica da jaqueta de resfriamento. Por meio desse novo modelo, investigou-se de maneira exploratória o sistema por meio dos novos parâmetros τ_Q e η introduzidos pela dinâmica da jaqueta para os casos em que o modelo com dois estados apresenta comportamento dinâmico complexo, i.e., multiplicidade de estados estacionários e oscilações periódicas. A variação dos novos parâmetros para as condições avaliadas mostraram que a dinâmica da camisa influencia de forma acentuada o sistema, podendo até mesmo propiciar o aparecimento de bifurcações do tipo duplicação de período, e que o comportamento dinâmico complexo aparece apenas para valores pequenos de τ_Q e η , em geral menores que 0,5.

1. INTRODUÇÃO

O projeto e operação de reatores contínuos do tipo tanque agitado (CSTR) influenciam de forma significativa a viabilidade econômica de muitos processos químicos, podendo apresentar problemas operacionais desafiadores por possuírem comportamentos dinâmicos não lineares como a multiplicidade de estados estacionários (por meio do fenômeno de ignição/extinção) e a possibilidade de oscilações periódicas e aperiódicas auto-sustentadas (Russo e Bequette, 1992).

A abordagem clássica para a representação desse sistema consiste em um modelo de dois estados, representado por um conjunto de duas equações diferenciais ordinárias não lineares obtidas a partir dos balanços de massa e energia no sistema reacional, considerando-se volume constante, mistura perfeita, parâmetros físicos constantes e dinâmica da jaqueta¹ de resfriamento desprezível. Diversos trabalhos deduziram condições para multiplicidade de estados estacionários para esse modelo do CSTR de dois estados (Aris e Amundson, 1958; Hlaváček *et al.*, 1970; Uppal *et al.*, 1974, 1976; Golubitsky e Keyfitz, 1980; Balakotaiah e Luss, 1981, 1983; Ray, 1982; Guckenheimer, 1986;

¹ O termo “jaqueta”, utilizado para fazer referência ao volume que envolve o volume reacional e que abriga o fluido de troca térmica, é considerado sinônimo do termo “camisa”, sendo ambos usados sem qualquer distinção nesse texto.

Pellegrini e Biardi, 1990; Favache *et al.*, 2009). Planeaux e Jensen (1986) deduziram um modelo mais realístico para o CSTR considerando a capacitância térmica das paredes e chicanas por meio de um balanço de energia nos componentes sólidos, resultando em um modelo de três estados. Por meio da teoria de forma normal, foram identificados e classificados os variados comportamentos dinâmicos do sistema, incluindo múltiplos torus invariantes e duplicação de período em órbitas periódicas, além de oscilações quase periódicas e múltiplos pontos de bifurcação de Hopf. Apesar de ser um modelo de três estados, esse modelo não considerou a dinâmica da temperatura do fluido de resfriamento.

No entanto, poucos trabalhos trataram da influência da dinâmica da camisa de resfriamento no comportamento dinâmico do reator (Russo e Bequette, 1992, 1995, 1996, 1997; Subramanian e Georgakis, 2000; Nagrath *et al.*, 2002; Solov'yev e Lewin, 2003) e estão baseados no modelo deduzido por Russo e Bequette (1992, 1995). Russo e Bequette (1992, 1995, 1996) mostraram que a adição da dinâmica da camisa de resfriamento nas equações de modelo do CSTR influencia o comportamento dinâmico do sistema, demonstrando que os modelos de dois e três estados podem exibir comportamentos completamente diferentes para o mesmo conjunto de parâmetros. Adicionalmente, foram identificadas condições que resultam na presença de isolas e bifurcações descontínuas (ramos abertos e desconectados de soluções estacionárias) por meio da teoria elementar de catástrofe, indicando que o *scale-up* tem um importante efeito na presença de regiões operacionais viáveis.

