

Modellbasierte Prozessführung von Chromatographieprozessen mit simuliertem Gegenstrom

Von der Fakultät Verfahrenstechnik und Technische Kybernetik
der Universität Stuttgart zur Erlangung der Würde eines
Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.) genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von Ernst Kloppenburg aus Tübingen

Hauptberichter: Prof. Dr.-Ing. Dr. h. c. mult. E. D. Gilles

Mitberichter: Prof. Dr.-Ing. A. Seidel-Morgenstern

Tag der mündlichen Prüfung: 27. 6. 2000

Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik
der Universität Stuttgart

2000

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik der Universität Stuttgart. Die durchgeführten Untersuchungen wurden von der VW-Stiftung im Rahmen des Schwerpunkt-Programms „Modellierung und Simulation komplexer Systeme in der chemischen Verfahrenstechnik“ finanziert.

Dem Institutsleiter, Herrn Prof. Dr.-Ing. Dr. h. c. mult. E. D. Gilles, danke ich für die Ermöglichung meiner Arbeit und die Schaffung eines entsprechenden Rahmens am Institut. Hilfreich war u. A. die große Breite der am Institut repräsentierten Arbeitsgebiete, ohne dass es dabei an Tiefe fehlte. Für die Übernahme und die schnelle Anfertigung des Mitberichts danke ich Herrn Prof. Dr.-Ing. A. Seidel-Morgenstern. Herrn Prof. Dr.-Ing. M. Zeitz bin ich dankbar für seine Unterstützung insbesondere in der Phase der Erstellung der Dissertation.

Weiterhin gilt mein Dank Herrn Dr. Götz Lauschke, der die Kooperation mit dem Institut Français du Pétrole (IFP) in Solaize initiiert hat, sowie den Kollegen beim IFP, die meine Arbeit durch Informationsaustausch und fruchtbare Diskussionen gefördert haben.

Und schließlich möchte ich mich bei meinen ehemaligen Kolleginnen und Kollegen für ihre Diskussions- und Hilfsbereitschaft sowie für ihren Einsatz bei gemeinsamen Projekten bedanken.

Stuttgart, Juli 2000

E. Kloppenburg

Wie einer nackt aus seiner Mutter Leib gekommen ist, so fährt er auch wieder dahin, wie er gekommen ist, und trotz seiner Mühe nimmt er nichts mit sich in seiner Hand, wenn er dahinfährt.

Die Bibel, Prediger 5

Inhaltsverzeichnis

Vorwort	III
Inhaltsverzeichnis	VI
Nomenklatur	VII
Zusammenfassung	X
1 Einführung	1
2 Modellierung von SMB-Prozessen	6
2.1 Funktionsweise von SMB-Prozessen	7
2.2 SMB-Modell	11
2.2.1 Aufbau des SMB-Anlagenmodells	11
2.2.2 Modell der Einzelsäule	12
2.2.2.1 Modellierungsannahmen	12
2.2.2.2 Modellgleichungen	14
2.3 TMB-Modell	18
2.3.1 Aufbau des TMB-Anlagenmodells	18
2.3.2 Modell eines TMB-Abschnitts	18
2.3.3 Analogie mit SMB-Modell	20
2.4 Performance-Maße	21
2.5 Modellparameter für SMB- und TMB-Modell	22
2.6 Vereinfachte Modelle	22
2.7 Modifizierte Randbedingungen für das TMB-Modell	23
2.8 Zusammenfassung	25
3 Simulation und Prozessverhalten	26
3.1 TMB-Prozess	26
3.2 SMB-Prozess	29
3.3 Vergleich SMB / TMB	29
3.4 Zusammenfassung	32
4 Prozessführungsaufgabe	34
5 Zustandsschätzung	38
5.1 Messverfahren	38
5.2 Lösungsansätze zur Zustandsschätzung	42

5.3	Stationäres erweitertes Kalman-Bucy-Filter	43
5.4	Simulationsergebnisse	48
5.5	Zusammenfassung	50
6	Asymptotisch exakte Eingangs/Ausgangs-Linearisierung	51
6.1	Herleitung einer Zustandsrückführung	52
6.2	Rückführung geschätzter Zustände	55
6.3	Zusätzliche PI-Regler	57
6.4	Simulationsergebnisse	57
6.4.1	SMB-Prozess mit nominellen Parametern	58
6.4.2	Störung des umlaufenden Volumenstroms	58
6.4.3	Änderung der Feed-Zusammensetzung	61
6.5	Zusammenfassung	64
7	Modellprädiktive Regelung	65
7.1	Zeitlicher Ablauf des Regelalgorithmus	66
7.2	Optimalsteuerungsberechnung in Echtzeit	68
7.3	Formulierung des Optimierungsproblems	70
7.4	Simulationsergebnisse	73
7.4.1	Änderung der Feed-Zusammensetzung	73
7.4.2	Sollwert-Sprung	74
7.4.3	Sollwert-Sprung mit Greifen einer Stellgrößenbeschränkung	80
7.5	Zusammenfassung	80
8	Neue SMB-Betriebsweise mit zyklisch variierten Volumenströmen	83
8.1	Zeitlich variable Volumenströme – Motivation	84
8.2	Direkte Berechnung zyklischer Zustandsverläufe	85
8.3	Berechnung optimaler zyklischer Verläufe der Volumenströme	86
8.4	Ergebnisse	88
8.5	Zusammenfassung	90
A	Adsorptionsgleichgewicht mit konstanten Selektivitäten	92
B	Ortsdiskretisierung mit der Finite-Volumen-Methode	94
C	Ortsdiskretisierung mit Orthogonaler Kollokation	100
D	Bedeutung einer semi-expliziten Modellformulierung	103
E	Modellparameter für SMB- und TMB-Modell	105
	Literaturverzeichnis	106

Nomenklatur

a_{PX}	Ausbeute an Paraxylol im Extrakt-Strom	[1]
A_S	Säulen-Querschnitt	[cm ²]
d	Störungen	
D_B	Dispersions-Koeffizient Bulk	[cm ² /min]
$g_{B,i}$	Massenbruch der Komponente i im Bulk-Fluid	[kg/kg]
$g_{P,i}$	Massenbruch der Komponente i im Poren-Fluid	[kg/kg]
$g_{A,i}$	Massenbruch der Komponente i im Adsorbat	[kg/kg]
$g_{K,i}$	Massenbruch der Komponente i in Poren-Fluid und Adsorbat zusammen	[kg/kg]
$J_{a,i}$	Mit dem Adsorbens transportierter Massenstrom der Komponente i im Bulk	[kg/min]
$\dot{j}_{a,i}$	Mit dem Adsorbens transportierter flächenbezogener Massenstrom der Komponente i im Bulk	[kg/(min cm ²)]
$\tilde{j}_{a,i}$	Mit dem Adsorbens transportierter flächenbezogener Volumenstrom der Komponente i im Bulk	[cm ³ /(min cm ²)]
$J_{k,i}$	Konvektiver Massenstrom der Komponente i im Bulk	[kg/min]
$\dot{j}_{k,i}$	flächenbezogener konvektiver Massenstrom der Komponente i im Bulk	[kg/(min cm ²)]
$\tilde{j}_{k,i}$	flächenbezogener konvektiver Volumenstrom der Komponente i im Bulk	[cm ³ /(min cm ²)]
$J_{d,i}$	Massenstrom der Komponente i durch Dispersion im Bulk	[kg/min]
$\dot{j}_{d,i}$	flächenbezogener Massenstrom der Komponente i durch Dispersion im Bulk	[kg/(min cm ²)]
$\tilde{j}_{d,i}$	flächenbezogener Volumenstrom der Komponente i durch Dispersion im Bulk	[cm ³ /(min cm ²)]
$J_{f,i}$	Stoffaustausch: Massenstrom der Komponente i	[kg/min]
$\dot{j}_{f,i}$	Stoffaustausch: flächenbezogener Massenstrom der Komponente i	[kg/(min cm ²)]
$\tilde{j}_{f,i}$	Stoffaustausch: flächenbezogener Volumenstrom der Komponente i	[cm ³ /(min cm ²)]

l_k	Linker Rand der Teilintervalle in der Finite-Volumen-Methode	
K_F	Filter-Korrekturmatrix	
L_S	Länge einer SMB-Säule	[cm]
L_T	Länge eines TMB-Abschnitts	[cm]
n_c	Anzahl der Komponenten	[1]
p	Anlagenparameter	
q_B	Bulk-Volumenstrom	[ml/min]
q_{Ex}	Extrakt-Volumenstrom	[ml/min]
q_{Fe}	Feed-Volumenstrom	[ml/min]
q_{Ra}	Raffinat-Volumenstrom	[ml/min]
q_{Lsg}	Volumenstrom zugeführtes Lösungsmittel	[ml/min]
q_{Z1}	Volumenstrom in SMB-Abschnitt I (Zone I)	[ml/min]
r	Korrekturterm des Zustandsschätzers	
r_{Ex}	Paraxylol-Reinheit im Extrakt	[1]
R_P	Partikel-Radius	[cm]
t	Zeit	[min]
u	Strömungsgeschwindigkeit Adsorbens	[cm/min]
u_i	Stellgröße	
v	Strömungsgeschwindigkeit Bulk-Fluid	[cm/min]
v_j	Neue Eingänge bei Eingangs/Ausgangs-Linearisierung	
w_j	Regelgröße	
$w_{j,d}$	Sollwert	
x	dynamische Zustandsgrößen	
z	algebraische Zustandsgrößen	
z_k	Gitterpunkte für Ortsdiskretisierung	
α_{i,n_c}	Selektivität der Komponente i in Bezug auf Komponente n_c	[1]
β^*	Stoffübergangs-Koeffizient	[cm/min]
ϵ_A	Volumenanteil des Adsorbats bezogen auf das Partikelvolumen	[1]
ϵ_P	Volumenanteil des Porenfluids bezogen auf das Partikelvolumen	[1]
ϵ_S	Volumenanteil Adsorbens-Gerüst bezogen auf das Partikelvolumen	[1]
ψ	Leerraumanteil der Schüttung	[1]
$\rho_{B,i}$	Partialdichte der Komponente i im Bulk-Fluid	[kg/cm ³]
$\rho_{P,i}$	Partialdichte der Komponente i im Poren-Fluid	[kg/cm ³]

