

Echtzeitfähige optimierungsbasierte Regelung von Stofftrennprozessen

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktoringenieur (Dr.-Ing.)

von Dipl.-Ing. Stefan Schwarzkopf
geb. am 10. Juni 1974 in Geislingen/Steige
genehmigt durch die Fakultät für Elektrotechnik und Informationstechnik
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Achim Kienle
Prof. Dr.-Ing. habil. Rudibert King

Promotionskolloquium am 16. Oktober 2012

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik der Universität Stuttgart und dem Max-Planck-Institut für Dynamik komplexer technischer Systeme in Magdeburg. Sie wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft und von der Max-Planck-Gesellschaft gefördert.

Dem Institutsleiter, Herrn Prof. em. Dr.-Ing. Dr. h.c. mult. Ernst Dieter Gilles, und meinem Doktorvater Prof. Dr.-Ing. Achim Kienle danke ich herzlich für die Betreuung und Unterstützung bei der Durchführung der Arbeit.

Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Rudibert King gilt mein Dank für sein Interesse an der Arbeit und die Übernahme des Mitberichts.

Mein besonderer Dank gilt den Kollegen im DFG-Schwerpunktprogramm *Echtzeitoptimierung großer Systeme*: Prof. Dr.-Ing. Rolf Findeisen, Prof. Dr. Moritz Diehl und Dr. Ilknur Disli Kienle.

Allen ehemaligen Kollegen und Mitarbeitern möchte ich für das immer sehr gute Klima und die fruchtbaren Diskussionen danken. In diesem Sinne gilt mein besonderer Dank Dr.-Ing. Stefan Grüner für die stets hilfreichen Ratschläge.

November 2012

Stefan Schwarzkopf

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	15
1.1	Motivation und Aufgabenstellung	15
1.2	Gliederung der Arbeit	16
2	Echtzeitfähige nichtlineare modellprädiktive Regelung	19
2.1	Anlagenbeschreibung	20
2.2	Modellierung	22
2.2.1	Modellgleichungen	22
2.2.2	Formulierung als DA-System	27
2.3	Regelungskonzept	28
2.3.1	Nichtlineare modellprädiktive Regelung	29
2.3.2	Echtzeitbedingungen	30
2.3.3	Optimierungsproblem	30
2.3.4	Numerische Realisierung	33
2.3.5	Zustandsrekonstruktion	37
2.4	Parameteridentifikation	39
2.5	Experimentelle Validierung	39
2.5.1	Versuchsaufbau	40
2.5.2	Experimente	41
2.6	Zusammenfassung und Diskussion	46
3	Wellenbasierte Regelung	49
3.1	Wellenmodelle	50
3.1.1	Wellentheorie	50
3.1.2	Modellbildung	53
3.1.3	Modellvalidierung	56
3.2	Regelung über Wellenfrontpositionen	59
3.3	Regelungskonzept	62

3.4	Beobachterentwurf	64
3.5	Reglerentwurf	67
3.5.1	Simulation Trennung binäres Gemisch	69
3.5.2	Simulation Trennung ternäres Gemisch	72
3.6	Diskussion	74
4	Anwendung in der Chromatographie	77
4.1	Gegenstromchromatographie	77
4.2	Simulierte Gegenstromchromatographie	79
4.3	Physikalische Eigenschaften	82
4.3.1	Isotherme	82
4.3.2	Wellenformen	84
4.4	Modellbildung	85
4.4.1	Schockwellen	86
4.5	Diskussion	104
5	Zusammenfassung und Ausblick	106
5.1	Zusammenfassung	106
5.2	Ausblick	108

Abbildungsverzeichnis

2.1	Die Destillationskolonne am Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik	21
2.2	Einzelner Boden Gleichgewichtsmodell	23
2.3	Regelungskonzept	29
2.4	Schema der NMPC	30
2.5	Messwertverarbeitungszeit Δt_{mess}	31
2.6	Startwerteinbettung mit Messwerte	36
2.7	Startwerteinbettung ohne Messwerte	38
2.8	Aufteilung Samplingzeit in Vorbereitungszeit und Feedbackverzögerung	39
2.9	Lineare PI-Regler für die Kolonne	40
2.10	Versuchsaufbau	41
2.11	Vergleich mit einem PI-Regler	42
2.12	Szenario: Multiple Störungen	44
2.13	Leerlaufender Kondensatsammelbehälter	45
2.14	Rechenzeitbedarf während Szenario 2	46
2.15	Szenario 2 als Offline-Optimierung	47
3.1	Verstärkungsteil bei Wellenmodellen	51
3.2	Verlauf entlang einer einzelnen Welle	54
3.3	Vollständiges Wellenmodell	55
3.4	Validierung: Temperaturprofile Wellenmodell	57
3.5	Validierung: Temperaturverläufe Wellenmodell	58
3.6	Konventionelle Temperaturregelung	59
3.7	NMPC mit Wellenmodellen	60
3.8	Störung der Feedzusammensetzung	61
3.9	Dreistofftrennung nach einer Störung	63
3.10	Regelungskonzept NMPC mit Wellenmodellen	64

3.11	Beobachter	65
3.12	Verhalten des Wellenbeobachters	66
3.13	Trennung eines binären Gemisches	73
3.14	Open-Loop Simulation Trennung ternäres Gemisch	74
4.1	Prinzipieller Aufbau eines TMB-Prozesses	78
4.2	Prinzipieller Aufbau eines SMB-Prozesses	80
4.3	Typisches Konzentrationsprofil SMB	81
4.4	Langmuir-Isotherme mit angedeuteten Tangenten	83
4.5	Änderung der Wellenform in Abhängigkeit der Isotherme	85
4.6	Struktur Gleichgewichtsmodell	86
4.7	Gleichgewichts-Wellenmodell Experiment 1 (Gegenstrom)	93
4.8	Gleichgewichts-Wellenmodell Experiment 2 (Gegenstrom)	94
4.9	Gleichgewichts-Wellenmodell Experiment 3 (Festbett)	96
4.10	Stoffaustauschmodell	97
4.11	Stoffaustausch-Wellenmodell Experiment 1 (Gegenstrom)	101
4.12	Stoffaustausch-Wellenmodell Experiment 2 (Gegenstrom)	102
4.13	Stoffaustausch-Wellenmodell Experiment 3 (Gegenstrom)	103
4.14	Stoffaustausch-Wellenmodell Experiment 4 (Festbett)	105

Tabellenverzeichnis

2.1	Nominelle Arbeitsbedingungen	20
2.2	Antoine-Parameter	26
2.3	Koeffizienten der molaren Volumina	26
2.4	Enthalpikoeffizienten	27
2.5	Experimentell identifizierte Modellparameter	28
3.1	Indizes der Wellen-Teilmodelle	56
3.2	Differentielle Zustände des binären Wellenmodells	70
3.3	Stellgrößen des binären Wellenmodells	70
3.4	Stellgrößenschranken in der binären Simulation	70
3.5	Soft-Constraints in der binären Simulation	71
3.6	Soft-Constraints in der ternären Simulation	74
4.1	Modellparameter	91
4.2	Betriebsparameter	92

Symbolverzeichnisse

Kapitel 2

$(\)_k$	Komponentenindex
$(\)_l$	Bodenindex
$(\)_{\text{vol}}$	Volumetrische Ströme
$(\hat{\ })$	Geschätzte Zustände
A_k, B_k, C_k	Antoine-Parameter
B_{vol}	Volumetrischer Sumpfabzugsstrom
D_{vol}	Volumetrischer Destillatstrom
F_{vol}	Volumetrischer Zulaufstrom
F_l	Zulaufströme
h_l^L	Molare Enthalpien der Flüssigphasen
h_l^V	Molare Enthalpien der Gasphasen
L_l	Flüssigkeitsströme
N_T	Bodenanzahl
n_l	Gesamtmolmengen
n_l^v	Flüssigkeitsvolumen
P_l	Drücke
ΔP_l	Konstante Druckverluste
$P_k^s(T_l)$	Sättigungsdrücke
$P(\mathbf{x}_0)$	Optimierungsproblem für den Anfangszustand \mathbf{x}_0
$P(\mathbf{x}'_0)$	Optimierungsproblem mit der Lösung des vorhergehenden Optimierungsproblems als Anfangszustand \mathbf{x}'_0
Q	Heizleistung
Q_{loss}	Konstanter Heizleistungsverlust

R_{vol}	Volumetrischer Rücklaufstrom
\mathbf{s}_i^x	Anfangswerte der differentiellen Zustände des Optimierungsintervalls i
\mathbf{s}_i^z	Anfangswerte der algebraischen Zustände des Optimierungsintervalls i
T_P	Optimierungshorizont
T_C	Regelungshorizont
ΔT_s	Samplingzeit
ΔT_{mess}	Verzögerungszeit
\tilde{T}_z	Regelgrößen: Ausschnitt des algebraischen Zustandsvektors
T_l	Temperaturen
\mathbf{u}	Vektor der Stellgrößen
V^m	Molare Volumen
V_l	Gasströme
W_l	Francis-Wehr-Parameter
\mathbf{x}	Vektor der differentiellen Zustände
x_F	Zulaufzusammensetzung
x_l	Molenbrüche Leichtersieder der Flüssigphasen
y_l	Molenbrüche Leichtersieder der Gasphasen
\mathbf{z}	Vektor der algebraischen Zustände
α_l	Murphree-Wirkungsgrade

Kapitel 3

$()_K$	Kondensator
$()_V$	Verstärkungsteil
$()_F$	Feedboden
$()_A$	Abtriebsteil
$()_R$	Verdampfer
$()_{\text{vol}}$	Volumetrische Ströme
$()^{(k)}$	Wellenindex
$()_i$	Komponentenindex
$(\hat{ })$	Geschätzte Zustände
A	Stromverhältnis

B	Dimensionsloser Stoffübergangskoeffizient
h_i	Globale Molmenge
$\mathbf{j}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$	Stoffaustauschstrom
k''	Stoffübergangskoeffizient
L	Molarer Flüssigkeitsstrom
l	Kolonnenlänge
N_C	Komponentenanzahl
n'	Molmenge Flüssigphase
n''	Molmenge Gasphase
Q	Heizleistung
R	Molarer Rücklaufstrom
\mathbf{S}	Vektor der Schlüsselfrontpositionen
$s^{(k)}$	Wellenfrontposition
$s^{(k^*)}$	Wellenfrontposition der Schlüsselfront
V	Molarer Gasstrom
$\mathbf{x}^{(k)}$	Asymptote
x_F	Zulaufzusammensetzung
\mathbf{x}	Molenbrüche Flüssigphase
\mathbf{y}	Molenbrüche Gasphase
α_i	Konstante relative Flüchtigkeit der Komponente i
$\rho^{(k)}$	Frontsteigung

Kapitel 4

$(\)_j$	Komponentenindex
$(\)^{(k)}$	Wellenindex
A_s	Querschnittsfläche einer Säule
A	Stromverhältnis
B	Dimensionsloser Stoffübergangskoeffizient
b_j	Parameter der Langmuir-Isothermen
$\mathbf{c}^{(k)}$	Asymptote
c_j	Konzentration der Flüssigphase
D_{ap}	Diffusionskoeffizient
D_k	Desorbensanschlussposition zur Zeit t_k
E_k	Extraktanschlussposition zur Zeit t_k

F	Phasenverhältnis
F_k	Zulaufanschlussposition zur Zeit t_k
H_j	Henry-Koeffizienten
\mathbf{h}	Globale Menge
$\mathbf{j}(\mathbf{c}, \mathbf{q})$	Stoffaustauschstrom
k_{SA}	Stoffübergangskoeffizient
l	Länge einer Säule
N_C	Komponentenanzahl
q_j	Konzentration der Adsorbensphase
R_k	Raffinatanschlussposition zur Zeit t_k
ΔT	Schaltzeit
u	Fließgeschwindigkeit der Adsorbensphase
\dot{V}_F	Volumetrischer Zulaufstrom
\dot{V}_R	Volumetrischer Raffinatstrom
\dot{V}_E	Volumetrischer Extraktstrom
\dot{V}_D	Volumetrischer Desorbensstrom
\dot{V}_S	Volumenstrom des TMB-Prozesses
V_{col}	Säulenvolumen
v	Fließgeschwindigkeit der Flüssigphase
$w^{(k)}$	Wellenwanderungsgeschwindigkeit
ϵ	Leerraumanteil
$\rho^{(k)}$	Frontsteigung
$\xi^{(k)}$	Wellenkoordinaten

Kapitel 1

Einführung

1.1 Motivation und Aufgabenstellung

Steigende Energie- und Rohstoffkosten bilden eine stetig wachsende Herausforderung in der Verfahrenstechnik. Viele industriell eingesetzte Prozesse lassen sich hinsichtlich ihres Ressourcenverbrauchs nur noch durch effiziente Prozessführungskonzepte und Regelungsstrategien weiter verbessern. Damit erhöhen sich die Anforderungen an die bestehenden Regelungsverfahren und es steigen die Anreize zur Entwicklung neuer Regelungsmethoden.

Die Regelungstheorie hat in den letzten 10-20 Jahren große Fortschritte in Richtung modellbasierte Regelungsverfahren durchlaufen. Zusätzlich erlauben die Weiterentwicklungen in der Computertechnologie aufwändigere Berechnungen in kürzerer Zeit durchzuführen. Wo im vorigen Jahrhundert Regelungsvorschriften noch offline a priori optimiert werden mussten, ist es nun möglich prozessbegleitend mit einer Rückkopplung in Echtzeit zu optimieren. Dieses Verfahren — die modellprädiktive Regelung (MPC) — war zuerst in ihrer linearen Form gebräuchlich [45, 59, 63], bis dann die Computertechnik auch nichtlineare Optimierung in Echtzeit ermöglichte und zunehmend Interesse erweckte [1, 8, 34, 53, 64]. Weitere Fortschritte in der unterlagerten Numerik wecken die Hoffnung, auch Systeme hoher differentieller Ordnung in Echtzeit regeln zu können.

Echtzeit bedeutet eine garantierte Antwortzeit auf eine Anforderung, d.h. die Dauer aller Vorgänge ist bekannt. Kürzere garantierte Antwortzeiten werden erreicht, indem komplexe langwierige Berechnungen unterbrechbar ausgelegt werden. Die Untergrenze der garantierbaren Antwortzeiten ist also von der Länge nicht-unterbrechbarer elementarer Einzeloperationen abhängig.

Bei der MPC sind diese elementaren Operationen die einzelnen Iterationen des Optimierungsalgorithmus. Die Echtzeitanforderungen sind dabei durch die Dynamik des zu regelnden Systems fest vorgegeben. Ob sich die Zeitkonstanten im Bereich von wenigen Millisekunden oder im Bereich von mehreren Stunden bewegen ist dabei für den Begriff *Echtzeitfähigkeit* nicht von Bedeutung. Die Zeitkonstanten bestimmen lediglich die einzuhaltenden Antwortzeiten. Die Herausforderung ist es nun, die Ausführungsdauer der elementaren Iterationen soweit zu verkürzen, damit diese geforderten Antwortzeiten eingehalten werden können.

Für ein gegebenes System mit bekannter Dynamik führen mehrere Wege zum Ziel der echtzeitfähigen nichtlinearen Optimierung. In der vorliegenden Arbeit werden zwei Lösungsansätze präsentiert: eine effiziente Numerik [15] und die Modellreduktion [39]. Diese beiden Wege werden für thermische und chromatographische Stofftrennprozesse hergeleitet und erprobt. An einer Destillationskolonne im Technikumsmaßstab wurde eine Machbarkeitsstudie der nichtlinearen MPC (NMPC) für große dynamische Systeme durchgeführt [16, 18]. Die vorliegende Arbeit basiert in Teilen auf den Erkenntnissen aus [5, 7, 24, 70, 79].

Die Grundsteine für NMPC mit garantierter Stabilität und teilweise auch reduziertem Rechenaufwand wurden zum Beispiel in [1, 12, 23, 53] gelegt.

Zum Vergleich wurde die dabei erprobte Methodik auf reduzierte Modelle [52, 39] übertragen, die auf Phänomenen aus der nichtlinearen Wellentheorie basieren. Die Stofftrennung bei der Chromatographie basiert auf ähnlichen Mechanismen wie die Destillation, so dass die für die Destillationskolonnen hergeleiteten Methoden teilweise auch auf die Chromatographie übertragbar sind.

1.2 Gliederung der Arbeit

In Kapitel 2 wird zunächst die Destillationskolonne beschrieben, die den weiteren Untersuchungen als Musterprozess dient. Für diese Kolonne wird anschließend ein mathematisches Modell hergeleitet. In dem Abschnitt zum Regelungskonzept wird als Erstes die nichtlineare modellprädiktive Regelung beschrieben, die dann an die geforderten Echtzeitbedingungen angepasst wird. Dazu wird das Optimierungsproblem definiert und anschließend mithilfe der Startwerteinbettung [14, 25, 61, 48] in Kombination mit den sogenannten Echtzeit-Iterationen [13, 14, 49] eine geeignete Lösungsmethodik

vorgestellt. Die Zustandsrekonstruktion vervollständigt das Regelungskonzept. Im darauf folgenden Abschnitt wird die Parameteridentifikation für die anschließende experimentelle Validierung gezeigt. Die Experimente fanden an einer Destillationskolonne im Technikumsmaßstab am Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik an der Universität Stuttgart statt [39, 52, 27, 41, 43, 66, 67, 78]. Abschließend werden die Ergebnisse und die daraus gewonnenen Erkenntnisse zusammengefasst und diskutiert.

In Kapitel 3 wird die im vorangegangenen Kapitel hergeleitete Methode auf reduzierte Modelle angewendet. Dafür wird zunächst das verwendete reduzierte Modell basierend auf nichtlinearen Wellenphänomenen vorgestellt [52, 39], validiert und dessen Parameter an der realen Kolonne identifiziert. Danach wird die Regelungsmethode basierend auf der Positionierung der Stofftrennfronten eingeführt. Anschließend wird von diesem Wellenmodell ein Beobachter für die Destillationskolonne abgeleitet, der dann im nachfolgenden Abschnitt für die Regelung verwendet wird. Den Abschluss des Abschnitts bilden Simulationsexperimente und eine Diskussion der Ergebnisse.

Die Erkenntnisse aus Kapitel 2 und 3 haben gezeigt, dass die dort vorgestellten Methoden für den praktischen Einsatz bereit sind. Um diese Methoden auch für chromatographische Trennprozesse einsetzen zu können, werden in Kapitel 4 Lösungsansätze für einzelne chromatographie-spezifische Probleme hergeleitet. Dazu wird zunächst die Prozessklasse Chromatographie mit typischen Anlagen vorgestellt und anschließend die physikalischen Eigenschaften beleuchtet. Für Teile solcher Anlagen werden dann Wellenmodelle hergeleitet. Die Ergebnisse von Simulationsstudien bilden den Abschluss des Kapitels.

In Kapitel 5 wird die vorliegende Arbeit zusammengefasst und die gewonnenen Erkenntnisse diskutiert. Hinweise auf eine mögliche Fortführung der Forschung auf diesem Gebiet schließen die Arbeit ab.

Kapitel 2

Echtzeitfähige nichtlineare modellprädiktive Regelung

Über die letzten 10 bis 15 Jahre hat sich die modellprädiktive Regelung (model predictive control, MPC) mehr und mehr als Alternative zu konventionellen Regelungsverfahren durchgesetzt [1, 8, 34, 53, 64]. Die *lineare* MPC hat bereits Einzug in moderne Prozessleitsysteme von großen Anlagen in der Verfahrenstechnik gefunden [45, 59, 63]. Der *nichtlinearen* MPC (NMPC) ist dieser Einzug bislang verwehrt geblieben, da sie durch die zugrundeliegende nichtlineare dynamische Optimierung ungleich aufwändiger und dadurch oft nicht in Echtzeit durchführbar ist. Die NMPC konnte also bisher nur zur Regelung von Systemen mit niedriger Ordnung oder langsamer Dynamik eingesetzt werden. Typische Anwendungen aus der Verfahrenstechnik, wie thermische oder chromatographische Stofftrennprozesse mittels Destillationskolonnen oder Festbett-Trennsäulen, besitzen jedoch eine sehr hohe differentielle Ordnung und stellen dadurch sehr hohe Anforderungen an die verwendeten Optimierungsverfahren. Theoretische Grundlagen für effiziente Optimierungsverfahren wurden in neueren Arbeiten [5, 7, 24, 70, 79] entwickelt und vorgestellt.

Destillationskolonnen sind seit Jahrzehnten sehr gut erforscht und bieten sich durch ihre hohe Praxisrelevanz für eine Machbarkeitsstudie für die Echtzeitfähigkeit der NMPC an. Mit aus diesen Gründen wurden in den vergangenen Jahren an Destillationskolonnen auch sehr oft neue Regelungsverfahren erprobt [27, 41, 43, 66, 67, 78, 2]. Damit bieten sich Destillationskolonnen gleichermaßen als Benchmarkprozesse an, um verschiedene Reglertypen miteinander vergleichen zu können. Im nächsten Abschnitt wird also zunächst die

Destillationskolonne beschrieben, für die in den darauf folgenden Abschnitten ein Regelungskonzept entworfen wird. Das entworfene Konzept wird anschließend experimentell validiert.

2.1 Anlagenbeschreibung

Um eine gute Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu erreichen und eine ausreichende Praxisrelevanz bei vertretbaren Kosten zu gewährleisten, wird der NMPC für eine Destillationskolonne im Technikumsmaßstab am Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik der Universität Stuttgart entworfen. Diese Kolonne war in den vergangenen Jahren häufig Gegenstand von Forschungsprojekten für verschiedene Regelungskonzepte, so dass sich die in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse gut einordnen lassen [27, 41, 43, 66, 67, 78, 2].

Die Destillationskolonne (Abb. 2.1) besteht aus 40 Prall-Glockenböden aus Glas und wird atmosphärisch betrieben. Die Kolonne ist 7 m hoch und hat einen Durchmesser von 10 cm. Der vom obersten Boden aufsteigende Dampfstrom wird in einem wassergekühlten Kondensator verflüssigt. Der Verdampfer ist elektrisch beheizt. Der vorgeheizte Feedstrom wird als gesättigte Flüssigkeit zugeführt. Die nominellen Arbeitsbedingungen für eine binäre Destillation der Komponenten Methanol/1-Propanol sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst.

Feedstrom	F_{vol}	14.0 l/h
Feedzusammensetzung	x_F	0.32
Feedtemperatur	T_F	70.0 °C
Destillatzusammensetzung		0.99
Sumpfung		0.0006
Temperatur Boden 28	T_{28}	70 °C
Temperatur Boden 14	T_{14}	88.0 °C
Rücklaufstrom	R_{vol}	4.3
Heizleistung	Q	2.5 kW
Kopfdruck		0.97
Verdampfervolumen		8.5 l
Kondensatorvolumen		0.17 l

Tabelle 2.1: Nominelle Arbeitsbedingungen

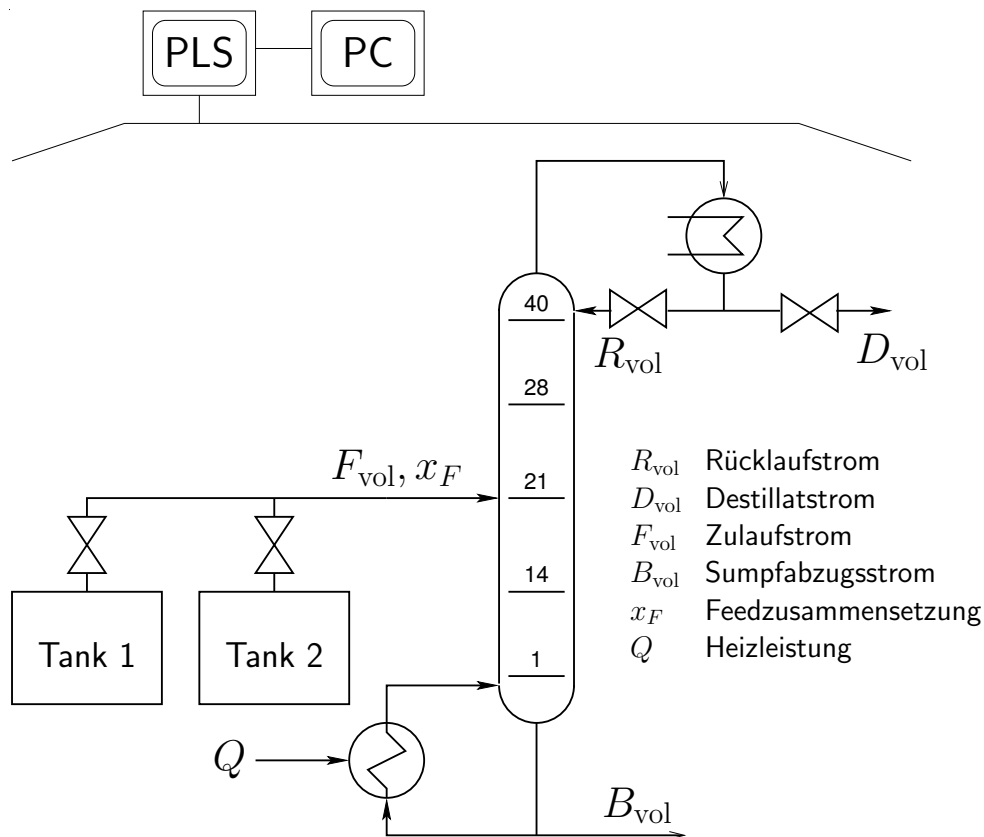


Abbildung 2.1: Die Destillationskolonne am Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik zur Trennung von Methanol und 1-Propanol

Zur Prozessüberwachung und -regelung werden die Temperaturen auf sämtlichen Böden sowie die Durchflüsse in den wesentlichen Zu- und Ableitungen gemessen. Zur Simulation von verschiedenen Störszenarien oder Lastwechseln, können aus den Vorlagebehältern unterschiedliche Gemische mit definierten Temperaturen zugeführt werden.

Die unterlagerten Regelkreise, wie z.B. Temperaturregelung der Vorlagebehälter, Durchflussmengen- und Füllstandsregler, sind direkt im Prozessleitsystems (PLS) der Firma FOXBORO ECKARDT realisiert. Der NMPC wird jedoch auf einem mit dem PLS verbundenen Standard-PC implementiert, da die Anforderungen des NMPC an das Betriebssystem und die Rechenleistung von dem PLS nicht erfüllt werden können. In Abschnitt 2.5.1 wird näher auf

den Versuchsaufbau eingegangen.

Die Destillationskolonne besitzt zusätzlich im unteren Drittel einen Abzug und Zulauf für den Anschluss einer Seitenkolonne mit weiteren 10 Böden zur Abtrennung eines eventuell vorhandenen Mittelsieders. In diesem Kapitel wird jedoch nur die Trennung eines Zweistoffgemisches aus Methanol und 1-Propanol betrachtet.

2.2 Modellierung

Die bereits existierenden Modelle für Destillationskolonnen unterscheiden sich im Wesentlichen durch ihren Detaillierungsgrad und den zugrunde liegenden Annahmen [52, 39, 60, 77]. Ein Gleichgewichts-Boden-Modell bildet die für die Regelung der Produktkonzentrationen wesentliche Prozessdynamik in ausreichendem Maße ab und wird hier mit den folgenden Annahmen eingesetzt [25, 61]:

- Totalkondensation
- vernachlässigbarer Holdup der Gasphase
- variabler Holdup der Flüssigphase
- konstanter Druckverlust über die Kolonnenlänge
- ideale Mischung
- Mischung hat Gleichgewichtstemperatur
- Abweichungen vom thermodynamischen Gleichgewicht über Murphree-Effektivitäten
- Ansatz nach Francis für Flüssigabflüsse

2.2.1 Modellgleichungen

Das Gesamtmodell setzt sich aus Teilmodellen der einzelnen Böden zusammen. Pro Boden werden Komponenten- und Gesamt-Materialbilanzen sowie Energiebilanzen formuliert. Die Böden werden von unten nach oben ansteigend mit $l = 1, 2, \dots, N_T$ indiziert, wobei N_T die Gesamtbodenzahl ist. Für eine einfachere Schreibweise erhält der Verdampfer den Index $l = 0$ und der Kondensator den Index $l = N_T + 1$. In Abb. 2.2 ist ein einzelner Boden mit der verwendeten Notation dargestellt.

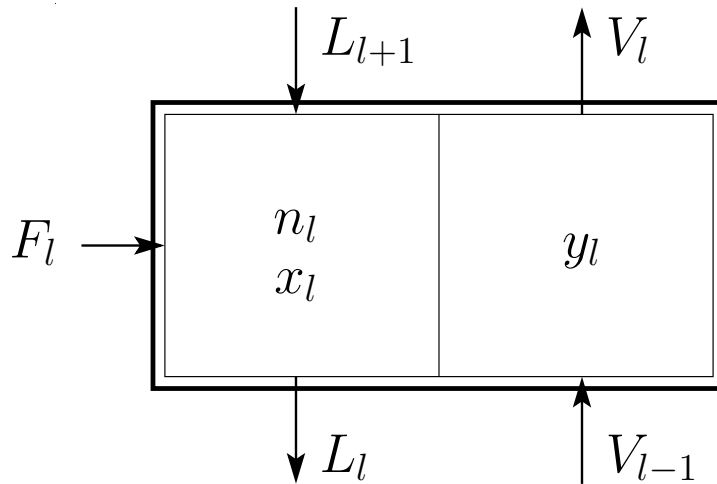


Abbildung 2.2: Einzelner Boden l mit Feedstrom F_l , Flüssigkeitsströmen L_i , Gasströmen V_i , Gesamtmolmenge in der Flüssigphase n_l , Molenbrüchen x_l und y_l für Flüssig- und Gasphase

Für die folgenden Modellgleichungen werden konsequent die Eigenschaften eines binären Gemisches ausgenutzt. So wurden die Schließbedingungen

$$\sum_{k=1}^{N_C} x_{l,k} = 1 \quad (2.1)$$

$$\sum_{k=1}^{N_C} y_{l,k} = 1 \quad (2.2)$$

eingesetzt. Damit lassen sich die Molenbrüche von n-Propanol in der Flüssigphase eines einzelnen Bodens $x_{l,\text{Propanol}}$ eliminieren und direkt über $1 - x_{l,\text{Methanol}}$ berechnen. Analog wurde mit den Molenbrüchen der Gasphase $y_{l,k}$ verfahren. Damit gilt folgende vereinfachende Schreibweise:

$$x_l = x_{l,1} = x_{l,\text{Methanol}} \quad (2.3)$$

$$y_l = y_{l,1} = y_{l,\text{Methanol}} \quad (2.4)$$

Mit einem variablen Flüssigkeits-Holdup n_l lassen sich die Gesamt-Materialbilanzen wie folgt formulieren:

$$\dot{n}_l = L_{l+1} - L_l + V_{l-1} - V_l + F_l \quad (2.5)$$

$$\dot{n}_0 = L_1 - B - V_0 \quad (2.6)$$

$$\dot{n}_{N_T+1} = V_N - L_{N_T+1} - D \quad (2.7)$$

Da die Flüssigkeitsvolumina im Kondensatsammelbehälter $n_{N_T+1}^v$ und im Verdampfers n_0^v durch Regler konstant gehalten werden, können n_0 und n_{N_T+1} direkt mittels Temperatur und Zusammensetzung über die molaren Volumina V^m berechnet werden:

$$\dot{n}_l^v = V^m(x_l, T_l) \dot{n}_l + \left(\frac{\partial V^m}{\partial x_l} \dot{x}_l + \frac{\partial V^m}{\partial T_l} \dot{T}_l \right) n_l \equiv 0, \quad l = 0, N_T + 1 \quad (2.8)$$

Die Komponenten-Materialbilanzen für die einzelnen Komponenten x_l und y_l

$$n_l \dot{x}_l + x_l \dot{n}_l = L_{l+1} x_{l+1} - L_l x_l + V_{l-1} y_{l-1} - V_l y_l + F_l x_{F,l} \quad (2.9)$$

$$n_0 \dot{x}_0 + x_0 \dot{n}_0 = L_1 x_1 - B x_0 - V_0 y_0 \quad (2.10)$$

$$n_{N_T+1} \dot{x}_{N_T+1} + x_{N_T+1} \dot{n}_{N_T+1} = V_N y_{N_T} - (L_{N_T+1} + D) x_{N_T+1} \quad (2.11)$$

und die Energiebilanzen für $l = 1, 2, \dots, N_T - 1$ und $l = 0$

$$h_l^L \dot{n}_l + n_l \left(\frac{\partial h_l^L}{\partial x_l} \dot{x}_l + \frac{\partial h_l^L}{\partial T_l} \dot{T}_l \right) = L_{l+1} h_{l+1}^L - L_l h_l^L + V_{l-1} h_{l-1}^V - V_l h_l^V + F_l h_{F,l}^L \quad (2.12)$$

$$h_0^L \dot{n}_0 + n_0 \left(\frac{\partial h_0^L}{\partial x_0} \dot{x}_0 + \frac{\partial h_0^L}{\partial T_0} \dot{T}_0 \right) = L_1 h_1^L - L_0 h_0^L - V_0 h_0^V + Q - Q_{\text{loss}} \quad (2.13)$$

sowie für den obersten Boden $l = N_T$ mit der Temperatur T_C des Kondensats

$$\begin{aligned} & h_{N_T}^L \dot{n}_{N_T} + n_{N_T} \left(\frac{\partial h_{N_T}^L}{\partial x_{N_T}} \dot{x}_{N_T} + \frac{\partial h_{N_T}^L}{\partial T_{N_T}} \dot{T}_{N_T} \right) \\ & = L_{N_T+1} h^L(x_{N_T+1}, T_C) - L_{N_T} h_{N_T}^L + V_{N_T-1} h_{N_T-1}^V - V_{N_T} h_{N_T}^V \end{aligned} \quad (2.14)$$

vervollständigen die Differentialgleichungen eines Bodens bzw. des Verdampfers und des Kondensators. L_i und V_i stehen für molare Flüssigkeits- und Gasströme, F_l und D für molare Feed- und Destillatströme. Zu- und Abflussrichtungen sind in Abb. 2.2 vorgegeben. Mit Q_{loss} wird ein konstanter Wärmeverlust im Verdampfer modelliert, der der Heizleistung Q entgegen wirkt.

Die Hydrodynamik der Destillationskolonne wird über die Francis-Wehr-Formel modelliert. Damit ist der Flüssigkeitsabfluss L_l durch

$$L_l V^m(x_l, T_l) = W_l (n_l^v - n_l^{\text{ref}})^{\frac{3}{2}}, \quad l = 1, \dots, N_T \quad (2.15)$$

über das molare Volumen V^m sowie dem Parameter W_l und dem Referenzvolumen n_l^{ref} bestimmt. Gleichungen (2.5-2.15) beschreiben ein allgemeines binäres Gleichgewichts-Boden-Modell. Mit folgenden Definitionen wird es an die untersuchte Destillationskolonne angepasst:

- Stufenzahl $N_T = 40$
- Feedstrom $F_l = 0 \quad \forall l \neq 21$

Unter der Annahme der idealen Mischung kann über das Rault'sche Gesetz

$$y_{l,k}^* = \frac{P_k^s(T_l) x_{l,k}}{P_l} \quad (2.16)$$

die Zusammensetzung der Gasphase berechnet werden. Der Sättigungsdruck $P_k^s(T_l)$ der Komponente k kann mit der Antoine-Gleichung

$$P_k^s(T_l) = \exp\left(A_k - \frac{B_k}{T_l + C_k}\right) \quad (2.17)$$

berechnet werden. Damit ist der Sättigungsdruck $P_k^s(T_l)$ durch die Bodentemperatur T_l und die konstanten Antoine-Parameter (Tabelle 2.2) bestimmt. Um der Abweichung vom thermodynamischen Gleichgewicht durch den endlichen Übertragungswiderstand Rechnung zu tragen wird die Zusammensetzung der Gasphase $y_{l,k}$ über die Murphree-Wirkungsgrade

$$\alpha_l = \frac{y_{l,k} - y_{l-1,k}}{y_{l,k}^* - y_{l-1,k}} \quad (2.18)$$

und $y_{l,k}^*$ aus Gl. (2.16) und (2.17) berechnet.

Die Temperaturableitung $\frac{dT_l}{dt}$ in den Energiebilanzen wird durch implizite Differentiation der Gleichungen (2.2), (2.16) und (2.17) bestimmt.