Nesse contexto, esse trabalho teve por objetivo incluir a dinâmica da camisa de resfriamento na modelagem de um reator CSTR e avaliar, de forma exploratória, sua influência no comportamento dinâmico do reator por meio da técnica de continuação paramétrica, tendo como base e ponto de partida o clássico trabalho de Uppal *et al.* (1974), um dos primeiros a aplicar a teoria de bifurcação de Hopf para o caso do CSTR não isotérmico.

2. METODOLOGIA

Inicialmente, um modelo de três estados foi deduzido considerando a dinâmica na jaqueta de troca térmica; assim, dois novos parâmetros adimensionais foram definidos, τ_Q e η , conforme será apresentado adiante. Na sequência, tendo como base o trabalho de Uppal *et al.* (1974), identificaram-se as condições em que o modelo de dois estados apresenta comportamento dinâmico complexo e os parâmetros τ_Q e η foram variados dentro do intervalo $[0; 4]$ para essas condições, buscando-se avaliar a influência da dinâmica da camisa no sistema. O comportamento do sistema para os diferentes valores dos parâmetros foi obtido pela técnica de continuação paramétrica realizada por meio do *software* AUTO (Doedel e Oldeman, 2012).

3. MODELO MATEMÁTICO DO CSTR COM DINÂMICA NA CAMISA

A modelagem de uma reação exotérmica de primeira ordem do tipo $A \rightarrow B$ ocorrendo em um CSTR encamisado inclui equações para a conversão das espécies químicas e temperatura do meio reacional, de acordo com o esquema apresentado na Figura 1. Para considerar a dinâmica da temperatura do fluido refrigerante, uma nova equação advinda do balanço de energia na camisa de

troca térmica deve ser incluída.

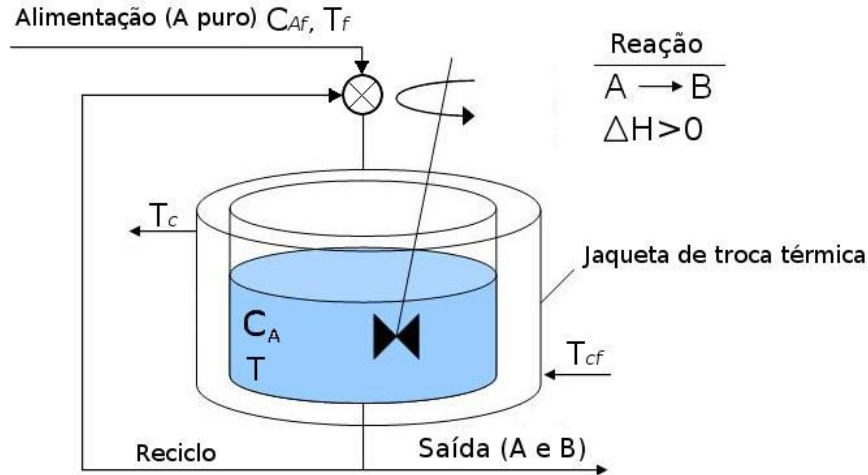


Figura 1 – Esquema do CSTR considerado na modelagem.

Na forma adimensional, as equações são escritas como:

$$\frac{dx_1}{dt} = -x_1 + Da(1 - x_1) \exp \left(\frac{x_2}{1 + \frac{x_2}{\gamma}} \right) \quad (1)$$

$$\frac{dx_2}{dt} = -x_2 + B Da(1 - x_1) \exp \left(\frac{x_2}{1 + \frac{x_2}{\gamma}} \right) - \beta(x_2 - x_3) \quad (2)$$

$$\frac{dx_3}{dt} = \tau_Q (x_{3f} - x_3) + \beta \eta (x_2 - x_3) \quad (3)$$

A notação usada é a mesma de Uppal *et al.* (1974), com a definição dos seguintes novos grupos adimensionais:

$$\begin{aligned} x_3 &= \frac{T_c - T_f}{T_f} \gamma & x_{3f} &= \frac{T_{cf} - T_f}{T_f} \gamma & \tau_c &= \frac{V_c}{F_c} \\ \tau_Q &= \frac{V}{F \lambda} \frac{F_c}{V_c} = \frac{\tau}{\tau_c} & \eta &= \frac{V \rho C_p}{V_c \rho_c C_{pc}} \end{aligned} \quad (4)$$

Tal definição dos novos parâmetros adimensionais foi proposta de forma que quando $\tau_Q = \eta = 0$, o modelo de três estados reduz-se ao modelo clássico de dois estados de Uppal *et al.* (1974).