$\rho_{A,i}$	Partialdichte der Komponente i im Adsorbat	[kg/cm ³]
$\rho_{K,i}$	Partialdichte der Komponente i in Poren-Fluid und Adsorbat zusammen	[kg/cm ³]
ρ_G	Gemischdichte	[kg/cm ³]
ξ	Gesamter Anlagenzustand mit dynamischen und algebraischen Größen	
$\bar{\xi}$	Örtlich und zeitlich diskretisierter Anlagenzustand	
ΔT_A	Abtastintervall der Messstellen	[min]
ΔT_{Opt}	Zeithorizont Optimalsteuerungsberechnung	[min]
ΔT_R	Regelintervall prädiktive Regelung	[min]
ΔT_S	Schaltintervall SMB	[min]

Zusammenfassung

Chromatographieprozesse mit simuliertem Gegenstrom – auch bezeichnet als SMB-Prozesse von engl. „simulated moving bed“ – werden in der Verfahrenstechnik und in der Bioverfahrenstechnik zur kontinuierlichen chromatographischen Trennung unterschiedlicher Stoffgemische eingesetzt. Die Funktionsweise von SMB-Prozessen beruht darauf, dass durch periodische Umschaltvorgänge ein Gegenstrom zwischen einem Adsorbens einerseits und dem Fluid mit den zu trennenden Komponenten andererseits näherungsweise realisiert („simuliert“) wird. Um im Betrieb die gewünschten Werte von Produkt-Reinheit und -Ausbeute zuverlässig einhalten zu können, ist wegen der starken Verkopplungen der verschiedenen Anlagenteile eine anlagenweite Prozessführung erforderlich.

Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist die Entwicklung modellgestützter Regelungsverfahren für SMB-Prozesse und – als Voraussetzung dafür – die Entwicklung eines Zustandsschätzers zur Online-Bestimmung des örtlich verteilten Anlagenzustands. Neben diesen Untersuchungen zur Regelung wird eine neue Betriebsweise für SMB-Anlagen vorgeschlagen und mit Hilfe numerischer Optimierungsverfahren untersucht. Diese Betriebsweise mit periodisch variierten Betriebsparametern ermöglicht eine nennenswerte Lösungsmiteinsparung und damit eine deutliche Reduktion der Betriebskosten. Als Beispielprozess für die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen dient die Abtrennung von Paraxylol aus einem Gemisch von C_8 -Aromaten im Lösungsmittel Toluol.

Grundlage der Untersuchungen zur Prozessführung bilden zwei unterschiedlich genaue mathematische Modelle des Systems. Es wird ein detailliertes Anlagenmodell des SMB-Prozesses entwickelt, das insbesondere das zeitdiskrete Weiterschalten der Zuflüsse und Abzüge berücksichtigt. Dieses Anlagenmodell ist ein verkoppeltes System von partiellen Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen mit zeitabhängigen Modellumschaltungen. Nach einer Ortsdiskretisierung mit der Finite-Volumen-Methode dient es zur Prozesssimulation in DIVA und zur Überprüfung der entwickelten Prozessführungskonzepte. Für den Reglerentwurf und die Entwicklung eines Zustandsschätzers wird ein rein kontinuierliches vereinfachtes Modell des SMB-Prozesses verwendet – das Modell des hypothetischen TMB-Prozesses mit einem *echten* Gegenstrom zwischen Fluid und Adsorbens (TMB von engl. „true moving bed“).

Zur näherungsweisen Online-Bestimmung des SMB-Anlagenzustands wird auf der Basis des ortsdiskretisierten TMB-Modells ein stationäres erweitertes Kalman-Bucy-Filter entwickelt.

Dabei müssen die prinzipiellen Unterschiede zwischen SMB- und TMB-Modell berücksichtigt werden. Mit diesem Zustandsschätzer kann aus wenigen punktförmigen Messungen der gesamte Anlagenzustand für die Realisierung einer Regelung bestimmt werden.

SMB-Prozesse zeigen ein nichtlineares Verhalten und die zu regelnden Prozessgrößen sind stark miteinander verkoppelt. Es wird daher die Anwendung von zwei neueren nichtlinearen Mehrgrößenregelverfahren untersucht. Zum einen wird eine Regelung basierend auf dem Verfahren der asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung entworfen. Dabei handelt es sich um eine nichtlineare Rückführung geschätzter Systemzustände. Als Entwurfsmodell dient das örtlich diskretisierte TMB-Modell. In Simulationsstudien für unterschiedliche Störszenarien wird gezeigt, dass mit dem Regler Reinheit und Ausbeute des SMB-Prozesses auf den gewünschten Werten gehalten werden können.

Als zweites Regelungsverfahren wird eine modellprädiktive Regelung betrachtet, eine repetierende Online-Optimierung der Steuergrößen des Systems mit Rückkoppelung über die Schätzung des Systemzustands. Hier können, neben Sollwerten für Produkt-Reinheit und -Ausbeute, auch Beschränkungen der Volumenströme in der SMB-Anlage explizit berücksichtigt werden. Gleichzeitig erfolgt eine Minimierung des Lösungsmittelverbrauchs. Trotz der hohen Systemordnung kann eine Echtzeitfähigkeit des Regelalgorithmus erreicht werden. Mit diesen Eigenschaften eignet sich die modellprädiktive Regelung besonders gut für die Anwendung an einer SMB-Anlage, was durch die Simulationsergebnisse bestätigt wird.

Zusätzlich zu den Arbeiten zur Regelung wird eine neue Betriebsweise für SMB-Prozesse entwickelt. Dabei wird die herkömmliche Art des Betriebs mit zeitlich konstanten oder nur langsam veränderlichen Volumenströmen in der Anlage verlassen. Statt dessen werden die Volumenströme innerhalb der SMB-Schaltintervalle sehr stark variiert. Zur Berechnung optimaler zyklischer Zeitverläufe der Volumenströme wird ein hochdimensionales nichtlineares Optimierungsproblem aufgestellt und numerisch gelöst. Die Ergebnisse zeigen, dass die neue Betriebsweise ein großes Potenzial zur Prozessverbesserung im Sinne einer Lösungsmittelsparung oder einer Steigerung der Produkt-Reinheit bzw. -Ausbeute bietet.

Kapitel 1

Einführung

In den Prozessketten zur Herstellung verfahrenstechnischer oder bioverfahrenstechnischer Produkte spielen neben Syntheseschritten auch Stofftrennprozesse eine wichtige Rolle. Häufig eingesetzte Verfahren sind hier die Destillation sowie chromatographische Prozesse. Unter diesen nehmen Chromatographieprozesse mit simuliertem Gegenstrom – nach engl. „simulated moving bed“ auch als SMB-Prozesse bezeichnet – eine besondere Stellung ein, da sie im Gegensatz zu den weiter verbreiteten Batch-Chromatographieprozessen eine *kontinuierliche* Stofftrennung ermöglichen. Typische Anwendungen sind die Trennung von C₈-Aromaten in der Petrochemie, Glukose-Fruktose-Trennung in der Lebensmittelindustrie oder Enantiomeren-Separation in der Biotechnologie [9, 10, 29, 67, 68, 70].

SMB-Prozess

Das Grundprinzip von SMB-Prozessen ist ein Gegenstrom zwischen dem Fluid mit den zu trennenden Komponenten einerseits und dem Adsorbens andererseits: an einer Reihe im Kreis verschalteter Chromatographiesäulen, Abb. 1.1, werden die Zufluss- und Abzugsstellen in festen Zeitabständen zyklisch um eine Säule in Strömungsrichtung des Fluids weitergeschaltet; dies entspricht einem Transport des Adsorbens in entgegengesetzter Richtung, es wird also auf diese Weise ein Gegenstrom zwischen Fluid und Adsorbens „simuliert“. Bei geeignet eingestellten Betriebsparametern entstehen dann in der Anlage Konzentrationsprofile, die in etwa formkonstant sind und sich zyklisch durch die Anlage bewegen. An den mitbewegten Abzügen für Extrakt und Raffinat stehen als Produkte kontinuierlich die voneinander getrennten Komponenten des Feedgemischs zur Verfügung.

Der apparative Aufwand ist bei einem SMB-Prozess größer als bei einem vergleichbaren Batch-Chromatographieprozess, da eine größere Anzahl an Säulen erforderlich ist und jeder Zufluss bzw. Abzug mit jeder Säule verbunden werden muss. Dem gegenüber steht ein wesentlich geringerer Bedarf an Adsorbens für gleichen Produktdurchsatz, geringere Verdünnung der Produkte und gegebenenfalls eine vereinfachte Integration mit Upstream- und Downstream-Prozessen aufgrund der kontinuierlichen Betriebsweise [70].