Da die Kolonne atmosphärisch betrieben wird und der Umgebungsdruck als konstant angenommen wird, ist der Druck im Kondensator durch

$$P_{N_T+1} = P_{\text{amb}} \quad (2.19)$$

A_1	23,48
A_2	22,437
B_1	3626,6
B_2	3166,4
C_1	-34,29
C_2	-80,15

Tabelle 2.2: Antoine-Parameter

k	a_k [kmol l ⁻¹]	b_k	c_k [K]	d_k
1	2,288	0,2685	512,4	0,2453
2	1,235	0,27136	536,4	0,24

Tabelle 2.3: Koeffizienten der molaren Volumina der reinen Komponenten 1 (Methanol) und 2 (1-Propanol)

mit P_{amb} als Umgebungsdruck definiert. Weiterhin ist der Druck auf den einzelnen Böden P_l durch die Annahme eines konstanten Druckverlusts ΔP_l pro Boden durch

$$P_l = P_{l+1} + \Delta P_l \quad l = 0, 1, \dots, N_T \quad (2.20)$$

vorgegeben.

Da die molaren Flüssigkeitsströme nicht direkt gemessen werden können, werden sie über die wiederum messbaren volumetrischen Ströme über die jeweiligen molaren Volumen berechnet. Die molaren Volumen des Gemisches

$$V^m(x, T) = xV_1^m(T) + (1 - x)V_2^m(T) \quad (2.21)$$

setzen sich aus den Reinstoffvolumina mit

$$V_k^m(T) = \frac{1}{a_k} b_k^{1+(1-\frac{T}{c_k})^{d_k}} \quad (2.22)$$

und den Koeffizienten aus Tabelle 2.3 zusammen [13].

Die molaren Enthalpien werden über die Linearkombinationen der Enthalpien der Reinstoffe 1 (Methanol) und 2 (1-Propanol)

$$h^L(x, T) = xh_1^L(T) + (1 - x)h_2^L(T) \quad (2.23)$$

$$h^V(y, T, p) = yh_1^V(T, p) + (1 - y)h_2^V(T, p) \quad (2.24)$$

berechnet [13]. Für die Reinstoffenthalpien der Flüssigphasen wird der Ansatz

$$h_k^L(T) = C \{h_{1,k}(T - T_0) + h_{2,k}(T - T_0)^2 + h_{3,k}(T - T_0)^3\} \quad (2.25)$$

mit $T_0 = 273,15$ K und $C = 4,186$ J mol⁻¹ verwendet. Für die Reinstoffenthalpien der Gasphasen kommt

$$h_k^V(T, p) = h_k^L(T) + RT_k^c \sqrt{1 - \frac{p}{p_k^c} \left(\frac{T}{T_k^c}\right)^{-3}} \left\{ a - b \frac{T}{T_k^c} + c \left(\frac{T}{T_k^c}\right)^7 + \Omega_k \left(d - e \frac{T}{T_k^c} + f \left(\frac{T}{T_k^c}\right)^7 \right) \right\} \quad (2.26)$$

mit $R = 8,3147$ J mol⁻¹ K⁻¹, $a = 6,09648$, $b = 1,28862$, $c = 1,016$, $d = 15,6875$, $e = 13,4721$ und $f = 2,615$ zum Einsatz. Die Enthalpiekoeffizienten sind in Tabelle 2.4 aufgelistet.

k	$h_{1,k}$ [K ⁻¹]	$h_{2,k}$ [10 ⁻² K ⁻²]	$h_{3,k}$ [10 ⁻⁵ K ⁻³]	T_k^c [K]	P_k^c [10 ⁶ Pa]	Ω_k
1	18,31	1,713	6,399	512,6	8,096	0,557
2	31,92	4,49	9,663	536,7	5,166	0,612

Tabelle 2.4: Enthalpiekoeffizienten der reinen Komponenten 1 (Methanol) und 2 (1-Propanol)

Druckeinflüsse werden vernachlässigt. Die benötigten Parameter wurden in Experimenten identifiziert (siehe 2.4) und sind in Tabelle 2.5 aufgelistet. Die Parameter α_l und Δp_l sind jeweils in den Kolonnenabschnitten über und unterhalb des Feedbodens (Verstärkungs- und Abtriebteil) konstant. Die Parameter W_l und n_l^{ref} sind konstant und in der ganze Kolonne gleich.

2.2.2 Formulierung als DA-System

Die Werkzeuge zur numerischen Integration und Optimierung benötigen ein Modell in semi-impliziter Form

$$\mathbf{B}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t), \mathbf{p}) \dot{\mathbf{x}}(t) = \mathbf{f}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t), \mathbf{p}) \quad \text{für } t > t_0 \quad (2.27)$$

$$0 = \mathbf{g}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t), \mathbf{p}) \quad \text{für } t > t_0 \quad (2.28)$$

$$\mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \quad (2.29)$$

n^{ref}	0,155 l
α_{Abtr}	63 %
α_{Verst}	35 %
W	0,166 l ^{-$\frac{1}{2}$} s ⁻¹
Δp_{Abtr}	2,5 hPa
Δp_{Verst}	1,9 hPa
T_C	47,2 ^o C

Tabelle 2.5: Experimentell identifizierte Modellparameter

wobei die Matrix $\mathbf{B}(\cdot)$ invertierbar sein muss.

Um das in Abschnitt 2.2.1 gewonnene Modell in die gewünschte Form zu bringen, müssen die Vektoren der differentiellen Variablen \mathbf{x} , der algebraischen Variablen \mathbf{z} , der Systemeingänge \mathbf{u} und der Systemparameter \mathbf{p} identifiziert werden. Die Vektoren sind wie folgt aufgebaut:

$$\mathbf{x} = (x_0, \dots, x_{N_T+1}, n_1, \dots, n_{N_T})^T \quad \dim(\mathbf{x}) = 82 \quad (2.30)$$

$$\mathbf{z} = (L_1, \dots, L_{N_T}, V_1, \dots, V_{N_T}, T_0, \dots, T_{N_T+1})^T \quad \dim(\mathbf{z}) = 122 \quad (2.31)$$

$$\mathbf{u} = (R_{\text{vol}}, Q)^T \quad \dim(\mathbf{u}) = 2 \quad (2.32)$$

Explizite Gleichungen für z.B. h_l^L , y_l , $P_k^s(T_l)$ etc. werden direkt eingesetzt. Alle Parameter werden einfach in dem Vektor \mathbf{p} zusammengefasst. Das so gewonnene semi-implizite Modell besitzt 82 Differential- und 122 algebraische Gleichungen.

2.3 Regelungskonzept

Ziel jeder Regelung ist es, durch geeignete Wahl von Stellgrößen die Regelgrößen auf die gewünschte Art und Weise zu beeinflussen. Im Falle der hier untersuchten Destillationskolonne soll im Kopf der Kolonne möglichst reines Methanol und im Sumpf möglichst reines Propanol abgezogen werden. Als Messgrößen wird jeweils eine Boden-Temperatur im Verstärkungs- und im Abtriebteil ausgewählt, die für Störungen besonders sensitiv ist. In der untersuchten Kolonne werden die Temperaturen auf Boden 14 und Boden 28 verwendet. Weiterhin werden Feed- und Rücklaufmenge sowie die Temperatur des Feedbodens (Boden 21) gemessen. Aus den zur Verfügung stehenden

Messwerten rekonstruiert ein Erweitertes Kalmanfilter (EKF) den kompletten Systemzustand, mit dessen Hilfe der Optimierer für einen gewünschten Zeithorizont T_P eine Folge von optimalen Stellgrößen berechnen kann. Das Konzept ist in Abbildung 2.3 zusammengefasst.

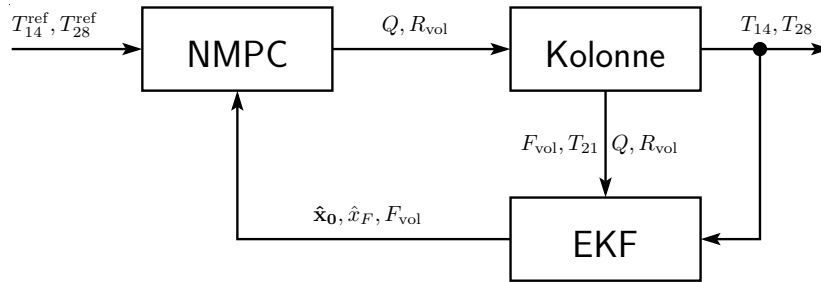


Abbildung 2.3: Regelungskonzept mit den zugehörigen Sollwerten (T_i^{ref}), Stellgrößen (Q, R_{vol}), Regelgrößen (T_i), Messgrößen (F_{vol}, T_i, Q, R_{vol}) und den geschätzten Zuständen ($\hat{x}_0, \hat{x}_F, F_{vol}$).

Die zu entwerfenden Komponenten für das Regelungskonzept sind also das Erweiterte Kalmanfilter und der eigentliche Regler, der NMPC.

2.3.1 Nichtlineare modellprädiktive Regelung

Das Funktionsprinzip eines NMPC soll an dieser Stelle nur kurz und vereinfacht skizziert werden. Für weiterführende Informationen sei auf [5, 7, 24, 70, 79] verwiesen.

Wie in Abb. 2.4 dargestellt, wird dem Optimierer die gewünschte Solltrajektorie einer Regelgröße vorgegeben. Für diese Trajektorie wird aus den aktuellen Messwerten ein optimaler Stellgrößenverlauf für den Zeithorizont T_P berechnet und der erste Wert der Folge an das Prozessleitsystem weitergeleitet. Nach einem Zeitintervall Δt_s wird erneut gemessen und für den um Δt_s verschobenen Zeithorizont T_P optimiert.

In Abb. 2.4 wurde vernachlässigt, dass aus den Messwerten erst der komplette Systemzustand mittels z.B. eines Beobachters rekonstruiert werden muss, bevor die Optimierung beginnen kann.

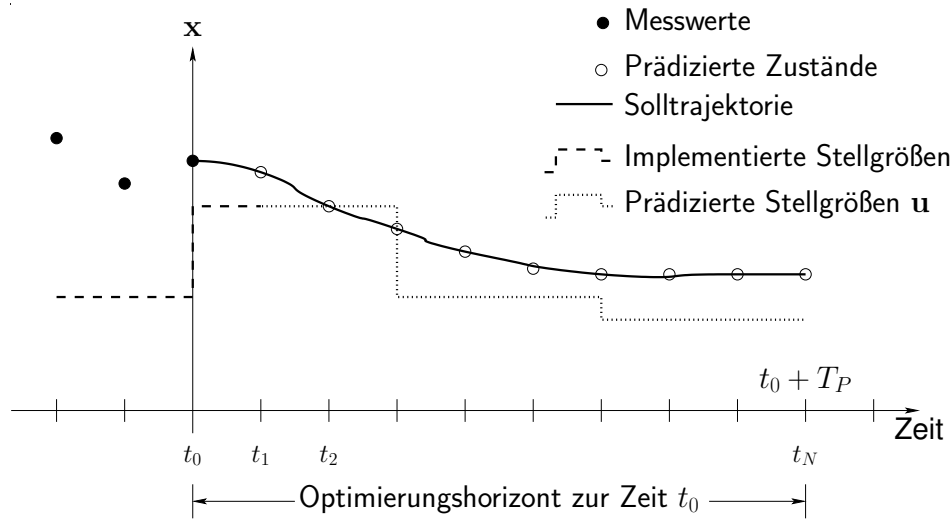


Abbildung 2.4: Schema der NMPC

2.3.2 Echtzeitbedingungen

In Abbildung 2.5 sind die Echtzeitbedingungen grafisch dargestellt. Es ist naheliegend, dass die Optimierungszeit kürzer sein muss als die Samplingzeit Δt_s . Weiterhin muss sichergestellt sein, dass die neu berechneten Stellgrößen möglichst kurze Zeit Δt_{mess} nach der Messung an den Prozess weitergegeben werden, da sich sonst der dann aktuelle Prozesszustand $t_0 + \Delta t_{\text{mess}}$ erheblich von dem Zustand zur Zeit t_0 unterscheidet. D.h. die gesamte Messwertverarbeitung Δt_{mess} inklusive der Optimierung muss möglichst kurz sein. Auch wenn diese Verzögerung bei der Optimierung berücksichtigt wird, kann eine Störung die Prädiktion unbrauchbar machen, wie in Abb. 2.5 dargestellt ist.

Die Bedingung an die Echtzeitfähigkeit des Regelungskonzept lässt sich also auf eine kurze Messwertverarbeitung Δt_{mess} relativ zu den prozessrelevanten Zeitkonstanten vereinfachen.

2.3.3 Optimierungsproblem

Wie in Abschnitt 2.3.1 erwähnt, errechnet der NMPC eine Folge von optimalen Stellwerten. Dazu wird das Optimierungsintervall $[t_0, t_0 + T_P]$ in mehrere Intervalle $[t_i, t_{i+1}]$ unterteilt wobei gilt:

$$t_0 < t_1 < \dots < t_N = t_0 + T_P \quad (2.33)$$

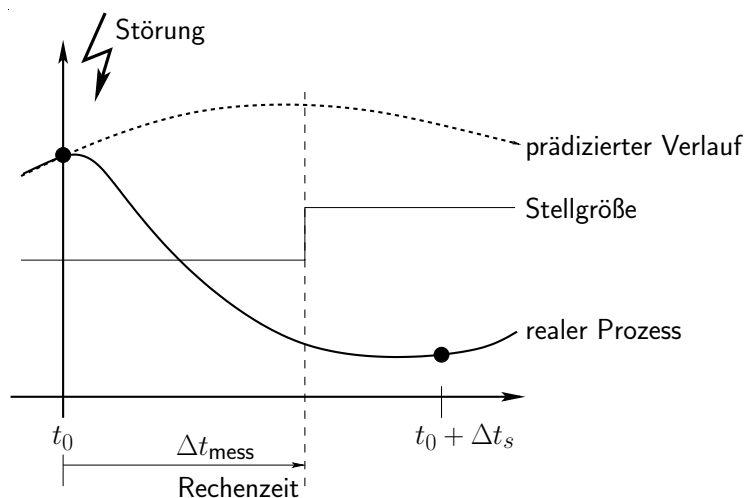


Abbildung 2.5: Die Messwertverarbeitung Δt_{mess} muss möglichst kurz sein, damit sich der Prozess nicht zu weit vom Bezugszustand t_k entfernt, wenn die neuen Stellgrößen an der Kolonne anliegen

Die Stellwertefunktionen $\mathbf{u}(t)$ sind parametrierbare Funktionen, deren Parameter \mathbf{k}_i während eines Intervalls konstant gehalten werden:

$$\mathbf{u}(t) = \mathbf{u}(t, \mathbf{k}_1, \dots, \mathbf{k}_n). \quad (2.34)$$

Die in einem Intervall konstanten Parameter \mathbf{k}_i entsprechen einer Zeitdiskretisierung. Mit

$$\mathbf{u}(t) = \mathbf{u}_i \quad \text{für } t \in [t_i, t_{i+1}) \quad (2.35)$$

sind die abschnittsweise konstanten Funktionen \mathbf{u}_i definiert. Das Intervall $[t_0, t_C]$ mit $t_C = t_{N-1} = t_0 + T_C$ wird dabei als Regelungshorizont bezeichnet und das Intervall $[t_0, t_P]$ mit $t_P = t_N = t_0 + T_P$ als Prädiktionshorizont. Das Ziel der Optimierung ist es, zur Zeit $t = t_C$ alle Stellbewegungen abgeschlossen und somit das Regelziel erreicht zu haben. Hier wird von der in [15] vorgestellten Vorgehensweise mit einem Endterm E zur Stabilisierung [1, 12, 23, 53] abgewichen und statt dessen ein langer Prädiktionshorizont gewählt [12, 25]. Das anschließende Intervall $[t_C, t_P]$ ist dann sehr viel länger als das vorherige um nominelle Stabilität des geschlossenen Regelkreises sicher zu stellen. Werte von $T_P - T_C = 3600$ Sekunden und $T_C = 120$ Sekunden haben sich in den Versuchen als sinnvoll erwiesen. In diesem Intervall gilt

$$\mathbf{u}(t) = \mathbf{u}_s \quad \text{für } t \in [t_C, t_P] \quad (2.36)$$

mit den stationären Stellgrößen \mathbf{u}_s [12, 25].

Mit dieser Diskretisierung kann nun das eigentliche Optimierungsproblem als Minimierung

$$\min_{\mathbf{u}} \int_{t_0}^{t_0+T_P} L(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t)) dt, \quad (2.37)$$

der Zielfunktion

$$L(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t)) = \|\tilde{\mathbf{T}}_z - \tilde{\mathbf{T}}_{\text{ref}}\|_2^2 + \|\mathbf{R} (\mathbf{u}(t) - \mathbf{u}_s)\|_2^2. \quad (2.38)$$

formuliert werden. Die Zielfunktion teilt sich in zwei Einträge auf. Der erste ist naheliegend und bestraft die Abweichungen der prädizierten Regelgrößen, den Temperaturen $\tilde{\mathbf{T}}_z := (T_{14}, T_{28})^T$, von den Sollwerten $\tilde{\mathbf{T}}_{\text{ref}} = (70^\circ\text{C}, 88^\circ\text{C})$. Der zweite Eintrag repräsentiert die stationären Abweichungen der Stellgrößen, die mit der diagonalen Matrix

$$\mathbf{R} = \begin{bmatrix} 0.05 \text{ } ^\circ\text{C h l}^{-1} & 0 \\ 0 & 0.05 \text{ } ^\circ\text{C kW}^{-1} \end{bmatrix} \quad (2.39)$$

mit sehr kleinen Elementen gewichtet wird. Die Minimierung wird mit den Modellgleichungen und Anfangsbedingungen

$$\mathbf{B}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t), \mathbf{p})\dot{\mathbf{x}}(t) = \mathbf{f}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t), \mathbf{p}) \quad \text{für } t \in (t_0, t_0 + T_P] \quad (2.40)$$

$$0 = \mathbf{g}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t), \mathbf{p}) \quad \text{für } t \in (t_0, t_0 + T_P] \quad (2.41)$$

$$\mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \quad (2.42)$$

als Nebenbedingungen durchgeführt. Dabei müssen die Zwangsbedingungen für Zustände und Stellgrößen

$$\mathbf{h}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t)) \geq \mathbf{0} \quad \text{für } t \in (t_0, t_0 + T_P] \quad (2.43)$$

erfüllt sein. Die Zwangsbedingungen repräsentieren Zustandsbeschränkungen für den Destillat- und den Sumpfabzugsstrom (D und B), die den begrenzten Volumina des Kondensatsammelbehälters und des Verdampfers Rechnung tragen. Auch die Stellgrößen \mathbf{u} sind beschränkt (\mathbf{u}_{max} bzw. \mathbf{u}_{min}). Der Rücklaufstrom kann nicht größer werden als der Gasstrom aus der Kolonne und zugleich nicht negativ. Unterhalb eines bestimmten Gasstromes kommt es bei bestimmten Kolonnentypen zum Durchregnen der einzelnen Böden. Bei den hier verwendeten Glockenböden ist dies zwar nicht möglich, diese

Beschränkung wird aber dennoch eingesetzt um eine fluiddynamische Belastungsgrenze, wie sie z.B. bei Siebböden relevant ist, zu simulieren. Das Durchregnen kann vermieden werden, indem für die Heizleistung eine untere Schranke von 2 kW vorgegeben wird. Die obere Grenze ist durch die maximale Heizleistung des Verdampfers von 12 kW gegeben.

Des Weiteren muss die Endbedingung

$$\tilde{\mathbf{T}}_z(t_0 + T_P) - \tilde{\mathbf{T}}_{\text{ref}} = 0 \quad (2.44)$$

erfüllt sein. Damit ist sicher gestellt, dass das Optimierungsziel — das Erreichen bzw. Halten einer geforderten Temperatur — nach Ablauf des Optimierungshorizontes tatsächlich erreicht wird. Weiterhin sind durch diese Endbedingung gleichzeitig die stationären Stellgrößen \mathbf{u}_s definiert. Somit wird die Berechnung der stationären Zustände auf die Optimierung verlagert, anstatt ein nichtlineares Gleichungssystem zu lösen.

2.3.4 Numerische Realisierung

Wie in Abschnitt 2.3.2 beschrieben, muss der Regler in der Lage sein, die nichtlineare Optimierungsaufgabe in Echtzeit zu lösen. Dazu wird ein sehr effizientes Verfahren zur numerischen Lösung eines solchen Problems benötigt. Das direkte Mehrschießverfahren (auch Mehrzielverfahren oder direct multiple shooting) bietet sich durch seine Aufteilung des Optimierungshorizontes in kleine Intervalle besonders an. Hier kommt dieselbe Aufteilung wie in Gl. (2.33) zum Einsatz. Genauso wie die Stellgrößen wird das komplette DA-System diskretisiert und neue Anfangswerte \mathbf{s}_i^x für die Intervalle $[t_i, t_{i+1}]$ eingeführt. In jedem dieser Intervalle werden die Trajektorien $\mathbf{x}_i(t)$ und $\mathbf{z}_i(t)$ als Lösung des folgenden Anfangswertproblems gelöst:

$$\mathbf{B}(\cdot)\dot{\mathbf{x}}(t) = \mathbf{f}(\mathbf{x}_i(t), \mathbf{z}_i(t), \mathbf{u}_i) \quad (2.45)$$

$$\mathbf{0} = \mathbf{g}(\mathbf{x}_i(t), \mathbf{z}_i(t), \mathbf{u}_i) - \alpha_i(t)\mathbf{g}(\mathbf{s}_i^x, \mathbf{s}_i^z, \mathbf{u}_i) \quad (2.46)$$

$$\mathbf{x}_i(t_i) = \mathbf{s}_i^x \quad (2.47)$$

$\alpha_i(t)\mathbf{g}(\mathbf{s}_i^x, \mathbf{s}_i^z, \mathbf{u}_i)$ eingeführt, der in Gleichung (2.46) wurde ein Term temporär Unstetigkeiten an den Intervallgrenzen erlaubt. Für Details zu dem Relaxationsparameter $\alpha_i(t)$ sei auf [13] verwiesen. Die Trajektorien $\mathbf{x}_i(t)$ und $\mathbf{z}_i(t)$ hängen also im Intervall $[t_i, t_{i+1}]$ nur von den jeweiligen Anfangswerten

$\mathbf{s}_i^x, \mathbf{s}_i^z$ und Stellgrößen \mathbf{u}_i ab. Anschließend kann der integrale Anteil des Kostenfunktional für jedes Intervall getrennt formuliert werden:

$$L_i(\mathbf{s}_i, \mathbf{u}_i) := \int_{t_i}^{t_{i+1}} L(\mathbf{x}_i(t), \mathbf{z}_i(t), \mathbf{u}_i) dt. \quad (2.48)$$

Mit dieser Formulierung lässt sich dann das Nichtlineare Programmierungsproblem (NLP)

$$\min_{\mathbf{u}, \mathbf{s}} \sum_{i=0}^{N-1} L_i(\mathbf{s}_i, \mathbf{u}_i) \quad (2.49)$$

mit den Anfangsbedingungen

$$\mathbf{s}_0^x = \mathbf{x}_0 \quad (2.50)$$

den Stetigkeitsbedingungen

$$\mathbf{s}_{i+1}^x = \mathbf{x}_i(\mathbf{s}_i, \mathbf{u}_i) \quad \text{für } i = 0, 1, \dots, N-1 \quad (2.51)$$

und den Konsistenzbedingungen

$$\mathbf{0} = \mathbf{g}(s_i^x, s_i^z, u_i) \quad \text{für } i = 0, 1, \dots, N-1 \quad (2.52)$$

aufstellen. Die Einhaltung der Zustands- und Stellgrößenbeschränkungen

$$\mathbf{h}(s_i^x, s_i^z, u_i) \geq \mathbf{0} \quad \text{für } i = 0, 1, \dots, N-1 \quad (2.53)$$

wird an den Intervallgrenzen gefordert. Alle Zustandsvariablen und Stellgrößen des Mehrfachschießverfahrens werden im Vektor

$$\mathbf{w} = (s_0^x, s_0^z, u_0, s_1^x, s_1^z, u_1, \dots, u_{N-1}, s_N^x) \in \mathbb{R}^n \quad (2.54)$$

zusammengefasst und die Gleichungen (2.45)-(2.54) im Weiteren als Optimierungsproblem $P(\mathbf{x}_0)$ bezeichnet. Damit soll die alleinige Abhängigkeit der Lösung von den Anfangswerten ausgedrückt werden.

Das so formulierte NLP-Problem kann mittels einer an die Mehrfachschießverfahren-Struktur [9, 47] angepassten sequentiellen quadratischen Programmierung (SQP) gelöst werden. Näheres findet sich in [13, 15]. Die wichtigsten Gedanken seien im Folgenden kurz zusammengefasst.

Das oben beschriebene Problem wurde mit MUSCOD-II [17, 47] und dem unterlagerten impliziten DA-System-Löser DAESOL [6] gelöst.

Startwerteinbettung

Bisher wurde nur die Lösung eines einzelnen anfangswertabhängigen Optimierungsdurchgangs diskutiert. Für die NMPC muss dieser einzelne Durchgang immer wieder mit jeweils neuen Messungen als Startwerten durchgeführt werden. Durch einen effizienten Weg Startwerte \mathbf{w}_0 für $P(\mathbf{x}_0)$ zu finden, kann der Rechenaufwand erheblich reduziert werden.

Glücklicherweise steht jedem Optimierungsdurchgang die Lösung des vorhergehenden Optimierungsproblem $P(\mathbf{x}'_0)$ zur Verfügung. Es ist naheliegend, die Simulation über das Optimierungsintervall $[t_0, t_0 + T_P]$ mit den vorherigen optimalen Stellwerten $\mathbf{u}_0^*(\mathbf{x}'_0)$ und dem aktuellen Systemzustand \mathbf{x}_0 als Startwerte w_0 für das Problem $P(\mathbf{x}_0)$ zu verwenden.

Wie in Abb. 2.6 zu erkennen ist, ist die optimale Lösung nach neun Iterationen erreicht. In den obersten beiden Zeilen sind die Zeitverläufe der beiden Regelgrößen T_{28} und T_{14} dargestellt. In der ersten Spalte ist die initiale Trajektorie dargestellt, in den Spalten zwei und drei die Lösung nach zwei und neun Iterationen. Man sieht, dass nach neun Iterationen auch tatsächlich die gewünschten Sollwerte von 70°C und 88°C erreicht werden.

Die Konvergenzgeschwindigkeit kann aber noch erheblich erhöht werden, indem die vorherige Lösung $P(\mathbf{x}'_0)$ komplett übernommen wird. Damit werden für die erste Iteration aktuelle Messwerte vollkommen außer acht gelassen. Wie in Abb. 2.7 zu sehen ist, konvergiert die Lösung mit dieser Initialisierung schon nach drei Iterationen gegen die optimale Lösung wie sie in Abb. 2.6 erst nach neun Iterationen erreicht wird.

Offensichtlich entsprechen die Anfangswerte zu Beginn der Optimierung \mathbf{s}_0^x nicht den eigentlichen Messwerten \mathbf{x}_0 und es gilt

$$\mathbf{s}_0^x = \mathbf{x}'_0 \neq \mathbf{x}_0 \quad (2.55)$$

mit den vorherigen Startwerten \mathbf{x}'_0 . Eine solche temporäre Verletzung der Anfangswertgleichung ist bei dem Mehrfachschießverfahren über den Relaxationsparameter α in Gl. (2.46) jedoch erlaubt und wie in Abb. 2.7 zu sehen ist, werden die eigentlichen Messwerte schon nach der ersten Iteration erreicht.

Echtzeit-Iterationen

Nachdem nun ein effizientes Optimierungsverfahren mit sinnvoller Startwerteinbettung gefunden ist, kann die Echtzeitanforderung, die Rechenzeit kürzer

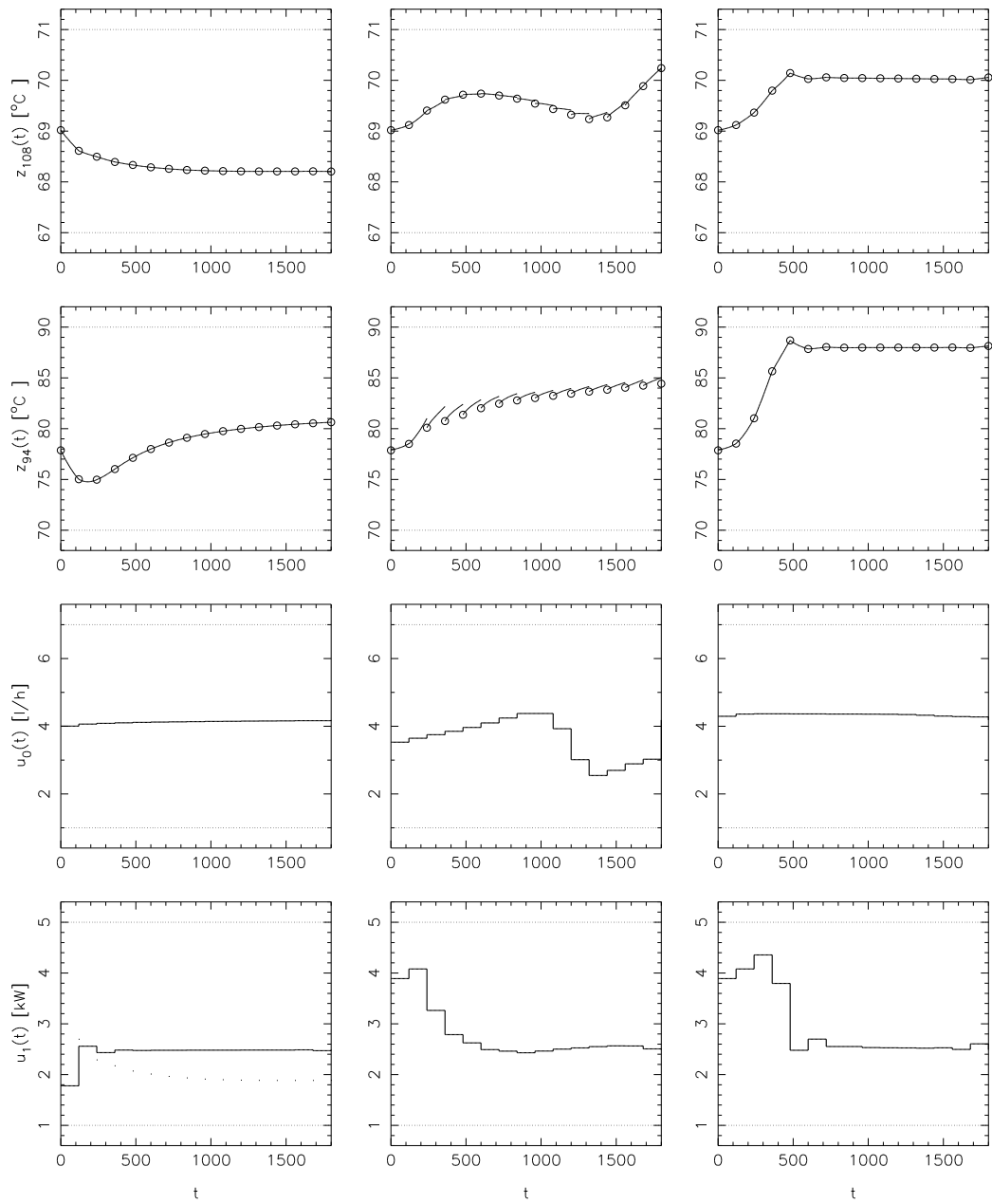


Abbildung 2.6: Verwendung der aktuellen Messwerte und Lösung $P(\mathbf{x}'_0)$ zur Initialisierung. In den beiden oberen Zeilen sind die beiden Regelgrößen dargestellt in den unteren die beiden Stellgrößen. 1. Spalte: Initialisierung; 2. Spalte: nach zwei Iterationen; 3. Spalte: Lösung $P(\mathbf{x}_0)$ nach neun Iterationen

zu halten als die Samplingzeiten, erfüllt werden. Wie schon in Abschnitt 2.3.2 erwähnt, muss jedoch auch sicher gestellt werden, dass neue Stellwerte mit möglichst kurzer Verzögerung Δt_{mess} nach der Messung bereitstehen.

Um dies zu erreichen wird ausgenutzt, dass bei der NMPC nicht nur einmal optimiert wird, sondern ständig wiederholt mit der Periode Δt_s . Dabei kann jeder Durchgang *Messung-Optimierung-Stellwertaufschaltung* prinzipiell als einzelne Iteration in einem endlosen Optimierungsproblem angesehen werden (*Echtzeit-Iterierung*). Zusammen mit der Startwerteinbettung kann dadurch auf das vollständige Ausiterieren verzichtet werden. Eine einzige Iteration pro Durchgang reicht bei ausreichend kurzer Samplingzeit aus, um trotzdem eine Konvergenz auf die optimale Lösung zu gewährleisten. Die kurze Samplingzeit wird jedoch gleichzeitig erst mit der verkürzten Optimierungszeit bei der *Echtzeit-Iterierung* ermöglicht.

Die effiziente Einbettung der Startwerte hat noch einen weiteren sehr wichtigen Effekt außer der Reduktion der notwendigen Iterationsanzahl auf eine einzige pro Durchgang. Große Anteile einer Iteration sind Messwert-unabhängig, dadurch können diese vorausberechnet werden. Somit ist ein Großteil der Optimierung schon abgeschlossen, bevor aktuelle Messwerte eintreffen. Auch hier wird das Konvergenzverhalten durch eine kürzere Samplingzeit Δt_s verbessert.

In Abb. 2.8 ist dargestellt, wie sich die Samplingzeit Δt_s in Vorbereitungszeit und Feedbackverzögerung Δt_{mess} aufteilt. Die Feedbackverzögerung ist jedoch stark übertrieben dargestellt. Es gilt: $\Delta t_{\text{mess}} \ll \Delta t_s$.