Assim, o sistema formado pelas Equações 1-3 consiste em um modelo de três estados, sendo uma extensão do modelo de Uppal *et al.* (1974) para o caso em que a dinâmica da camisa é considerada. Por sutis diferenças na definição de alguns grupos adimensionais, esse modelo difere daquele apresentado por Russo e Bequette (1992, 1995, 1996, 1997).

4. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Uppal *et al.* (1974) identifica seis regiões no espaço bidimensional dos parâmetros B e $(1 + \beta)$ com diferentes tipos de comportamento dinâmico para o modelo de dois estados em função do parâmetro Da , tendo classificado os diferentes tipos em sete casos. Dentre os sete casos, quatro foram escolhidos para se avaliar o modelo de três estados, em que o valor do parâmetro Da em cada caso correspondeu à região que apresenta órbita periódica instável ou estável. As condições escolhidas estão apresentadas na Tabela 1, em que $\gamma = 47190$ e $x_{af} = 0$ permaneceram constantes.

Tabela 1 – Condições selecionadas para avaliação do modelo de três estados.

Condição	Caso*	Região*	Figura*	B	β	Da
1	3	IV	12	19,0	3,0	0,10282
2	4	IV	16	16,2	3,0	0,1283
3	5	V	21	14,0	3,0	0,162
4	7	VI	26	7,06	0,74	0,1317

* Valores referentes ao artigo de Uppal *et al.* (1974).

Para não estender demasiadamente esse trabalho, apenas os resultados mais relevantes, obtidos para a Condição 1 (*cf.* Tabela 1), serão apresentados. Para a Condição 1, tem-se para o modelo de dois estados uma região para o parâmetro Da em que o estado x_1 apresenta três estados estacionários (sendo apenas um estável) e duas órbitas periódicas (uma estável e outra instável), em que identifica-se $Da = 0,10282$ como um ponto de interesse para investigar os parâmetros τ_Q e η no modelo de três estados. Assim, fixando o valor do parâmetro Da em $0,10282$, resolveu-se o modelo de três estados variando os parâmetros τ_Q e η , cujos resultados estão apresentados na Figura 2.