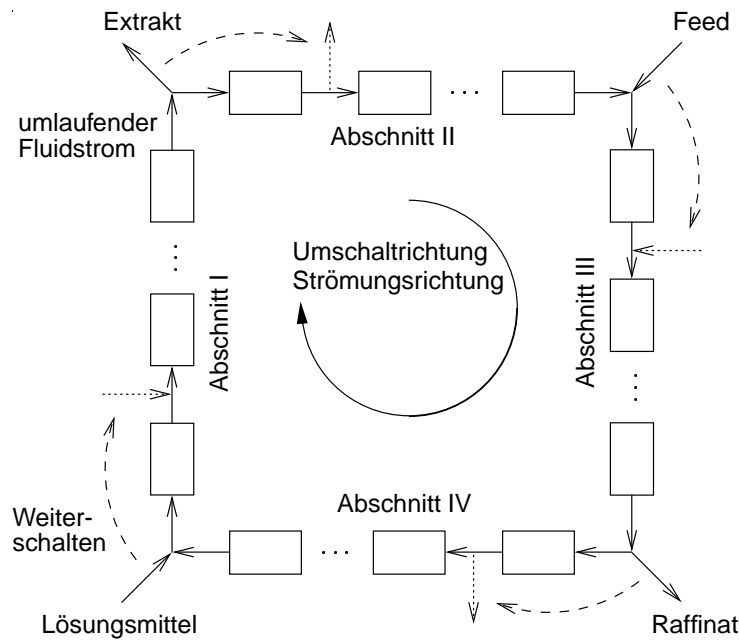


Abbildung 1.1: Anlagenschaltung eines SMB-Prozesses aus einzelnen Chromatographiesäulen. Die Zuflüsse und Abzüge für Feed und Lösungsmittel bzw. Extrakt und Raffinat werden in festen Zeitabständen um eine Säule in Strömungsrichtung des umlaufenden Fluids weitergeschaltet (gestrichelte Pfeile). Dadurch wird näherungsweise ein Gegenstrom zwischen Fluid und Adsorbens realisiert.

Zielgrößen für den Betrieb eines SMB-Prozesses sind Reinheit (Qualität) und Ausbeute der Produkte bei gleichzeitiger Berücksichtigung von Wirtschaftlichkeits-Kriterien. Diese betreffen insbesondere den Lösungsmittelverbrauch. Mittels Auslegungsrechnungen werden aufgrund der entsprechenden Anforderungen und Produkt-Spezifikationen die Anlagendimensionierung und geeignete Werte für die Betriebsparameter bestimmt [13, 60]. Betriebsparameter sind die Größe der Zulauf- und Abzugsströme, der umlaufende Fluidstrom sowie die Länge des Weiter-schaltintervalls.

Im praktischen Betrieb ergeben sich in jedem Fall Abweichungen von diesem nominalen Betriebspunkt und in der Folge werden die Produktspezifikationen nicht mehr eingehalten. Mögliche Gründe hierfür sind Unterschiede zwischen Auslegungsmodell und realer Anlage, Degeneration des Adsorbens im Laufe der Zeit, ungenaue Realisierung der Soll-Volumenströme durch nicht durchflussgeregelte Pumpen sowie Störungen in der Zulaufzusammensetzung oder andere äußere Einflüsse.

Prozessführung

Um die Anforderungen, die der Auslegung zugrunde liegen, auch im Betrieb zu erfüllen, d. h. eine gleichbleibende Qualität und Ausbeute der Produkte sicherzustellen, ist eine Prozessführung durch geeignete Modifikation der Betriebsparameter abhängig vom Prozesszustand erforder-

lich. SMB-Prozesse zeigen wegen der internen Rückführung durch die zyklische Verschaltung und wegen der gegenseitigen Beeinflussung der Komponenten über das Bindungsverhalten am Adsorbens ein komplexes dynamisches Verhalten. Daher ist es nicht möglich, über einzelne Betriebsparameter bestimmte Zielgrößen zu regeln. Vielmehr wird eine anlagenweite integrierte Prozessführung benötigt, die gleichzeitig alle Zielgrößen berücksichtigt. Zugleich besitzt der Prozess ein ausgeprägtes nichtlineares Verhalten, es handelt sich hier also um ein nichtlineares Mehrgrößen-Regelproblem.

Bei einer Prozessführung von Hand wird in gewissen Zeitabständen die Anlage durch Stoppen aller Fluidströme angehalten, Proben genommen und diese analysiert. Die Modifikation der Betriebsparameter erfolgt dann aufgrund heuristischer Überlegungen bzw. Erfahrung. Gegenüber einer solchen Vorgehensweise ist eine automatische Prozessführung von großem Vorteil: eine Unterbrechung des Betriebs entfällt, und es ist eine wesentlich genauere Einhaltung der Produktspezifikationen möglich. Dies schlägt sich direkt in einer erhöhten Wirtschaftlichkeit des Betriebs einer SMB-Anlage nieder.

Untersuchungen zur automatischen anlagenweiten Prozessführung von SMB-Prozessen sind in der Literatur jedoch bisher nicht bekannt, obwohl SMB-Prozesse schon seit den 60er Jahren eingesetzt werden [9]. Dies ist auf unterschiedliche Ursachen zurückzuführen:

- Wegen der gemischt kontinuierlich/diskreten Natur von SMB-Prozessen können Standard-Mehrgrößen-Regelverfahren nicht angewendet werden.
- SMB-Prozesse besitzen große Zeitkonstanten, so dass sie prinzipiell von Hand geführt werden können.
- Eine Online-Messung des Prozesszustands, der örtlichen Konzentrationsverläufe in den Chromatographie-Säulen, ist schwierig, da der Prozess isotherm betrieben wird und somit die Zusammensetzung nicht wie bei Destillationsprozessen über Temperaturmessungen bestimmt werden kann.
- Aufgrund der großen wirtschaftlichen Bedeutung einer automatischen Prozessführung werden entsprechende in der Industrie gefundene Lösungen nicht veröffentlicht.

Zielsetzung

In der vorliegenden Arbeit wird die modellbasierte Prozessführung von SMB-Prozessen mit Hilfe eines rein kontinuierlichen Ersatzmodells untersucht. Das detaillierte Modell des SMB-Prozesses selbst ist wegen der Weiterschaltung der Zuflüsse und Abzüge gemischt kontinuierlich/diskret. Für das Ersatzmodell (TMB-Modell von engl. „true moving bed“) wird ein *echter* Gegenstrom zwischen Fluid und Adsorbens angenommen, die Zuflüsse und Abzüge bleiben ortsfest. Dieses Modell ist ein verkoppeltes System aus partiellen Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen. Eine Ortsdiskretisierung führt auf ein großes differential-algebraisches Gleichungssystem. Für Systeme dieser Art stehen moderne Regelungsverfahren zur

Verfügung. In der vorliegenden Arbeit werden zwei Verfahren betrachtet, die asymptotisch exakte Eingangs/Ausgangs-Linearisierung [25, 28] und die modellprädiktive Regelung [50]. Eine besondere Herausforderung bei der Anwendung dieser Verfahren stellt die hohe Systemdimension des TMB-Modells dar.

Als Basis für die modellbasierte Regelung wird mit dem TMB-Modell ein zeitkontinuierlicher Zustandsschätzer zur Online-Bestimmung des örtlich verteilten Prozesszustands in Form eines erweiterten Kalman-Bucy-Filters entwickelt. In [52] wurde ein diskontinuierlicher Beobachter mit einem SMB-Modell entworfen. Diese Vorgehensweise ist für die Verwendung im Rahmen einer modellbasierten Regelung ungünstig.

Erste Ansätze zur Entwicklung einer Regelung mit dem Verfahren der exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung [35, 42] wurden vor kurzem unabhängig von der vorliegenden Arbeit auch in [4] vorgestellt. Dort wird jedoch ausschließlich die Eingangs/Ausgangs-Linearisierung eines vereinfachten TMB-Modells betrachtet und es wird weder auf die Problematik der Bestimmung des Anlagenzustands noch auf die Anwendung am SMB-Prozess eingegangen.

Die Untersuchungen zur Prozessführung erfolgen am konkreten Beispiel eines SMB-Trennprozesses für die C_8 -Aromaten Ortho-, Meta- und Paraxylol sowie Ethylbenzol. Paraxylol muss als wichtiger Grundstoff für die Kunststoffproduktion von den übrigen Komponenten des C_8 -Schnitts abgetrennt werden, Verunreinigungen führen zu mangelhafter Qualität der Endprodukte. Die Auslegung des Prozesses sowie die Modellparameter stammen aus einer langjährigen Kooperation mit dem Institut Français du Pétrole, Solaize. Dort wird an der Entwicklung dieses Prozesses für den industriellen Einsatz gearbeitet, unter anderem wurden dazu auch Pilotanlagen aufgebaut.

Gliederung der Arbeit

Für die Untersuchung der Dynamik des Prozesses und zur Entwicklung modellbasierter Regler werden unterschiedliche Modelle benötigt. Diese werden in Kapitel 2 nach einer detaillierten Erläuterung der Funktionsweise von SMB-Prozessen hergeleitet. Neben einem SMB-Modell, das die für den Prozess typischen Umschaltvorgänge direkt berücksichtigt, wird ein Modell für den hypothetischen TMB-Prozess mit echtem Gegenstrom zwischen Fluid und Adsorbens eingeführt.

