



Doctoral Thesis

A contribution to the implementation of adaptive optimal operation for discontinuous chemical reactors

Author(s):

Ruppen, David

Publication Date:

1994

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-001369398> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

A Contribution to the Implementation of Adaptive Optimal Operation for Discontinuous Chemical Reactors

ABHANDLUNG

zur Erlangung des Titels eines
Doktors der technischen Wissenschaften
der
EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE
ZÜRICH

vorgelegt von

DAVID RUPPEN
Dipl. Chem.-Ing. ETH
geboren am 11. Mai 1963
von Saas-Grund, Wallis, Schweiz

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. D. W. T. Rippin, Referent
Prof. Dr. D. Bonvin, Korreferent
Prof. Dr. L. T. Biegler, Korreferent



Zürich, 1994



Zusammenfassung

Fehlchargen bei batch und semibatch Reaktoren können oft mit einer on-line Überwachung und Optimierung vermieden werden. Die on-line Optimierung hat zwei Aufgabenbereiche: das Erkennen von Änderungen im Batchverlauf (Schätzung) und die anschliessende Korrektur im Sinne einer Maximierung der Produktivität (Optimierung). Aus diesem Forschungsgebiet ist die Optimierung Gegenstand dieser Arbeit. Im Speziellen behandelt werden folgende Themen:

- Form und Charakteristik der zu erwartenden mathematischen Probleme bei der Optimierung von Batchreaktoren.
- Qualitative Gegenüberstellung bekannter Strategien zur Lösung des anstehenden Optimierungsproblem in Echtzeit. Auswahl einer geeigneten Strategie.
- Quantitative Überprüfung der vorgeschlagenen Strategie anhand von Simulationsbeispielen.
- Auswahl eines geeigneten Reaktionssystems zur experimentellen Durchführung einer on-line Optimierung.
- Experimentelle Durchführung der on-line Optimierung.

Schwach bis mässig sensitive Optima bezüglich den Steuervariablen und das Vorhandensein von Sicherheits- und Qualitätsbedingungen in Form von algebraischen Gleichungen ergeben ein Optimierungsproblem mit differentiellen und algebraischen Gleichungen und sehr wenig Freiheitsgraden in der Wahl der optimalen Lösung. Bezüglich solchen Problemstellungen wird folgende Lösungsstrategie vorgeschlagen: Überführung des aus differentiellen und algebraischen Gleichungen bestehenden Optimierungsproblems in ein rein algebraisches Optimierungsproblem durch Parameterisierung der Zustands- und Steuervariablen; anschliessende Lösung mit sukzessiver linearer Programmierung. Die vorgeschlagene Optimierungsstrategie wird auf fünf unterschiedliche Simulationsbeispiele angewendet. Sukzessive lineare und sukzessive quadratische Programmierung werden verglichen. Am Beispiel der Zuckerkristallisation wird die Parametrisierung zeitkontinuierlicher algebraischer Wegbedingungen aufgezeigt.

Als experimentelles Reaktionssystem wird die ansatzweise Acetoacetylierung von Pyrrol mit Diketen zum Acetoacetylpyrrol herangezogen. Nebst dem gewünschten Produkt entsteht als Dimeres die Dehydracetsäure. Die

Bildungsgeschwindigkeit kann durch die kontinuierliche Zugabe von Diketen beeinflusst werden. Die Aufgabe bei der experimentellen on-line Optimierung besteht in der geeigneten Zugabe von Diketen, um in minimaler Reaktionszeit ein Endprodukt von gewünschter Qualität zu erhalten. Die Qualitätsanforderung wird durch drei algebraische Randbedingungen definiert. Bei der on-line Schätzung von drei unbekanntem Geschwindigkeitskonstanten und Zuständen gelangt eine ähnliche Lösungsstrategie wie bei der Optimierung zum Einsatz. Im Gegensatz zur Optimierung wird bei der Schätzung das durch vollständige Parameterisierung erzeugte algebraische Optimierungsproblem vorteilhafterweise mit sukzessiver quadratischer Programmierung gelöst. Die Reaktion wird durch Probenziehen und anschließender gaschromatischer Analyse verfolgt. Für unterschiedliche Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten werden experimentelle Resultate von Ansätzen mit on-line optimierten und fest vorgegebenen Zusatzrateprofilen verglichen.

Abstract

On-line supervision and optimization of discontinuous reactors can help avoid producing unsatisfactory batches. On-line optimization can serve two tasks: (i) detecting changes during the course of a reaction (estimation) and (ii) the subsequent corrective action for the purposes of maximizing productivity (optimization). Optimization is the subject of this thesis, and the following topics are considered:

- Characteristics of the mathematical problems involved in the optimization of batch reactor operation.
- Qualitative assessment of known optimization strategies. The choice of a suitable methodology for tackling the problem is also discussed.
- Quantitative validation of the proposed methodology via a number of simulated examples.
- Choice of a suitable reaction system, and experimental implementation of adaptive optimal operation.

Both low sensitivity with regard to the control variables and the presence of safety and quality constraints in the form of algebraic equations result in a mixed differential-algebraic optimization problem with few degrees of freedom. The following solution strategy for tackling such a problem is proposed: (i) conversion of the differential-algebraic optimization problem into an algebraic optimization problem through parametrization of the state and control variables and (ii) subsequent solution via successive linear programming. The proposed optimization strategy is demonstrated on five simulation examples. Successive linear programming and successive quadratic programming are compared. The parametrization of path constraints is also demonstrated.

The reaction system selected is the acetoacetylation of pyrrole with diketene to acetoacetyl pyrrole. In addition to the desired reaction, one has to consider the undesired dimerization of diketene to dehydroacetic acid. The selectivity of product formation can be controlled by continuous addition of diketene. In the experimental on-line optimization the objective is to determine the optimal feed rate of diketene so that product quantity and quality are met in minimum time. The quality requirement is expressed through three algebraic endpoint constraints. The estimation of three unknown reaction rate constants is performed on the basis of the available concentration measurements. In contrast to the optimization step, the estimation problem is solved via

successive quadratic programming. The reaction is observed by taking samples which are analyzed by gas chromatography. For the case of different reaction rate constants, the results of runs with on-line optimized and a priori given feed rates are compared, experimentally, which fully demonstrates the validity of the on-line adaptive optimization scheme.