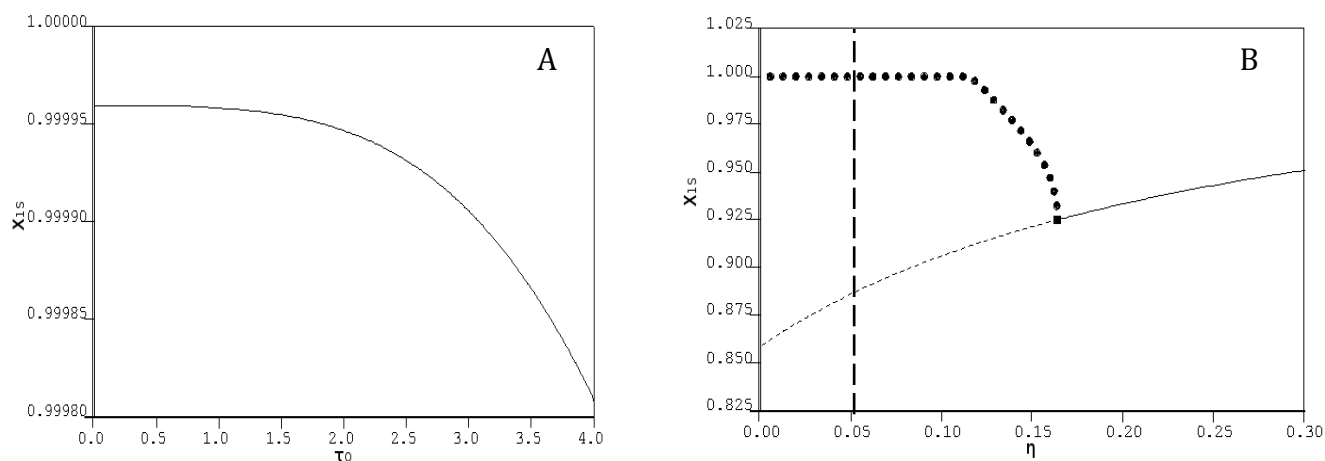


Figura 2 – Estados estacionários e ciclos limite para o modelo de três estados na Condição 1 com $B = 19$, $\beta = 3$, $Da = 0,10282$, $\gamma = 47190$, $x_{af} = 0$, $\eta = 4$ (A) e $\tau_Q = 4$ (B).

Comparando a Figura 2 com os resultados de Uppal *et al.* (1974) para o modelo de dois estados com o mesmo conjunto de parâmetros, observa-se que a dinâmica na camisa altera o comportamento

do sistema para a faixa avaliada de $[0; 4]$ quando $\eta = 4$ e $\tau_Q = 4$, estabilizando o sistema para altos valores de η e τ_Q e deixando apenas um estado estacionário estável. No entanto, para $\tau_Q = 4$ existe uma região de η em que o sistema passa a apresentar ciclos limite estáveis. Russo e Bequette (1992) consideram nos estudos de caso a razão entre o tempo de residência da camisa de resfriamento e o tempo de residência do CSTR como sendo da ordem de 1/15, enquanto Russo e Bequette (1995) consideram a mesma razão como sendo da ordem de 1/10. Todavia, não é possível fazer uma comparação direta pela diferença na definição das variáveis.

Pretendendo-se investigar mais o comportamento do sistema nessa região, foi escolhido um valor de η em que o sistema apresentava oscilações periódicas para variar novamente o parâmetro τ_Q na faixa $[0; 4]$. O valor escolhido para η foi 0,050 e o resultado está apresentado na Figura 3.