2.3.5 Zustandsrekonstruktion

Die 82 Systemzustände des Modells werden über ein *Constrained extended Kalmanfilter* (CEKF) rekonstruiert [13]. Um die Ergebnisse des Filters zu verbessern, wird außer den Regelgrößen T_{14} und T_{28} noch die Temperatur des Feedbodens T_{21} verwendet. Weiterhin hat der Filter noch die Messungen der Stellgrößen R_{vol} und Q , sowie des Feedstroms F_{vol} zur Zustandsschätzung zur Verfügung. Die Messungen der Stellgrößen sind notwendig, da sie durch den NMPC nur indirekt vorgegeben werden und nur als Sollwert eines unterlagerten Regelkreises im Prozessleitsystem implementiert werden können. Es sind also Störungen in der Stellwertvorgabe möglich, die durch deren Messung mitberücksichtigt werden können. Im Unterschied zu einem herkömmlichen EKF kann der hier eingesetzte EKF außerdem Zustandsbeschränkungen

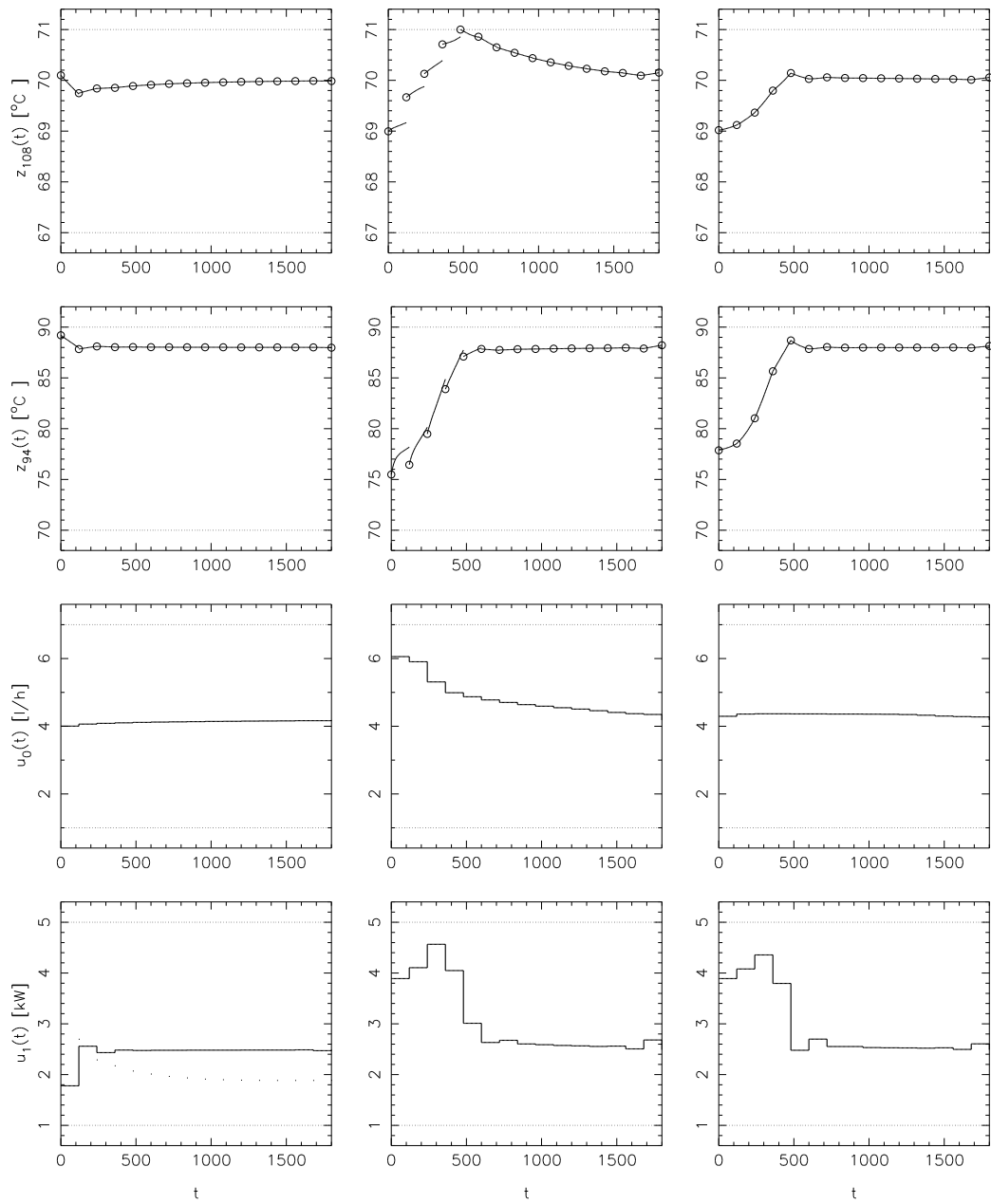


Abbildung 2.7: Alleinige Verwendung der Lösung $P(\mathbf{x}'_0)$ zur Initialisierung. In den beiden oberen Zeilen sind die beiden Regelgrößen dargestellt in den unteren die beiden Stellgrößen. 1. Spalte: Initialisierung; 2. Spalte: nach einer Iteration; 3. Spalte: Lösung $P(\mathbf{x}_0)$ nach drei Iterationen

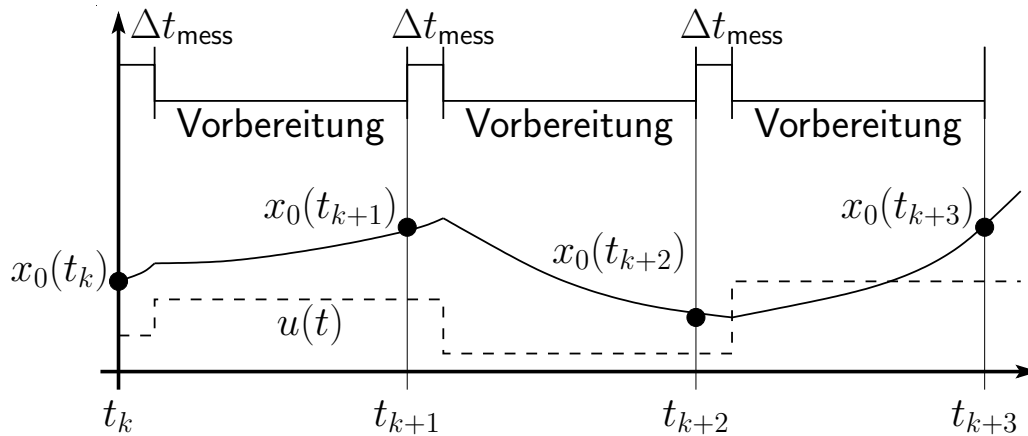


Abbildung 2.8: Schema, wie sich die Samplingzeit Δt_s in Vorbereitungszeit und Feedbackverzögerung Δt_{mess} aufteilt

berücksichtigen. So sind z.B. die Werte der Molenbrüche x_l und y_l auf das Intervall $[0,1]$ beschränkt.

2.4 Parameteridentifikation

Die im Modell vorkommenden Parameter wie z.B. die Holdups, Murphree-Koeffizienten, und Druckverluste wurden vorab in Experimenten identifiziert. Dabei wurde die Reaktion der Kolonne auf sprungförmige Änderungen in der Feedrate F_{vol} , der Feedzusammensetzung x_F , der Feedtemperatur T_F , des Rücklaufstroms R_{vol} und der Heizleistung Q aufgezeichnet. Weiterhin wurden stationäre Experimente in verschiedenen Arbeitspunkten durchgeführt. Mit den so gewonnenen Daten konnte mittels der Methode der kleinsten Quadrate in der Offline-Version von MUSCOD-II [17, 47] die Parameter identifiziert werden. Dazu wurden sämtliche verfügbaren Messinformationen verwendet, also z.B. auch das Temperaturprofil über die ganze Destillationskolonne. Die so gefundenen Parameter sind in Tabelle 2.5 in Abschnitt 2.2.1 aufgelistet.

2.5 Experimentelle Validierung

Mit dem Optimierer und dem Zustandsschätzer sind die wesentlichen Teile des Gesamtkonzeptes, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, implementiert.

In diesem Abschnitt soll nun im Experiment an der realen Anlage die Leistungsfähigkeit dieses Konzeptes mit der eines linearen PI-Reglers verglichen werden. Der PI-Regler wird bei nahezu allen industriell genutzten Destillationskolonnen verwendet und ist damit als Maßstab für die Leistungsfähigkeit sehr gut geeignet. Hier kommt der bereits bestehende Regler (siehe Abb. 2.9) des Prozessleitsystems zum Einsatz.

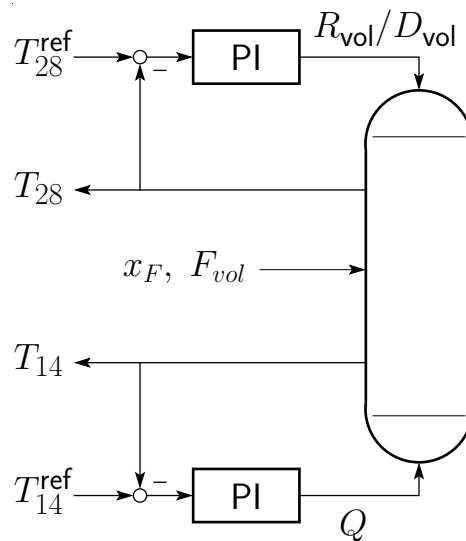


Abbildung 2.9: Lineare PI-Regler für den Antrieb- und den Verstärkungsteil

Der PI-Regler besteht aus zwei getrennten Regelkreisen, jeweils einer für den Verstärkungs- und den Abtriebteil. Die PI-Regler erhalten Temperaturmessungen von Boden 14 und 28, analog zu dem NMPC. Um jedoch den vom Prozessleitsystem bereitgestellten PI-Regler einsetzen zu können, wird der Verstärkungsteil über das Rücklaufverhältnis $R_{\text{vol}}/D_{\text{vol}}$ geregelt anstelle des Rücklaufstromes bei der NMPC. Der Regler des Abtriebteils verwendet analog zum NMPC die Heizleistung.

2.5.1 Versuchsaufbau

Da ein Prozessleitsystem nicht in der Lage ist, die sehr rechenintensive Optimierung direkt durchzuführen, muss der NMPC auf einen externen Computer

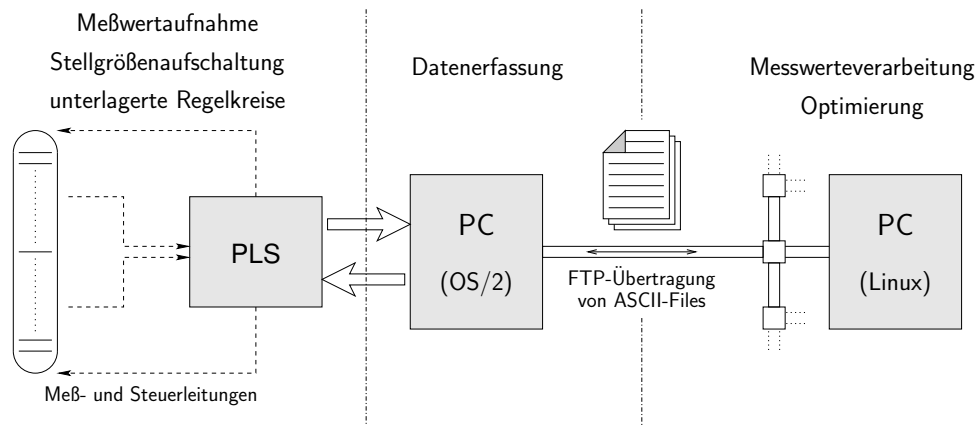


Abbildung 2.10: Versuchsaufbau mit dem Messwertverarbeitungsrechner, der über Ethernet an das Institutsnetzwerk angeschlossen ist

ausgelagert werden. An das PLS ist eine Workstation mit der Messwert erfassungs-Hardware angeschlossen. Diese Workstation ist über Ethernet an das normale Institutsnetzwerk angebunden. Dadurch kann jeder beliebige Rechner im Netzwerk als Regler-Rechner dienen (siehe Abb. 2.10). Der Regler wird auf einem Standard-Computer mit einer 1000 MHz AMD Athlon CPU unter GNU/Linux bereitgestellt. Der Optimierer läuft in der extra angepassten Optimierungsumgebung MUSCOD-II [17, 47] und der EKF in MATLAB. Zur Steuerung der Einzelprozesse, wie Optimierung, EKF, Datenverarbeitung, etc. wird ebenfalls MATLAB verwendet. Die Daten, wie Messwerte und Stellgrößen, werden in Textfiles über FTP übertragen. Zusätzlich stellt ein Steuerprogramm auf dem Regler-Rechner sicher, dass alle beteiligten Komponenten synchron getaktet werden und die Übertragung robust gegen kurze Netzwerkausfälle ist. Mit diesem Aufbau ist es möglich beliebige Samplingzeiten $\Delta t_s > 1\text{ s}$ zu realisieren. In den Versuchen wird $\Delta t_s = 20\text{ s}$ verwendet.

2.5.2 Experimente

Das oben beschriebene Verfahren wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit in zahlreichen Szenarien validiert [19, 18, 13, 15, 16]. Stellvertretend werden hier zwei repräsentative Experimente vorgestellt. Im ersten wird der NMPC mit dem PI-Regler verglichen. Das zweite Experiment zeigt nur das Verhalten

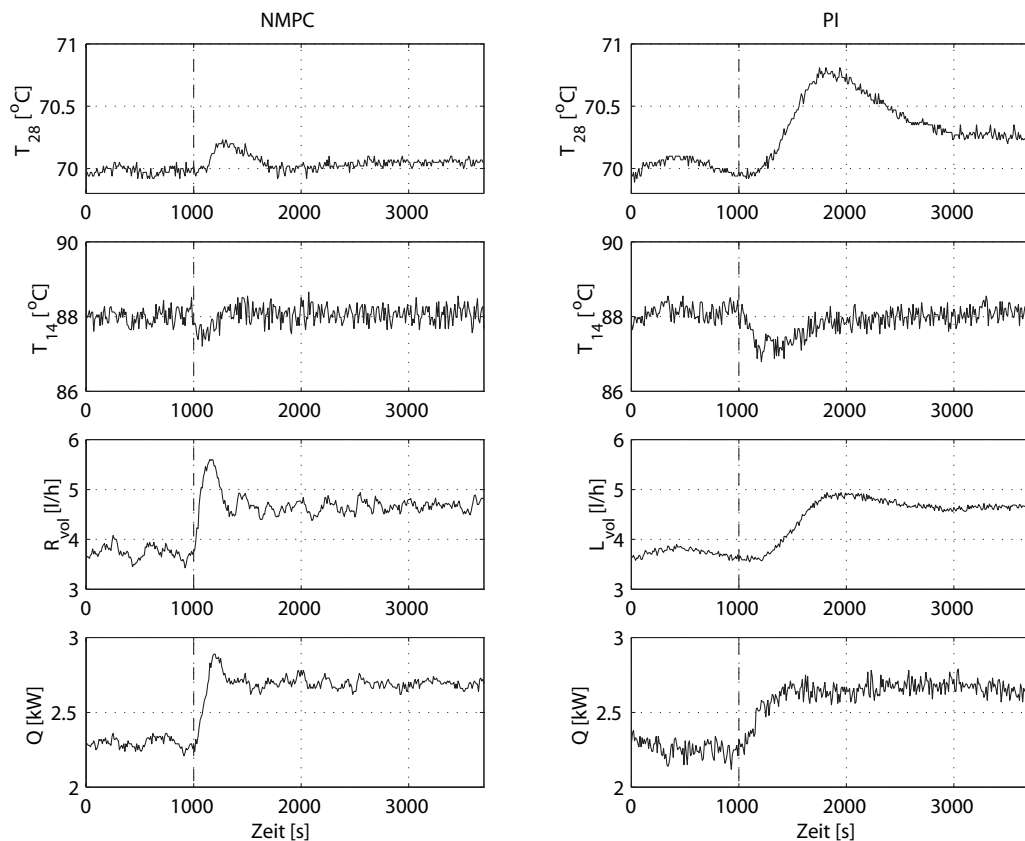


Abbildung 2.11: Szenario: Störung im Feedstrom. Vergleich mit einem PI-Regler. Störung: sprunghafte Änderung des Feedstroms um 20 % bei 1000 Sekunden

des NMPC, da die Störung für den PI zu groß war und dieser nicht in der Lage war die Sollwerte wieder zu erreichen.

Szenario: Störung im Feedstrom

In Abb. 2.11 ist der Verlauf des Experimentes dargestellt. Bei Sekunde 1000 wird der Feedstrom sprunghaft um 20 % erhöht. Das Diagramm zeigt die Messungen der zu regelnden Temperaturen auf Boden 14 und 28 sowie die Stellgrößen Rücklaufstrom R_{vol} und Heizleistung Q . In der linken Spalte ist der NMPC und in der rechten Spalte der PI-Regler dargestellt. Man kann erkennen, dass der NMPC die Störung nach ca. 800 Sekunden ausgeglichen hat und auf Boden 28 eine maximale Abweichung von $0,3 \text{ }^{\circ}\text{C}$ erreicht wird.

Der PI-Regler erreicht eine maximale Abweichung von $0,8\text{ }^{\circ}\text{C}$ auf Boden 28 und hat die Störung auch nach Ablauf des Experimentes nach 3500 Sekunden noch nicht ausgeglet. Insgesamt zeigt der PI-Regler damit eine wesentlich schlechtere Regelleistung als der NMPC.

Szenario: Multiple Störungen

Um die wirklichen Stärken der NMPC herauszuarbeiten, wurde die Destillationskolonne einer wesentlich größeren Störung unterworfen. Die Störungen haben beim PI-Regler zu starken Oszillationen geführt. Deshalb werden hier nur die Ergebnisse mit dem NMPC gezeigt.

Eine weniger aggressive Konfiguration des PI-Regler hätte zwar auch hier zu einem brauchbaren Ergebnis des PI-Reglers geführt, jedoch wären damit die Ergebnisse im ersten Szenario noch schlechter ausgefallen. Damit zeigt sich auch klar die Stärke der NMPC, robust gegen eine Vielzahl von möglichen Störungen auch abseits des nominellen Arbeitspunktes zu sein. Der Grund hierfür ist in dem verwendeten nichtlinearen Modell und zusätzlichen Messinformationen zu sehen.

Abb. 2.12 zeigt den Verlauf des Experimentes. Zu Beginn befindet sich die Kolonne in einem stationären Zustand für einen um 20 % erhöhten Feedstrom. Nach 700 Sekunden wird der Feedstrom auf den nominellen Wert zurückgenommen und gleichzeitig der Rücklaufstrom R_{vol} von $5,3\text{ l/h}$ auf 2 l/h reduziert, während die Heizleistung auf dem für den erhöhten Feedstrom korrekten Wert von $Q = 2,9\text{ kW}$ gehalten wird. Diese Stellgrößenkonfiguration wird 800 Sekunden lang bei deaktiviertem Regler konstant gehalten. Damit soll eine stark gestörte Kolonne erreicht werden. Nach 1500 Sekunden wird dann der NMPC aktiviert.

Nach dieser Zeit ist die Destillationskolonne also gegenüber ihrem nominellen Betrieb stark überhitzt und die Profile sind nach oben verschoben, wie in der rechten Hälfte von Abb. 2.12 zu erkennen ist. Wie zu erwarten ist, erniedrigt der Regler sofort die Heizleistung Q um einer Wanderung der Konzentrationsprofile in Richtung Kopf der Kolonne entgegenzuwirken. Die Erhöhung des Rücklaufstromes R_{vol} würde ebenfalls zu einer Abkühlung der Kolonne und damit verbunden zu einer Verschiebung der Profile zur Kolonnenmitte führen. Entgegen der Erwartung wird der Rücklaufstrom jedoch zunächst konstant gehalten. Bei vorhergehenden Experimenten wurde festgestellt, dass das nicht berücksichtigte Leerlaufen des Kondensatsammel-

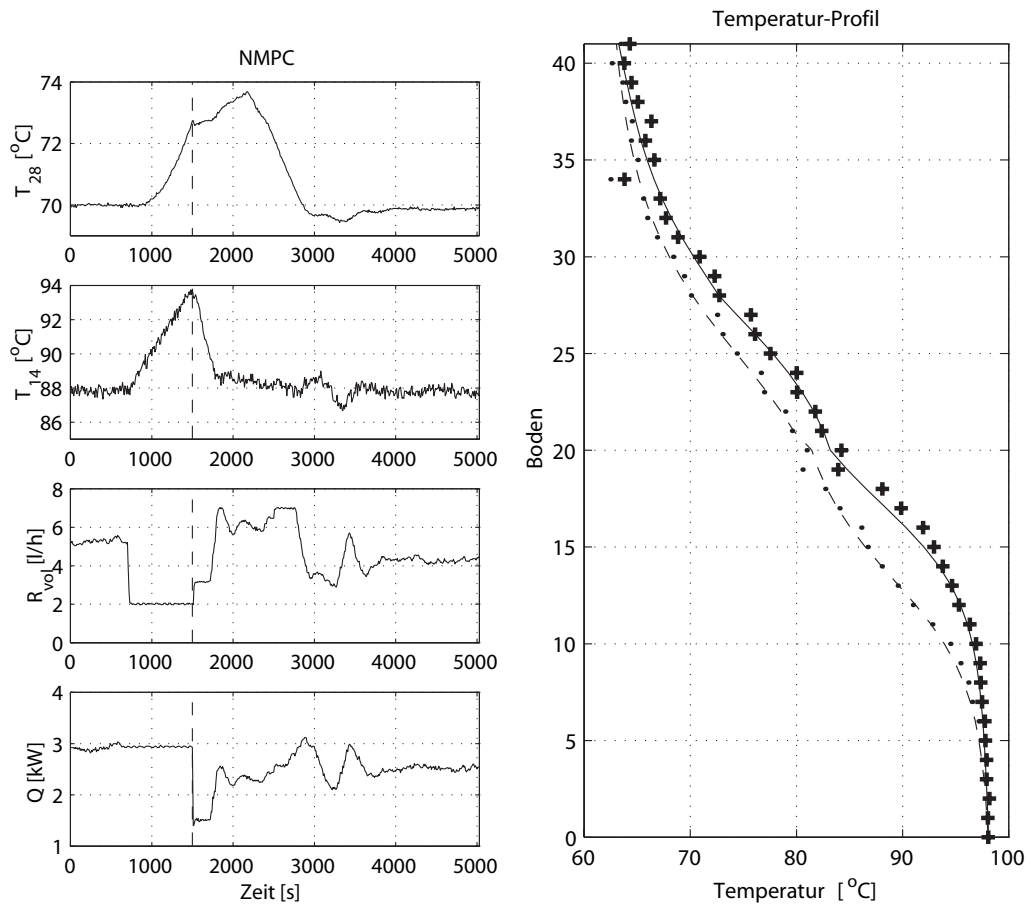


Abbildung 2.12: Szenario: Multiple Störungen. Der Regler wird nach 1500 Sekunden aktiviert. Links: Zeitverläufe der Regel- und Stellgrößen. Rechts: Temperaturprofil bei 1500 Sekunden (Messungen: +, geschätzter Zustand: durchgezogene Linie) und nach Ausregelung der Störung (Messungen: ·, geschätzter Zustand: gestrichelte Linie)

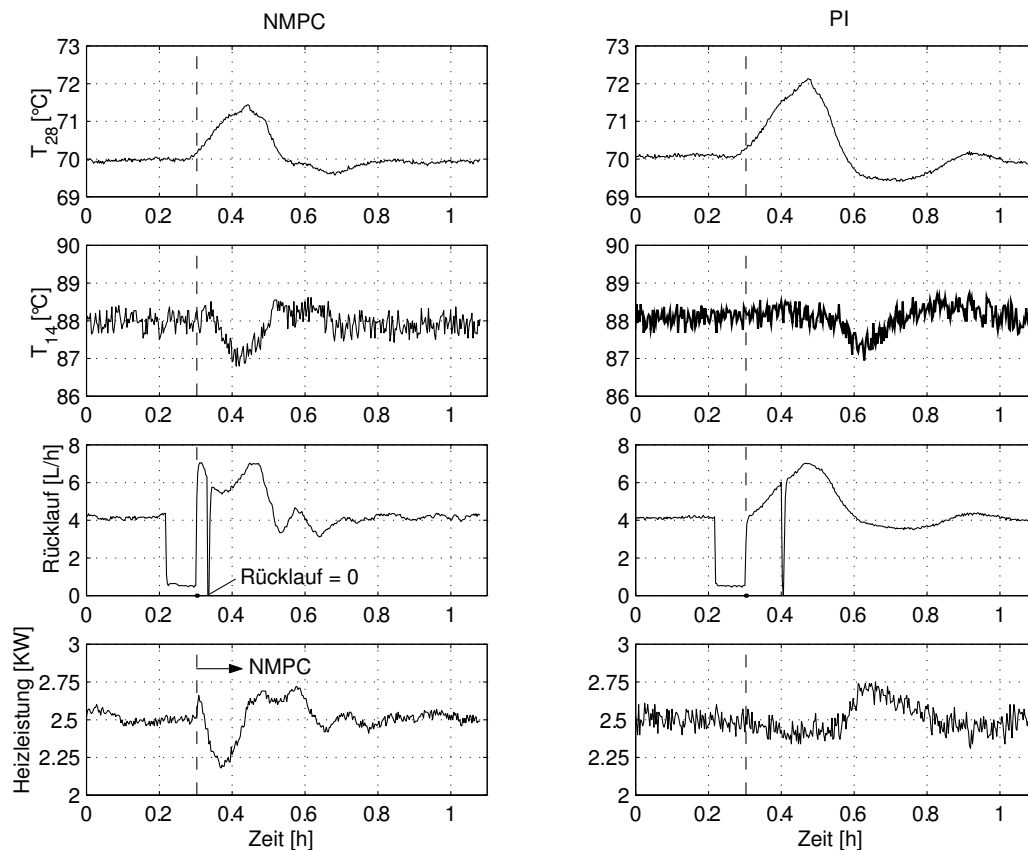


Abbildung 2.13: Vorexperiment. Der Kondensatsammelbehälter läuft leer, was hier vom Modell noch nicht berücksichtigt wird. (Störung: Simulation eines defekten Rücklaufstromventils, NMPC nach 4 Minuten aktiviert)

behälter zu einem großen Modellfehler führt und die Regelleistung signifikant verschlechtert. In Abb. 2.13 ist beispielhaft das Verhalten der beiden Regler dargestellt, wenn die Füllmenge des Kondensatsammelbehälters bei einer wesentlich weniger schwerwiegenden Störung nicht berücksichtigt wird.

Über eine Zustandsbeschränkung für den Destillatstrom D_{vol} wird das Leerlaufen des Kondensatsammelbehälters verhindert. Mit dieser Zustandsbeschränkung ist das anfängliche verhaltens — und gleichzeitig völlig richtige — Verhalten des Optimierers bezüglich des Rücklaufstromes zu erklären. Diese Information hat ein nicht-modellbasierter Regler wie der PI-Regler natürlich nicht zur Verfügung und kann aus diesem Grund bei dieser Störung scheitern.

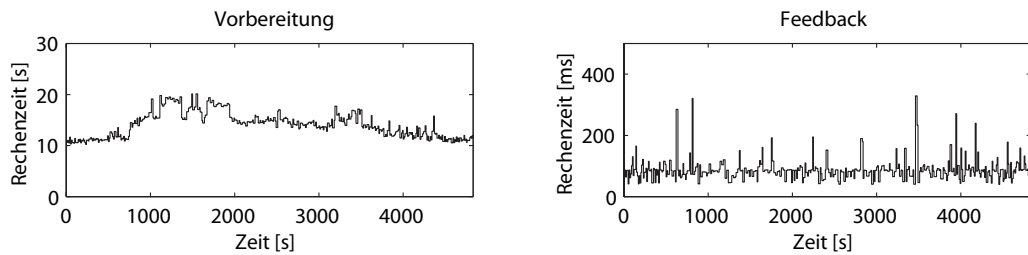


Abbildung 2.14: Rechenzeitbedarf während Szenario 2. Vgl. Abb. 2.12. Achtung: die Skalierung unterscheidet sich in den beiden Diagrammen erheblich

Der Rechenzeitbedarf während diesem Störszenario ist in Abb. 2.14 wiedergegeben. Dabei ist zu beachten, dass die Rechenzeit nicht den tatsächlich verbrauchten CPU-Zyklen entspricht, sondern vielmehr der verbrauchten Gesamtzeit von Beginn der Optimierung bis zum Ende inklusive allen Hintergrundprozessen zur Datenverarbeitung und Zustandsschätzung. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Verzögerung Δt_{mess} (im Diagramm mit *Feedback* betitelt) von Messung bis zur Bereitstellung der Stellgrößen um Größenordnungen kleiner ist als die Vorbereitungszeit. Insgesamt liegt die komplette Optimierungszeit während des ganzen Experimentes unterhalb der Samplingzeit Δt_s und genügt somit der in Abschnitt 2.3.2 definierten Echtzeitbedingungen.

Eine Offline-Simulation der Optimierung mit derselben Störung wie in Abb. 2.12 zeigt gegenüber dem tatsächlichen Experiment eine sehr gute Übereinstimmung, wie aus Abb. 2.15 ersichtlich ist. Das zeigt, dass das Modell die Wirklichkeit adäquat wiedergibt, also detailliert genug ist und trotzdem den Echtzeitanforderungen genügt.

2.6 Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurde für eine gegebene Destillationskolonne ein Modell hergeleitet, das in der anschließend eingeführten nichtlinearen modellprädiktiven Regelung eingesetzt wurde. Für die numerische Optimierung wurde ein effizienter Algorithmus zur Einbettung der Messungen als Startwerte vorgestellt. Bei der eigentlichen Optimierung kommt das an das Problem angepasste Mehrfachschießverfahren zum Einsatz. Die Zustandsrekonstruktion über-

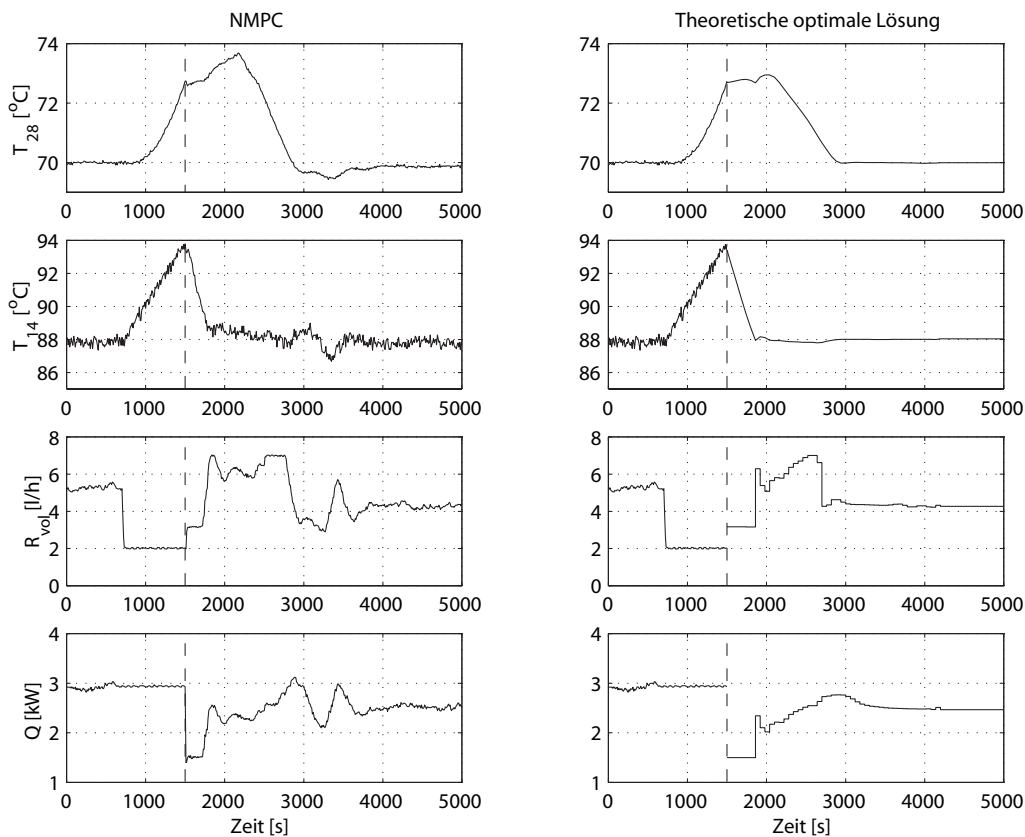


Abbildung 2.15: Offline-Optimierung des 2. Szenarios (links) mit dem tatsächlichen Online-Verhalten (rechts) aus Abb. 2.12

nimmt ein erweitertes Kalmanfilter. Das resultierende Regelungskonzept wurde über eine dafür entworfene Datenübertragung an das Prozessleitsystem der Anlage angekoppelt und darüber Mess- und Stellinformationen ausgetauscht. In den Experimenten konnte gezeigt werden, dass die NMPC bessere Ergebnisse liefert als ein PI-Regler, insbesondere aber auch für anspruchsvollere Störszenarien eingesetzt werden kann. Die Echtzeitbedingungen wurden zu keiner Zeit verletzt.

Es ist jedoch anzumerken, dass der Aufwand, ein solches Konzept von der Modellierung über die Implementierung in einer Optimierungsumgebung und Kopplung an ein Prozessleitsystem ungleich aufwändiger ist, als ein PI-Regler einzustellen, der schon vom Prozessleitsystem bereitgestellt wird. Zudem sind andere nichtlineare Regelungskonzepte in der Lage ähnlich gute Ergebnisse zu liefern, wie der hier vorgestellte NMPC. Für den NMPC spricht jedoch,

dass wenn bereits ein geeignetes Simulations-Modell vorliegt — was in den meisten Fällen bei Simulationsstudien und Reglertuning gegeben ist — und auch eine externe Kopplung an ein Prozessleitsystem schon bereit steht, der NMPC mit sehr geringem Mehraufwand installiert werden kann. Der eigentliche Regler ist dann schon mit geringem Tuningaufwand in der Lage, sehr gute Regelungsergebnisse zu liefern.

Weiterhin bietet ein NMPC den Vorteil einfach Stell- und Zustandsbeschränkungen berücksichtigen zu können.

Kapitel 3

Wellenbasierte Regelung

Im vorigen Kapitel wurde der Entwurf eines Regelungskonzepts basierend auf der nichtlinearen modellprädiktiven Regelung vorgestellt und hervorgehoben, wo die Stärken dieser Methode liegen. Der Optimierung lag dort ein *from-first-principles*-Modell zugrunde, d.h. ein Modell basierend auf Grundprinzipien wie Bilanzierung von Menge und Energie auf einzelnen Trennstufen. Mit diesem Modell 82. Ordnung war es möglich die nichtlineare Optimierungsaufgabe in Echtzeit zu lösen. Grundsätzlich lässt sich diese Regelungsmethode auch auf Trennungsvorfahren anwenden, die auf der Adsorptions-Chromatographie basieren. Modelle dieser Prozessgattung haben üblicherweise eine differentielle Ordnung im Bereich von mehreren Tausend, was eine Optimierung in Echtzeit wesentlich erschwert, wenn nicht unmöglich macht. Eine Modellreduktion kann Abhilfe schaffen. In der vorliegenden Arbeit soll das Potential reduzierter Modelle auf Basis nichtlinearer Wellenphänomene für die NMPC evaluiert werden.

Die nichtlinearen Wellenphänomene lassen sich in den Prozessen Destillationskolonnen und Adsorptionssäulen gleichermaßen als wesentliches Element der Stofftrennung beobachten [69, 36, 37, 35]. Sowohl in der thermischen als auch in der chromatographischen Stofftrennung lassen sich über die Dynamik der Wanderung von Stofftrennfronten in nichtlinearen Wellen sehr viel kleinere Modelle herleiten, die dennoch die wesentliche Prozessdynamik in ausreichender Genauigkeit wiedergeben [52, 39].

Diese Modellklasse bietet Eigenschaften (siehe Abschnitt 3.2), die sich ausgezeichnet für die Regelung eignen [28]. Der Hauptvorteil der Wellenmodelle für thermische und chromatographische Stofftrennung ist jedoch, dass sie jeweils nur eine differentielle Ordnung ≤ 10 aufweisen. Die Modelle sind

zudem in der Struktur sehr ähnlich und unterscheiden sich im Wesentlichen nur in einzelnen Koeffizienten.

Ein Regelungskonzept basierend auf Wellenmodelle kann also für beide Prozessklassen gleichermaßen zur Anwendung kommen. Auch hier bietet sich die NMPC an, deren Stärken sich auch mit diesen Modellen nutzen lassen. In diesem Kapitel werden zunächst die Modelle basierend auf den nichtlinearen Wellenphänomenen vorgestellt und anhand einer Destillationskolonne hergeleitet. Anschließend wird gezeigt, wie sich die Wellenmodelle in ein Regelungskonzept basierend auf der NMPC einbetten lassen. Dazu gehört, wie auch schon im vorigen Kapitel beschrieben, der Entwurf eines Zustandsschätzers und die Formulierung des Optimierungsproblems. Abgeschlossen wird dieses Kapitel durch Simulationsstudien und einer Diskussion der Ergebnisse.

3.1 Wellenmodelle

Bei der konventionellen Modellierung von Destillationskolonnen (z.B. [60, 77]) wird von der Bilanzierung eines einzelnen Bodens ausgegangen. Dabei wird der Stoff- und Wärmeaustausch zwischen der Gas- und der Flüssigphase mehr oder weniger detailliert betrachtet. Auch die Hydrodynamik kann unterschiedlich genau modelliert werden. Anschließend werden die Modelle einzelner Böden hintereinander geschaltet, entsprechend der realen oder theoretischen Bodenanzahl. Der Fokus bei solchen Modellen liegt also auf den Phänomenen der einzelnen Böden. Bei den Wellenmodellen wird jedoch das globale Verhalten eines ganzen Kolonnenabschnitts modelliert. Eine Destillationskolonne wird dabei durch Zuflüsse von außen in Abschnitte aufgeteilt. Ein solcher Abschnitt wird dann global bilanziert und die Vorgänge im Inneren zunächst mittels örtlich verteilten Phasen modelliert.