In Kapitel 3 werden in Simulationsstudien die Dynamik des Prozesses untersucht und die verschiedenen Modelle miteinander verglichen. Es werden dazu der nichtlineare Löser NLEQ1S [21] und die DA-Integratoren LIMEX [21] und DASSL [8] innerhalb der Simulationsumgebung DIVA [32, 44, 58] verwendet. Diese ermöglicht insbesondere die Realisierung der Umschaltvorgänge im SMB-Modell über zeitexplizite Events.

Vor dem Hintergrund des nun bereitgestellten Prozesswissens erfolgt dann in Kapitel 4 eine genauere Spezifizierung der Prozessführungsaufgabe.

Grundlage für eine anlagenweite Prozessführung ist die Online-Kenntnis des Systemzustands. Eine direkte Messung des gesamten Zustands für das betrachtete örtlich verteilte System ist nicht möglich. Für das Stoffsystem C₈-Aromaten steht jedoch ein Messverfahren zur Online-Konzentrationsmessung an mehreren Punkten der Anlage zur Verfügung [55]. Für eine mit einem solchen Messverfahren ausgestattete SMB-Anlage wird in Kapitel 5 ein Algorithmus zur Schätzung des gesamten Anlagenzustands entwickelt. Der Zustandsschätzer basiert auf dem TMB-Modell, das auch zum Reglerentwurf dient.

Anschließend werden dann – für unterschiedliche Varianten der Prozessführungsaufgabe – die beiden bereits erwähnten Verfahren zur Regelung des Prozesses angewendet. Dabei kommt jeweils der Zustandsschätzer aus Kapitel 5 zum Einsatz. In Kapitel 6 wird mit dem Verfahren der asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung eine Regelung von Produkt-Reinheit und -Ausbeute ohne Beschränkungen der Stellgrößen entwickelt. In Kapitel 7 wird eine modellprädiktive Regelung untersucht. Hier werden zusätzlich Stellgrößenbeschränkungen berücksichtigt und die durch den Lösungsmittelverbrauch verursachten Betriebskosten minimiert. In beiden Fällen erfolgt die Anwendung der Verfahren unter Berücksichtigung der hohen Dimension des Anlagenmodells und im Hinblick auf eine Echtzeit-Realisierung.

Aus den Untersuchungen zum dynamischen Verhalten des SMB-Prozesses entstand neben den Arbeiten zur Regelung die Idee zu einer neuartigen Betriebsweise für SMB-Anlagen, die in Kapitel 8 vorgestellt wird. Dabei wird die herkömmliche Art des Betriebs mit zeitlich konstanten oder nur langsam veränderlichen Volumenströmen in der Anlage verlassen. Statt dessen werden die Volumenströme innerhalb der SMB-Schaltintervalle sehr stark variiert. Durch Anwendung numerischer Optimierungsverfahren innerhalb von DIVA bzw. in der Optimierungsumgebung AMPL [24] werden optimale Zeitverläufe für die Volumenströme so berechnet, dass weiterhin ein zyklischer Betrieb der Anlage gegeben ist. Mit dieser neuen Betriebsweise kann das Potenzial der komplexen SMB-Anlage gegenüber der herkömmlichen Betriebsweise wesentlich besser ausgenutzt und so beispielsweise der Lösungsmittelverbrauch deutlich gesenkt oder die Produktreinheit bei gleichem Lösungsmittelverbrauch erhöht werden.

Ein Teil der in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse wurde bereits an anderer Stelle veröffentlicht [39, 40, 41, 71].

Kapitel 2

Modellierung von Chromatographieprozessen mit simuliertem Gegenstrom (SMB-Prozesse)

Grundlage der Untersuchungen zur Prozessführung ist eine detaillierte Modellierung des Systems. Modelle sind zunächst zur Simulation des unregulierten Systems erforderlich, um das Prozessverhalten zu untersuchen. Dann werden Modelle für den Entwurf von Prozessführungskonzepten benötigt, und schließlich zur Erprobung dieser Prozessführungskonzepte in Simulationsstudien.

Die zu entwickelnden Modelle müssen unterschiedlichen Anforderungen genügen: ein Modell für Simulationsstudien muss den Prozess sehr genau wiedergeben und kann dabei vergleichsweise aufwendig sein. Es soll möglichst viele Eigenschaften des realen Prozesses, die eventuell das Verhalten des geschlossenen Regelkreises beeinflussen können, abbilden. Zu diesem Zweck wird der SMB-Prozess inklusive der Umschaltvorgänge detailliert modelliert.

Modelle für den Entwurf von modellbasierten Reglern sind – je nach angewandeter Methode – mehr oder weniger unverändert Bestandteil des resultierenden Regelalgorithmus. Die entsprechenden Modellgleichungen müssen daher, um beim Entwurf und bei einer Implementierung noch handhabbar zu sein, eine möglichst geringe Systemordnung besitzen. Außerdem sind je nach Regelalgorithmus weitere Anforderungen zu erfüllen, insbesondere muss das Modell in der Regel zeit-kontinuierlich sein. Für diese Aufgaben wird das Modell der hypothetischen Chromatographie mit *echtem* Gegenstrom (engl. „true moving bed“, TMB-Modell) verwendet.

Die in Anhang 8 beschriebene Untersuchung alternativer Betriebsweisen einer SMB-Anlage mittels numerischer Optimierungsverfahren erfordert wiederum ein sehr detailliertes Modell. Die Anforderungen übersteigen noch diejenigen an ein Simulationsmodell: durch die Modellierung und die Diskretisierung der örtlich verteilten Modelle dürfen keine Artefakte entstehen, die zu Lösungen des Optimierungsproblems führen, die physikalisch nicht sinnvoll sind.

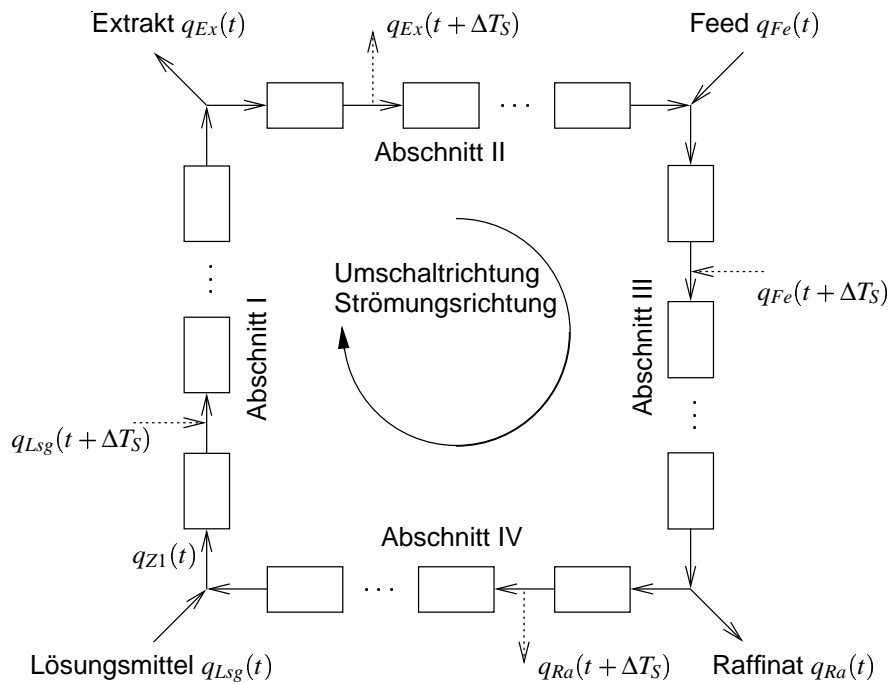


Abbildung 2.1: Anlagenschaltung des SMB-Prozesses aus im Kreis verschalteten Chromatographiesäulen mit zyklisch weitergeschalteten Zu- und Abflussstellen. Volumenströme q_{Ex} , q_{Fe} , q_{Ra} in Extrakt, Feed und Raffinat, Lösungsmittelstrom q_{Lsg} , umlaufender Fluidstrom q_{Z1} in Abschnitt I, Schaltintervall ΔT_S .

Die Modellierung des in dieser Arbeit betrachteten örtlich verteilten Systems führt zunächst auf Systeme von partiellen Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen. Diese müssen für Simulation und Reglerentwurf mittels einer Ortsdiskretisierung in Systeme von Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen (DA-Systeme) überführt werden. Die dabei verwendeten Verfahren haben entscheidenden Einfluss auf Modellgenauigkeit und Systemordnung. Darauf wird in den Anhängen B und C ausführlich eingegangen.