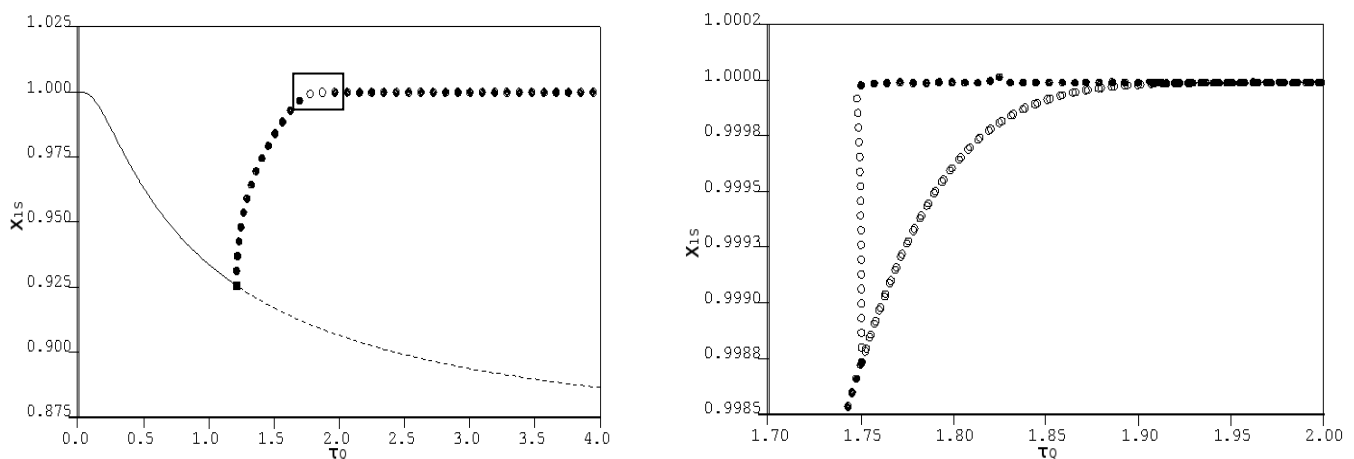


Figura 3 – Estados estacionários e ciclos limite para o estado x_1 do modelo de três estados na Condição 1 com $B = 19$, $\beta = 3$, $Da = 0,10282$, $\gamma = 47190$, $x_{af} = 0$ e $\eta = 0,050$.

A partir da Figura 3 observa-se que a oscilação periódica coexiste com o estado estacionário instável quando $\tau_Q = 4$ e, à medida que o parâmetro diminui, nota-se que a amplitude da oscilação também diminui, até desaparecer completamente próximo a $\tau_Q = 1,2$, originando um estado estacionário estável. É interessante notar que o sistema apresenta duplicação de período nas oscilações periódicas em uma faixa de valores de τ_Q quando $\eta = 0,050$. Comportamentos análogos foram observados para os estados x_2 e x_3 .

De forma a confirmar a duplicação de período encontrada no procedimento de continuação paramétrica, escolheu-se $\tau_Q = 1,76$ para a determinação da trajetória dinâmica dos estados, obtida por meio do software Matlab (The MathWorks Inc., Natick, MA, United States) e apresentada na Figura 4.

Assim, a Figura 4 confirma a duplicação de período detectada na continuação paramétrica para o modelo de três estados com o conjunto de parâmetros $B = 19$, $\beta = 3$, $Da = 0,10282$, $\gamma = 47190$, $x_{af} = 0$, $\eta = 0,050$ e $\tau_Q = 1,76$, mostrando um novo tipo de comportamento dinâmico que surge ao

se considerar a dinâmica da camisa na modelagem do CSTR.

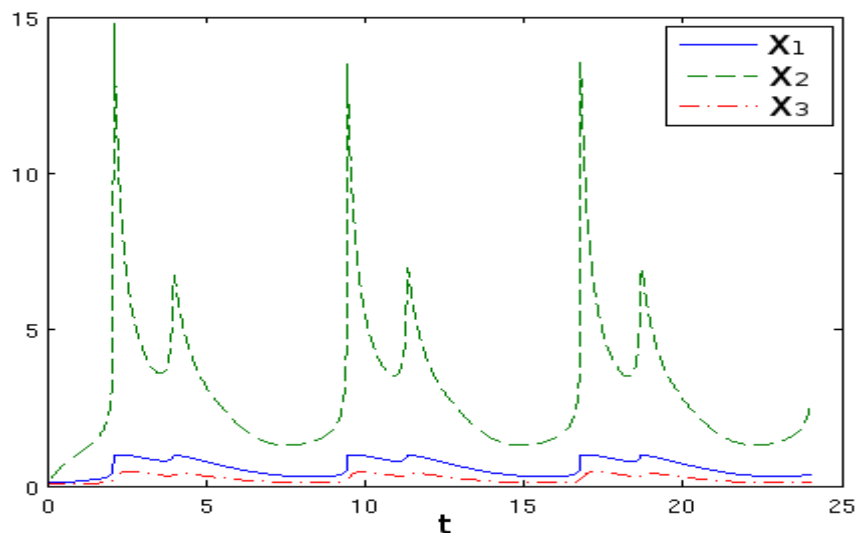


Figura 4 – Trajetórias dinâmicas obtidas com o modelo de três estados na Condição 1 com $B = 19$, $\beta = 3$, $Da = 0,10282$, $\gamma = 47190$, $x_{af} = 0$, $\eta = 0,050$ e $\tau_Q = 1,76$.