3.1.1 Wellentheorie

Abb. 3.1 zeigt dieses Vorgehen beispielsweise an einem Verstärkungsteil. Gasströme sind mit V und Flüssigkeitsströme mit L bezeichnet. V_{Kopf} ist der Gasstrom zum Kondensator und R der Rücklaufstrom. Die Stoffaustauschströme sind in $\mathbf{j}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ zusammengefasst und sind von den Molenbrüchen für Flüssig- und Gasphase abhängig. Alle Ströme sind als molare Ströme zu verstehen. Die Vorgänge in einem Kolonnenabschnitt lassen sich dann mittels

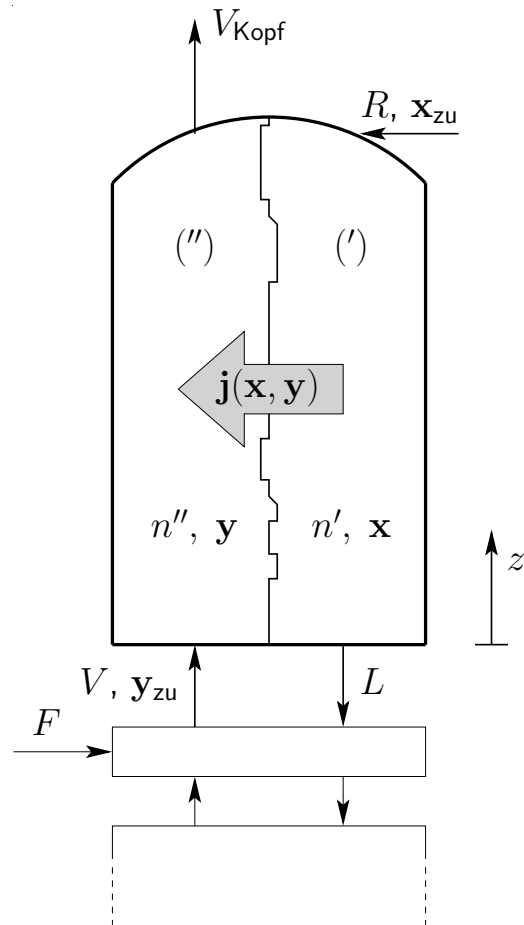


Abbildung 3.1: Aufteilung einer Destillationskolonne bei Wellenmodellen hier am Verstärkungsteil gezeigt

den partiellen Differentialgleichungen (PDGL)

$$\frac{\partial x_i}{\partial t} - \frac{\partial x}{\partial z} = -j_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad x_i(z = 1, t) = x_{i,\text{in}} \quad (3.1)$$

$$\epsilon \frac{\partial y_i}{\partial t} + \frac{1}{A} \frac{\partial y_i}{\partial z} = j_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad y_i(z = 0, t) = y_{i,\text{in}} \quad (3.2)$$

mit

$$i = 1, \dots, N_C - 1 \text{ und } z \in [0, 1] \quad (3.3)$$

sowie

$$\epsilon = \frac{n''}{n'} \text{ und } A = \frac{L}{V} \quad (3.4)$$

beschreiben. Zeit t und Ort z sind durch

$$z = \frac{\bar{z}}{l} \quad \text{und} \quad t = \frac{\bar{t}R}{ln'} \quad (3.5)$$

dimensionslos. Für das Flüssig-Dampf-Gleichgewicht wird von der Gleichgewichtsfunktion

$$f_i(\mathbf{x}) = \frac{\alpha_i x_i}{1 + \sum_{l=1}^{N_C-1} (\alpha_l - 1)x_l} \quad (3.6)$$

mit den konstanten relativen Flüchtigkeiten α_l (bezogen auf den Schwertsieder) ausgegangen. Die Stoffübergangsströme werden mit der linearen Abhängigkeit

$$j_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{B}{A} (f_i(\mathbf{x}) - y_i) \quad (3.7)$$

von den Unterschieden in den Zusammensetzungen mit dem dimensionslosen Stoffübergangskoeffizienten

$$B = \frac{k''al}{V} \quad (3.8)$$

modelliert. Von folgenden Annahmen wurde dabei ausgegangen:

- konstante molare Ströme und Holdups in beiden Phasen
- vernachlässigbare axiale Dispersion
- konstanter Druck
- thermisches Gleichgewicht

Für ideale Gemische mit der Gleichgewichtsfunktion (3.6) kann bei Destillationskolonnen in guter Näherung von formstabilen Wellen [39, 52] ausgegangen werden. Dynamische Übergangsvorgänge sind dann im Wesentlichen durch eine Verschiebung der Konzentrations- bzw. Temperaturfronten gekennzeichnet. Unter den idealisierten Bedingungen eines unendlich ausgehenden Kolonnenabschnitts lässt sich die in einem mitbewegten Koordinatensystem stationäre Welle analytisch integrieren [39].

Mithilfe der daraus resultierenden analytischen Lösung

$$x_i(z, s^{(1)}, \dots, s^{(N_C-1)}) = x_i^{(1)} + \sum_{k=1}^{N_C-1} \frac{x_i^{(k+1)} - x_i^{(k)}}{1 + \exp\{-\rho^{(k)}(z - s^{(k)})\}} \quad i = 1, \dots, N_C - 1 \quad (3.9)$$

und

$$y_i(z, s^{(1)}, \dots, s^{(N_C-1)}) = f_i(x_i^{(1)}) + \sum_{k=1}^{N_C-1} \frac{f_i(x_i^{(k+1)}) - f_i(x_i^{(k)})}{1 + \exp\{-\rho^{(k)}(z - s^{(k)})\}} \quad i = 1, \dots, N_C - 1 \quad (3.10)$$

mit

$$\rho^{(k)} = \frac{B \sum_{i=1}^{N_C-1} (\alpha_i - 1)(x_i^{(k+1)} - x_i^{(k)})}{1 + \sum_{i=1}^{N_C-1} (\alpha_i - 1)(x_i^{(k+1)} - x_i^{(k)})/2} \quad (3.11)$$

lässt sich nun die Zusammensetzung in beiden Phasen an jedem Punkt z in Abhängigkeit von den Wellenfrontpositionen $s^{(k)}$ angeben. Dabei ist zu beachten, dass sich durch die Kohärenz [69, 36, 37, 35] der Wellen die Wellenfronten $s^{(k)}$ für beide Phasen und alle Komponenten an jeweils derselben Stelle liegen. Wie in Abb. 3.2 dargestellt ist, verläuft eine einzelne Welle zwischen den beiden Asymptoten $x_i^{(k)}$ und $x_i^{(k+1)}$ mit einer maximalen Steigung

$$\left. \frac{\partial x_i}{\partial z} \right|_{z=s^{(k)}} = \frac{\rho^{(k)}}{4} (x_i^{(k+1)} - x_i^{(k)}) \quad (3.12)$$

bei $z = s^{(k)}$. Aus den Gleichungen (3.11) und (3.12) ist ersichtlich, dass die Form einer einzelnen Welle im Wesentlichen von den Asymptoten $x_i^{(k)}$ und dem dimensionslosen Stoffübergangskoeffizienten B geprägt ist. In Abb. 3.2 ist jedoch nur eine einzelne Welle dargestellt. Der Gesamtverlauf der $N_C - 1$ Wellen nach Gl. (3.9) bzw. (3.10) ergibt sich durch Superposition der Einzelwellen.

3.1.2 Modellbildung

Die Wellenfrontpositionen $s^{(k)}$ lassen sich über die in [39] eingeführte globale Mengenbilanz über einen wie im letzten Abschnitt beschriebenen Kolonnenenteil berechnen:

$$\frac{dh_i}{dt} = x_{i,zu} - x_i(z=0) + \frac{1}{A} (y_{i,zu} - y_i(x=1)) \quad i = 1, \dots, N_C - 1 \quad (3.13)$$

Die globale Menge ist im allgemeinen Fall über das Integral

$$h_i = \int_0^1 x_i(z, s^{(1)}, \dots, s^{(N_C-1)}) + \epsilon y_i(z, s^{(1)}, \dots, s^{(N_C-1)}) dz \quad (3.14)$$

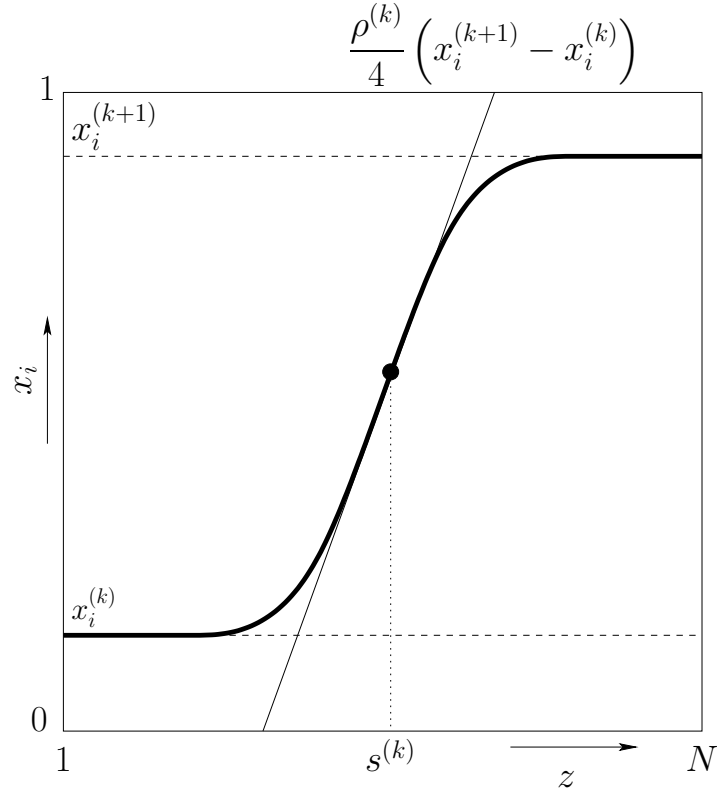


Abbildung 3.2: Der Verlauf des Molenbruchs x_i zwischen den Asymptoten $x_i^{(k)}$ und $x_i^{(k+1)}$ mit der Frontposition $s^{(k)}$

definiert. Gl. (3.13) kann als Differentialgleichung für die Wellenfrontpositionen $s^{(k)}$ angesehen werden. Damit müssen nur noch $(N_C - 1)N_C$ Gleichungen für die Asymptoten $x_i^{(k)}$ gefunden werden, um ein vollständiges Modell zu erhalten. $2(N_C - 1)$ Gleichungen ergeben sich durch die Randbedingungen über die Zuflüsse. Die restlichen Asymptoten sind durch die Kohärenzbedingungen [69, 36, 37, 35] (Rankine-Hugoniot-Bedingungen)

$$\frac{f_1(\mathbf{x}^{(k+1)}) - f_1(\mathbf{x}^{(k)})}{x_1^{(k+1)} - x_1^{(k)}} = \dots = \frac{f_{N_C-1}(\mathbf{x}^{(k+1)}) - f_{N_C-1}(\mathbf{x}^{(k)})}{x_{N_C-1}^{(k+1)} - x_{N_C-1}^{(k)}} \quad (3.15)$$

gegeben.

Das resultierende Modell kann verfeinert werden, indem die Annahme der konstanten molaren Flüsse und Holdups zugunsten der Annahme eines konstanten Bodenvolumens fallengelassen wird. Das Modell wird in die-

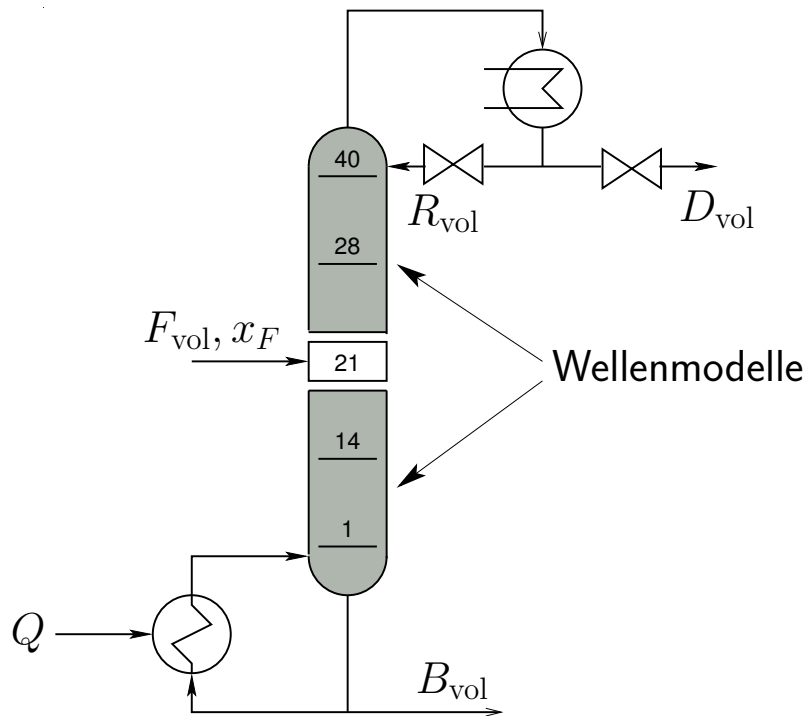


Abbildung 3.3: Vollständiges Modell für die Destillationskolonne am ISR, Universität Stuttgart. Die Wellenmodellteile sind grau hinterlegt

sem Fall um eine globale Energiebilanz ergänzt [78]. Alle weiteren Untersuchungen wurden an einem Modell mit einer algebraischen globalen Energiebilanz durchgeführt. Der Zusammenhang zwischen der Temperatur und dem Sättigungsdampfdruck wird dabei über die Gleichung von Antoine berechnet.

Der Abtriebsteil der Kolonne wird analog zum Verstärkungsteil modelliert. Kondensator, Feedboden und Verdampfer werden wie im Kapitel 2 beschrieben modelliert. Jedoch wird hier die Fluidodynamik des Feedbodens vernachlässigt. Aus dieser Vorgehensweise resultiert ein Modell mit $5(N_C - 1)$ dynamischen Gleichungen. Bei binären Gemischen erhält man also ein Modell mit differentieller Ordnung 5. Zum Vergleich: Das Modell aus dem vorigen Kapitel hatte 82 dynamische Gleichungen. Die Gesamtstruktur für die in Abschnitt 2.1 eingeführte Destillationskolonne ist Abb. 3.3 dargestellt. Die Wellenmodellanteile sind grau hinterlegt. Im Weiteren wird ein solches Gesamt-

modell als Wellenmodell bezeichnet, wohl wissend, dass Teile einer Kolonne weiterhin durch Gleichgewichtsmodelle wiedergegeben werden. Im Folgenden werden die unterschiedlichen Modellteile durch die in Tabelle 3.1 vorgestellten Indizes referenziert.

3.1.3 Modellvalidierung

Das Wellenmodell ist trotz der vergleichsweise niedrigen differentiellen Ordnung in der Lage, die für die Regelung wesentliche Prozessdynamik, also die Verschiebung der Trennfronten richtig wiederzugeben. In Experimenten wurden verschiedene Parameter wie die Verlustleistung im Verdampfer Q_{loss} , der Stoffübergangskoeffizient B sowie die Bodenvolumen im Verstärkungs- und im Abtriebsteil identifiziert. In Abb. 3.4 auf der nächsten Seite ist dargestellt, wie sich das Temperaturprofil nach einer 2,73 %-igen Verminderung der Heizleistung verschiebt. Die Messungen des anfänglichen stationären Arbeitspunktes sind mit \times markiert. Das Endprofil nach 6,2 Stunden (22455 Sekunden) ist mit \circ gekennzeichnet. Die simulierten Profile sind mit durchgezogenen Linien eingetragen. Man kann erkennen, dass das Profil des stationären Arbeitspunktes vom Modell nahezu perfekt wiedergegeben wird. Das Endprofil weicht jedoch im Abtriebsteil ab, die Steigung der Wellenfront wird jedoch korrekt wiedergegeben. Die Abweichung ist jedoch angesichts der langen Laufzeit nicht verwunderlich, da in der Simulation nicht alle Störungen und Messwerte der Kolonne verwendet werden konnten. So wurden z.B. die sich zur Laufzeit des Experiments geänderten Umgebungsbedingungen nicht in die Simulation einbezogen.

Die Anfangssteigungen der Transienten im selben Experiment werden ebenfalls sehr gut wiedergegeben, wie in Abb. 3.5 auf Seite 58 zu erkennen ist. Dort sind die zeitlichen Verläufe der Temperaturen auf ausgewählten Böden

Kondensator	K
Verstärkungsteil	V
Feedboden	F
Abtriebsteil	A
Verdampfer	R

Tabelle 3.1: Indizes der Teilmodelle bei Wellenmodellen

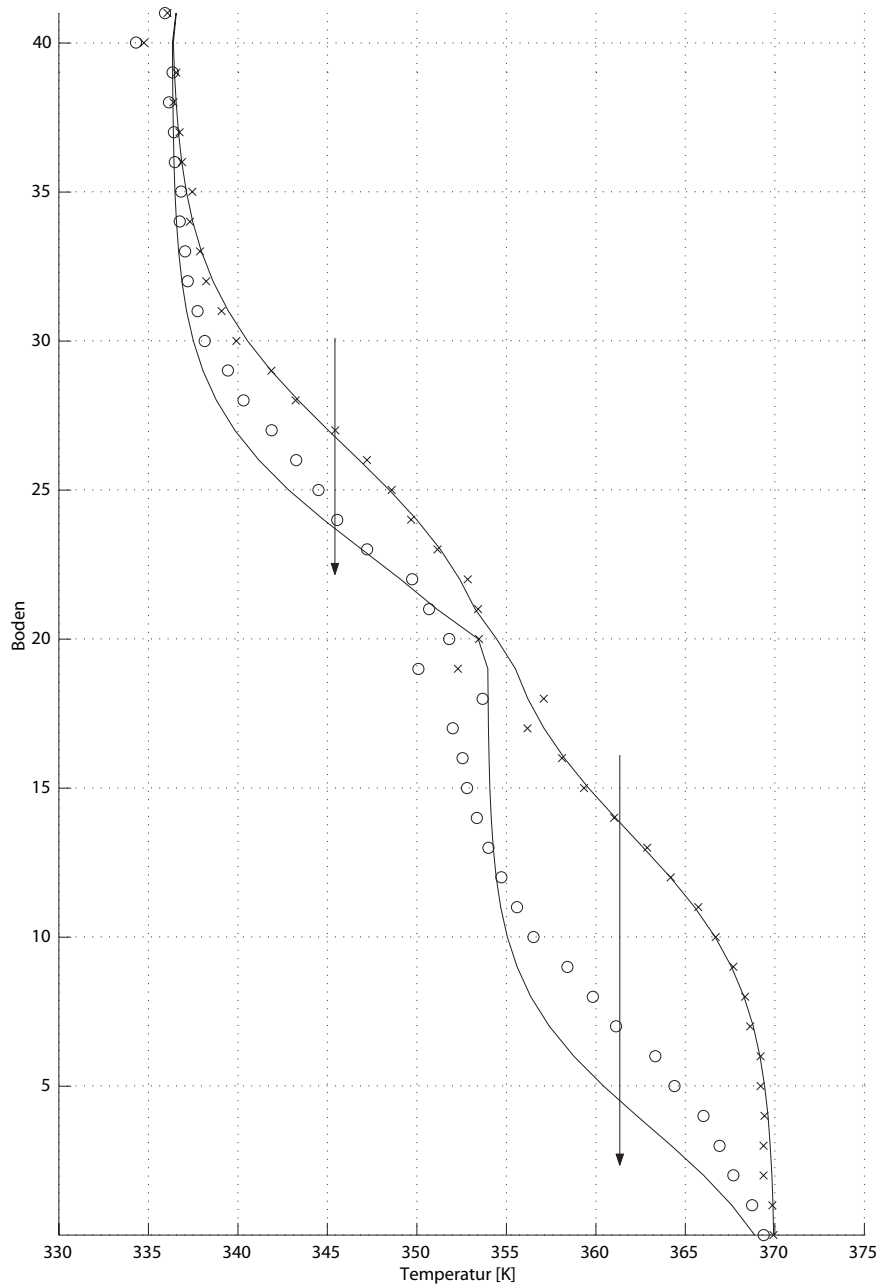


Abbildung 3.4: Wanderung der Profile nach einer 2,73 %-igen Verminderung der Heizleistung. Gemessene Profile verschieben sich von \times nach \circ . Simulierte Profile sind durchgezogen dargestellt

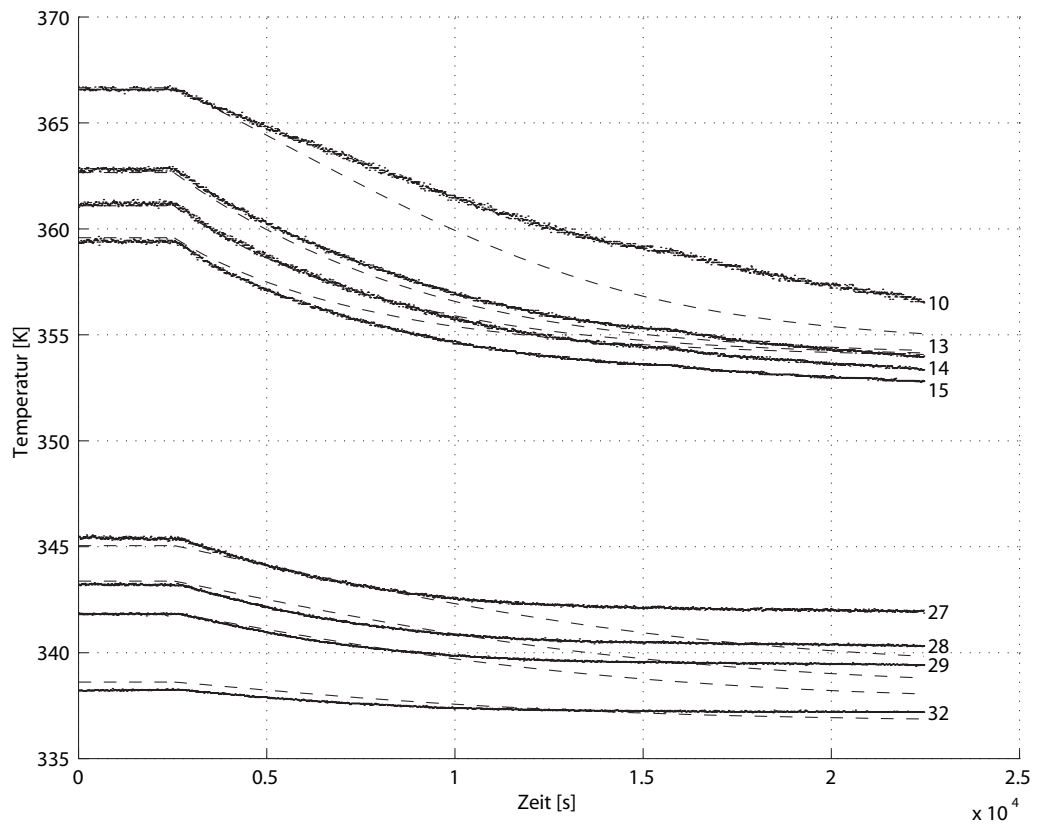


Abbildung 3.5: Temperaturverläufe auf ausgewählten Böden. Experimentelle Daten sind mit einzelnen Punkten eingetragen, die Simulation mit gestrichelten Linien

wiedergegeben.

Andere Experimente zeigen ein sehr ähnliches Bild. Somit ist davon auszugehen, dass das Wellenmodell in der Lage ist, das für die Regelung relevante Verhalten des Prozesses korrekt abzubilden. Auch die Mehrstofftrennung in Destillationskolonnen wird von Wellenmodellen gut modelliert, wie in ausgiebigen Simulationsstudien in [39] gezeigt wird. Dort werden Ergebnisse von Wellenmodellen mit Ergebnissen von einem detaillierteren Modell verglichen.

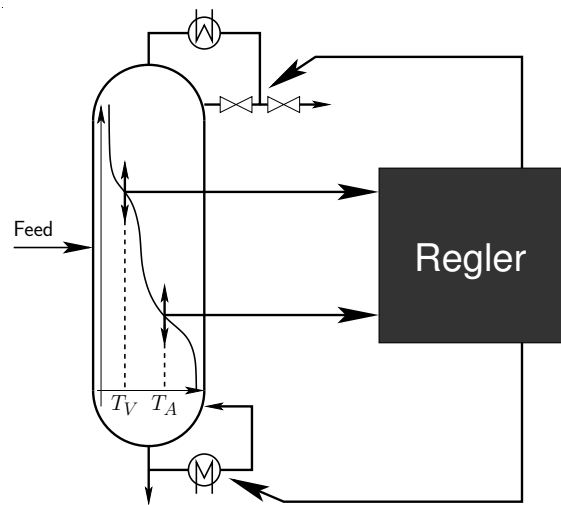


Abbildung 3.6: Temperaturregelung mit einem beliebigen konventionellen Regelverfahren. Die Pfeile geben die Richtung der Frontbewegung an

3.2 Regelung über Wellenfrontpositionen

Eine Übersicht der Forschungsarbeiten über konventionellen Regelungsstrategien von Destillationskolonnen bietet z.B. [77]. Meist kommen lineare Methoden zum Einsatz. Aber auch nichtlineare Methoden wurden erfolgreich eingesetzt, wie z.B. [27] zeigt. Eine Übersicht bietet [3]. Da die Messung der Gemischzusammensetzung zu aufwändig ist, wird in der konventionellen Regelung von Destillationskolonnen versucht, eine Temperatur auf einem sensitiven Boden konstant zu halten, wie in Abb. 3.6 dargestellt ist [50, 80]. Andere Arbeiten, z.B. [44, 57, 56, 65, 4, 20], versuchen dieses Problem über Zusammensetzungsschätzer mittels Temperaturmessungen zu lösen. Störungen und Stelleingriffe verursachen jedoch eine Verschiebung der Temperatur- und Konzentrationsprofile zum Kopf oder Sumpf der Kolonne. Das eigentliche Regelungsziel ist es dem entsprechend, die Trennfronten — die Stellen an denen die wesentliche Stofftrennung stattfindet — innerhalb der Kolonne zu halten um so eine vollständige Trennung zu gewährleisten. Auf die Modellierung eben dieser Wellenfrontwanderung basieren die Wellenmodelle. Mit dieser Modellklasse ist also ein viel direkterer Regeleingriff gegenüber Störungen der prozessrelevanten Phänomene der Stofftrennung möglich. Abb. 3.7 auf der nächsten Seite fasst das im Folgenden hergeleitete Regelungskonzept zu-

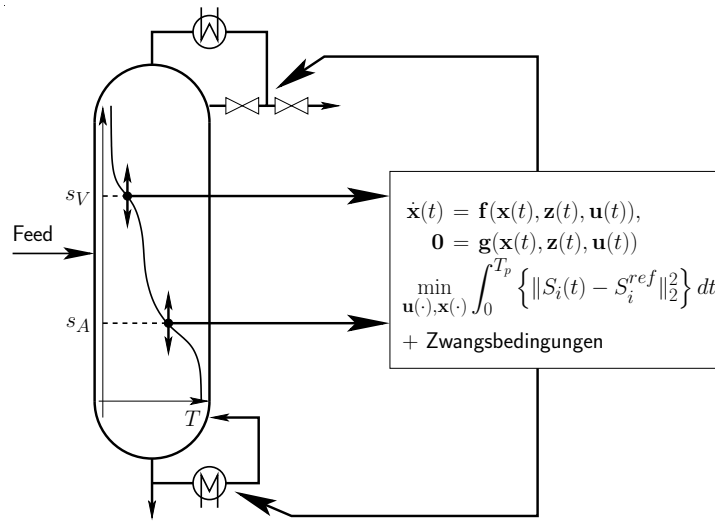


Abbildung 3.7: Regelung der Trennfrontposition über NMPC. Die Pfeile geben die Richtung der Frontbewegung an und die Kreise auf den Profilen die Wellenfrontpositionen

sammen: Die Position der Stofftrennfronten wird über einen NMPC geregelt. Für binäre Gemische wurde in [75, 33, 3] und für den Multikomponentenfall in [67, 76] ein Regelungskonzept basierend auf Frontregelung präsentiert. Im Gegensatz dazu wird in der vorliegenden Arbeit ein Ansatz für beliebig viele Komponenten inklusive der Berücksichtigung der Produktreinheiten vorgestellt.

Ein weiterer Nachteil [58] der Temperaturregelung ergibt sich bei Störungen in der Feed-Zusammensetzung. Diese Störung verursacht nicht nur eine Verschiebung des Profils in Richtung Kopf oder Sumpf, sondern auch eine Änderung der Zusammensetzung des Feedbodens, was eine Verschiebung der Asymptoten zur Folge hat. Wenn nun durch die Regelung die Temperatur auf einem bestimmten Boden weiterhin konstant gehalten wird, muss sich das Profil verschieben um dies zu ermöglichen (Abb. 3.8). In ungünstigsten Fall verschiebt sich die Trennfront soweit zum Kolonnenrand, dass dadurch das Produkt verunreinigt wird, obwohl die Regelung eigentlich perfekt arbeitet. In einem solchen Fall muss *manuell* ein neuer Sollwert für die Temperaturen berechnet und dem Prozessleitsystem übergeben werden. Bei der Regelung über Wellenfrontpositionen ist die Anpassung der Sollwerte häufig nicht notwendig, wie in Abb. 3.8 auf der nächsten Seite dargestellt ist. In Fällen, wo

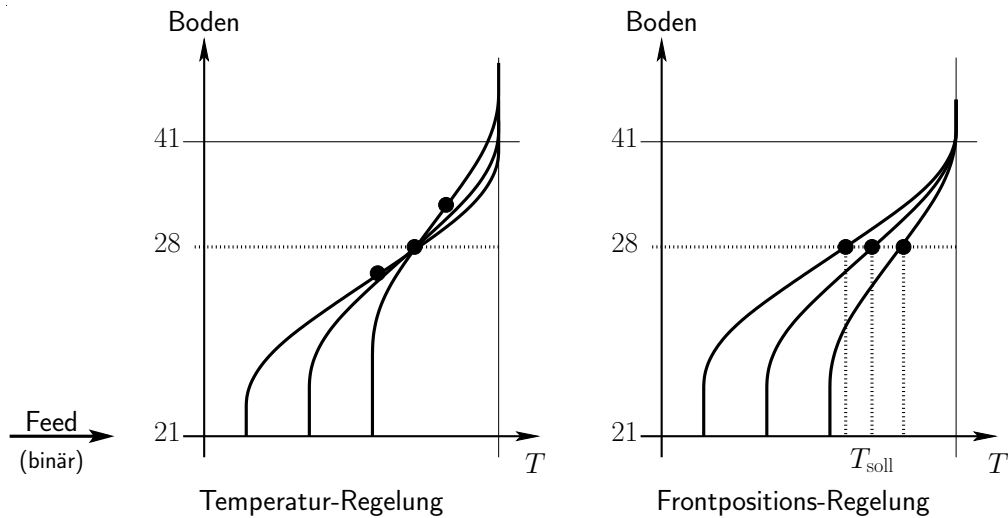


Abbildung 3.8: Anpassung der Sollwerte bei Änderung der Feedzusammensetzung bei Temperatur- und Frontpositionsregelung. In beiden Diagrammen sind die Frontpositionen durch Kreise hervorgehoben. Links wird die Temperatur auf einem Boden konstant gehalten. Dadurch wandert die Wellenfront soweit, dass auch die Produktreinheiten betroffen sind. Rechts sieht man, wie die Solltemperaturen variiert werden müssten, um die Wellenpositionen stabilisieren zu können

eine Frontregelung nicht ausreichend ist, können Abweichungen in den Produktreinheiten als Softconstraints im Gütefunktional des NMPC berücksichtigt werden (siehe Abschnitt 3.5 auf Seite 67). In beiden Diagrammen sind die Wellenfrontpositionen durch Kreise hervorgehoben. Die Auswirkungen einer Feedzusammensetzungsänderung ist der Einfachheit halber für binäre Trennung dargestellt. Bei der Mehrstofftrennung können die Folgen bei der Temperaturregelung sogar noch viel schwerwiegender ausfallen, da der direkte Zusammenhang zwischen der Temperatur und der Zusammensetzung fehlt.

Es wurden bereits Konzepte zur Wellenfrontregelung vorgeschlagen und erfolgreich angewendet, häufig jedoch nur für die Trennung von Zweistoffgemischen [75, 33, 3], wo aus der Temperatur eindeutig auf die Zusammensetzung geschlossen werden kann. Weiterhin sind die bestehenden Konzepte nicht trivial auf den Multikomponentenfall zu übertragen. Die hier vorgestell-

te Methodik ist jedoch so entworfen, dass sie auch leicht in der Mehrstofftrennung anwendbar ist. Wichtigster Unterschied zu bestehenden Arbeiten ist die Anwendung der in Abschnitt 3.1 vorgestellten und in [39, 52] eingeführten Wellenmodelle. Wie dort erwähnt, überlagern sich in einem Abschnitt einer Destillationskolonne $N_C - 1$ einzelne Wellen. Von diesen $N_C - 1$ Einzelwellen muss bzw. kann nur eine einzige im Inneren eines Kolonnenabschnitts stabilisiert werden. Die restlichen Wellen wandern an die Ränder eines Abschnittes und werden erst dort durch Randeffekte aufgehalten und stabilisiert. Weiterhin besagt die Wellentheorie [69, 39], dass sich die einzelnen ausbalancierten Wellen nicht überholen können [38]. In Arbeiten wie [67] werden zwar Modelle für den Multikomponentenfall eingeführt, jedoch ohne die analytisch hergeleiteten Formansätze und ohne die Produktreinheiten zu berücksichtigen.

Es ist möglich eine sog. Schlüsselwelle k^* auszumachen und diese an der gewünschten Position $s^{(k^*)}$ über einen geeigneten Regler zu stabilisieren und gleichzeitig die restlichen Wellenfronten an den Rändern zu halten. Die Schlüsselwelle kann meist leicht identifiziert werden: üblicherweise ist es die Welle, die im gewählten Betriebspunkt ausbalanciert im Inneren eines Kolonnenabschnittes steht.

Abb. 3.9 zeigt die Profile der in Abschnitt 2.1 vorgestellten Destillationskolonne bei der Trennung des Dreistoffgemischs Methanol/Ethanol/1-Propanol. Die durchgezogenen Linien markieren den gewünschten Arbeitspunkt, die gestrichelten Linien einen gestörten Zustand nach einer 25 %-igen Reduktion des Feedstroms. Man kann leicht erkennen, dass im Verstärkungsteil die zu Beginn ausbalancierte Wellenfront auf Boden 30 die Schlüsselwelle markiert. Wenn sie nach oben zu wandern beginnt, wird das Kopfprodukt verunreinigt. Im Abtriebsteil sind in diesem Arbeitspunkt beide Wellenfronten an die Ränder verschoben. In Abb. 3.9 sind die beiden Schlüsselfronten mit $s_V^{(1)}$ und $s_A^{(2)}$ gekennzeichnet.