2.1 Funktionsweise von SMB-Prozessen

Anlagenschaltung

Eine SMB-Anlage besteht im wesentlichen aus einer Anzahl zyklisch in Reihe geschalteter Adsorptionssäulen, Abb. 2.1. Die Anlage wird durch die vier Zufluss- bzw. Abzugsstellen für Extrakt, Feed, Raffinat und Lösungsmittel in die vier Abschnitte I-IV unterteilt. In festen Zeitabständen (Schaltintervall ΔT_S) werden die Zuläufe und Abzüge um eine Säule in Richtung der Fluidströmung weitergeschaltet (gepunktete Pfeile in Abb. 2.1). Dies entspricht einer Bewegung des Adsorbens entgegen der Fluid-Strömungsrichtung um eine Säulenlänge. Auf diese Weise wird ein scheinbarer Gegenstrom von Fluid und Adsorbens erzeugt. Damit können sich in der Anlage Ortsprofile der Zusammensetzung einstellen, die bezogen auf ein mitbewegtes Koordinatensystem annähernd stationär sind. Aufgrund dessen ist eine *kontinuierliche*

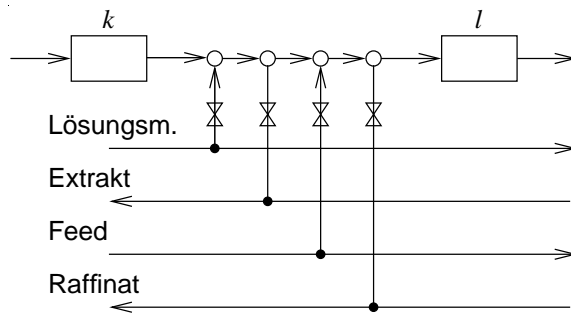


Abbildung 2.2: Ausschnitt der SMB-Anlagenverschaltung mit zwei aufeinanderfolgenden Einzelsäulen k und l : Realisierung des Weiterschaltens der Zuflüsse und Abzüge über vier Einzelventile je Säule.

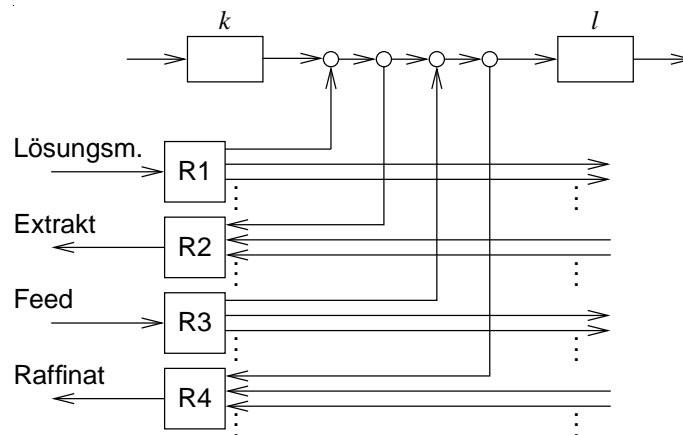


Abbildung 2.3: Ausschnitt der SMB-Anlagenverschaltung mit zwei aufeinanderfolgenden Einzelsäulen k und l : Weiterschalten der Zuflüsse und Abzüge über ein Rotationsventil je Zufluss bzw. Abzug.

chromatographische Stofftrennung möglich, wie weiter unten erläutert wird. Die Anlage wird entweder aus einer Anzahl einzelner Chromatographiesäulen aufgebaut oder es wird eine einzige lange Säule verwendet, die mit Zwischenböden in eine entsprechende Anzahl Teilsäulen aufgeteilt ist. Die Verschaltung der einzelnen Säulen mit der Möglichkeit, die Zu- und Abflüsse an jede beliebige Teilsäule zu schalten, erfolgt über eine große Anzahl Einzelventile oder über speziell entwickelte Rotationsventile [9, 55]. Ein Ausschnitt der Anlagenverschaltung für zwei aufeinanderfolgende Säulen ist für diese beiden Realisierungsvarianten in Abb. 2.2 und Abb. 2.3 dargestellt. Durch eine zentrale Steuerung aller Einzel- bzw. Rotationsventile wird das in Abb. 2.1 gezeigte gleichzeitige Weiterschalten der Zuflüsse und Abzüge realisiert.

TMB-Prozess

Das Prinzip der Stofftrennung mit einer SMB-Anlage lässt sich am besten anhand des hypothetischen Prozesses der Chromatographie mit *echtem* Gegenstrom darstellen, die häufig auch als TMB-Prozess bezeichnet wird (von engl. „true moving bed“, echter Gegenstrom). Das Modell des TMB-Prozesses hat darüber hinaus auch eine große Bedeutung als vereinfachtes Modell für

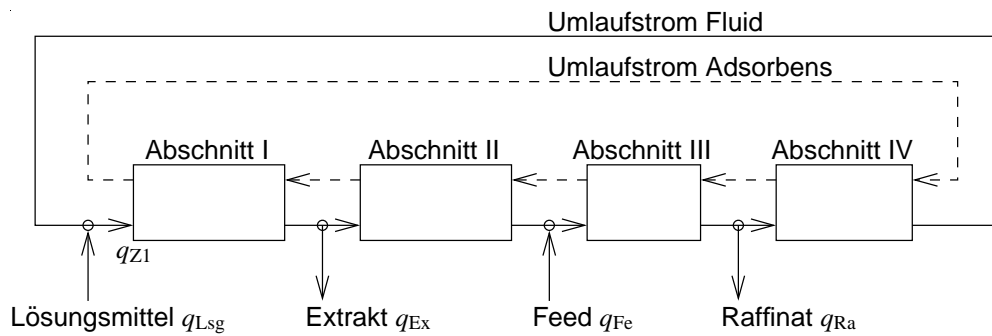


Abbildung 2.4: Anlagenschaltung des TMB-Prozesses mit den Volumenströmen q_{Ex} , q_{Fe} , q_{Ra} in Extrakt, Feed und Raffinat, dem Lösungsmittelstrom q_{Lsg} und dem umlaufenden Fluidstrom q_{Z1} in Abschnitt I. Gestrichelte Linien: hypothetischer Adsorbens-Strom.

den SMB-Prozess, da es im Gegensatz zu diesem rein kontinuierlich ist und einen stationären Zustand besitzt.

Erhöht man gedanklich beim SMB-Prozess die Anzahl der Teilsäulen bei gleichbleibender Gesamtlänge und verkürzt entsprechend das Schaltintervall, um die Wanderungsgeschwindigkeit des Adsorbens konstant zu halten, so nähert man sich einer kontinuierlichen Adsorbensbewegung. Im Grenzfall unendlich vieler infinitesimal kurzer Säulen erhält man den TMB-Prozess mit einer *kontinuierlichen* Bewegung des Adsorbens im Gegenstrom mit dem Fluid. Jedem der vier Abschnitte des SMB-Prozesses, Abb. 2.1, entspricht eine Gegenstrom-Trennsäule entsprechender Länge im TMB-Prozess mit der in Abb. 2.4 gezeigten Verschaltung. Wie beim SMB-Prozess werden die Abschnitte durch die Zufluss- und Abzugsstellen begrenzt, diese sind hier jedoch örtlich fest.

Wählt man nun im TMB-Prozess geeignete Werte für die externen Ströme und den umlaufenden Strom, so stellen sich stationäre Profile der Zusammensetzung in der Anlage ein. Beispielhafte Profile für ein Gemisch aus zwei zu trennenden Komponenten und einem Lösungsmittel werden in Abb 2.5 gezeigt. Zwischen Abschnitt II und III wird das Feedgemisch aus zwei zu trennenden Komponenten A und B sowie einem Lösungsmittel zugeführt. Die stärker adsorbierende Komponente A wandert im wesentlichen mit dem Adsorbens durch Abschnitt II zum Extraktabzug, die schwächer adsorbierende Komponente B wird mit dem Fluidstrom durch Abschnitt III zum Raffinatabzug transportiert. In Abschnitt I erfolgt die Desorption der Komponenten A und B vom Adsorbens, in Abschnitt IV die Adsorption von A und B aus dem Fluid, so dass zwischen Abschnitt I und IV nahezu reines Adsorbens bzw. Lösungsmittel rückgeführt wird. An dieser Stelle wird auch das mit Extrakt und Raffinat abgezogene Lösungsmittel ergänzt.

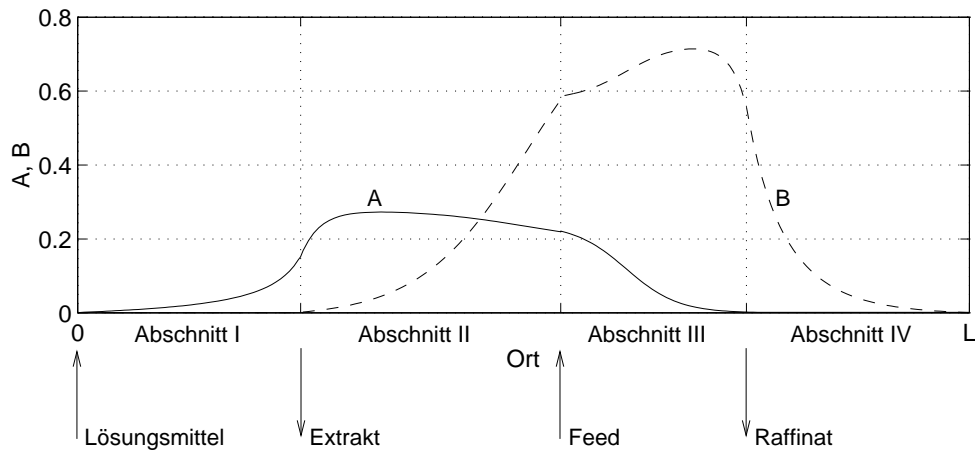


Abbildung 2.5: Typischer Verlauf der stationären Konzentrationsprofile im TMB-Prozess für eine Trennung zweier Komponenten A und B in einem Lösungsmittel.