5. CONCLUSÃO

No presente trabalho, o modelo clássico do CSTR com dois estados foi estendido para um modelo com três estados por meio da consideração da dinâmica da jaqueta de resfriamento na modelagem, que introduziu os parâmetros η e τ_Q no sistema de equações. O sistema descrito pelo modelo de três estados foi investigado por meio de continuação paramétrica com os novos parâmetros η e τ_Q na faixa $[0; 4]$ para os casos em que o modelo de dois estados apresenta comportamento dinâmico complexo, i.e., multiplicidade de estados estacionários e oscilações periódicas.

Os resultados revelaram em uma das condições avaliadas que o sistema apresenta região com duplicação de período das oscilações periódicas. Para as outras condições testadas, também se verificou influência da dinâmica da camisa no sistema, mas nenhum dos comportamentos dinâmicos obtidos diferiu daqueles já observados para o modelo de dois estados. Os resultados mostraram também que o sistema apresenta comportamento dinâmico complexo apenas para valores pequenos de τ_Q e η , em geral menores que 0,5, sendo mais sensível ao parâmetro η . Quando $\eta = 4$ e $0 \leq \tau_Q \leq 4$, observou-se que o sistema apresentou comportamento idêntico em todas as condições avaliadas, consistindo em apenas um estado estacionário estável.

Conclui-se, portanto, que o comportamento do sistema é influenciado pela dinâmica da camisa na faixa avaliada de $[0; 4]$ para os parâmetros τ_Q e η e que a consideração da dinâmica da camisa revela comportamentos bem distintos daqueles previstos pelo modelo de dois estados quando os parâmetros assumem valores pequenos, em geral menores que 0,5.

6. NOMENCLATURA

A - área de transferência de calor;
 B - aumento da temperatura adiabática

$$\text{adimensional, } \frac{(-\Delta H) C_{Af}}{\rho C_p T_f} \left(\frac{E}{RT_f} \right);$$

 C_A - concentração da espécie A no reator;
 C_p - calor específico da mistura reacional;
 C_{pC} - calor específico do fluido refrigerante;
 Da - número de Damköhler, $k_0 \tau e^{-\gamma}$;
 E - energia de ativação;
 F - vazão volumétrica de alimentação do reator;
 F_C - vazão volumétrica de alimentação da camisa de resfriamento;
 h - coeficiente de transferência de calor;
 ΔH - calor de reação;
 k_0 - velocidade específica para a reação de primeira ordem $A \rightarrow B$;
 R - constante universal dos gases;
 t - tempo adimensional;
 T - temperatura do meio reacional;
 T_C - temperatura da camisa;
 V - volume reacional;
 V_C - volume da camisa;

$$x_1 - \text{conversão, } \frac{C_{Af} - C_A}{C_{Af}};$$

x_2 - temperatura do meio reacional

$$\text{adimensional, } \frac{T - T_f}{T_f} * \gamma;$$

 x_3 - temperatura da camisa adimensional,

$$\frac{T_C - T_f}{T_f} * \gamma;$$

 β - coeficiente de transferência de calor

$$\text{adimensional, } \frac{hA}{V \rho C_p} \tau;$$

 η - razão entre as capacidades térmicas do meio reacional e do fluido refrigerante;
 γ - energia de ativação adimensional,

$$\frac{E}{RT_f};$$

 λ - coeficiente de recirculação;
 ρ - massa específica do meio reacional;
 ρ_C - massa específica do fluido refrigerante;
 τ - tempo de residência do reator;
 τ_C - tempo de residência da camisa;
 τ_Q - razão entre o tempo espacial da camisa e do reator, $\frac{\tau}{\tau_C}.$

7. REFERÊNCIAS

- ARIS, R.; AMUNDSON, N. R. An analysis of chemical reactor stability and control: I-III. *Chem. Eng. Sci.*, v.7, p. 121-131, 1958.
- BALAKOTAIAH, V.; LUSS, D. Analysis of the multiplicity patterns of a CSTR. *Chem. Eng. Comm.*, v. 13, p. 111-132, 1981.
- BALAKOTAIAH, V.; LUSS, D. Multiplicity features of reacting systems: Dependence of the steady-states of a CSTR on the residence time. *Chem. Eng. Sci.*, v. 38 (10), p. 1709-1721, 1983.
- DOEDEL, E. J.; OLDEMAN, B. E. AUTO-07P: Continuation and bifurcation software for ordinary differential equations. Tech. Rep., Concordia University, Montreal, Canada, 2012.