3.3 Regelungskonzept

Obwohl sich die Regelgröße der Wellenfrontpositions-Regelung deutlich von der Temperaturregelung in Kapitel 2 unterscheidet, weist das Gesamtkonzept große Ähnlichkeiten auf. So muss hier ebenso der gesamte Systemzustand aus Messungen rekonstruiert werden. Ein zuverlässiger Beobachter ist hier sogar noch wichtiger als bei der Temperaturregelung, wo die Regelgröße

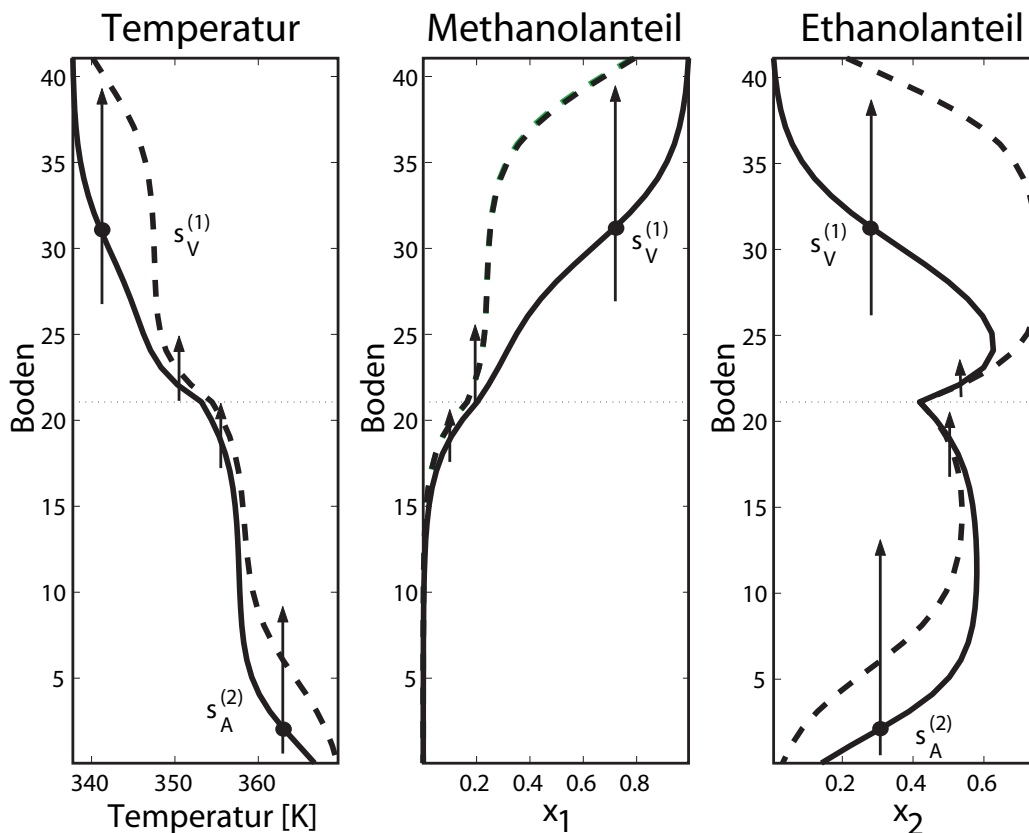


Abbildung 3.9: Profile einer Dreistofftrennung nach einer 25%-igen Reduktion des Feedstroms. Durchgezogene Linien: ungestörte Anfangsprofile; gestrichelte Linien: Profile mit der gestörten Zufflusszusammensetzung

direkt gemessen werden kann. Wie in Abb. 3.10 dargestellt ist, wird der vom Beobachter geschätzte Systemzustand wieder dem Optimierer zur Verfügung gestellt. Sowohl dem Beobachter als auch der Optimierung liegt dasselbe Modell zugrunde, was den Reglerentwurf erheblich vereinfacht, da nur ein einziges Modell identifiziert und validiert werden muss. Außerdem ist die Rückführung der Produktkonzentrationen \mathbf{x}_{Kopf} und $\mathbf{x}_{\text{Sumpf}}$ hervorgehoben. Auf deren Rolle wird im Abschnitt 3.5 zum Reglerentwurf näher eingegangen.

Auch dieses Regelungskonzept basiert auf der NMPC, unter anderem weil hier Zustands- und Stellgrößenbeschränkungen effizient berücksichtigt werden können. Zusätzlich können weitere Bedingungen an den Destillationsprozess wie z.B. die Einhaltung der geschätzten Produktreinheiten oder die

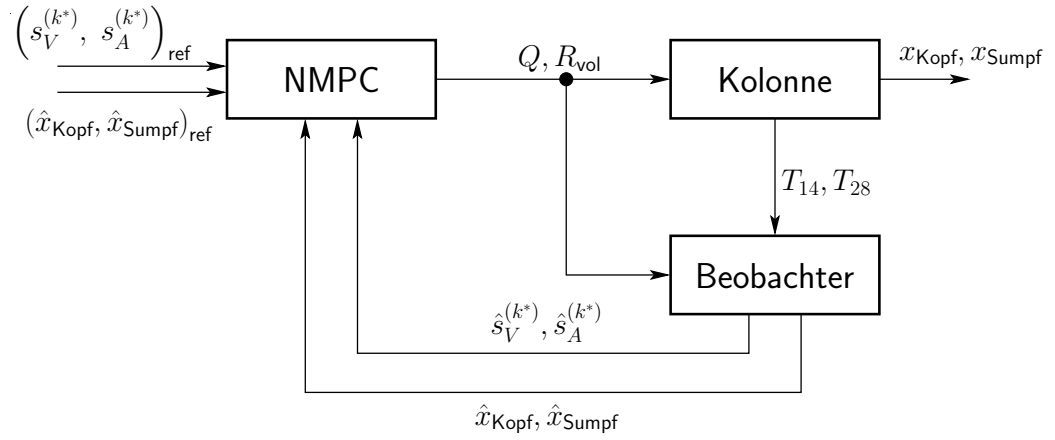


Abbildung 3.10: Regelungskonzept NMPC mit Wellenmodellen.
Es sind nur die wesentlichen Größen dargestellt

Minimierung der Energiekosten mit in die Optimierung einbezogen werden.

3.4 Beobachterentwurf

Im Gegensatz zu dem in Kapitel 2 eingesetzten erweiterten Kalmanfilter wird hier ein nichtlinearer Beobachter verwendet. Der Beobachter wird dabei aus einem Prozessmodell mit einer Fehleraufschaltung gebildet [44]. Aus der Differenz der geschätzten Messgrößen \hat{y} zu den tatsächlich gemessenen Werten y wird der Vektor Δy gebildet. Dieser Differenzvektor geht anschließend — meist linear — bewertet in die Modellgleichungen ein. In Abb. 3.11 ist die verwendete Struktur dargestellt. Für den Beobachter kommt ebenfalls das in Abschnitt 3.1 eingeführte Wellenmodell zum Einsatz.

Die Grundidee hinter der Verwendung von Wellenmodellen in Beobachtern ist es, die Profile analog zur Regelung über die Kolonne zu verschieben. Dazu werden die Beobachterfehler zu den globalen Mengenbilanzen addiert. Damit ergeben sich für die hier betrachtete Destillationskolonne die Beobachtergleichungen aus Gl. (3.13)

$$\frac{d\hat{\mathbf{h}}_V}{dt} = \dot{\mathbf{n}}_{V,zu} - \dot{\mathbf{n}}_{V,ab} + \boldsymbol{\alpha}_V (T_{30} - \hat{T}_{30}) \quad (3.16)$$

$$\frac{d\hat{\mathbf{h}}_A}{dt} = \dot{\mathbf{n}}_{A,zu} - \dot{\mathbf{n}}_{A,ab} + \boldsymbol{\alpha}_A (T_2 - \hat{T}_2) \quad (3.17)$$

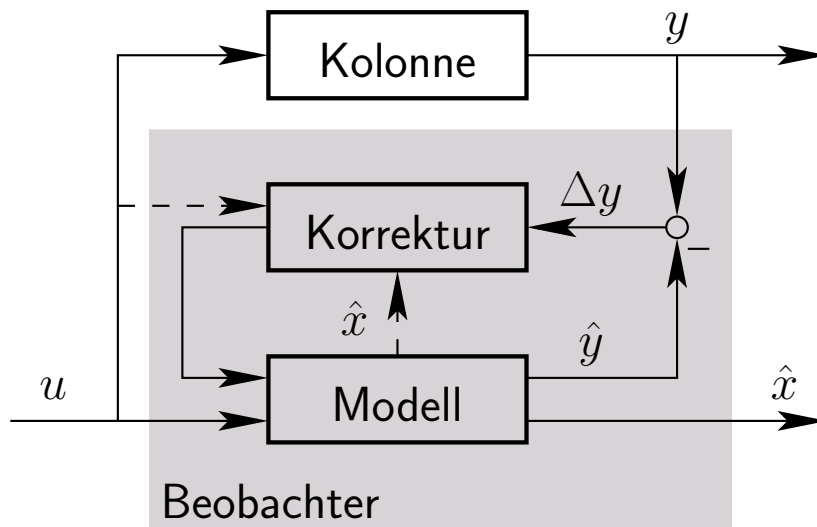


Abbildung 3.11: Beobachter mit Messgröße y , Stellgröße u , den Schätzungen \hat{y} und \hat{x} für Messgröße und Systemzustand

mit

$$\alpha_V = [-20, 20]^T \quad (3.18)$$

$$\alpha_A = [0, -20]^T \quad (3.19)$$

für jeweils einen Kolonnenabschnitt der Dreistofftrennung aus Abb. 3.9. Über den Formansatz aus den Gleichungen (3.9)-(3.11) können die Wellenfrontpositionen berechnet werden.

Über den Einfluss auf die globale Mengenbilanz wirken sich die Korrekturfaktoren α_i direkt auf die Wellenfrontpositionen aus. Damit besteht ein leicht nachvollziehbarer Zusammenhang zwischen den Korrekturtermen und den Wellenpositionen. Die Beträge der Korrekturfaktoren ergeben sich durch Simulationsstudien. Das Vorzeichen der Faktoren ist leicht in Abb. 3.9 identifiziert: Um die Störung auch in der Simulation des Beobachters nachzubilden müssen die Molmengen in den einzelnen Kolonnenabschnitten erhöht bzw. erniedrigt werden. Infolge der Verschiebung des Temperaturprofils hin zum Kopf der Kolonne ist die gemessene Temperatur auf den beiden Messböden 30 und 2 jeweils zu hoch. Da sich dabei jedoch die globale Molmenge im Verstärkungsteil $h_{1,V}$ von Methanol verringert und der Anteil von Ethanol

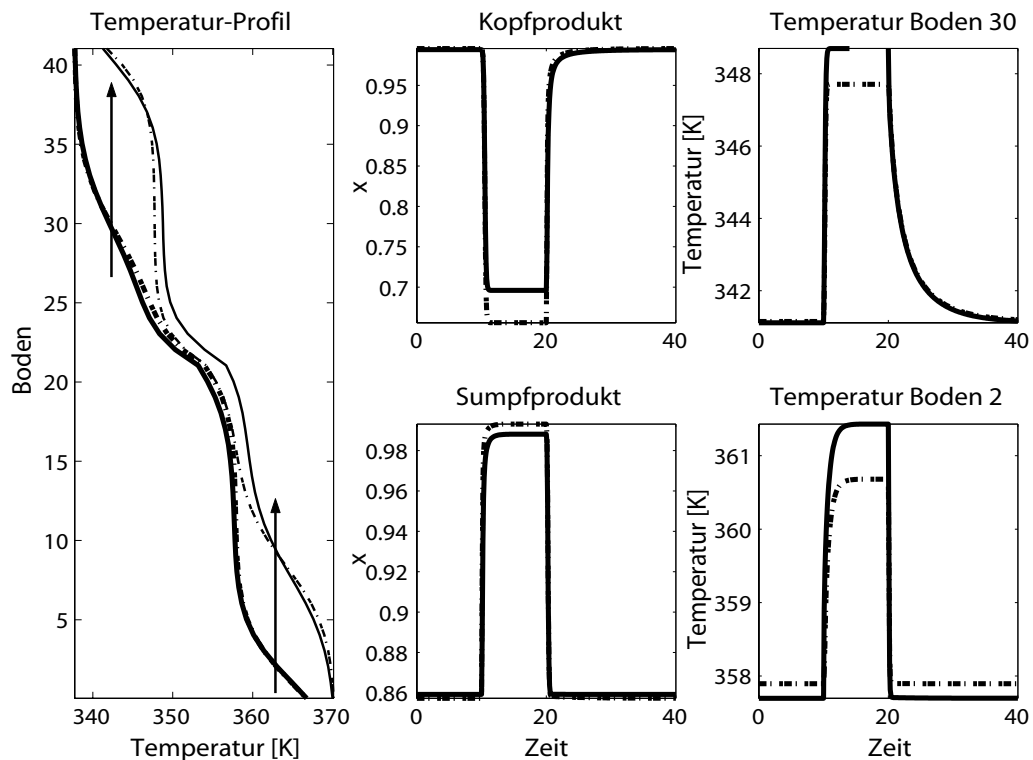


Abbildung 3.12: Bei einem rigorosen Modell (durchgezogene Linien) wird bei $t = 10,0$ die Feedzusammensetzung um 10% verändert und bei $t = 20,0$ auf den nominellen Wert zurückgesetzt. Das Verhalten des Wellenbeobachters ist mit unterbrochenen Linien wiedergegeben. (Startprofil: fett; Profil bei $t = 20,0$: dünn)

$h_{2,V}$ sich gleichzeitig erhöht, sind die Faktoren von α_V negativ für Methanol und positiv für Ethanol. Im Abtriebsteil ergibt sich bei dieser Störung für die Methanolmenge $h_{1,A}$ fast keine Veränderung und nur die Ethanolmenge $h_{2,A}$ verringert sich, womit dann auch α_A in Gl. (3.19) ermittelt ist.

Mit dieser Beobachterstruktur und -konfiguration wurden zahlreiche Simulationsstudien durchgeführt [29]. Auch bei Reaktivdestillationskolonnen wurde dieses Konzept erfolgreich angewendet [30]. Abb. 3.12 zeigt das Ergebnis einer zur Zeit $t = 10,0$ Minuten auftretenden 10 %-igen Änderung der Feedzusammensetzung, die zur Zeit $t = 20$ Minuten wieder zurückgenommen wird. Das Startprofil ist mit fetten Linien aufgetragen und das stationäre

gestörte Profil bei $t = 20,0$ Minuten mit dünnen Linien. Der Wellenbeobachter (unterbrochene Linien) ist dabei sehr gut in der Lage, dem rigorosen Modell (durchgezogene Linien) auch in Unkenntnis der Störung zu folgen. Es ist zu erkennen, dass der Beobachter zwar die Zusammensetzung in der Mitte der Kolonne nicht genau wiedergeben kann, die Wellenfrontpositionen aber sehr gut übereinstimmen. Für die Regelung über die Wellenfrontpositionen ist zunächst nur die korrekte Wiedergabe der Dynamik der Profilverschiebungen wichtig. Beobachter, die auf Wellenmodellen basieren sind natürlich nicht nur in der Lage die Wellenfrontpositionen korrekt zu schätzen, sondern geben auch die Zusammensetzungen und Temperaturen auf allen Böden wieder. Damit können beispielsweise die Produktreinheiten bei einer Optimierung mitbewertet werden.

Wenn zusätzlich die Temperatur auf dem Feedboden gemessen wird, kann die Schätzgüte im Bereich des Feedbodens und damit der Asymptoten für die beiden Einzelmodelle des Verstärkungs- und des Abtriebteils erheblich verbessert werden.

3.5 Reglerentwurf

Regelungsziel ist es, die Wellenfronten an den vorgegebenen Positionen in der Mitte des jeweiligen Kolonnenabschnittes zu halten, entgegen ihres Bestrebens in Richtung eines Kolonnenabschnitt-Randes zu wandern. Auch in Gegenwart von Störungen z.B. in Zuflusszusammensetzung und -menge sollen sich die Fronten nicht verschieben bzw. zurück zur gewünschten Position verschoben werden. Da die Produktqualität in jedem Falle gesichert sein soll, werden die gewünschten Produktreinheiten als Zwangsbedingungen am Kondensator und im Sumpf der Kolonne formuliert. In der allgemeinen Formulierung als Differential-Algebra-System

$$\dot{\mathbf{x}}(t) = \mathbf{f}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t)), \quad (3.20)$$

$$\mathbf{0} = \mathbf{g}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t)) \quad (3.21)$$

mit den Anfangsbedingungen

$$\mathbf{x}(0) = \mathbf{x}_0 \quad (3.22)$$

müssen die Vektoren der differentiellen Zustände $\mathbf{x}(t)$, der algebraischen Zustände $\mathbf{z}(t)$ sowie den Systemeingängen $\mathbf{u}(t)$ definiert werden. Im Abschnitt 3.5.1 werden diese Vektoren beispielhaft für ein binäres Wellenmodell

definiert. Das während eines NMPC-Durchlaufes zu lösende Optimierungsproblem ist durch

$$\min_{\mathbf{u}(\cdot), \mathbf{x}(\cdot)} \int_{t_0}^{t_0+T_P} \|\mathbf{S}(t) - \mathbf{S}^{\text{ref}}\|_2^2 dt \quad (3.23)$$

gegeben. $\mathbf{S}(t)$ bezeichnet den Vektor der Positionen der in Abschnitt 3.2 eingeführten Schlüsselfronten und \mathbf{S}^{ref} deren Sollpositionen in den zugehörigen Kolonnenabschnitten. Die quadratischen Abweichungen werden über den Optimierungshorizont $[t_0, t_0 + T_P]$ minimiert.

Zwangsbedingungen an die Zustände und Stellgrößen sind durch

$$\mathbf{c}(\mathbf{x}(t), \mathbf{z}(t), \mathbf{u}(t)) \geq \mathbf{0} \quad \text{für } t \in [t_0, t_0 + T_P] \quad (3.24)$$

gegeben. Bei den Beispielen in den beiden nachfolgenden Abschnitten werden die Zwangsbedingungen an die Stellgrößen

$$\begin{bmatrix} \mathbf{u}(t) - \mathbf{u}_{\min} \\ \mathbf{u}_{\max} - \mathbf{u}(t) \end{bmatrix} \geq \mathbf{0} \quad \text{für } t \in [t_0, t_0 + T_P] \quad (3.25)$$

verwendet. Zusätzlich werden Zwangsbedingungen an die Kopf- und Sumpfzusammensetzungen

$$\begin{bmatrix} \mathbf{x}_K(t) - \mathbf{x}_K^{\text{ref}} \\ \mathbf{x}_R^{\text{ref}} - \mathbf{x}_R(t) \end{bmatrix} \geq \mathbf{0} \quad \text{für } t \in [t_0, t_0 + T_P] \quad (3.26)$$

als Soft-Constraints formuliert. Das bedeutet, dass den Abweichungen Schlupfvariablen (slack variables) zugewiesen werden, die einen hoch gewichteten linearen Eintrag in die Zielfunktion bilden. Dies ist ein übliches Vorgehen, da diese Zwangsbedingungen Regelungsziele abbilden. Es sind also keine harte Grenzen wie beispielsweise Temperatur- oder Druckgrenzen, bei denen die Sicherheit der Anlage nicht mehr gewährleistet werden kann. Diese Grenzen dürfen auf keinen Fall überschritten werden.

Um nominelle Stabilität des geschlossenen Regelkreises zu gewährleisten, wird ein praktischer Ansatz basierend auf [12, 25] gewählt. Dazu wird der Optimierungshorizont wie in Abschnitt 2.3.3 beschrieben in zwei Abschnitte aufgeteilt: Regelungshorizont $[t_0, t_0 + T_C]$ und Prädiktionshorizont $[t_0 + T_C, t_0 + T_P]$

Die Leistungsfähigkeit der Methode lässt sich sehr gut in Simulationsstudien zeigen. Die generelle Funktion wird im nächsten Abschnitt zunächst

anhand der Trennung eines binären Gemisches demonstriert. Im daran anschließenden Abschnitt wird in einer Open-Loop-Simulation ein Optimierungsschritt der NMPC für ein ternäres Gemisch durchgeführt.

3.5.1 Simulation Trennung binäres Gemisch

Im ersten Simulations-Szenario wird wie in Kapitel 2 die Trennung des Gemisches aus Methanol und 1-Propanol betrachtet. Auch die Anlagenkonfiguration entspricht der aus Kapitel 2. Somit kann das in Abschnitt 3.1.2 eingeführte Modell mit $N_C = 2$ für Beobachter und Regler verwendet werden. Damit existiert in jedem Kolonnenabschnitt nur eine einzige auszubalancierende Welle.

Das Regelungsproblem dieser einen Wellenfront ist äquivalent zu dem Regelungsproblem einer Schlüsselfront eines Mehrkomponentengemisches. Die Ergebnisse der Simulation mit einem binären Gemisch lassen sich also direkt auf Trennungsaufgaben mit Mehrkomponentengemischen übertragen. Der Aufwand der Inbetriebnahme der Simulations- und Experimentierumgebung ist im binären Fall jedoch ungleich einfacher.

Die Simulation wurde mit MUSCOD-II [17, 47] durchgeführt. Die Länge des Regelungshorizonts beträgt $T_C = 1200$ Sekunden und ist in 10 Intervalle aufgeteilt. Der Prädiktionshorizont T_P ist 30000 Sekunden lang. Das verwendete Modell hat 77 algebraische, 7 differentielle Zustände und 2 Eingänge. Die hohe Zahl an algebraischen Zuständen ergibt sich, da das komplette Temperatur-Profil berechnet wird um den Vergleich mit einem rigorosen Boden-zu-Boden-Modell zu erleichtern. Es ist ausreichend, für bestimmte ausgezeichnete Punkte, wie z.B. Stützstellen des Beobachters, die Zusammensetzung bzw. die Temperatur zu berechnen. Das komplette Profil kann nach der Optimierung/Simulation über den Wellenformansatz aus Abschnitt 3.1.2 ermittelt werden.

Mit dieser Konfiguration der Optimierungsaufgabe ergeben sich auf einem Standard-PC mit einer mit 1GHz getakteten CPU von AMD Rechenzeiten für einen Optimierungsdurchgang im ungestörten Fall von ca. 2,5 Sekunden. In Gegenwart der Störung erhöht sich der numerische Aufwand auf ca. 5 Sekunden.

Die differentiellen Zustände sind in Tabelle 3.2 aufgelistet. Die effektive Heizleistung und der Rücklaufstrom sind differentiell da die Ventildynamik im Kopf der Kolonne und die thermische Trägheit der Verdampferheizung

L_K	Rücklaufstrom Kondensator
x_K	Zusammensetzung Kondensator
h_V	Integrale Menge Verstärkungsteil
h_A	Integrale Menge Abtriebsteil
x_F	Zusammensetzung Feedboden
x_R	Zusammensetzung Verdampfer
Q_V	effektive Heizleistung Verdampfer

Tabelle 3.2: Differentielle Zustände des binären Wellenmodells

u_1	Rücklaufstrom
u_2	Heizleistung

Tabelle 3.3: Stellgrößen des binären Wellenmodells

berücksichtigt werden sollen. Sie sind jeweils als PT1-Glieder modelliert.

Die verwendeten Stellgrößen sind in Tabelle 3.3 aufgelistet. Dabei wirkt die gewünschte Heizleistung und der gewünschte Rücklaufstrom verzögert auf den Prozess. u_1 und u_2 sind also nicht L_K und Q_V gleichzusetzen. Die Wahl fiel auf diese beiden Stellgrößen, weil mit ihnen der Flüssigkeitsstrom von oben nach unten und der gasförmige Strom von unten nach oben eingestellt werden kann und damit die wesentliche Kolonnendynamik bestimmt ist.

Für die Grenzen der Stellgrößen kommen die Werte aus Tabelle 3.4 zum Einsatz. Die Grenzwerte für den Rücklaufstrom wurde in vorhergehenden Simulationsstudien bestimmt. Für die Heizleistung ergibt sich der Maximalwert durch die maximale Leistung der elektrischen Heizung. Der Minimalwert soll eine untere fluiddynamische Belastungsgrenze darstellen, die bei vielen gebräuchlichen Kolonnensystemen eine wichtige Rolle spielt. Für die Produktmindestreinheiten werden die Werte aus Tabelle 3.5 verwendet.

In Simulationsstudien sind eine ganze Reihe von verschiedenen Störszenarien untersucht worden. Die für eine Regelung anspruchsvollsten Störungen sind Abweichungen in der Feed-Zusammensetzung. Viel weniger Einfluss

$$0,5 \leq u_1 \leq 8$$

$$1,5 \leq u_2 \leq 5$$

Tabelle 3.4: Stellgrößenschranken in der binären Simulation

$$\begin{aligned}x_K^{\text{ref}} &= 0,998 \\x_R^{\text{ref}} &= 0,001\end{aligned}$$

Tabelle 3.5: Geforderte Produktreinheiten als Soft-Constraints in der binären Simulation

haben Störungen in der Zuflussmenge oder in der Zuflusstemperatur. Die Ergebnisse von Simulationen mit Störungen in der Feed-Zusammensetzung, wie in Abb. 3.13 auf Seite 73, haben damit die größte Aussagekraft.

Im folgenden Simulationsszenario nimmt die Konzentration des Leichtersieders im Zulauf nach 100 Sekunden sprunghaft um 50 % zu. Nach 1500 Sekunden kehrt sie zu ihrem ursprünglichen Wert zurück. Der gesamte Verlauf ist in Abb. 3.13 auf Seite 73 wiedergegeben. Die Zählung der Böden ist in dieser Simulationsstudie von oben nach unten, also entgegengesetzt zu der Zählweise in Kapitel 2.

Auf der rechten Seite im Abtriebteil ist sehr gut zu erkennen, wie durch den regelnden Eingriff des Optimierers die Sollposition s_A^{ref} wieder erreicht wird. Die Sollwerte, Stellgrößenbeschränkungen und geforderte Produktreinheiten sind jeweils gestrichelt gezeichnet. Das Überschwingen ergibt sich dadurch, dass im Verstärkungsteil die Sollposition der Wellenfront s_V^{ref} aufgegeben werden muss, da ansonsten die geforderte Produktreinheit x_K^{ref} im Kopfabzug ab ca. 400 Sekunden nicht mehr gehalten werden kann. Erst nach Verschwinden der Störung nach 1500 Sekunden kann die ursprüngliche Sollposition im Verstärkungsteil wieder eingenommen werden. Die Produktreinheit im Sumpfabzug x_R^{ref} ist zu keiner Zeit in Gefahr. Bei ca. 110 Sekunden stößt die Heizleistung an die untere Stellgrößenbeschränkung. Als Folge ist die Abweichung der Frontposition von der Sollposition im Abtriebteil erheblich stärker als erwartet. Erwartungsgemäß ist der NMPC in der Lage auch mit erheblichen Störungen fertig zu werden. So werden in diesem Simulationsszenario keine Schranken erreicht oder verletzt. Ein Regler ohne Kenntnis der Stell- und Zustandsschranken wie z.B ein PI-Regler könnte diese nicht einhalten.

In Kapitel 2 werden die Temperaturen auf den Böden 14 und 28 geregelt. In Abb. 3.13 auf Seite 73 entspricht das den Böden 15 und 29. Die Temperaturverläufe T_{15} und T_{29} dieser beiden Böden und der Verlauf der Produktzusammensetzung x_K zeigen deutlich, dass die Sollwerte für die Temperaturen verschoben werden müssten, um die gewünschte Produktreinheit weiter zu

gewährleisten.

In diesem Simulationsszenario wurde gezeigt, dass das Regelungskonzept sehr gut selbst mit Störungen in der Zuflusszusammensetzung, also der herausforderndsten Störung, umgehen kann.

3.5.2 Simulation Trennung ternäres Gemisch

Im vorigen Szenario wurde die Leistungsfähigkeit der NMPC basierend auf Wellenmodellen anhand einer Trennung eines binären Gemisches gezeigt. Um auch die Einsetzbarkeit bei Mehrkomponentengemischen zu zeigen, wird in der folgenden Simulationsstudie die nichtlineare Open-Loop-Optimierung der Trennung eines ternären Gemisches ohne Seitenkolonne betrachtet. Im Gegensatz zur Closed-Loop-Optimierung wird hier nur ein einziger Optimierungsdurchlauf durchgeführt, ohne die Rückführung von Messdaten. Das Open-Loop-Problem zeigt jedoch ebenfalls das grundsätzliche Verhalten des Closed-Loop-Problems, ist jedoch ungleich einfacher zu realisieren. Das Gemisch besteht aus den Komponenten Methanol, Ethanol und 1-Propanol. Zum Gemisch aus dem vorigen Abschnitt kommt also der Mittelsieder Ethanol hinzu.

Das hier betrachtete Störszenario geht von einer sprungförmigen Abnahme des Leichtersieders Methanol im Zulauf aus. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.14 auf Seite 74 dargestellt. Wie beim vorigen Szenario ist die Bodenzählrichtung von oben nach unten. Es werden die Wellenfronten bei Boden 11 s_V im Verstärkungsteil und bei Boden 40 s_A im Abtriebsteil durch die Optimierung ausbalanciert, wodurch die geforderten Produktreinheiten aus Tabelle 3.6 auf Seite 74 eingehalten werden können. Die Verläufe der Produktzusammensetzungen ohne regelnden Eingriff sind mit Strich-Punkt-Linien dargestellt. Der Optimierer variiert das Rücklaufverhältnis R/D (Rücklaufstrom zu Destillatstrom) und die Heizleistung. Die Sollwerte der Frontpositionen werden schnell wieder eingenommen. Der Regelhorizont T_C ist hier 900 Sekunden lang und in 6 gleiche Intervalle aufgeteilt. Der anschließende Prädiktionshorizont T_P ist 30000 Sekunden lang. Die Optimierung wurde innerhalb der Prozess-Simulationsumgebung DIVA [42] durchgeführt wo ein SQP-Algorithmus (E04UCF) der NAG-Bibliothek [62] zum Einsatz kam.

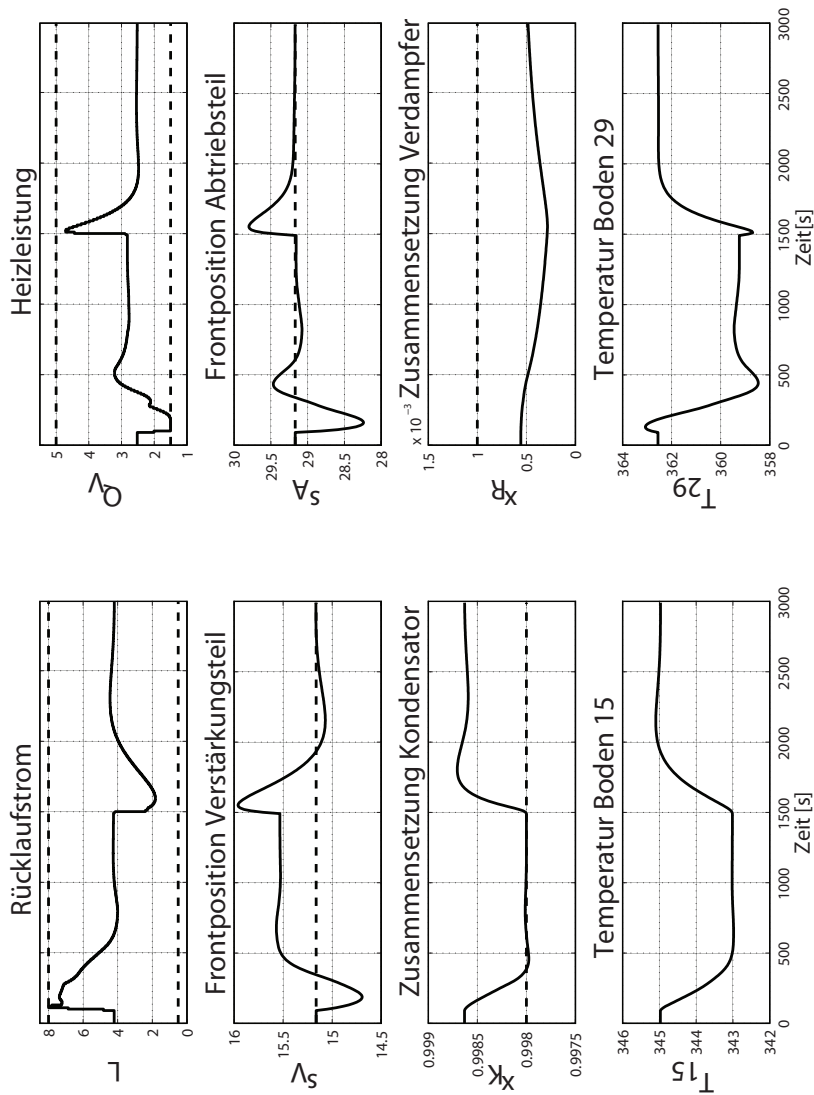


Abbildung 3.13: Trennung eines binären Gemisches. Links: Verstärkungsteil, rechts: Abtriebsteil. Störung (Konzentration Leichterisieder +50% im Feed) von $t = 100$ s bis $t = 1500$ s. Die Sollwerte, Stellgrößenbeschränkungen und geforderte Produktreinheiten sind jeweils gestrichelt gezeichnet. Grenzen der Produktreinheiten sind als Softconstraints realisiert

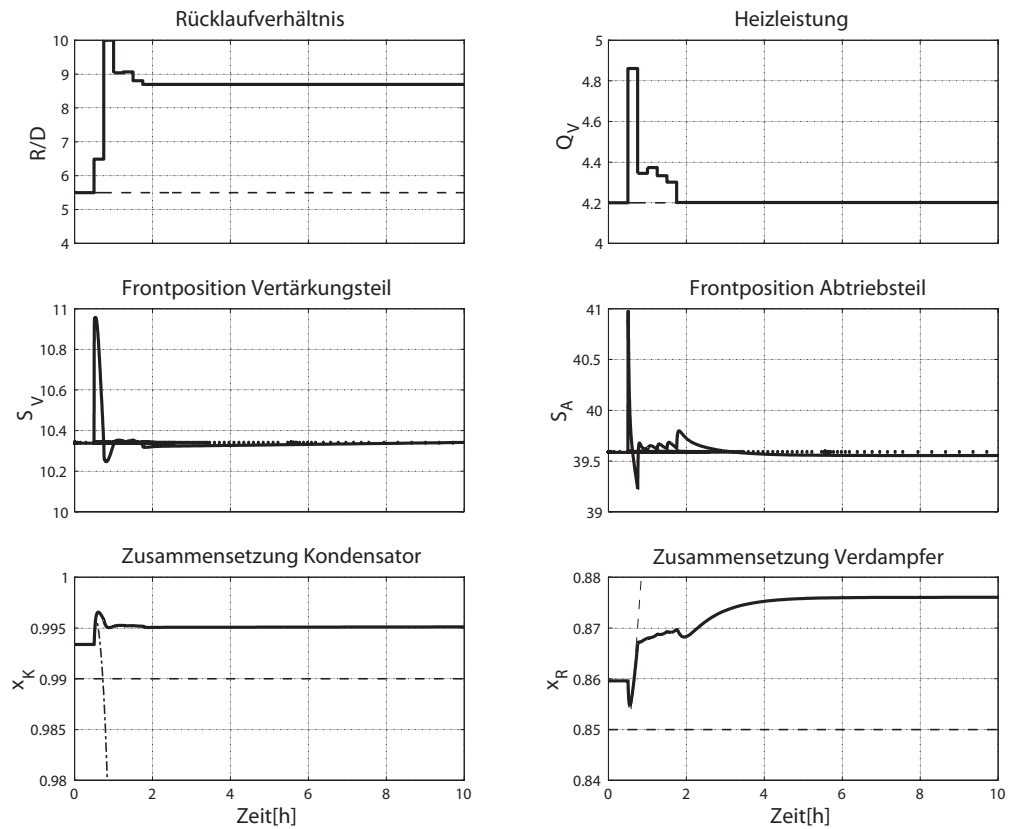


Abbildung 3.14: Open-Loop Simulation der Trennung eines ternären Gemisches. Sprungförmige Abnahme des Leichtersieders um 33% im Zulauf. Gestrichelte Linien: Produktreinheiten; Strich-Punkte: Produktzusammensetzungen ohne regelnden Eingriff

$$\begin{aligned} x_K &\geq 0,99 \\ x_R &\geq 0,85 \end{aligned}$$

Tabelle 3.6: Geforderte Produktreinheiten als Soft-Constraints in der ternären Simulation

3.6 Diskussion

Die Simulationsstudien haben gezeigt, dass die NMPC basierend auf Wellenmodellen für thermische Trennung von Mehrkomponentengemischen sehr gut

einsetzbar ist. Die dafür notwendigen Teilaufgaben wie Beobachterentwurf, Formulierung des Optimierungsproblems und Synthese des geschlossenen Regelkreises sind gelöst und wurden für die Destillationskolonne des Instituts für Systemdynamik und Regelungstechnik beispielhaft in diesem Kapitel und in Kapitel 2 gezeigt.

Einzig die Validierung des Regelungskonzeptes für Mehrkomponentengemische ist hier nicht durchgeführt. Jedoch sind Beobachterentwurf für Mehrkomponentengemische sehr gut erforscht und die Leistungsfähigkeit in Simulationsstudien nachgewiesen. Mithilfe der Wellentheorie lässt sich die Funktionsweise basierend auf dem Ausbalancieren von Schlüsselfronten auch im Mehrkomponentenfall nachweisen. Weiterhin ist die Synthese der NMPC in Kapitel 2 für binäre Gemische hergeleitet und in Experimenten validiert aber so allgemeingültig formuliert, dass eine Erweiterung auf ternäre Gemische bei Wellenmodellen möglich ist.

Die hier vorgestellten Ergebnisse bilden die Basis für weitere Untersuchungen von Systemen, die ebenfalls die hier beobachteten nichtlinearen Wellenphänomene zeigen. Die Leistungsfähigkeit der Regelung mit Wellenmodellen für relativ einfache Anlagen wie Destillationskolonnen ist demonstriert — ein Blick in Richtung komplexerer Anlagen, wie sie in der Chromatographie üblich sind, ist lohnenswert. Im folgenden Kapitel wird der Grundstock für Wellenmodelle für diese Anlagen gelegt.

