



Doctoral Thesis

Nonlinear dynamics in chemical systems Distillation columns and aggregation units

Author(s):

Bonanomi, Eleonora

Publication Date:

2003

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-004620183> →

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](#).

Diss. ETH No. 15304

**Nonlinear Dynamics in Chemical Systems.
Distillation Columns and
Aggregation Units.**

A dissertation submitted to the
Swiss Federal Institute of Technology (ETH)
Zurich

for the degree of
Doctor of Technical Sciences

presented by
Eleonora Bonanomi
Dottore in Ingegneria Chimica
Politecnico di Milano
born November 28, 1974
citizen of Italy

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Manfred Morari, examiner
Prof. Dr. Massimo Morbidelli, co-examiner

October, 2003

Preface

Chemical processes distinguish themselves by their nonlinear behavior and by the large number of equations required for their description. Because of their nonlinearity, chemical processes can show complex or unexpected dynamics. Depending on the process, the physical reason of such behavior can be found in the kinetics of the reaction or in the heat balance. For instance, limit cycles are generated by the kinetics in the Belousov- Zhabotinsky reaction and multiple steady states are due to the heat balance in the CSTR reactor. More recently, both, limit cycles and multiple steady states have been discovered in azeotropic distillation columns.

Beside being nonlinear, many chemical units are described by a large number of equations. For example the model of distillation columns needs heat and mass balances for each component on each stage and around the whole column. Other systems, like particulates, are described by partial differential equations. These particulate systems are generally solved by dividing the entire range of particle dimension into a large number of small bins and by writing a mass balance for each bin.

In the thesis, we try to deepen the knowledge on the nonlinear behavior of two different processes: azeotropic distillation columns and aggregation units. These processes are of main importance in the industry, and are currently topics of research at the Technical Chemistry Laboratory and at the Automatic Laboratory of the Swiss Federal Institute of Technology, Zürich. Both these units are characterized by nonlinear behavior and are described by a large number of equations.

The first part of the thesis is dedicated to multiple steady states and limit cycles in azeotropic distillation columns. The phenomena of multiple steady states has been analyzed in steady-state conditions with a graphical analysis, the so called ∞/∞ analysis, and with bifurcation diagrams. More recently a qualitative interpretation of the dynamic behavior of distillation columns has been introduced. In Chapter 2 of this thesis the qualitative analysis of columns dynamics is completed with the analysis of a vector field that represents the trajectories of the distillate composition during transient. Furthermore, in Chapter 3, limit cycles are examined. The effect of column design specifications and mixture properties on the period and amplitude of limit cycles is studied in detail to identify the optimal set up for an experimental validation.

The second part of the thesis focuses on aggregation units, both in quiescent and turbulent conditions. Recent developments in different fields, such as modeling of the aggregation, on-

line measurements of particles size and control algorithm for batch processes, foster the study of the control and optimization of aggregation units. The aggregation process leading to gel formation in colloidal dispersions under quiescent conditions is considered in Chapter 4. The sensitivity of the product to different working conditions and the set of products that can be obtained are studied. Aggregation in turbulent conditions is analyzed in Chapter 5. A proper model containing the necessary dynamic connection between manipulated and controlled variables is introduced and tuned based on literature data. After linearization, the recently developed "batch model predictive control" is applied to the system. The algorithm can exploit the fact that batch processes are run repetitively and on-line measurements are available.

Prefazione

I processi chimici si distinguono per la loro risposta non lineare, e perché, in molti casi, sono descritti da un elevato numero di equazioni. Essendo non lineari, questi processi mostrano spesso complesse e strane dinamiche. A seconda del processo, la ragione fisica di queste strane dinamiche può risiedere nella cinetica di reazione o nei bilanci energetici. Per esempio, i cicli limite sono generati dalla cinetica nella reazione di Belousov- Zhabotinsky mentre la molteplicità di stati stazionari è dovuta ai bilanci energetici nel reattore CSTR. Più recentemente, entrambi questi fenomeni, i cicli limite e la molteplicità di stati stazionari, sono stati scoperti nelle colonne di distillazione azeotropica.

Oltre ad essere processi non lineari, molte unità chimiche sono descritte da un elevato numero di equazioni. Per esempio, il modello delle colonne di distillazione richiede il bilancio di massa per ogni componente ed il bilancio energetico per ogni piatto e per l'intera colonna. Altri sistemi, come i sistemi dispersi, sono descritti da equazioni alle derivate parziali e sono risolti dividendo le particelle in molti piccoli settori in base alla loro dimensione. Per ogni settore viene poi scritto il bilancio di massa.

In questa tesi, cerchiamo di approfondire la conoscenza del comportamento non lineare di due processi: distillazione azeotropica e unità di aggregazione. Questi processi sono di fondamentale importanza nell'industria e sono oggetto di ricerca del Laboratorio di Chimica Tecnica e del Laboratorio di Automatica del Politecnico Federale di Zurigo. Entrambi i processi sono non lineari e sono descritti da un elevato numero di equazioni.

La prima parte della tesi è dedicata alla molteplicità di stati stazionari ed ai cicli limite in colonne di distillazione azeotropica. Il fenomeno della molteplicità di stati stazionari è stato analizzato in condizioni stazionarie con una analisi di tipo grafico, la così detta ∞/∞ analisi, e con diagrammi di biforcazione. Più recentemente, è stata introdotta una interpretazione qualitativa della dinamica di queste colonne. Nel Capitolo 2 l'analisi qualitativa della dinamica delle colonne viene completata con un piano vettoriale che rappresenta la traiettoria della composizione del distillato durante il transiente. In aggiunta, il Capitolo 3 esamina in dettaglio i cicli limite. L'effetto della scelta delle specifiche nel progetto delle colonne e delle miscele sul periodo e l'ampiezza dei cicli limite è studiato col fine di identificare l'ottima configurazione per la verifica sperimentale dei cicli limite.

La seconda parte tratta le unità di aggregazione, sia in quiete che in regime turbolento. Recenti

sviluppi in diversi campi, come nel modello del processo di aggregazione, nella misurazione in continuo della dimensione delle particelle e nel controllo, hanno spinto allo studio del controllo e dell'ottimizzazione di questi processi. Il processo di aggregazione che porta alla formazione di gel da colloidali mantenuti in condizioni di quiete e' studiato nel Capitolo 4. Viene affrontato l'effetto di diverse condizioni di lavoro sul prodotto finale e viene identificato il completo set di prodotti che si possono ottenere. L'aggregazione in reattori agitati e' affrontata nel Capitolo 5. Viene introdotto un modello in grado di riprodurre le principali dinamiche del processo riportate in recenti pubblicazioni. Il modello linearizzato viene poi utilizzato per l'applicazione di un algoritmo di controllo recentemente sviluppato, il "batch model predictive control". L'algoritmo sfrutta sia il fatto che i processi batch sono ripetitivi che la possibilita' di avere misure in linea della dimensione delle particelle.