<<http://indy.cs.concordia.ca/auto/>>, acesso em: 20 jul. 2013.

- FAVACHE, A.; DOCHAIN, D. Thermodynamics and chemical systems stability: The CSTR case study revisited. *J. Process Contr.*, v. 19 (3), p. 371-379, 2009.
- GOLUBITSKY, M.; KEYFITZ, B. L. A qualitative study of the steady-state solutions for a continuous flow stirred tank chemical reactor. *SZAM J. Math Anal.*, v. 11 (2), p. 316-339, 1980.
- GUCKENHEIMER J. Multiple Bifurcation Problems for Chemical Reactors. *Physica D*, v. 20 (1), p. 1-20, 1986.
- HLAVÁČEK, V.; KUBÍČEK, M.; JELÍNEK, J. Modeling of chemical reactors: XVIII. Stability and oscillatory behaviour of the CSTR. *Chem. Eng. Sci.*, v. 25 (9), p. 1441-1461, 1970.
- NAGRATH, D.; PRASAD, V.; BEQUETTE, B. W. A model predictive formulation for control of open-loop unstable cascade systems. *Chem. Eng. Sci.*, v. 57, p. 365-378, 2002.
- PELLEGRINI, L.; BIARDI, G. Chaotic behavior of a controlled CSTR. *Comp. Chem. Eng.*, v. 14, p. 1237-1247, 1990.
- PLANEAUX, J. B.; JENSEN, K. F. Bifurcation phenomena in CSTR dynamics: A system with extraneous thermal capacitance. *Chem. Eng. Sci.*, v. 41, p. 1497-1523, 1986.
- RAY, W. H. New approaches to the dynamics of nonlinear systems with implications for process and control system design. In: D.E. Seborg, T.F. Edgar (Eds.), *Chemical Process Control 2*, p. 245-267. New York: United Engineering Trustees, 1982.
- RUSSO, L. P.; BEQUETTE, B. W. Effect of process design on the open-loop behavior of a jacketed exothermic CSTR. *Comput. Chem. Eng.*, v. 20 (4), p. 417-426, 1996.
- RUSSO, L. P.; BEQUETTE, B. W. CSTR performance limitations due to cooling jacket temperature dynamics. In: *DYCORD+'92 IFAC Symp*, 1992.
- RUSSO, L. P.; BEQUETTE, B. W. Impact of process design on the multiplicity behavior of a jacketed exothermic CSTR. *AIChE J.*, v. 41 (1), p. 135-147, 1995.
- RUSSO, L. P.; BEQUETTE, B. W. State-space versus input/output representations for cascade control of unstable systems. *Ind. Eng. Chem. Res.*, v. 36 (6), p. 2271-2278, 1997.
- SOLOVYEV, B. M.; LEWIN D. R. A steady-state process resiliency index for nonlinear processes: 1. *Analysis. Ind. Eng. Chem. Res.*, v. 42, p. 4506-4511, 2003.
- SUBRAMANIAN, S.; GEORGAKIS, C. Steady-state operability characteristics of reactors. *Comput. Chem. Eng.*, v. 24, p. 1563-1568, 2000.
- UPPAL, A.; RAY, W. H.; POORE, A. B. On the dynamic behavior of continuous stirred tank reactors. *Chem. Eng. Sci.*, v. 29, p. 967-985, 1974.
- UPPAL, A.; RAY, W. H.; POORE, A. B. The classification of the dynamic behavior of continuous stirred tank reactors – influence of reactor residence time. *Chem. Eng. Sci.*, v. 31 (3), p. 205-214, 1976.