Kapitel 4

Anwendung in der Chromatographie

In den vorigen Kapiteln wurde die Prozessführung eines thermischen Trennverfahrens — der Destillation — behandelt. Dieses Trennverfahren beruht auf der Ausnutzung der verschiedenen Dampfdrücke der im Gemisch enthaltenen Flüssigkeiten. Chromatographische Trennverfahren nutzen dagegen die unterschiedlichen Transportgeschwindigkeiten der Einzelkomponenten durch ein stationäres Feststoff-Medium. Die Geschwindigkeitsunterschiede werden durch divergente Interaktion mit dem Adsorbens verursacht. Chromatographische Trennverfahren finden ihren Einsatz vor allem in der Petrochemie [11], Lebensmittelindustrie [40] und der Biotechnologie [73].

4.1 Gegenstromchromatographie

Im idealen chromatographischen Trennprozess wird durch eine Bewegung der Feststoffphase entgegen der Flüssigphase (**T**True **M**Moving **B**Bed, TMB) ein Gegenstrom erzeugt und damit ein kontinuierlicher Betrieb ermöglicht. Auf Grund der schwierigen technischen Realisierbarkeit eines bewegten Festbettes werden chromatographische Anlagen meist periodisch nach dem Prinzip des Simulierten Gegenstroms (**S**Simulated **M**Moving **B**Bed, SMB) betrieben. Der gesamte Trennprozess teilt sich dabei in Anreicherungs- (Adsorption) und Abreicherungs-schritte (Desorption).

In Abb. 4.1 ist der prinzipielle Aufbau eines klassischen 4-Zonen-Gegenstromchromatographen dargestellt [10]. Der Feed-Strom mit dem Volumen-

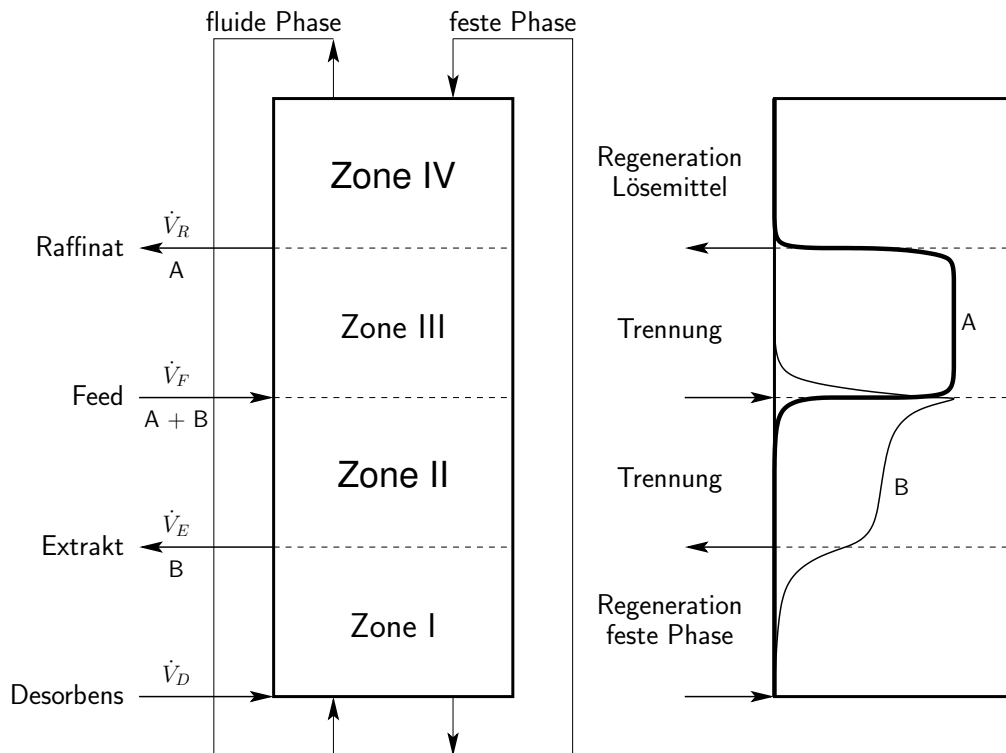


Abbildung 4.1: Prinzipieller Aufbau eines TMB-Prozesses

strom \dot{V}_F enthält die beiden zu trennenden Komponenten A und B. Die weniger adsorbierbare Komponente A wird bei erfolgreicher Trennung über den Raffinatstrom mit dem Volumenstrom \dot{V}_R abgezogen. Die stärker adsorbierbare Komponente verlässt das System als Extrakt mit dem Volumenstrom \dot{V}_E . Der vierte äußere Strom ist der Desorbens- bzw. Eluentenstrom mit dem Volumenstrom \dot{V}_D . Diese vier Ströme unterteilen die Trennsäule in vier Zonen. Die eigentliche Trennaufgabe findet in den Zonen II und III (siehe Abb. 4.1) zwischen Raffinat- und Extraktabzug statt. Eine erfolgreiche Trennung erfolgt dann, wenn die externen Volumenströme \dot{V}_i so eingestellt werden, dass folgende Bedingungen herrschen:

- Die weniger adsorbierbare Komponente A wird mit der Flüssigphase in Richtung Raffinatabzug getragen
- Die stärker adsorbierbare Komponente B wird mit der festen Phase in Richtung Extraktabzug getragen

Wie in Abb. 4.1 dargestellt ist, sorgt der Desorbensstrom in Zone I für die Regeneration der festen Phase. Komponente A adsorbiert in der unbeladenen festen Phase in Zone IV, was zu einer Regeneration des Lösemittels führt.

Somit hat jede Zone und jeder Strom eine spezifische Aufgabe. Die Güte der Trennaufgabe ist damit maßgeblich von den eingestellten Volumenströmen abhängig, die bei der Auslegung des Prozesses berechnet und durch eine geeignete Regelung eingehalten werden müssen.

4.2 Simulierte Gegenstromchromatographie

Um das Problem eines kontinuierlichen Transportes des Adsorbens zu umgehen wurden verschiedene Konzepte entworfen um eine solche Bewegung zu simulieren. Letztlich ist es essentiell, jeweils Zonen der Stofftrennung und der Regeneration zu bilden. Dies kann zum einen durch die Umschaltung der Durchströmungsrichtung des Prozesses, wie bei der klassischen Druckwechseladsorption erreicht werden. Dabei wird im Regenerationsschritt das beladene Festbett mit einem geeigneten Lösungsmittel gespült.

Die konsequente Weiterentwicklung des schrittweisen Betriebs zum quasi-kontinuierlichen Prozess ist die simulierte Gegenstromchromatographie (**Simulated Moving Bed**, SMB [10]). Die einzelne Trennsäule eines TMB wird dabei in mindestens vier einzelne Festbett-Säulen unterteilt, die den Zonen in Abb. 4.1 entsprechen. Bei einer weiteren Unterteilung der Zonen in mehrere Säulen lässt sich das Verhalten des SMB dem theoretischen TMB annähern.

Eine simulierte Bewegung des Festbettes wird mittels der periodischen Weiterschaltung der Anschlüsse (Feed, Extrakt, Raffinat und Desorbens) in Fließrichtung der Flüssigphase erreicht. In Abb. 4.2 ist die Anschlusskonfiguration zum jeweils aktuellen Zeitpunkt t_k mit F_k, E_k, R_k und D_k bezeichnet. Nach der Umschaltzeit ΔT zum Zeitpunkt t_{k+1} gehen diese Anschlüsse in $F_{k+1}, E_{k+1}, R_{k+1}$ und D_{k+1} über.

Für eine erfolgreiche Trennung muss die Schaltzeit an den zu erzielenden Volumenstrom der festen Phase angepasst werden. Die Schaltzeit um das Verhalten des SMB an die eines äquivalenten TMB-Prozesses anzugleichen kann über

$$\Delta T = \frac{V_{\text{col}}(1 - \epsilon)}{\dot{V}_S} \quad (4.1)$$

berechnet werden. \dot{V}_S bezeichnet dabei den Volumenstrom des TMB-Prozesses und V_{col} das Säulenvolumen.

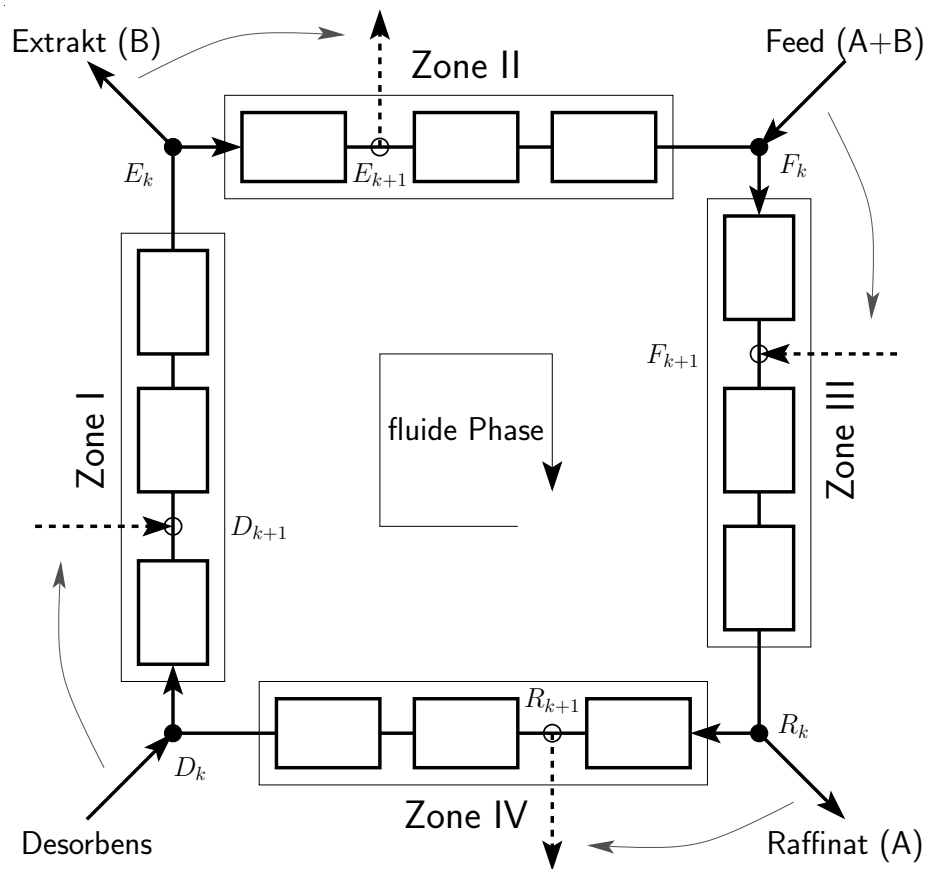


Abbildung 4.2: Prinzipieller Aufbau eines SMB-Prozesses. Die Anschlüsse zum jeweils aktuellen Zeitpunkt sind mit F_k , E_k , R_k und D_k bezeichnet, die Anschlusskonfiguration nach der Schaltzeit ΔT mit F_{k+1} , E_{k+1} , R_{k+1} und D_{k+1} . Durch das Schalten verschieben sich die Festbetten entgegen der Fluidrichtung: es entsteht der SMB

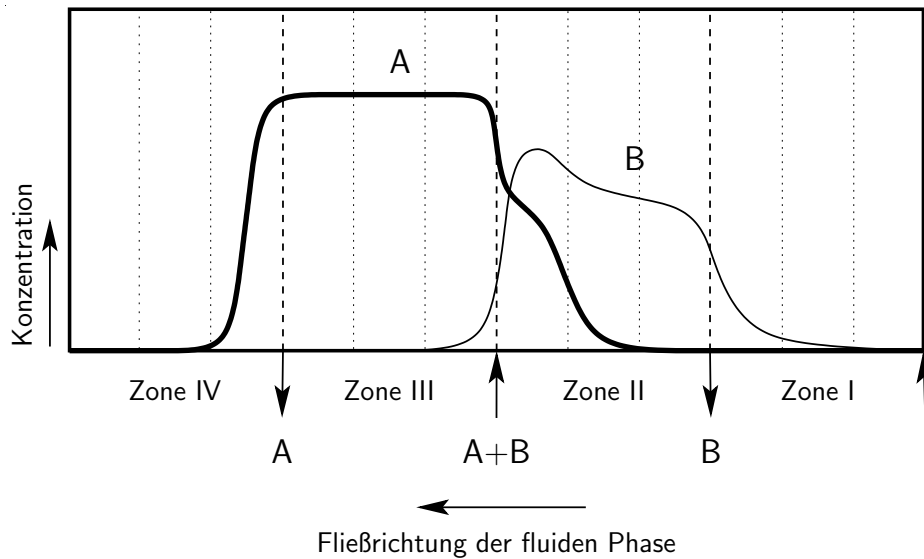


Abbildung 4.3: Typisches Konzentrationsprofil einer erfolgreichen Trennung eines binären Gemisches am Ende eines Schaltzyklus bei SMB-Prozessen bei 12 Trennsäulen

Bei dem Übergang von einem TMB- in einen SMB-Prozess können die resultierende flüssigen Volumenströme pro Zone über

$$\dot{V}_i^{\text{SMB}} = \dot{V}_i^{\text{TMB}} + \frac{\epsilon V_{\text{col}}}{\Delta T} \quad i = I, II, III, IV \quad (4.2)$$

berechnet werden.

Wenn die Bedingungen aus Gl. 4.1 und 4.2 erfüllt sind, lässt sich mit einer Erhöhung der Säulenzahl eine Annäherung des SMB an den TMB erreichen. Ein stationärer Zustand ist mit dem periodischen Betrieb des SMB-Prozesses nicht möglich. Allerdings wird nach einer gewissen Laufzeit ein zyklisch stationärer Zustand erreicht. Das bedeutet, dass sich die Konzentrationsprofile über alle Säulen und die Zusammensetzungen in Extrakt- und Raffinatabzügen nach jeder Zykluszeit ΔT wiederholen. Typische Konzentrationsprofile einer erfolgreichen Trennung eines binären Gemisches am Ende eines Zyklusses sind in Abb. 4.3 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Komponenten A und B mit Raffinat bzw. Extrakt in hoher Reinheit abgezogen werden können.

Weitergehende Forschungsarbeiten beschäftigen sich mit komplexeren Betriebsarten [21, 22, 46, 55] und Anlagenverschaltungen [72]. Denkbar ist

hier z.B. dass nicht alle Anschlüsse gleichzeitig weitergeschaltet werden (VARICOL) oder dass die Volumenströme (POWERFEED) oder Konzentrationen (MODICON) der Zuflüsse während eines Zyklusses variiert werden. Diese Varianten sind jedoch nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit.

4.3 Physikalische Eigenschaften

Das Ziel des vorliegenden Kapitels ist es, die Grundlagen für ein Modell zu schaffen, wie es in Kapitel 3 Verwendung findet. Für die thermische Trennung von Flüssigkeitsgemischen existieren sehr gut untersuchte und erprobte auf nichtlinearen Wellenphänomenen basierende Modelle [52, 39]. Deren Eignung für die modellbasierte Regelung wurde im vorigen Kapitel gezeigt. Für chromatographische Prozesse existieren im Gegensatz zur Destillation nur Wellenmodelle für ausgezeichnete Phänomene bzw. von eng begrenzten Abschnitten einzelner Säulen [54, 68, 51]. Ein ganzheitlicher Ansatz für komplette Anlagen wie z.B. von SMB-Prozessen ist noch nicht gefunden. Hier teilen, analog zu Destillationssäulen, Zuflüsse die Gesamtanlage in kleinere Einheiten auf, die mehrere Säulen zusammenfassen können. Jedoch werden zwischen dem Desorbenszufluss und dem Feed noch Extrakt- und Refinatströme abgezogen. Solche Abflüsse beeinflussen die Wellenformen und -wanderungsgeschwindigkeiten, teilen die Anlage jedoch nicht in weitere Wellenmodellanteile. Leider werden solche Abflüsse von aktuellen Wellenmodellen noch nicht berücksichtigt.

4.3.1 Isotherme

Das Wellenmodell für Destillationskolonnen basiert auf einer Gleichgewichtsfunktion mit konstanten relativen Flüchtigkeiten α_i

$$y_j = f(\mathbf{x}) = \frac{\alpha_j x_j}{1 + \sum_{i=1}^{N_C-1} (\alpha_i - 1)x_i} \quad (4.3)$$

mit der Zusammensetzung der Gasphase y_i und der flüssigen Phase x_i . Das Phasengleichgewicht der meisten und wichtigsten chromatographischen Prozesse lässt sich über die Langmuir-Isothermen[31] (siehe Abb. 4.4)

$$q_j = f(\mathbf{c}) = \frac{H_j c_j}{1 + \sum_{i=1}^{N_C} (b_i c_i)} \quad (4.4)$$

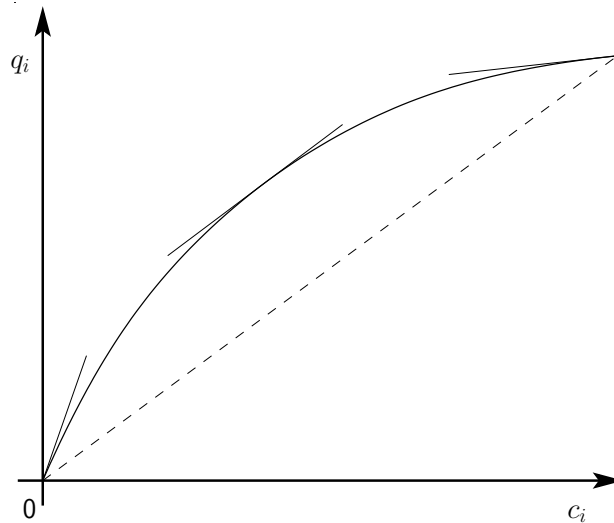


Abbildung 4.4: Langmuir-Isotherme mit angedeuteten Tangenten

mit den Konzentrationen q_j der Adsorbensphase und den Konzentrationen in der mobilen Phase c_j berechnen. Mit N_C ist in Gl. (4.4) die Anzahl der adsorbierbaren Stoffe angegeben. Die Struktur der Gleichungen (4.3) und (4.4) ist bis auf den Henry-Koeffizienten H_j und den Parametern b_i dieselbe. Langmuir-Isothermen liegen folgende Annahmen zugrunde:

- Adsorption findet in einer einzelnen molekularen Schicht statt
- alle Sorptionsplätze sind gleichwertig
- keine Wechselwirkungen zwischen benachbarten Sorptionsplätzen und den adsorbierten Teilchen

Der Term $b_i c_i$ spiegelt die Oberflächenbeladung der festen Phase der Komponente i wieder. Mit einer Erhöhung für Komponente i reduziert sich die verfügbare Fläche für j und umgekehrt. Die Langmuir-Isotherme beschreibt also ein kompetitives Gleichgewicht. Im Weiteren werden nur Trennprozesse betrachtet, deren Phasengleichgewichte sich mit dieser Isotherme beschreiben lassen.

4.3.2 Wellenformen

Bei den Betrachtungen in diesem Abschnitt wird zunächst von idealer nicht-linearer Chromatographie ausgegangen. Das bedeutet, dass folgende Vereinfachungen verwendet werden [36, 37, 35, 68]:

1. lokales Gleichgewicht zwischen der mobilen und der stationären Phase
2. ideale Pfropfenströmung
3. Transport in axialer Richtung nur durch Konvektion
4. konstante axiale Volumenströmung der mobilen Phase
5. isobar
6. isotherm
7. keine chemischen Reaktionen der gelösten Stoffe, die deren Adsorptionsverhalten verändern

Dispersive Effekte, die sich ebenfalls auf die Wellenform auswirken, werden zunächst vernachlässigt.

Die wichtigste Kenngröße bei Modellen, die auf nichtlinearen Wellenphänomenen basieren, ist die Wellenform. Diese Kenngröße ist abhängig von der zugrundeliegenden Isotherme. Bei Langmuir-Isothermen wie in Abb. 4.4 ist zu beobachten, dass sich hohe Konzentrationen schneller bewegen als langsame Konzentrationen. Die Folge ist, dass sich Sorptionsfronten aufsteilen und Desorptionsfronten abflachen. In Abbildung 4.5 ist dieser Zusammenhang für zwei verschiedene Isothermen graphisch dargestellt: oben eine Langmuir- und unten eine Anti-Langmuir-Isotherme.

In der rechten Hälfte sind zwei Profile zu verschiedenen Zeitpunkten t_1 (durchgezogene Linien) und t_2 (gestrichelt) mit $t_2 > t_1$ aufgezeichnet. Bei der Langmuir-Isotherme ist deutlich zu sehen, dass höhere Konzentrationen sich schneller fortbewegen als niedrige Konzentrationen. Unten bei der Anti-Langmuir-Isotherme wandern die niedrigen Konzentrationen hingegen schneller als die höheren. Bei einer linearen Isotherme ist die Form des Profiles konstant.

Abbildung 4.5 zeigt weiterhin, dass bei chromatographischen Trennprozessen zusätzlich zu den sich selbst aufsteilenden Wellenfronten, wie sie bereits von Destillationskolonnen bekannt sind, auch sich abflachende Fronten vorkommen. Die selbstschärfenden Fronten werden auch *kompresive Wellen* bezeichnet. Bei den sich selbst abflachenden wird auch von *expansiven*

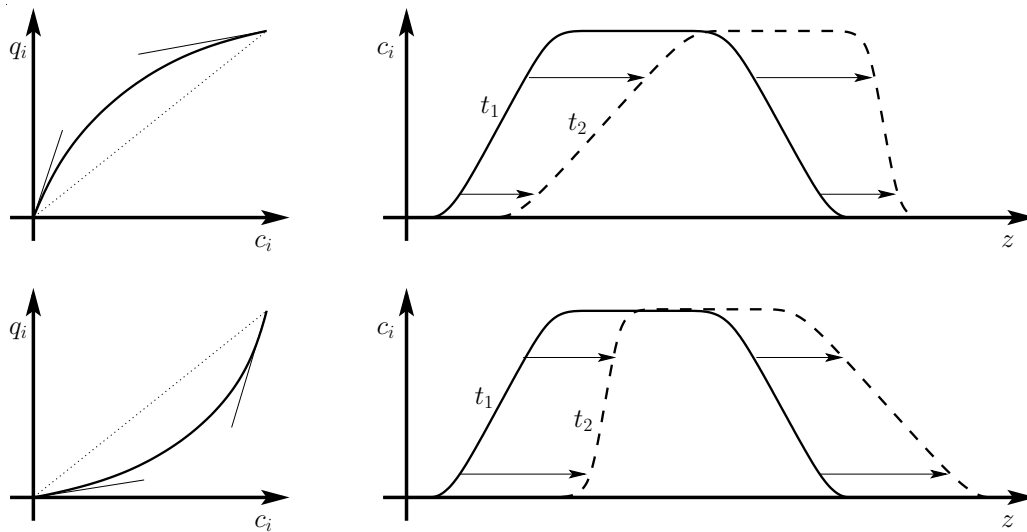


Abbildung 4.5: Änderung der Wellenform in Abhängigkeit der Isotherme im Einzelkomponenten-Fall. Oben: Langmuir-Isotherme; Unten: Anti-Langmuir-Isotherme Durchgezogene Linie: Ursprungsprofil zur Zeit t_1 ; gestrichelte Linie: verformtes Profil zur Zeit t_2 mit $t_2 > t_1$

Wellen gesprochen. Die Extremform der kompressiven Wellen sind Diskontinuitäten (bei idealer Chromatographie). Diese Diskontinuitäten werden auch Schockfronten oder einfach nur *Schocks* genannt. Erst die Schockwellen sind stabile Gebilde und werden dann *formstabile* Wellen genannt.

Nichtidealitäten wie endliche Stoffübergangskoeffizienten oder axiale Dispersion verhindern natürlich die Ausbildung von Diskontinuitäten. Diese Effekte wirken sich durch ihre hohe Flankensteilheit vor allem auf die Form von Schocks aus, weniger auf die Form der expansive Wellen.

4.4 Modellbildung

Basierend auf der Herleitung der Wellenmodelle in der Destillation kann auch für Schockfronten in chromatographischen Trennsäulen ein Wellenmodell aufgestellt werden. Für Langmuir-Isothermen bilden sich in den Zonen III und IV kompressive Wellen aus [71] (siehe Abb. 4.3). Somit lassen sich diese beiden Zonen, ähnlich wie im vorigen Kapitel vorgestellt, als einzelne Wellenmo-

dellabschnitte modellieren. Leicht unterschiedliche Gleichgewichtsfunktionen machen jedoch eine erneute Herleitung der Wellenmodelle notwendig. In Abschnitt 4.4.1 werden die Modelle für eine einzelne Trennsäule mit kompressiven Wellenfronten hergeleitet und beschrieben.

4.4.1 Schockwellen

Das in Kapitel 3 eingeführte Wellenmodell wurde mittels eines Stoffaustauschmodells hergeleitet. Auch für chromatographische Trennsäulen existieren unterschiedliche Modelle [26, 32, 74], wie z.B. Stoffaustauschmodelle. Auch Gleichgewichtsmodelle sind hier üblich. In den nachfolgenden Abschnitten werden Wellenmodelle für die Schockwellenanteile in TMB und SMB (Festbettadsorber) basierend auf diese beiden Modellklassen hergeleitet.

Gleichgewichtsmodell

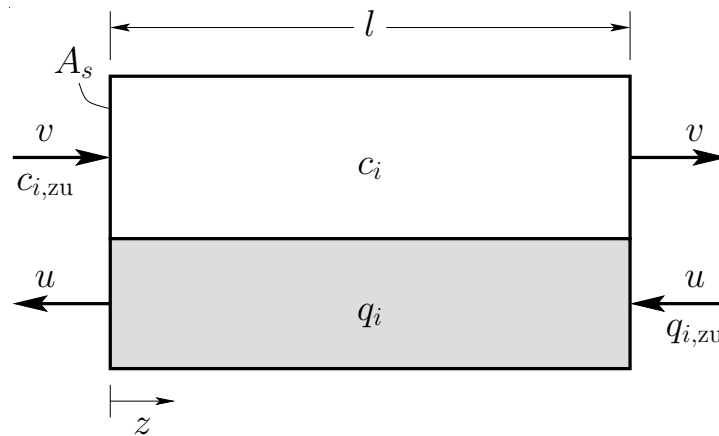


Abbildung 4.6: Struktur Gleichgewichtsmodell. Oben flüssige Phase; unten Adsorbensphase. Mit den Fließgeschwindigkeiten v und u , den Konzentrationen c_i und q_i , der Querschnittsfläche A_s und der Länge l

Abbildung 4.6 zeigt den prinzipiellen Aufbau des Gleichgewichtsmodells. Oben ist die flüssige Phase dargestellt, unten die Adsorbensphase. Mit v

und u sind die Fließgeschwindigkeiten in den beiden Phasen bezeichnet. Im SMB-Fall mit Festbetten ist die Fließgeschwindigkeit in der Adsorbensphase $u = 0$.

Die Herleitung der partiellen Differentialgleichung ist beispielsweise in [71] beschrieben. Dort wird über differentielle Volumenelemente die Gleichung

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + F \frac{\partial q_i}{\partial t} + v \frac{\partial c_i}{\partial z} - uF \frac{\partial q_i}{\partial z} = D_{\text{ap}} \frac{\partial^2 c_i}{\partial z^2} \quad (4.5)$$

mit

$$z \in [0, l], \quad t > 0 \quad (4.6)$$

entwickelt, wobei mit F das Phasenverhältnis

$$F = \frac{1 - \epsilon}{\epsilon}, \quad (4.7)$$

bezeichnet ist. In Gleichung (4.5) wird der diffusive Massenstrom nach dem Fick'schen Diffusionsgesetz mit dem Koeffizienten D_{ap} berechnet. Mit der Koordinatentransformation

$$\bar{z} = \frac{z}{l}, \quad \bar{t} = \frac{tv}{l} \quad (4.8)$$

werden die Zeit- und Ortskoordinaten \bar{t} und \bar{z} dimensionslos. Der Einfachheit halber wird im Weiteren immer von den einheitenlosen Koordinaten ausgegangen und auf die besondere Markierung durch Überstriche verzichtet.

Die Gleichung (4.5) geht damit in

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + F \frac{\partial q_i}{\partial t} + \frac{\partial c_i}{\partial z} - F \frac{u}{v} \frac{\partial q_i}{\partial z} = \frac{D_{\text{ap}}}{vl} \frac{\partial^2 c_i}{\partial z^2} \quad (4.9)$$

über. Diese Gleichung lässt sich mit Hilfe von

$$A = \frac{v}{u}, \quad E' = \frac{D_{\text{ap}}}{vl} \quad (4.10)$$

in der vektoriellen Darstellung

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\{ \mathbf{c}(z, t) + F \mathbf{q}(\mathbf{c}) \right\} + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \mathbf{c}(z, t) - \frac{F}{A} \mathbf{q}(\mathbf{c}) \right\} = \frac{\partial}{\partial z} \left\{ E' \frac{\partial \mathbf{c}(z, t)}{\partial z} \right\} \quad (4.11)$$

mit

$$0 < z < 1 \quad t > 0 \quad (4.12)$$

und

$$\mathbf{c} = [c_1, c_2, \dots, c_{N_C}]^T \quad \mathbf{q} = [q_1, q_2, \dots, q_{N_C}]^T \quad (4.13)$$

vereinfachen. Unter der Annahme, dass der Stofftransport über die Säulengrenzen nur per Konvektion ohne Diffusion stattfindet und unter der Annahme, dass die Konzentrationsverläufe der jeweiligen Phase am Zulauf unstetig und am Ablauf stetig sind, lassen sich die Randbedingungen durch

$$\mathbf{0} = \mathbf{c}_{\text{zu}}(t) - \mathbf{c}(0,t) + E' \left. \frac{\partial \mathbf{c}}{\partial z} \right|_{z=0} \quad t > 0, \quad z = 0 \quad (4.14)$$

$$\mathbf{0} = \frac{F}{A} (\mathbf{q}_{\text{zu}}(t) - \mathbf{q}(1,t)) - E' \left. \frac{\partial \mathbf{c}}{\partial z} \right|_{z=1} \quad t > 0, \quad z = 1 \quad (4.15)$$

ausdrücken. Zur Zeit $t = 0$ gelten die Anfangsbedingungen:

$$\mathbf{c}(z, t = 0) = \mathbf{c}_0(z) \quad 0 < z < 1 \quad t = 0. \quad (4.16)$$

Unter der Vernachlässigung des Einflusses der Systemränder kann von einer unendlich ausgedehnten Säule ausgegangen werden. Daher kann von formstabilen Schockwellen ausgegangen werden, die sich mit konstanter Geschwindigkeit bewegen. Der Einfachheit halber wird zunächst eine Lösung für eine einzelne Welle mit dem Wellenindex (k) hergeleitet.

Mit diesen Annahmen lässt sich die partielle Differentialgleichung Gl. (4.11) über die Transformation

$$\xi^{(k)} = z - w^{(k)}t \quad (4.17)$$

mit der Wellenwanderungsgeschwindigkeit $w^{(k)}$ in das Randwertproblem zweiter Ordnung im mitbewegten Wellenkoordinatensystem

$$\frac{d}{d\xi^{(k)}} \left\{ (1 - w^{(k)}) \mathbf{c} - \left(\frac{F}{A} + Fw^{(k)} \right) \mathbf{q}(\mathbf{c}) \right\} = \frac{d}{d\xi^{(k)}} \left\{ E' \frac{d\mathbf{c}}{d\xi^{(k)}} \right\} \quad (4.18)$$

$$-\infty < \xi^{(k)} < \infty$$

mit den Randbedingungen

$$\lim_{\xi^{(k)} \rightarrow \infty} \mathbf{c}(\xi^{(k)}) = \mathbf{c}^{(k+1)}, \quad \lim_{\xi^{(k)} \rightarrow -\infty} \mathbf{c}(\xi^{(k)}) = \mathbf{c}^{(k)} \quad (4.19)$$

überführen. Mit $\mathbf{c}^{(k)}$ und $\mathbf{c}^{(k+1)}$ werden — analog wie bei Destillationskolonnen — die Asymptoten der Wellen bezeichnet. Diese Asymptoten genügen

den Kompatibilitätsbedingungen (Rankin-Hugoniot- bzw. Kohärenzbedingungen)

$$\Lambda^{(k)} = \frac{q_i(\mathbf{c}^{(k)}) - q_i(\mathbf{c}^{(k+1)})}{\mathbf{c}_i^{(k)} - \mathbf{c}_i^{(k+1)}} = \frac{\Delta q_i^{(k)}}{\Delta c_i^{(k)}} \quad \forall i \in \{1, 2, \dots, N_C\} \quad (4.20)$$

Die Konstante $\Lambda^{(k)}$ ergibt sich durch Integration der Gl. (4.18) nach $\xi^{(k)}$ von $-\infty$ bis ∞ für jede Welle (k):

$$\Lambda^{(k)} = \frac{1 - w^{(k)}}{F(w^{(k)} + \frac{1}{A})} \quad (4.21)$$

Nach einer Integration der Gl. (4.18) von $\xi^{(k)} = -\infty$ bis $\xi^{(k)}$ bleibt die gewöhnliche Differentialgleichung 1. Ordnung:

$$\frac{1}{F(w^{(k)} + \frac{1}{A})} E' \frac{d\mathbf{c}}{d\xi} = \Lambda^{(k)} (\mathbf{c}(\xi^{(k)}) - \mathbf{c}^{(k)}) - (\mathbf{q}(\mathbf{c}) - \mathbf{q}(\mathbf{c}^{(k)})) \quad (4.22)$$

Die Trajektorien von Gl. (4.22) lassen sich im Konzentrations-Zustandsraum durch die Geradengleichung

$$\frac{c_j(\xi^{(k)}) - c_j^{(k)}}{c_i(\xi^{(k)}) - c_i^{(k)}} = K_{i,j}, \quad \forall i, j \quad (4.23)$$

ausdrücken [54]. Damit kann diese Differentialgleichung mit Langmuir-Isothermen für eine einzelne Welle (k) analytisch gelöst werden:

$$c_i(\xi^{(k)}) = \mathbf{c}_i^{(k)} + \frac{\mathbf{c}_i^{(k+1)} - \mathbf{c}_i^{(k)}}{1 + \exp\{-\rho^{(k)}\xi^{(k)}\}} \quad (4.24)$$

mit

$$\rho^{(k)} = \frac{\delta^{(k)}}{1 + \frac{1}{2} \sum_{l=1}^{N_C-1} b_l (\mathbf{c}_l^{(k+1)} + \mathbf{c}_l^{(k)})} \quad (4.25)$$

und

$$\delta^{(k)} = \frac{w^{(k)} - 1}{E'} \sum_{l=1}^{N_C-1} b_l (\mathbf{c}_l^{(k+1)} - \mathbf{c}_l^{(k)}). \quad (4.26)$$

Zusätzlich wird von einer symmetrischen Wellenform ausgegangen [38] (siehe auch Gl. (4.57)), also das sog. Tailing vernachlässigt.

Die Wellenwanderungsgeschwindigkeit kann über Gl. (4.21) berechnet werden:

$$w^{(k)} = \frac{\Delta \mathbf{c}_i^{(k)} - \frac{F}{A} \Delta q_i^{(k)}}{\Delta \mathbf{c}_i^{(k)} + F \Delta q_i^{(k)}} \quad (4.27)$$

Da von Kohärenz ausgegangen wird, ist die Wellenwanderungsgeschwindigkeit für jede Komponente gleich und es können zur Berechnung von $w^{(k)}$ die Asymptoten jeder beliebigen Komponente herangezogen werden.