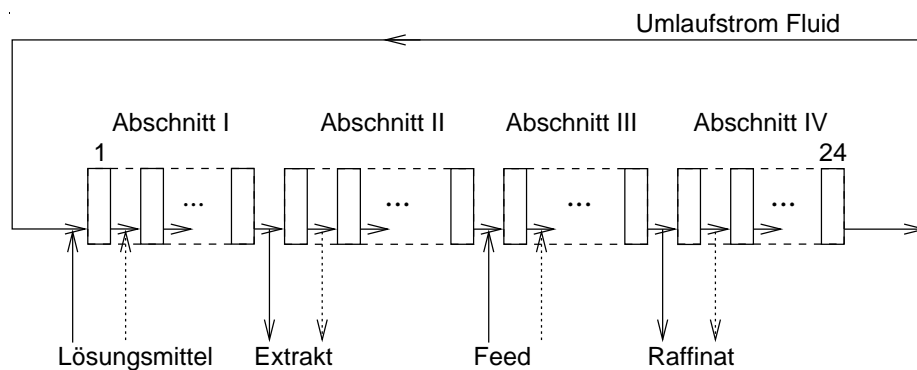


Abbildung 2.6: Entwicklung des SMB-Prozesses aus dem TMB-Prozess durch Unterteilung der TMB-Abschnitte in Teilsäulen mit ruhendem Adsorbens.

SMB-Prozess als Realisierung des Prinzips des TMB-Prozesses

Der SMB-Prozess kann als eine praktische Realisierung der Idee, die dem TMB-Prozess zugrunde liegt, gesehen werden. Da es technisch schwierig ist, das Adsorbens kontinuierlich zu bewegen, werden die Abschnitte des TMB-Prozesses in Teilsäulen unterteilt. Eine Bewegung des Adsorbens kann dann durch getaktetes Weiterschalten der Zufluss- und Abzugsstellen näherungsweise realisiert („simuliert“) werden. Dieser Übergang vom TMB- zum SMB-Prozess wird im Übergang von Abb. 2.4 zu Abb. 2.6 verdeutlicht, wobei es sich bei letzterer nur um eine andere Darstellung der Anlagenschaltung von Abb. 2.1 handelt. Die kleinen Kästchen entsprechen den in Reihe geschalteten SMB-Säulen. Nach einem Schaltintervall werden die Zuflüsse und Abzüge in die gepunktet eingetragenen Positionen nach rechts verschoben, was einer Bewegung des Adsorbens um eine Säulenlänge von rechts nach links entspricht.

Bei dem in dieser Arbeit betrachteten Trennproblem besteht das zu trennende Gemisch aus mehr als zwei Komponenten, nämlich Paraxylol, Metaxylol, Orthoxylol und Ethylbenzol. Für

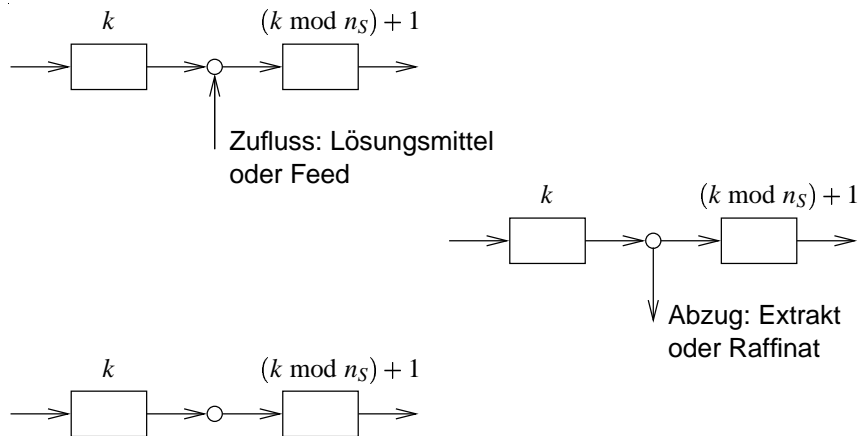


Abbildung 2.7: Die unterschiedlichen Möglichkeiten der Verschaltung zweier aufeinanderfolgender Säulen im SMB-Modell über Mischer- und Split-Elemente. Bei einer SMB-Anlage mit n_S Säulen folgt auf die Säule $k = n_S$ wieder die Säule $k = 1$.

die Trennung können Metaxylool und Orthoxylool wegen ihres sehr ähnlichen Adsorptionsverhaltens als *eine* Komponente betrachtet werden. Paraxylool ist das bei der Trennung in hoher Reinheit und Ausbeute zu gewinnende Produkt. Da Paraxylool die am stärksten adsorbierende Komponente ist, wird die SMB-Anlage so gefahren, dass der Extraktstrom im wesentlichen aus Paraxylool und Lösungsmittel besteht. Die beiden anderen Komponenten werden mit dem Raffinatstrom abgezogen, siehe die Simulationsergebnisse in Kapitel 3.

2.2 SMB-Modell

2.2.1 Aufbau des SMB-Anlagenmodells

Das SMB-Anlagenmodell besteht entsprechend der in Abb. 2.1 gezeigten Anlagenschaltung zum einen aus Modellen für die n_S Teilsäulen und zum anderen aus einer variablen Verschaltung der Säulen untereinander sowie mit den Zuflüssen und Abzügen.

Unabhängig von der Art der Realisierung mit Einzel- oder Rotationsventilen ist zu einem gegebenen Zeitpunkt jede Säule mit der folgenden Säule in einer bestimmten Weise verbunden. Für die Art dieser Verbindung bestehen fünf verschiedene Möglichkeiten, siehe Abb. 2.7. Die beiden Säulen können zum einen über ein Mischer-Element verbunden sein, an das zusätzlich einer der Zuflüsse Lösungsmittel oder Feed geführt wird. Oder es befindet sich zwischen den Säulen ein Split-Element, das zum Abzug des Extrakt- oder des Raffinatstroms dient. Und schließlich kann der Strom von einer Säule zur nächsten einfach über ein neutrales Element weitergeführt werden. Durch das Weiterschalten der Zuflüsse und Abzüge am Ende jedes Schaltintervalls ändert sich die Art der Verbindung jeweils für einen Teil der Säulen.

Die gesamte variable Verschaltung inklusive der Mischer- und Split-Elemente wird für das Anlagenmodell in einer Steuereinheit zusammengefasst, mit der die Modelle für alle Teilsäulen

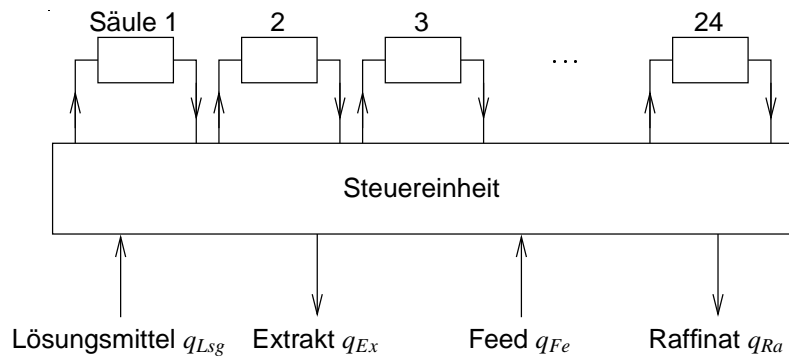


Abbildung 2.8: Realisierung des SMB-Modells mit einer Steuereinheit, in der die gesamte zeitveränderliche Verschaltung der Säulen mit den Zuflüssen und Abzügen über Mischer- und Split-Elemente zusammengefasst ist.

sowie die Zuflüsse und Abzüge verbunden sind (Abb. 2.8). Das Weiterschalten der Zuflüsse und Abzüge in festen Zeitabständen ΔT_S wird in Form von Modellumschaltungen realisiert, die über zeitexplizite Events gesteuert werden [3]. Das SMB-Anlagenmodell ist damit gemischt kontinuierlich/diskret.

Für die in dieser Arbeit betrachtete SMB-Anlage beträgt die Anzahl der Teilsäulen $n_S = 24$, die Abschnitte I bis IV bestehen aus 8, 7, 4 bzw. 5 Säulen. Das Volumen der Mischer- und Split-Elemente wird vernachlässigt, so dass sie durch einfache algebraische Beziehungen beschrieben werden.

2.2.2 Modell der Einzelsäule

Das Modell der Einzelsäule beinhaltet insbesondere die Eigenschaften des Adsorbens und seine Wechselwirkungen mit dem zu trennenden Fluidgemisch. Je nach Stoffsystem sind hier unterschiedliche Modelle zu verwenden [71]. Für die in dieser Arbeit betrachtete Trennung von C_8 -Aromaten auf K-Y-Zeolithen wird das entsprechende Säulenmodell, ein eindimensionales Stoffaustauschmodell, nachfolgend entwickelt. Es werden zunächst Modellvorstellung und -annahmen erläutert und dann die Modellgleichungen hergeleitet.