Die Struktur der Gln. (4.24)-(4.27) entspricht der Struktur der Wellengleichungen für Destillationskolonnen. Aus den Erfahrungen mit Wellenmodellen für Destillationskolonnen kann davon ausgegangen werden, dass sich die Lösung für alle auftretenden Wellen aus der linearen Superposition der Lösung der einzelnen Wellen ergibt. Mit der Rücktransformation aus den Wellenkoordinaten in $z - t$ -Koordinaten über

$$\xi^{(k)} = z - w^{(k)}t = z - s^{(k)} \quad (4.28)$$

mit der aus Kapitel 3 bekannten Wellenfrontposition $s^{(k)}$ ergibt sich

$$c_i(z, s^{(1)}, s^{(2)}, \dots, s^{(N_C)}) = c_i^{(1)} + \sum_{k=1}^{N_C} \frac{\mathbf{c}_i^{(k+1)} - \mathbf{c}_i^{(k)}}{1 + \exp\{-\rho^{(k)}(z - s^{(k)})\}}, \quad (4.29)$$

$$i = 1, 2, \dots, N_C.$$

Analog zur Destillation ist der nächste Schritt, eine globale Mengenbilanz für eine Säule herzuleiten, in die der Formansatz dann eingesetzt werden kann. Dazu wird Gl. (4.11) von $z = 0$ bis $z = 1$ unter Berücksichtigung der Randbedingungen integriert. Damit erhält man die Differentialgleichung

$$\frac{d\mathbf{h}}{dt} = \frac{F}{A} (\mathbf{q}_{\text{zu}}(t) - \mathbf{q}(z = 0, t)) + \mathbf{c}_{\text{zu}}(t) - \mathbf{c}(z = 1, t) \quad (4.30)$$

mit

$$\mathbf{h} = \int_0^1 \mathbf{c}(z, t) + F \mathbf{q}(\mathbf{c}) dz. \quad (4.31)$$

Das Integral kann wie bei der Destillation gezeigt mittels einer Summe

A_s	3,14 cm ²
ϵ	0,843
l	54,276 cm
D	1,05 cm ² /min
k_{SA}	0,45 $\frac{\text{ml}}{\text{cm}^3 \text{min}}$
H_1	7,21
H_2	5,22
b_1	0,167 cm ³ /mol
b_2	0,121 cm ³ /mol

Tabelle 4.1: Modellparameter für alle Experimente

approximiert oder symbolisch berechnet werden:

$$\mathbf{h} = \mathbf{c}^{(1)} + F\mathbf{q}^{(1)} + \sum_{k=1}^{N_C-1} \ln \left(\frac{1 + \exp\{\rho^{(k)}(1 - s^{(k)})\}}{1 + \exp\{-\rho^{(k)}s^{(k)}\}} \right) \frac{\mathbf{c}^{(k+1)} - \mathbf{c}^{(k)} + F(\mathbf{q}^{(k+1)} - \mathbf{q}^{(k)})}{\rho^{(k)}}. \quad (4.32)$$

Die Rand-Asymptoten $\mathbf{c}^{(1)}$ und $\mathbf{c}^{(N_C)}$ ergeben sich durch die Randbedingungen. Die inneren Asymptoten können durch die Kohärenzbedingungen aus Gl. (4.20) berechnet werden.

Zur Demonstration der Leistungsfähigkeit der Wellenmodelle, wurden Simulationsexperimente durchgeführt. Die Ergebnisse werden mit denen eines ortsdiskretisierten Gleichgewichtsmodells nach Gl. (4.5) verglichen. Die Bedatung dieses Modells ist [71] entnommen und in Tabelle 4.1 aufgelistet. Die Betriebsparameter der einzelnen Experimente sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst. In die folgenden Simulationen wird eine Zone bestehend aus zwei Säulen als eine einzelne Säule betrachtet. Die Säulen sind mit Silica-Gel der Partikelgröße $12\mu\text{m}$ und einer Porengröße von 120\AA gepackt. Es soll ein binäres Gemisch getrennt werden.

Die numerischen Simulationen wurden mit der Prozess-Simulationsumgebung DIVA [42] durchgeführt. Das Gleichgewichtsmodell wird mit 200 theoretischen Böden diskretisiert. Nach der Simulation werden mittels des Formansatzes aus Gl.(4.29) die Ortsprofile des Wellenmodells

Abb. Nr.	\dot{V}^{solid} [ml/min]	\dot{V}^{fluid} [ml/min]	g_1^{solid} [vol%]	g_2^{solid} [vol%]	g_1^{fluid} [vol%]	g_2^{fluid} [vol%]
4.7	2,004	10,2/8,67	0	0	1,45	1,45
4.8	2,004	8,67/11,271	0	0	1,45	1,45
4.9	0	15,2	0	0	1,45	1,45
4.11	2,004/1,5	15,2/10,2	0	0	1,45	1,45
4.12	2,004	10,2	0	0	1,45	1,45
4.13	2,004	10,2/8,67	0	0	1,45	1,45
4.14	0	15,2/7,6	0	0	1,45	1,45

Tabelle 4.2: Betriebsparameter der einzelnen Experimente

rekonstruiert. Die berechneten Profile dienen ausschließlich der Visualisierung. Wo bei den Wellenmodellen von Destillationskolonnen bei der integralen Mengenbilanz über die Ortsdiskretisierten Profile summiert wird, kommt hier die symbolische Lösung aus Gl. (4.32) zu Einsatz. Wenn nichts anderes angegeben wird, sind bei allen nachfolgenden Simulationsergebnissen die Ergebnisse des Wellenmodells mit durchgezogenen Linien und die des rigorosen Modells mit gestrichelten Linien aufgetragen.

Die folgenden Simulationsexperimente wurden mit $N_C = 2$ gelösten Komponenten durchgeführt. Es existieren damit zwei Wellenfronten in der Säule. Im ersten Experiment, dargestellt in Abbildung 4.7, wird mit einem Zustand begonnen, bei dem sich die Wellenfront (1) in der Mitte der Säule befindet und die zweite Front (2) am rechten Rand. Beide Fronten werden durch eine Reduktion des Flüssigkeitsstroms in Richtung des linken Randes bewegt, wo Front (1) mit dem Rand interagiert und ausbalanciert wird. Welle (2) verlässt den Einflussbereich des rechten Randes nicht und bewegt sich dadurch nur sehr wenig.

Es ist deutlich zu sehen, dass die Wellenprofile der beiden Modelle fast genau aufeinander zu liegen kommen. Nur durch Randeffekte unterscheiden sich die Wellensteigungen der Front (1) unwesentlich.

In einem zweiten Simulationsexperiment, dargestellt in Abbildung 4.8, befindet sich die Welle (1) am linken Rand und die zweite Welle (2) am rechten Rand. Wellenfront (1) wird durch eine Erhöhung des Flüssigkeitsstroms in Richtung des rechten Randes beschleunigt. Front (2) befindet sich schon

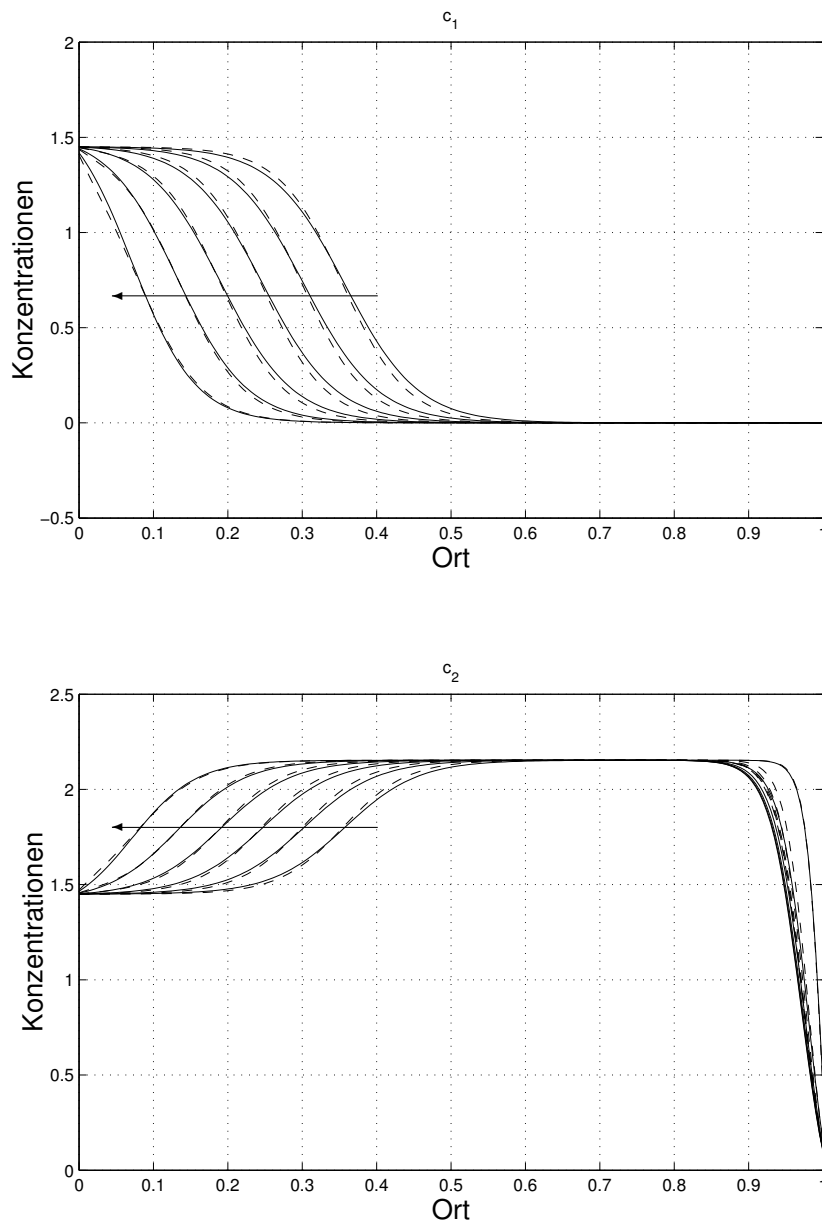


Abbildung 4.7: **Gleichgewichts-Wellenmodell Experiment 1 (Gegenstrom)**: Gleichgewichts-Wellenmodell (durchgezogen) und Gleichgewichtsmodell (gestrichelt). Zu Beginn des Experiments befinden sich die Wellenfronten in der Mitte und am rechten Rand der Säule. Durch Reduktion des Flüssigkeitsstroms wandern sie in Richtung des linken Randes, wo sie stabilisiert werden.

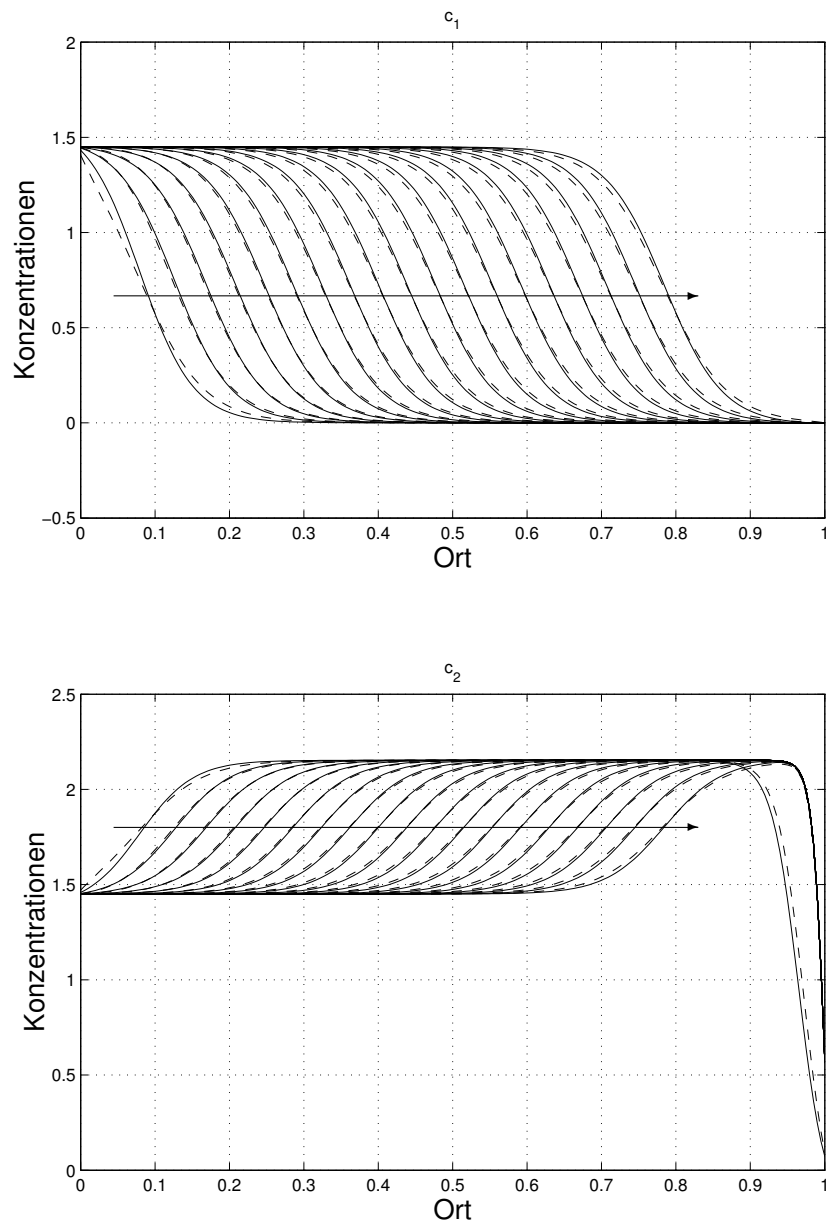


Abbildung 4.8: **Gleichgewichts-Wellenmodell Experiment 2 (Gegenstrom):** Gleichgewichts-Wellenmodell (durchgezogen) und Gleichgewichtsmodell (gestrichelt). Zu Beginn des Experiments befinden sich beide Wellenfronten an den Systemrändern. Durch Erhöhung des Flüssigkeitsstromes wird die Welle am linken Rand in Richtung des rechten Randes beschleunigt

fast am rechten Rand und bewegt sich nur noch unwesentlich weiter. Auch hier zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung der Ergebnisse des Wellenmodelles und des rigorosen Gleichgewichtsmodelles.

Bisher wurde von einem echten Gegenstrom also TMB ausgegangen. Für die Anwendung für SMB-Prozesse werden jedoch Modelle mit Festbett benötigt. Über die Annahmen

$$u = 0 \quad \rightarrow \quad \frac{1}{A} = 0 \quad (4.33)$$

geht die die Wellengleichung (4.22) in

$$\frac{E'}{Fw^{(k)}} \frac{dc}{d\xi} = \Lambda^{(k)} (\mathbf{c}(\xi^{(k)}) - \mathbf{c}^{(k)}) - (\mathbf{q}(\mathbf{c}) - \mathbf{q}(\mathbf{c}^{(k)})) \quad (4.34)$$

mit

$$\Lambda^{(k)} = \frac{1 - w^{(k)}}{Fw^{(k)}} \quad (4.35)$$

über. Der Formansatz Gl. (4.29) und die globale Mengenbilanz (4.31) sind weiterhin gültig.

Abbildung 4.9 zeigt ein zunächst leeres Festbett, in das ein 2-Stoff-Gemisch bei $z = 0$ einströmt.

Es ist zu erkennen, dass die schnellere Front (2) des rigorosen Gleichgewichtsmodells deutlich flacher simuliert wird als die des Wellenmodells. Der Grund ist die numerische Dispersion der Ortsdiskretisierung, die sich bei steilen Fronten am stärksten auswirkt.

Stoffaustauschmodell

Im vorigen Abschnitt wurde ein Wellenmodell für Gleichgewichtsmodelle hergeleitet. Die Abweichungen von der idealen Chromatographie wurde hierbei in der axialen Dispersion zusammengefasst. Ein anderer üblicher Ansatz ist es, die Annahme des Gleichgewichts fallen zu lassen und statt dessen von einem endlichen Stoffübergangswiderstand auszugehen. Auch den Wellenmodellen für Destillationskolonnen liegt ein so genanntes Stoffübergangsmodell zu Grunde. In Abbildung 4.10 ist der prinzipielle Aufbau dargestellt. Die Herleitung des Wellenmodelles entspricht dem Vorgehen in [39].

Die zeitliche Änderung der Konzentrationen c_i und q_i können in den dimensionslosen Koordinaten

$$\bar{z} = \frac{z}{l}, \quad \bar{t} = \frac{tv}{l} \quad (4.36)$$

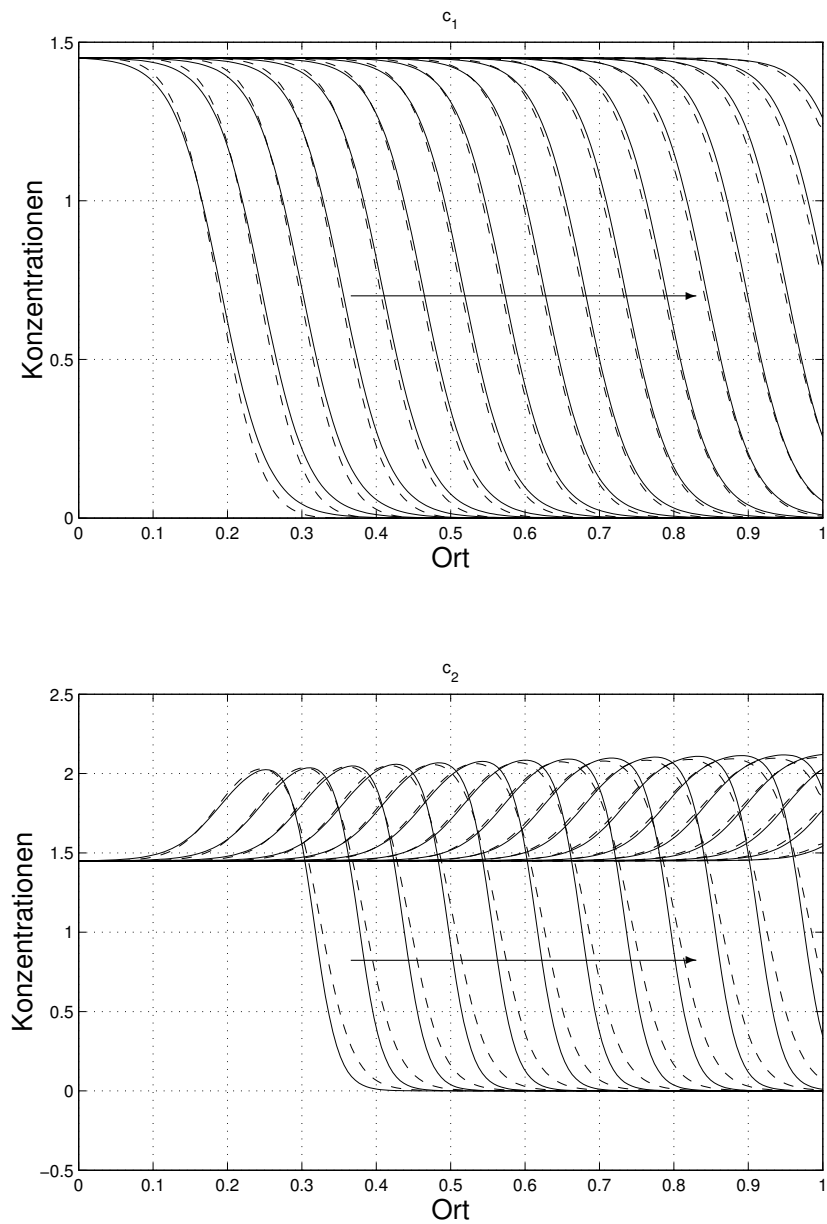


Abbildung 4.9: **Gleichgewichts-Wellenmodell Experiment 3 (Festbett)**: Festbett: Gleichgewichts-Wellenmodell (durchgezogen) und Gleichgewichtsmodell (gestrichelt). Gemisch mit 2 Komponenten strömt in ein leeres Festbett von links nach rechts

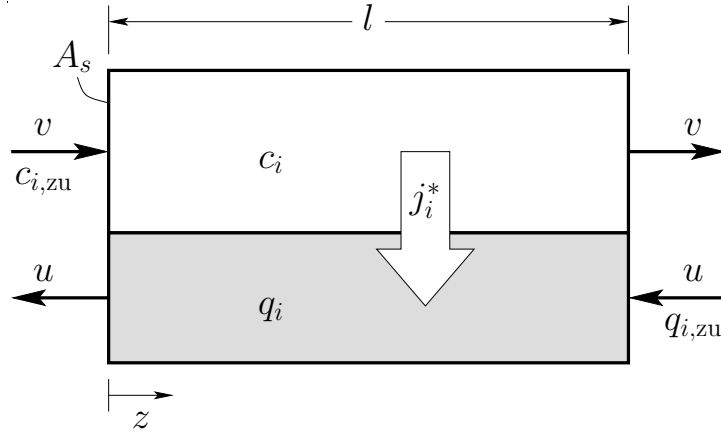


Abbildung 4.10: Stoffaustauschmodell

durch

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -\frac{\partial c_i}{\partial z} - j_i(\mathbf{c}, \mathbf{q}) \quad t > 0, \quad 0 < z < 1 \quad (4.37)$$

$$F \frac{\partial q_i}{\partial t} = \frac{F}{A} \frac{\partial q_i}{\partial z} + j_i(\mathbf{c}, \mathbf{q}) \quad t > 0, \quad 0 < z < 1 \quad (4.38)$$

modelliert werden. Dabei gelten die Vereinfachungen

$$F = \frac{1 - \epsilon}{\epsilon}, \quad A = \frac{v}{u}, \quad j_i(\mathbf{c}, \mathbf{q}) = \frac{l}{\epsilon v} j_i^* \quad (4.39)$$

mit dem axialen Stofftransport A und dem Stofftransport über die Phasengrenzen j_i . Die Rand- und Anfangsbedingungen sind durch

$$c_i(z, t = 0) = c_{i,0}(z) \quad t = 0, \quad 0 < z < 1 \quad (4.40)$$

$$q_i(z, t = 0) = q_{i,0}(z) \quad t = 0, \quad 0 < z < 1 \quad (4.41)$$

$$c_i(z = 0, t) = c_{zu}(t) \quad t > 0, \quad z = 0 \quad (4.42)$$

$$q_i(z = 0, t) = q_{zu}(t) \quad t > 0, \quad z = 1 \quad (4.43)$$

gegeben. Mit dem selben Vorgehen wie bei den Gleichgewichtsmodellen werden Gl. (4.37)-(4.43) mittels der Koordinatentransformation $\xi^{(k)} = z - w^{(k)}t$

in das mitbewegte Wellenkoordinatensystem überführt:

$$(1 - w^{(k)}) \frac{d\mathbf{c}}{d\xi^{(k)}} = -\mathbf{j}(\mathbf{c}, \mathbf{q}) \quad (4.44)$$

$$- \left(\frac{F}{A} + Fw^{(k)} \right) \frac{d\mathbf{q}}{d\xi^{(k)}} = \mathbf{j}(\mathbf{c}, \mathbf{q}) \quad (4.45)$$

mit

$$-\infty < \xi^{(k)} < \infty. \quad (4.46)$$

Damit ergeben sich die Randbedingungen

$$\lim_{\xi^{(k)} \rightarrow \infty} \mathbf{c}(\xi^{(k)}) = \mathbf{c}^{(k+1)}, \quad \lim_{\xi^{(k)} \rightarrow -\infty} \mathbf{c}(\xi^{(k)}) = \mathbf{c}^{(k)}. \quad (4.47)$$

Diese gewöhnlichen Differentialgleichungen 1. Ordnung können für Langmuir-Isothermen analytisch gelöst werden. Dazu werden die Gln. (4.44) und (4.45) addiert

$$0 = (1 - w^{(k)}) \frac{d\mathbf{c}}{d\xi^{(k)}} - \left(\frac{F}{A} + Fw^{(k)} \right) \frac{d\mathbf{q}}{d\xi^{(k)}}. \quad (4.48)$$

und mit $\xi^{(k)}$ von $-\infty$ bis zu einem unbestimmten $\xi^{(k)}$ integriert. Die resultierende Gleichung

$$\mathbf{q} = \mathbf{f}(\mathbf{c}^{(k)}) + \Lambda^{(k)}(\mathbf{c} - \mathbf{c}^{(k)}) \quad (4.49)$$

mit

$$\Lambda^{(k)} = \frac{1 - w^{(k)}}{\frac{F}{A} + Fw^{(k)}}. \quad (4.50)$$

wird in Gl. (4.44) eingesetzt:

$$(1 - w^{(k)}) \frac{d\mathbf{c}}{d\xi^{(k)}} = -\mathbf{j}(\mathbf{c}, \mathbf{f}(\mathbf{c}^{(k)}) + \Lambda^{(k)}(\mathbf{c} - \mathbf{c}^{(k)})) \quad (4.51)$$

Mit einer linearen Stoffübergangsfunktion

$$\mathbf{j}^*(\mathbf{c}, \mathbf{q}) = B(\mathbf{f}(\mathbf{c}) - \mathbf{q}) \quad (4.52)$$

und dem dimensionslosen Stoffübergangskoeffizienten

$$B = \frac{k_{SA} l}{v \epsilon} \quad (4.53)$$

kann die Differentialgleichung

$$\frac{d\mathbf{c}}{d\xi^{(k)}} = -\frac{B}{1 - w^{(k)}} (\mathbf{f}(\mathbf{c}) - \mathbf{f}(\mathbf{c}^{(k)}) - \Lambda^{(k)}(\mathbf{c} - \mathbf{c}^{(k)})) \quad (4.54)$$

hergeleitet werden. Mit der Langmuir-Isotherme als Gleichgewichtsfunktion $\mathbf{f}(\mathbf{c})$ kann diese Differentialgleichung durch Trennung der Variablen und anschließende Integration analytisch gelöst werden. So kann die implizite Lösung

$$\delta^{(k)} \xi^{(k)} = \ln \left(2 \frac{\mathbf{c}^{(k+1)} - \mathbf{c}}{\mathbf{c}^{(k+1)} - \mathbf{c}^{(k)}} \right)^{1 + \sum_{l=1}^{N_C} b_l c_l^{(k+1)}} - \ln \left(2 \frac{\mathbf{c} - \mathbf{c}^{(k)}}{\mathbf{c}^{(k+1)} - \mathbf{c}^{(k)}} \right)^{1 + \sum_{l=1}^{N_C} b_l c_l^{(k)}} \quad (4.55)$$

mit

$$\delta^{(k)} = \frac{B}{\frac{F}{A} + F w^{(k)}} \sum_{l=1}^{N_C} b_l \left(c_l^{(k+1)} - c_l^{(k)} \right) \quad (4.56)$$

berechnet werden. Mit der Annahme

$$1 + \sum_{l=1}^{N_C} b_l c_l^{(k+1)} \approx 1 + \sum_{l=1}^{N_C} b_l c_l^{(k)} \approx 1 + \sum_{l=1}^{N_C} b_l \frac{c_l^{(k+1)} + c_l^{(k)}}{2} \quad (4.57)$$

für die Exponenten können die Quotienten zusammengefasst werden und es ergibt sich der bekannte explizite Formansatz

$$\mathbf{c}(\xi^{(k)}) = \mathbf{c}^{(k)} + \frac{\mathbf{c}^{(k+1)} - \mathbf{c}^{(k)}}{1 + \exp \{-\rho^{(k)} \xi^{(k)}\}} \quad (4.58)$$

für eine einzelne Welle. Dabei unterscheidet sich im Wesentlichen die Steigung der Wellenfronten

$$\rho^{(k)} = \frac{\delta^{(k)}(w^{(k)})}{1 + \sum_{l=1}^{N_C} b_l \frac{c_l^{(k+1)} + c_l^{(k)}}{2}} \quad (4.59)$$

von den Ergebnissen bei Gleichgewichtsmodellen oder Stoffaustauschmodellen für Destillationskolonnen.

Analog kann über die lineare Superposition der Formansatz

$$c_i(z, s^{(1)}, s^{(2)}, \dots, s^{(N_C)}) = c_i^{(1)} + \sum_{k=1}^{N_C} \frac{\mathbf{c}_i^{(k+1)} - \mathbf{c}_i^{(k)}}{1 + \exp \{-\rho^{(k)}(z - s^{(k)})\}} \quad (4.60)$$

$$i = 1, 2, \dots, N_C$$

für das komplette Profil über eine Säule hergeleitet werden. Das dynamische Wellenmodell ergibt sich wieder über die globale Mengenbilanz

$$\frac{d\mathbf{h}}{dt} = \frac{F}{A} (\mathbf{q}_{zu}(t) - \mathbf{q}(z=0, t)) + \mathbf{c}_{zu}(t) - \mathbf{c}(z=1, t) \quad (4.61)$$

mit

$$\begin{aligned} \mathbf{h} &= \mathbf{c}^{(1)} + F\mathbf{q}^{(1)} \\ &+ \sum_{k=1}^{N_C-1} \ln \left(\frac{1 + \exp\{\rho^{(k)}(1 - s^{(k)})\}}{1 + \exp\{-\rho^{(k)}s^{(k)}\}} \right) \frac{\mathbf{c}^{(k+1)} - \mathbf{c}^{(k)} + F(\mathbf{q}^{(k+1)} - \mathbf{q}^{(k)})}{\rho^{(k)}}. \end{aligned} \quad (4.62)$$

Außer der Steigung der Wellenfronten unterscheidet sich die Behandlung der Ränder. Wo bei Gleichgewichtsmodellen Randbedingungen nach Danckwerts verwendet werden, sind die Randkonzentrationen bei Stoffaustauschmodellen direkt durch die Konzentrationen der Zuflüsse gegeben.

Das so hergeleitete Modell ist für Gegenstrom wie auch für Festbett verwendbar. Da dann jedoch die Randbedingung (4.43) entfällt, sind die Asymptoten $q_i^{(N_C)}$ durch die Anfangsbedingungen vorgegeben. Im Falle, dass ein erst leeres Festbett mit gelöstem Gemisch geflutet wird, gilt $\mathbf{q}^{(N_C)} = \mathbf{0}$.

In allen folgenden Simulationsexperimenten wird mit dem Gleichgewichtsmodell, das auch im vorigen Abschnitt verwendet wurde, verglichen.

Abbildung 4.11 zeigt eine Simulation, bei der sich anfangs die Wellen ganz links befinden und nach rechts wandern. Zur Zeit $t = 0$ wird der Solidstrom erhöht. Die Wellenfrontsteigungen hängen von der Wellenwanderungsgeschwindigkeit und damit auch von dem Stromverhältnis A ab. Beim Wellenmodell ändert sich die Frontsteigung sofort. Beim rigorosen Gleichgewichtsmodell passt sie sich jedoch langsam an. Die globalen Mengenbilanzen über die ganze Säule wird davon jedoch nicht beeinflusst. Die Gesamtmaterialmenge ist, solange sich die Konzentrationen an den Systemrändern nicht von denen des rigorosen Modells unterscheiden, korrekt wiedergegeben.

Man kann erkennen, dass die Wellenformen in der Mitte der Säule übereinstimmen. Erst am rechten Rand ergeben sich erhebliche Unterschiede. Die abweichenden Konzentrationsprofile haben zur Folge, dass sich auch die Gesamtmaterialmenge der beiden Modelle unterscheidet. Die Unterschiede der Rand-Konzentrationen vergrößert sich mit den Unterschieden in der Profilform. Für einen Einsatz in modellbasierten Regelungsverfahren muss also sichergestellt werden, dass die Schlüsselfronten nicht auf die Ränder auflaufen. Da das Regelungsziel jedoch genau mit dem Ausbalancieren in der Säulenmitte übereinstimmt und damit das Auflaufen der Trennfronten bei ausreichender Regelgüte verhindert wird, ist dies kein Ausschlusskriterium für Wellenmodelle. Es ist jedoch wichtig, dieses ungewollte Verhalten zu detektieren und entsprechend darauf zu reagieren.

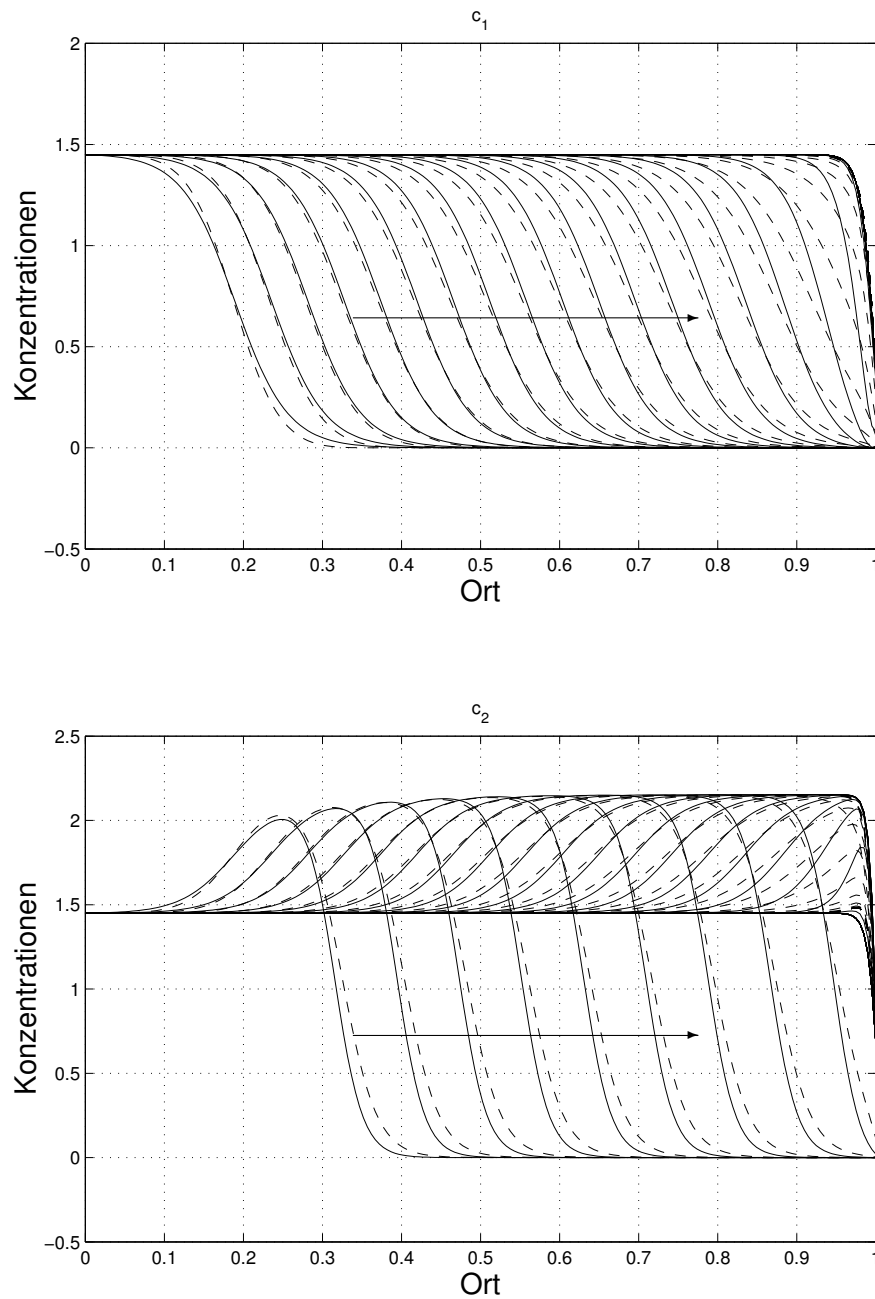


Abbildung 4.11: **Stoffaustausch-Wellenmodell Experiment 1 (Gegenstrom)**: Stoffaustausch-Wellenmodell (durchgezogen) und Gleichgewichtsmodell (gestrichelt). Wellen wandern von links nach rechts gegen den rechten Rand

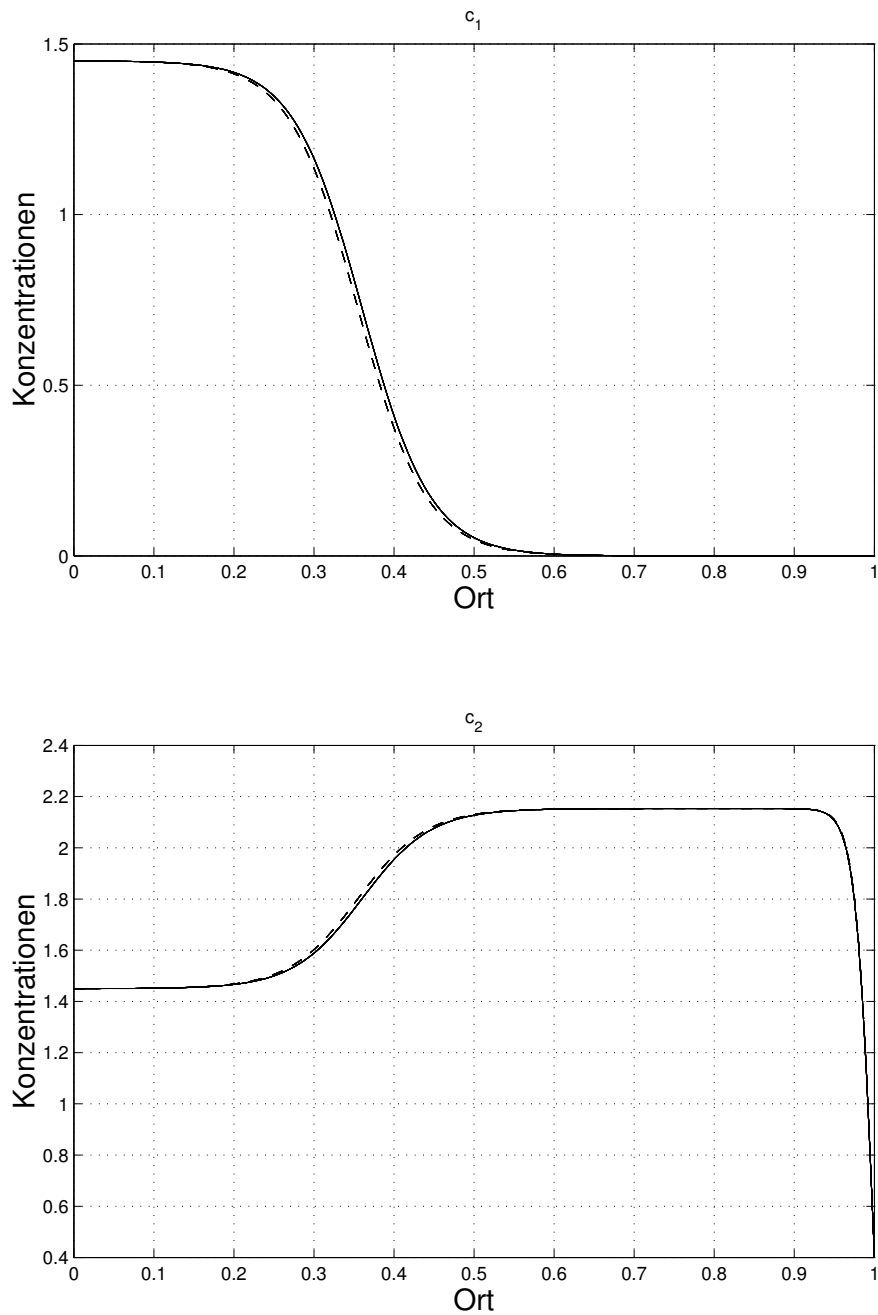


Abbildung 4.12: **Stoffaustausch-Wellenmodell Experiment 2 (Gegenstrom)**: Stoffaustausch-Wellenmodell (durchgezogen) und Gleichgewichtsmodell (gestrichelt). Stationärer Zustand mit ausbalancierter Welle in der Mitte der Säule

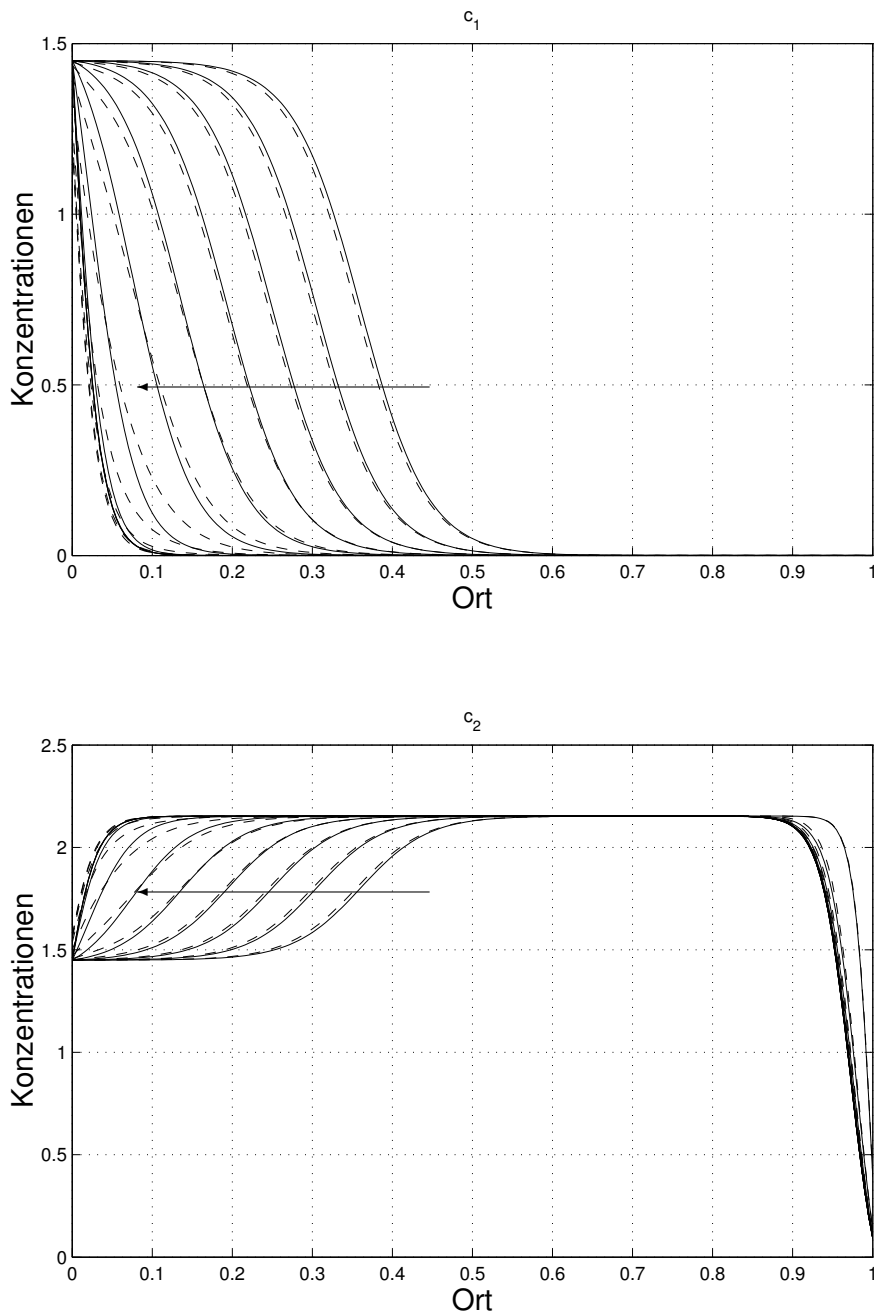


Abbildung 4.13: **Stoffaustausch-Wellenmodell Experiment 3 (Gegenstrom)**: Stoffaustausch-Wellenmodell (durchgezogen) und Gleichgewichtsmodell rigoros (gestrichelt). Ausgehend vom stationären Zustand wird der Fluidstrom verringert. Dadurch bewegen sich die Wellenfronten an den linken Rand.

Abbildung 4.12 zeigt eine solche ausbalancierte Welle in der Säulenmitte. Der stationäre Zustand des Wellenmodells entspricht dabei sehr genau dem des rigorosen Modells.

Ausgehend vom stationären Zustand aus Abbildung 4.12 wird dann in Experiment 3, dargestellt in Abbildung 4.13, der Fluidstrom verringert. Dadurch bewegen sich die Wellenfronten in Richtung linker Rand und werden dort aufgehalten.

In Abbildung 4.14 wird ohne festen Gegenstrom simuliert. Während des Experiments wird der Flüssigkeitsstrom sprunghaft erniedrigt. Deutlich ist zu erkennen, dass sowohl die Wellenformen als auch die sich einstellende Strömungsgeschwindigkeit korrekt von dem reduzierten Wellenmodell wiedergegeben wird.

4.5 Diskussion

Wellenmodelle in der hier vorgestellten Form sind in der Lage die geschilderten Störszenarien mit Störungen in der Zuflussmenge korrekt wiederzugeben. Das Verhalten bei Abweichungen in der Zuflusszusammensetzung bleibt zu untersuchen. Kritisch bei dieser Art Störung ist das gleichzeitige Auftreten von expansiven und kompressiven Wellen im Übergangsverhalten.

Für Seitenabzüge innerhalb von Wellenmodellabschnitten müssen die Wellenmodelle modifiziert werden. Hier stehen bislang noch weiterführende Untersuchungen aus. Ebenso ungeklärt ist die Herleitung eines Wellenmodelles für expansive Wellen und die Verkopplung der unterschiedlichen Modellteile.

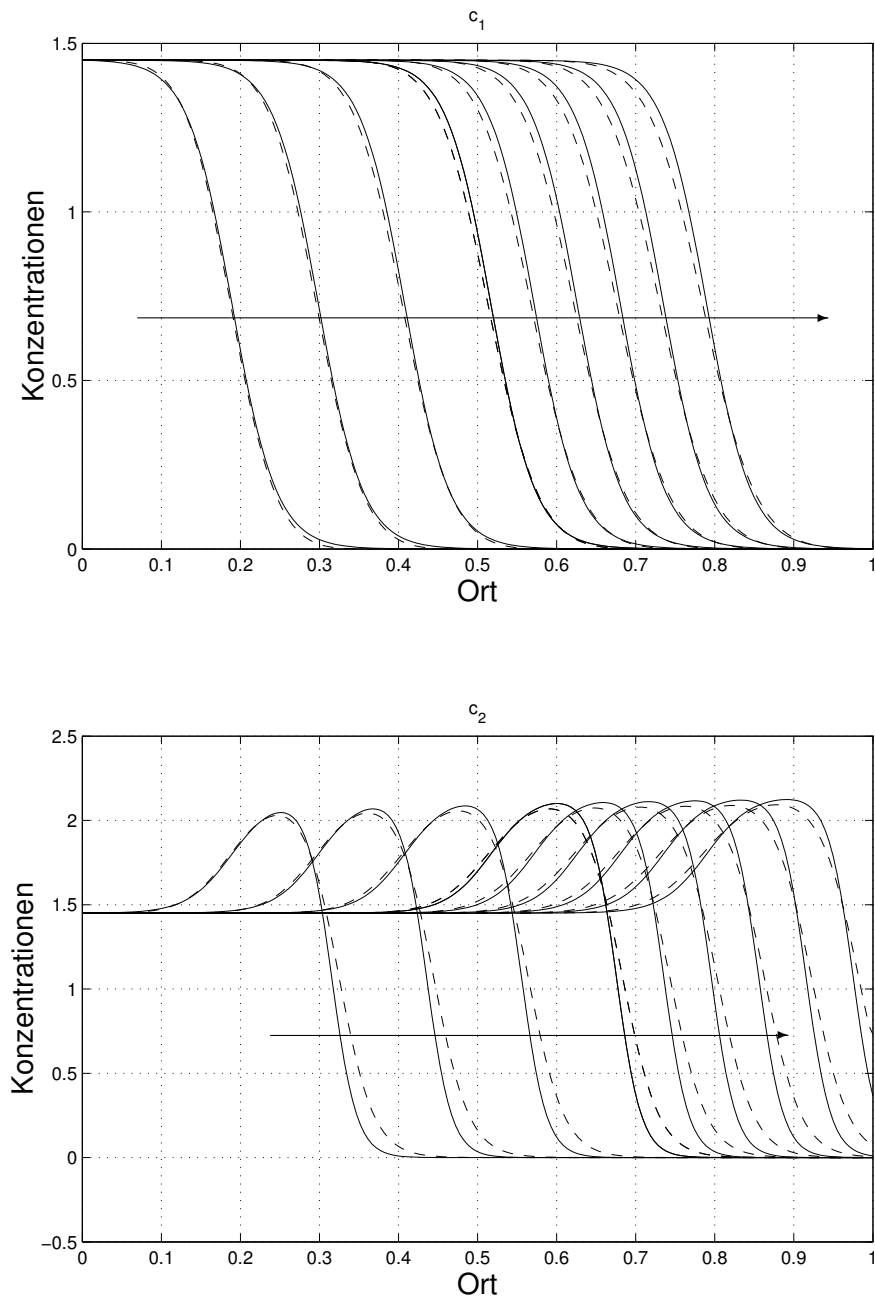


Abbildung 4.14: **Stoffaustausch-Wellenmodell Experiment 4 (Festbett)**: Stoffaustausch-Wellenmodell (durchgezogen) und Gleichgewichtsmodell (gestrichelt) jeweils als Festbett. Während der Simulation wird der Flüssigkeitsstrom sprunghaft erniedrigt

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

5.1 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde in drei Kapitel zuerst die numerische Infrastruktur für die NMPC großer Systeme eingeführt und experimentell validiert, dann auf die Modellklasse der Wellenmodelle übertragen und in Simulationen und Experimenten erprobt. In Kapitel 4 wurden Ansätze präsentiert, um die vorher hergeleiteten Methoden auch für die Chromatographie nutzbar zu machen.

Der gemeinsame Nenner dieser drei Kapitel ist das Ziel, die nichtlineare modellprädiktive Regelung in Echtzeit durchführen zu können.

Dazu wurde im Kapitel 2 die Destillationskolonne zur Drei-Komponenten-Destillation vorgestellt. Diese Anlage diente schon der Erprobung von einer Vielzahl von Regelungsmethoden und eignete sich darum sehr gut, nicht nur eine Machbarkeitsstudie durchzuführen, sondern auch die Leistungsfähigkeit der NMPC mit anderen Verfahren vergleichen zu können. Darum wurde auch in Kapitel 3 dieses System ausgewählt, die Modellreduktion für Systeme mit nichtlinearen Wellenphänomenen in die NMPC einzuführen. Wellenmodelle beschreiben nur die für die Regelung wesentliche Eigenschaft des Systems: Die Verschiebung der Trennfronten entlang der Kolonne oder der Trennsäule. So kann auf eine indirekte Regelung über Temperaturen oder Konzentration an diskreten Orten verzichtet werden und direkt das eigentliche Regelungsziel, die Trennfront an ihrer optimalen Stelle zu stabilisieren, verfolgt werden.

In allen drei Kapiteln musste als erstes ein geeignetes mathematisches Modell ausgewählt werden. Für chromatographische Prozesse wurden die Modelle eigens hergeleitet. In Kapitel 2 wurde ein Gleichgewichtsmodell für

einzelne Böden zur Optimierung verwendet und in Kapitel 3 die erwähnten Wellenmodelle. Für die Zustandsrekonstruktion wurde in Kapitel 2 ein erweitertes Kalmanfilter entworfen. Das Regelungskonzept in Kapitel 3 beinhaltet dagegen einen nichtlinearen Beobachter, bei dem ebenfalls ein Wellenmodell zugrunde liegt. Damit muss nur ein Parametervektor für die beiden Teilaufgaben Zustandsrekonstruktion und Optimierung identifiziert werden.

Der Optimierungsalgorithmus beider Modellklassen basiert auf dem in Kapitel 2 vorgestellte Mehrfachschießverfahren und wird mittels eines daran angepassten SQP-Verfahrens gelöst. Erst die speziell entworfene Startwertbehandlung und das sogenannte Echtzeit-Iterations-Schema ermöglichen die Einbettung in eine zyklisch durchgeführte Optimierung mit Feedback des realen Systems.

Die Machbarkeit und die Leistungsfähigkeit wurde für beide Modellklassen in der Simulation gezeigt und bei binären Gemischen für die Bodenmodelle in Kapitel 2 experimentell nachgewiesen. Das Wellenmodell wurde zusätzlich in Experimenten validiert und dessen Parameter an einer realen Anlage identifiziert. Für die Mehrstofftrennung mit mindestens drei Komponenten wurde die Funktionsfähigkeit aller Teilaufgaben des Regelungskonzeptes anhand eines ternären Gemisches in der Simulation gezeigt.

In Kapitel 4 wurde zuerst die Aufgabenstellungen in der Chromatographie, mögliche Anlagenverschaltungen aus mehreren Trennsäulen und die physikalischen Eigenschaften vorgestellt. Die Herausforderung bei chromatographischen Trennprozessen besteht in der Existenz von verschiedenen Wellenformen. Wo bei der Destillation nur Schockwellen relevant sind, müssen bei Festbettprozessen auch expansive Wellen berücksichtigt werden. Für Schockfronten wurden für chromatographische Prozesse analog zur Destillation geeignete Formansätze und daraus dynamische Modelle hergeleitet. Diese Modelle sind sowohl für echten Gegenstrom als auch für Festbettadsorber einsetzbar. Sie können somit die Grundlage für die Simulation von TMB und SMB bilden

Es besteht jedoch die Schwierigkeit, dass Änderungen in den Zuflusskonzentrationen weitere Wellen bilden, die mit den schon bestehenden interagieren. Die in dieser Arbeit vorgestellten Wellenmodelle sind unter bestimmten Voraussetzungen in der Lage diese Interaktionen korrekt wiederzugeben.

5.2 Ausblick

Die in Kapitel 2 vorgestellten Methoden und Konzepte sind in sich abgeschlossen und in der vorliegenden Form auf andere System übertragbar. Die Teilaufgaben des Regelungskonzeptes mit Wellenmodellen sind in Simulationen und in realen Experimenten validiert. Das Potential des Regelungsverfahrens basierend auf Wellenfronten wurde auch für Mehrstoffgemische gezeigt und kann zukünftig auch experimentell erprobt werden.

Die Modellierung von chromatographischen Trennprozessen basierend auf nichtlinearen Wellen steht noch am Anfang. Erst für kompressive Wellenanteile wurde ein Modell gefunden. Die Verknüpfung mit expansiven Anteilen muss erst untersucht werden, bevor diese Modellklasse in der Regelung Anwendung finden kann.

Eine weitere Herausforderung ist die teils sehr komplexe Verschaltung von einzelnen Trennsäulen in der Gesamtanlage. So muss der Einfluss eines Seitenabzuges auf die Wellenmodelle untersucht und modelliert werden. Auch die Verschaltung von verschiedenen Modellteilen ist die Aufgabe von zukünftigen Untersuchungen.

Literaturverzeichnis

- [1] F. Allgöwer, T.A. Badgwell, J.S. Qin, and J.B. Rawlings. Nonlinear predictive control and moving horizon estimation - an introductory overview. In P.M. Frank, editor, *Advances in Control, Highlights of ECC'99*, pages 391–449. Springer, 1999.
- [2] F. Allgöwer and J. Raisch. Multivariable controller design for an industrial distillation column. In N.K Nichols and D.H. Owens, editors, *The Mathematics of Control Theory*. Clarendon Press, Oxford, 1992.
- [3] L.S. Balasubramhanya and F.J. Doyle III. Nonlinear control of a high-purity distillation column using a traveling-wave models. *AIChE J.*, 43(3):703–714, 1997.
- [4] R. Baratti, A. Bertucco, A. Da Rold, and M. Morbidelli. *Chem. Eng. Sci.*, 53(20):3601–3612, 1998.
- [5] R. A. Bartlett, A. Wächter, and L. T. Biegler. Active set vs. interior point strategies for model predictive control. In *Amer. Contr. Conf.*, pages 4229–4233, Chicago, IL, 2000.
- [6] I. Bauer, H.G. Bock, and J.P. Schlöder. DAESOL – a BDF-code for the numerical solution of differential algebraic equations. Internal report, IWR, SFB 359, University of Heidelberg, 1999.
- [7] L. T. Biegler. Efficient solution of dynamic optimization and NMPC problems. In F. Allgöwer and A. Zheng, editors, *Nonlinear Predictive Control*, volume 26 of *Progress in Systems Theory*, pages 219–244, Basel, 2000. Birkhäuser.
- [8] T. Binder, L. Blank, H.G. Bock, R. Burlisch, W. Dahmen, M. Diehl, T. Kronseder, W. Marquardt, J.P. Schlöder, and O. von Stryk. Introduction to model based optimization of chemical processes on moving

- horizons. In M. Grötschel, S.O. Krumke, and J. Rambau, editors, *Online Optimization of Large Scale Systems: State of the Art*, pages 295–339. Springer, 2001.
- [9] H.G. Bock, I. Bauer, D.B. Leineweber, and J.P. Schlöder. Direct multiple shooting methods for control and optimization of dae in chemical engineering. In F. Keil, W. Mackens, H. Voß, and J. Werther, editors, *Scientific Computing in Chemical Engineering II*, volume 2, pages 2–18, Berlin, 1999. Springer.
- [10] D.B. Broughton and C.G. Gerhold. Continuous sorption process employing fixed bed of sorbent and moving inlets and outlets. US patent 2,985,589, 1961.
- [11] D.B. Broughton, R.W. Neuzil, J.M. Pharis, and C.C. Brearley. The parex process for recovering paraxylene. *Chem. Eng. Progress*, 66(9):70–75, 1970.
- [12] G. De Nicolao, L. Magni, and R. Scattolini. Stability and robustness of nonlinear receding horizon control. In F. Allgöwer and A. Zheng, editors, *Nonlinear Predictive Control*, pages 3–23. Birkhäuser, 2000.
- [13] M. Diehl. *Real-Time Optimization for Large Scale Nonlinear Processes*, volume 920 of *Fortschr.-Ber. VDI Reihe 8, Meß-, Steuerungs- und Regelungstechnik*. VDI Verlag, Düsseldorf, 2002. Download also at: <http://www.ub.uni-heidelberg.de/archiv/1659/>.
- [14] M. Diehl, H.G. Bock, J.P. Schlöder, R. Findeisen, Z. Nagy, and F. Allgöwer. Real-time optimization and nonlinear model predictive control of processes governed by differential-algebraic equations. *J. Proc. Contr.*, 12:577–585, 2002.
- [15] M. Diehl, R. Findeisen, S. Schwarzkopf, I. Uslu, F. Allgöwer, H.G. Bock, E.D. Gilles, and J.P. Schlöder. An efficient algorithm for nonlinear model predictive control of large-scale systems, part 1: Description of the methodology. *Automatisierungstechnik*, 50(12):7–17, 2002.
- [16] M. Diehl, R. Findeisen, S. Schwarzkopf, I. Uslu, F. Allgöwer, H.G. Bock, E.D. Gilles, and J.P. Schlöder. An efficient algorithm for nonlinear model predictive control of large-scale systems, part 2: Experimental evaluation for a distillation column. *Automatisierungstechnik*, 51(1):7–15, 2003.

- [17] M. Diehl, D.B. Leineweber, and A.S. Schäfer. MUSCOD-II Users' Manual. IWR-Preprint 2001-25, University of Heidelberg, 2001.
- [18] M. Diehl, I. Uslu, R. Findeisen, S. Schwarzkopf, F. Allgöwer, H.G. Bock, T. Bürner, E.D. Gilles, A. Kienle, J.P. Schlöder, and E. Stein. Real-time optimization of large scale process models: Nonlinear model predictive control of a high purity distillation column. In M. Grötschel, S.O. Krumke, and J. Rambau, editors, *Online Optimization of Large Scale Systems: State of the Art*, pages 363–384. Springer, 2001.
- [19] M. Diehl, I. Uslu, R. Findeisen, S. Schwarzkopf, F. Allgöwer, H.G. Bock, T. Bürner, E.D. Gilles, A. Kienle, J.P. Schlöder, and E. Stein. Real-time optimization of large scale process models: Nonlinear model predictive control of a high purity distillation column. In M. Grötschel, S.O. Krumke, and J. Rambau, editors, *Online Optimization of Large Scale Systems: State of the Art*, pages 363–384. Springer, 2001.
- [20] S. Dodds, G. Adams, W. Heath, and G. Goodwin. Application of an extended kalman filter to a binary distillation column model. In *6th IFAC Symp. on Dynamics and Control of Process Systems*, pages 497–501, Jeju Island, Korea, June 4-6 2001.
- [21] G Dunnebier, J Fricke, and K.U. Klatt. Optimal design and operation of simulated moving bed chromatographic reactors. *INDUSTRIAL & ENGINEERING CHEMISTRY RESEARCH*, 39(7):2290–2304, 2000.
- [22] G. Erdem, S. Abel, M. Morari, M. Mazzotti, M. Morbidelli, and J.H. Lee. Automatic Control of Simulated Moving Beds. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 43(2):405–421, 2004.
- [23] R. Findeisen and F. Allgöwer. The quasi-infinite horizon approach to nonlinear model predictive control. In A. Zinober and D. Owens, editors, *Nonlinear and Adaptive Control*, Lecture Notes in Control and Information Sciences, Berlin, 2001. Springer-Verlag.
- [24] R. Findeisen, F. Allgöwer, M. Diehl, H.G. Bock, J.P. Schlöder, and Z. Nagy. Efficient nonlinear model predictive control. In *6th International Conference on Chemical Process Control – CPC VI*, pages 454–460, 2000.

- [25] R. Findeisen, Z. Nagy, M. Diehl, F. Allgöwer, H.G. Bock, and J.P. Schlöder. Computational feasibility and performance of nonlinear model predictive control. In *Proc. 6st European Control Conference ECC'01*, pages 957–961, Porto, Portugal, 2001.
- [26] G. Ganetsos and P.E. Barker, editors. *Preparative and production scale chromatography*. Decker, New York, 1993.
- [27] M. Groebel, F. Allgöwer, M. Storz, and E. D. Gilles. Asymptotically exact I/O-linearization of an industrial distillation column. In *Proc. ACC' 95*, pages 2648–2652, 1995.
- [28] S. Gruener, S. Schwarzkopf, I. Uslu, A. Kienle, and E.D. Gilles. Nonlinear model predictive control of multicomponent distillation columns using wave models. In *ADCHEM2004: 7th International symposium on advanced control of chemical processes Hong Kong*, pages 231 – 236. International Federation of Automatic Control IFAC, Allgöwer, Frank; Gao, Furong, 2004.
- [29] S. Grüner. *Theory and application of nonlinear wave propagation phenomena in combined reaction/separation processes*. PhD thesis, Magdeburg, Univ., Fak. für Elektrotechnik und Informationstechnik, 2007.
- [30] S. Grüner, K.-D. Mohl, A. Kienle, E.D. Gilles, G. Fernholz, and M. Friedrich. Nonlinear controller design for an industrial reactive distillation column. In *6th IFAC Symp. on Dynamics and Control of Process Systems*, pages 125–130, Jejudo Island, Korea, June 4-6 2001.
- [31] G. Guiochon, D.G. Shirazi, A. Felinger, and A.M. Katti. *Fundamentals of Preparative and Nonlinear Chromatography*. Academic Press, Boston, 2 edition, 2006.
- [32] G. Guiochon, S.G. Shirazi, and A.M. Katti. *Fundamentals of preparative and nonlinear chromatography*. Academic Press, Boston, 1994.
- [33] M. Han and S. Park. Control of high-purity distillation column using a nonlinear wave theory. *AIChE J.*, 39(5):787–796, 1993.
- [34] A. Helbig, O. Abel, and W. Marquardt. Model predictive control for on-line optimization of semi-batch reactors. In *Amer. Contr. Conf.*, pages 1695–1699, Philadelphia, 1998.

- [35] F.G. Helfferich. Non-linear waves in chromatography III. multicomponent langmuir and langmuir-like systems. *Journal of Chromatography A*, 768(2):169–205, 1997.
- [36] F.G. Helfferich and P.W. Carr. Non-linear waves in chromatography : I. waves, shocks, and shapes. *Journal of Chromatography A*, 629(2):97–122, 1993.
- [37] F.G. Helfferich and R.D. Whitley. Non-linear waves in chromatography II. wave interference and coherence in multicomponent systems. *Journal of Chromatography A*, 734(1):7–47, 1996.
- [38] A. Kienle. *Nichtlineare Wellenphänomene und Stabilität stationärer Zustände in Destillationskolonnen*. VDI Fortschrittberichte, 1997.
- [39] A. Kienle. Low-order dynamic models for ideal multicomponent distillation processes using nonlinear wave propagation theory. *Chem. Eng. Sci.*, 55:1817–1828, 2000.
- [40] K.U. Klatt, F. Hanisch, and G. Dünnebier. Model-based control of a simulated moving bed chromatographic process for the separation of fructose and glucose. *Journal of Process Control*, 12(2):203–219, 2002.
- [41] E. Klein, A. Kienle, and J. Raisch. Synthesizing a supervisory control scheme for the start-up procedure of a distillation column - an approach based on approximating continuous dynamics by DES models. In N.T. Koussoulas and P.Groumpos, editors, *Large Scale Systems: theory and Applications - 8th IFAC Symposium*, pages 716–721. 1998.
- [42] A. Kröner, P. Holl, W. Marquardt, and E.D. Gilles. Diva - an open architecture for dynamic simulations. *Comput. Chem. Engng.*, 14:1289–1295, 1990.
- [43] L. Lang. *Prozeßführung gekoppelter Mehrstoffkolonnen am Beispiel einer Destillationskolonne*. Universität Stuttgart, 1991.
- [44] L. Lang and E.D. Gilles. Nonlinear observers for distillation columns. *Computers chem. Engng.*, 14(11):1297–1301, 1990.
- [45] J.H. Lee and B. Cooley. Recent advances in model predictive control and other related areas. In J.C. Kantor, C.E. Garcia, and B. Carnahan,

- editors, *Fifth International Conference on Chemical Process Control – CPC V*, pages 201–216. American Institute of Chemical Engineers, 1996.
- [46] J.H. Lee, S. Natarajan, and K.S. Lee. A model-based predictive control approach to repetitive control of continuous processes with periodic operations. *Journal of Process Control*, 11(2):195–207, 2001.
- [47] D.B. Leineweber. *Efficient reduced SQP methods for the optimization of chemical processes described by large sparse DAE models*, volume 613 of *Fortschr.-Ber. VDI Reihe 3*. VDI verlag, Düsseldorf, 1999.
- [48] D.B. Leineweber, I. Bauer, H.G. Bock, and J.P. Schlöder. An efficient multiple shooting based reduced SQP strategy for large-scale dynamic process optimization. Part I: theoretical aspects. *Computers & Chemical Engineering*, 27(2):157–166, 2003.
- [49] D.B. Leineweber, A. Schäfer, H.G. Bock, and J.P. Schlöder. An efficient multiple shooting based reduced SQP strategy for large-scale dynamic process optimization: Part II: Software aspects and applications. *Computers & Chemical Engineering*, 27(2):167–174, 2003.
- [50] W.L. Luyben. Profile position control of distillation columns with sharp profiles. *AIChE J.*, 18(1):238–240, 1973.
- [51] T. Mallmann, B. D. Burris, Z. Ma, and N. H. L. Wang. Standing wave design of nonlinear SMB systems for fructose purification. *AIChE Journal*, 44(12):2628–2646, 1998.
- [52] W. Marquardt. Traveling waves in chemical processes. *Int. Chem. Engng.*, 30:585–606, 1990.
- [53] D.Q. Mayne, J.B. Rawlings, C.V. Rao, and P.O.M. Scokaert. Constrained model predictive control: stability and optimality. *Automatica*, 26(6):789–814, 2000.
- [54] M. Mazzotti, G. Storti, and M. Morbidelli. Shock layer analysis in multicomponent chromatography and countercurrent adsorption. *Chemical Engineering Science*, 49(9):1337–1355, 1994.
- [55] M. Mazzotti, G. Storti, and M. Morbidelli. Optimal operation of simulated moving bed units for nonlinear chromatographic separations. *Journal of Chromatography A*, 769(1):3–24, 1997.

- [56] T. Mejdell and S. Skogestad. Composition estimator in a pilot-plant distillation column using multiple temperatures. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 30:2555–2564, 1991.
- [57] T. Mejdell and S. Skogestad. Estimation of distillation compositions from multiple temperature measurements using partial-least-squares regression. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 30:2543–2555, 1991.
- [58] C.F. Moore. *Practical Distillation Control*, chapter 8. Selection of controlled and manipulated variables, pages 140–177. Van Nostrand Reinhold, 1992.
- [59] M. Morari and J.H. Lee. Model predictive control: Past, present and future. *Comput. Chem. Engng.*, 23(4/5):667–682, 1999.
- [60] Z. Nagy, S. Agachi, F. Allgöwer, R. Findeisen, M. Diehl, H.G. Bock, and J.P. Schlöder. The tradeoff between modelling complexity and real-time feasibility in nonlinear model predictive control. Proceedings of the 6th World Multiconference on Systemics, Cybernetics and Informatics, SCI, Orlando, Fl., 2002.
- [61] Z. Nagy, R. Findeisen, M. Diehl, F. Allgöwer, H.G. Bock, S. Agachi, J.P. Schlöder, and D. Leineweber. Real-time feasibility of nonlinear predictive control for large scale processes – a case study. In *Amer. Contr. Conf.*, pages 4249–4254, Chicago, 2000.
- [62] Numerical Algorithms Group. The NAG Fortran Library. <http://www.nag.co.uk/>.
- [63] S.J. Qin and T.A. Badgwell. An overview of nonlinear model predictive control applications. In F. Allgöwer and A. Zheng, editors, *Nonlinear Predictive Control*, pages 369–393. Birkhäuser, 2000.
- [64] S.J. Qin and T.A. Badgwell. Review of nonlinear model predictive control applications. In B. Kouvaritakis and M. Cannon, editors, *Nonlinear model predictive control: theory and application*, pages 3–32, London, 2001. The Institute of Electrical Engineers.
- [65] E. Quintero-Marmol, W.L. Luyben, and C. Georgakis. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 30:1870–1880, 1991.

- [66] A. Rehm, F. Allgöwer, and Gilles E. D. Nichtlineare reduzierte Modellbildung und nichtlineare H_∞ -Regelung einer Zweistoffdestillationskolonne. In W. Jäger K.-H. Hoffmann, editor, *Mathematik: Schlüsseltechnologie für die Zukunft*, pages 477–489. Springer-Verlag, Berlin, 1997.
- [67] B. Retzbach. *Mathematische Modelle von Destillationskolonnen zur Synthese von Regelungskonzepten*. VDI Verlag, Düsseldorf, 1986.
- [68] H.-K. Rhee, N. R. Amundson, and R. P. Lewis. Shock layer analysis of adiabatic adsorption in fixed beds with axial dispersion. *Chemical Engineering Journal*, 23:167–176, 1982.
- [69] H.-K. Rhee and N.R. Amundson. Shock layer in two solute chromatography: effect of axial dispersion and mass transfer. *Chemical Engineering Science*, 29(10):2049–2060, 1974.
- [70] L.O. Santos, N.M.C de Oliveira, and L.T. Biegler. Reliable and efficient optimization strategies for nonlinear model predictive control. In *Proc. Fourth IFAC Symposium DYCORN+ '95*, pages 33–38, Oxford, 1995. Elsevier Science.
- [71] H. Schramm. *Neue Betriebsweisen und Prozessführungskonzepte für chromatographische Prozesse mit simuliertem Gegenstrom*. Number 12 in Forschungsberichte aus dem Max-Planck-Institut für Dynamik komplexer technischer Systeme. 2005.
- [72] H. Schramm, A. Kienle, M. Kaspereit, and A. Seidel-Morgenstern. Improved operation of simulated moving bed processes through cyclic modulation of feed flow and feed concentration. *Chemical Engineering Science*, 58(23-24):5217–5227, 2003.
- [73] M. Schulte, J.N. Kinkel, R. M. Nicoud, and F. Charton. Simulierte Gegenstromchromatographie - eine effiziente Technik zur Herstellung optisch aktiver Verbindungen im industriellen Maßstab. *Chemie Ingenieur Technik*, 68(6):670–683, 1996.
- [74] A. Seidel-Morgenstern. *Mathematische Modellierung der präparativen Flüssigchromatographie*. Deutscher Universitätsverlag, Wiesbaden, 1995.

- [75] J. Shin, H. Seo, M. Han, and S. Park. A nonlinear profile observer using tray temperatures for high-purity distillation column control. *Chem. Eng. Sci.*, 55:807–816, 2000.
- [76] F. Silberberger. *Modellbildung, Simulation und Regelung einer Extraktiv-Destillationskolonne*. Diss. 1979/790, 1978.
- [77] S. Skogestad. Dynamics and control of distillation columns - a critical survey. *Modeling, Identification and Control*, 18:177–217, 2000.
- [78] E. Stein, A. Kienle, and E.D. Gilles. Dynamic optimization of multi-component distillation processes. In *Proc. of Scientific Computing in Chemical Engineering II*, May 26-28, 1999.
- [79] M.J. Tenny, J.B. Rawlings, and R. Bindlish. Feasible real-time nonlinear model predictive control. In *6th International Conference on Chemical Process Control – CPC VI*, AIChE Symposium Series, 2001.
- [80] C.-C. Yu and W.L. Luyben. Use of multiple temperatures for the control of multicomponent distillation columns. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 23:590–597, 1984.