2.2.2.1 Modellierungsannahmen

Säulengeometrie, Strömung

Die Adsorptionssäule mit dem Querschnitt A_S und der Länge L_S , Abb. 2.9, ist mit einer Schüttung aus Adsorbenspellets gefüllt. Der Leerraum zwischen den Pellets wird in axialer Richtung von einem Fluidgemisch durchströmt (Bulk). Die Zuflußzusammensetzung am Säulenanfang sowie die Strömungsgeschwindigkeit u sind über den Querschnitt gleich. Damit sind auch an jeder axialen Position zwischen 0 und L_S die Zusammensetzungen von Fluid und Adsorbens über den Querschnitt konstant. Durch die Rückvermischung bei der Umströmung

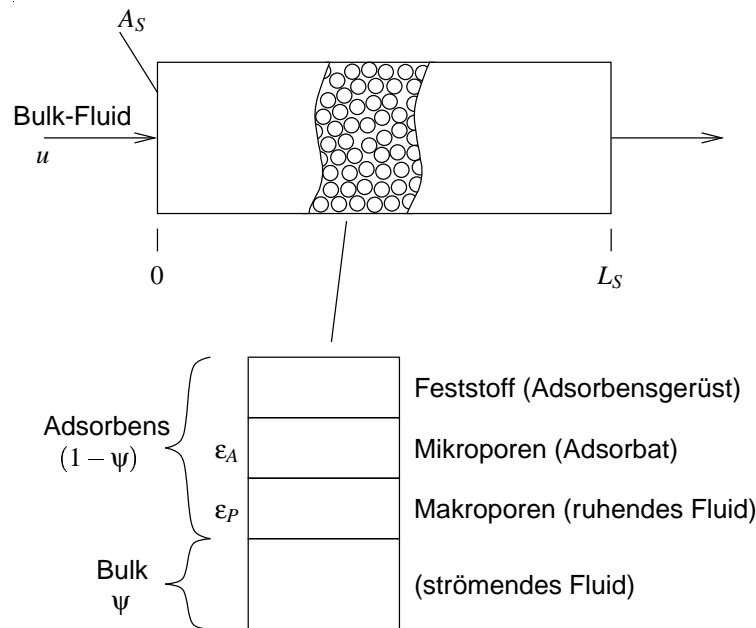


Abbildung 2.9: Einzelne Säule einer SMB-Anlage, Modellvorstellung der unterschiedlichen Phasen.

der Pellets ergibt sich eine axiale Dispersion. Der entsprechende Dispersionskoeffizient kann für kugelförmige Pellets einheitlichen Durchmessers aus einer Korrelation gewonnen werden.

Gleichzeitig wird davon ausgegangen, dass wegen der schnellen Diffusion der betrachteten Komponenten keine radialen Konzentrationsgradienten innerhalb der einzelnen Adsorbenspellets entstehen.

Diese Voraussetzungen führen zu einem örtlich eindimensional verteilten Modell.

Modellierung des Adsorbens, Adsorption

Der Anteil des Leerraums am Querschnitt wird mit ψ bezeichnet, den übrigen Anteil ($1 - \psi$) nimmt das Adsorbens ein (Abb. 2.9). Die Adsorbenspartikel sind zu Pellets gepresste Zeolith-Kristalle. Diese Pellets besitzen flüssigkeitsgefüllte Makroporen sowie von dort aus zugängliche Mikroporen. In den Mikroporen werden Fluidkomponenten selektiv gebunden (adsorbiert). Die selektive Bindung kommt durch unterschiedliche Wechselwirkung der verschiedenen Komponenten mit der Innenwand der Mikroporen zustande. Der Inhalt der Mikroporen wird als Adsorbat bezeichnet. Das Volumen des Adsorbats entspricht dem Volumen der Mikroporen und ist damit konstant. Somit kommt es durch den Stoffaustausch mit dem Bulk-Fluid (siehe unten) zu keiner Änderung des Bulk-Volumenstroms. Dieser ist also örtlich konstant. Das Fluid in den Makroporen ist nicht selektiv gebunden, es besitzt im Gleichgewicht die selbe Zusammensetzung wie das Bulk-Fluid. Der Volumenanteil der Makroporen am Pellet wird mit ϵ_P bezeichnet, der Volumenanteil der Mikroporen bzw. des Adsorbats mit ϵ_A . Das übrige Pelletvolumen wird vom Adsorbens-Feststoff eingenommen (Volumenanteil $\epsilon_S = 1 - \epsilon_A - \epsilon_P$). Die Volumenanteile

ϵ_P und ϵ_A sind konstant.

Das Adsorbat steht im Gleichgewicht mit dem Makroporen-Fluid. Entsprechend wird für das Säulen-Modell eine nichtlineare Beziehung zwischen Adsorbat-Zusammensetzung und Fluid-Zusammensetzung in den Makroporen benötigt. Nach [1] kann für das gegebene Stoffsystem von der Annahme konstanter binärer Selektivitäten ausgegangen werden. Für detaillierte Untersuchungen zur Adsorption von C₈-Aromaten auf Zeolithen siehe [34, 62, 69].

Stoffaustausch zwischen Bulk und Adsorbens

Zwischen dem strömenden Bulk-Fluid und dem ruhenden Fluid in den Makroporen findet ein diffusiver Stofftransport statt. Zur Modellierung dieses Vorgangs wird angenommen, dass jedes Pellet von einem ruhenden Fluidfilm mit einer fiktiven Dicke umgeben ist. Der entsprechende Stoffübergangskoeffizient k_f kann in Abhängigkeit des Pelletdurchmessers R_P und der Strömungsgeschwindigkeit v aus Korrelationen berechnet werden [23, 61, 72]. Alternativ kann ein Wert für k_f auch aus einer Parameteranpassung bestimmt werden.

Verwendete Konzentrationsmaße

Modelle für die Flüssig-Chromatographie werden häufig in Konzentrationen (Mol / Volumen) angeschrieben. Das ist sinnvoll, wenn das Fluid-Gemisch aus einer inerten Trägerkomponente (keine Wechselwirkung mit dem Adsorbens) und weiteren Komponenten in sehr geringer Konzentration besteht. Dann können die Gesamtkonzentration und der Fluidvolumenstrom als zeitlich und örtlich konstant angenommen werden. Die Trägerkomponente taucht im Modell nicht auf.

Für die Trennung von C₈-Aromaten auf Zeolithen sind diese Voraussetzungen nicht gegeben. Daher ist hier eine Formulierung der Modellgleichungen in Partialdichten oder Gewichtsbrüchen sinnvoller. Wegen des konstanten Adsorbat-Volumens kann dann mit der Annahme, dass die Dichten aller Komponenten gleich sind, der Gewichtsbruch des Lösungsmittels aus den Modellgleichungen eliminiert werden. Dies ist sinnvoll, um eine Reduzierung der Systemordnung zu erreichen.

Die Partialdichten der Komponente i in Bulk, Makroporen und Adsorbat werden mit $\rho_{B,i}(z, t)$, $\rho_{P,i}(z, t)$ bzw. $\rho_{A,i}(z, t)$ bezeichnet, die Gewichtsbrüche mit $g_{B,i}(z, t)$, $g_{P,i}(z, t)$ und $g_{A,i}(z, t)$.

2.2.2.2 Modellgleichungen

Bulkphase

Die partiellen Differentialgleichungen (PDGLn) für die Bulk-Zusammensetzung werden aus einer Komponenten-Massenbilanz für das Bulk-Fluid in einem Volumenelement differentieller Länge dz entsprechend Abb. 2.10 hergeleitet. Darin bezeichnen $J_{k,i}(z, t)$ und $J_{d,i}(z, t)$ den konvektiven und den dispersiven Massenstrom der Gemischkomponente i mit der Ortskoordinate z

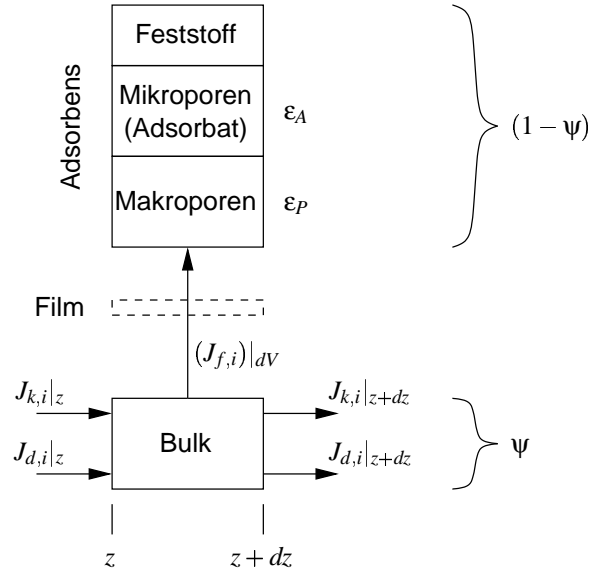


Abbildung 2.10: Differentielles Volumenelement zur Herleitung des SMB-Säulenmodells.

und der Zeit t . Bei einem Bulk-Volumenstrom $q_B(t)$ gilt mit der Partialdichte $\rho_{B,i}(z, t)$:

$$J_{k,i} = q_B \rho_{B,i} \quad (2.1)$$

Der querschnittsbezogene konvektive Massenstrom $j_{k,i}(z, t)$ ergibt sich mit der Bulk-Geschwindigkeit $v(t) = q_B(t)/(\psi A_S)$ wie folgt:

$$J_{k,i} = \psi A_S j_{k,i} \quad , \quad j_{k,i} = v \rho_{B,i} \quad (2.2)$$

Die dispersiven Effekte werden zu einem Term $J_{d,i}$ analog dem Fick'schen Diffusionsgesetz zusammengefasst:

$$J_{d,i} = \psi A_S j_{d,i} \quad , \quad j_{d,i} = -D_B \frac{\partial \rho_{B,i}}{\partial z} \quad (2.3)$$

Für den Stoffaustauschstrom zwischen Bulk-Fluid und Makroporen $(J_{f,i})_{dV}$ im Volumenelement gilt:

$$(J_{f,i})_{dV} = \omega A_S dz j_{f,i} \quad (2.4)$$

Für den flächenbezogenen Austauschstrom $j_{f,i}$ wird ein linearer Triebkraftansatz verwendet:

$$j_{f,i} = k_f (\rho_{B,i} - \rho_{P,i}) \quad (2.5)$$

Die Pelletoberfläche pro Einheitsvolumen der Säule ω kann leicht berechnet werden als

$$\omega = \frac{3 \cdot (1 - \psi)}{R_P} \quad (2.6)$$

Wegen der ähnlichen Größe der beteiligten Moleküle kann angenommen werden, dass der Stoffaustausch-Koeffizient k_f für alle Komponenten gleich ist.

Es ergibt sich damit folgende partielle Differentialgleichung für die Bulk-Partialdichte $\rho_{B,i}(z, t)$ der Komponente i :

$$\psi \frac{\partial \rho_{B,i}}{\partial t} = -\psi \frac{\partial j_{k,i}}{\partial z} - \psi \frac{\partial j_{d,i}}{\partial z} - \omega j_{f,i}, \quad 0 < z < L_S \quad (2.7)$$

Wegen der ähnlichen Dichte der Gemischkomponenten und ihrer Inkompressibilität wird angenommen, dass die Gemischdichte ρ_G zeitlich und örtlich konstant ist. Mit flächenbezogenen Komponenten-Volumenströmen $\tilde{j}_{k,i}(z, t) = j_{k,i}(z, t)/\rho_G$ usw. und $\rho_i(z, t) = g_i(z, t)\rho_G$ ergibt sich folgende partielle Differentialgleichung für den Massenbruch $g_{B,i}(z, t)$ der Komponente i im Bulk:

$$\frac{\partial g_{B,i}}{\partial t} = -\frac{\partial \tilde{j}_{k,i}}{\partial z} - \frac{\partial \tilde{j}_{d,i}}{\partial z} - \frac{\omega}{\psi} \tilde{j}_{f,i}, \quad 0 < z < L_S \quad (2.8)$$

Mit den eingesetzten Definitionen der Ströme $\tilde{j}_{k,i}(z, t)$, $\tilde{j}_{d,i}(z, t)$ und $\tilde{j}_{f,i}(z, t)$ lautet die Gleichung

$$\frac{\partial g_{B,i}}{\partial t} = -v \frac{\partial g_{B,i}}{\partial z} + D_B \frac{\partial^2 g_{B,i}}{\partial z^2} - \frac{\omega}{\psi} k_f (g_{B,i} - g_{P,i}), \quad 0 < z < L_S \quad (2.9)$$

Die Randbedingungen der Bulkphase werden aus der Annahme hergeleitet, dass Stofftransport über die Säulenränder nur durch Konvektion erfolgt (Danckwerts-Randbedingungen [19, 63]). Komponenten-Massenbilanzen für differentielle Randelemente führen auf:

$$\tilde{j}_{k,i}|_0 + \tilde{j}_{d,i}|_0 = v g_{B,i,zu}, \quad \tilde{j}_{k,i}|_{L_S} + \tilde{j}_{d,i}|_{L_S} = v g_{B,i,ab} \quad (2.10)$$

oder mit $g_{B,i,ab}(t) = g_{B,i}(z, t)|_{L_S}$

$$\tilde{j}_{k,i}|_0 + \tilde{j}_{d,i}|_0 = v g_{B,i,zu}, \quad \tilde{j}_{d,i}|_{L_S} = 0 \quad (2.11)$$

Mit eingesetzten Strömen lauten die Randbedingungen zu Gl. (2.9):

$$v g_{B,i}|_0 - D_B \left. \frac{\partial g_{B,i}}{\partial z} \right|_0 = v g_{B,i,zu}, \quad \left. \frac{\partial g_{B,i}}{\partial z} \right|_{L_S} = 0 \quad (2.12)$$

Adsorbensphase

Eine differentielle Massenbilanz für Komponente i im Adsorbens führt auf eine partielle Differentialgleichung für $\rho_{P,i}(z, t)$ und $\rho_{A,i}(z, t)$:

$$(1 - \psi) \left(\epsilon_P \frac{\partial \rho_{P,i}}{\partial t} + \epsilon_A \frac{\partial \rho_{A,i}}{\partial t} \right) = \omega j_{f,i}, \quad 0 < z < L_S \quad (2.13)$$

bzw. in Gewichtsbrüchen $g_{P,i}(z, t)$ und $g_{A,i}(z, t)$:

$$(1 - \psi) \left(\epsilon_P \frac{\partial g_{P,i}}{\partial t} + \epsilon_A \frac{\partial g_{A,i}}{\partial t} \right) = \omega \tilde{j}_{f,i}, \quad 0 < z < L_S \quad (2.14)$$

Eine Modellformulierung der SMB-Säule, die Gleichung (2.14) beinhaltet, führt nach einer Ortsdiskretisierung auf ein linear implizites Differential-Algebra-Gleichungssystem, da in Gl. (2.14) die zeitlichen Ableitungen mehr als einer Variablen auftreten. Eine solche Form ist hier für die Bestimmung konsistenter Startwerte des Simulationsmodells und für die Entwicklung von Zustandsschätzer und Regelalgorithmen ungünstig, wie in Anhang D näher erläutert wird.

Um eine semi-explizite Modellformulierung zu erhalten, darf jede Differentialgleichung nur *einen* zeitlichen Differentialquotienten beinhalten. Um dies zu erreichen, wird nun ein mittlerer Gewichtsbruch $g_{K,i}(z, t)$ in Adsorbens und Makroporen eingeführt,

$$(\epsilon_P + \epsilon_A)g_{K,i} = \epsilon_P g_{P,i} + \epsilon_A g_{A,i} \quad , \quad (2.15)$$

und damit Gl. (2.14) wie folgt umformuliert:

$$\frac{\partial g_{K,i}}{\partial t} = \frac{\omega}{(1 - \psi)(\epsilon_P + \epsilon_A)} \tilde{j}_{f,i} \quad , \quad 0 \leq z \leq L_S \quad (2.16)$$

Nach Einsetzen der Ausdrücke für den Strom $\tilde{j}_{f,i}(z, t)$ lautet diese Gleichung:

$$\frac{\partial g_{K,i}}{\partial t} = \frac{\omega}{(1 - \psi)(\epsilon_P + \epsilon_A)} k_f (g_{B,i} - g_{P,i}) \quad , \quad 0 \leq z \leq L_S \quad (2.17)$$

Die Definitionsgleichung (2.15) wird Teil des Modellgleichungssystems.

Das Adsorptionsgleichgewicht (konstante Selektivitäten) wird in Molanteilen angeschrieben und auf Gewichtsbrüche umgerechnet (siehe Anhang A). Nach Elimination von g_{P,n_c} mit der Schließbedingung im Porenfluid ergibt sich die explizite algebraische Beziehung

$$g_{A,i} = \frac{\alpha_{i,n_c} g_{P,i}}{n_c - 1 + \sum_{j=1}^{n_c} (\alpha_{j,n_c} - 1) g_{P,j}} \quad (2.18)$$

Zusammenfassung der Modellgleichungen

Die Gleichungen für das *vollständige SMB-Säulenmodell* sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst. Zur Reduktion der Modellordnung können aus Gl. (2.15) und Gl. (2.18) die Gewichtsbrüche im Adsorbat $g_{A,i}(z, t)$, $i = 1, \dots, n_c - 1$ eliminiert werden. Die Gewichtsbrüche der Komponente n_c sind bei Bedarf aus der Schließbedingung der jeweiligen Phase zu berechnen.

Im Gesamtmodell der SMB-Anlage, dessen Aufbau weiter oben beschrieben wurde, gelten die Gleichungen aus Tabelle 2.1 für jede der n_S Teilsäulen der Länge L_S . Dazu sind die Zustandsgrößen des Säulenmodells mit einem zusätzlichen Index k zu versehen, der in der Herleitung der Übersichtlichkeit halber nicht mitgeführt wurde. Die Zustandsgrößen sind dann $g_{B,i,k}(z, t)$, $g_{K,i,k}(z, t)$, $g_{P,i,k}(z, t)$ und $g_{A,i,k}(z, t)$.

Tabelle 2.1: Modellgleichungen einer SMB-Säule, jeweils für die Komponenten $i = 1, \dots, n_c - 1$. Zusätzlich gelten die im vorausgehenden Text angegebenen Ausdrücke für die Ströme.

PDGL Bulk Gl. (2.8)	$\frac{\partial g_{B,i}}{\partial t} = -\frac{\partial \tilde{j}_{k,i}}{\partial z} - \frac{\partial \tilde{j}_{d,i}}{\partial z} - \frac{\omega}{\psi} \tilde{j}_{f,i}, \quad 0 < z < L_S$
RB Bulk Gl. (2.11)	$\tilde{j}_{k,i} _0 + \tilde{j}_{d,i} _0 = v g_{B,i,zu}, \quad \tilde{j}_{d,i} _{L_S} = 0$
DGL Korn Gl. (2.16)	$\frac{\partial g_{K,i}}{\partial t} = \frac{\omega}{(1-\psi)(\epsilon_P + \epsilon_A)} \tilde{j}_{f,i}, \quad 0 \leq z \leq L_S$
Definitionsgleichung g_K Gl. (2.15)	$(\epsilon_P + \epsilon_A) g_{K,i} = \epsilon_P g_{P,i} + \epsilon_A g_{A,i}$
Adsorptionsgleichgewicht Gl. (2.18)	$g_{A,i} = \frac{\alpha_{i,n_c} g_{P,i}}{1 + \sum_{j=1}^{n_c-1} (\alpha_{j,n_c} - 1) g_{P,j}}$

2.3 TMB-Modell – Chromatographie mit echtem Gegenstrom

2.3.1 Aufbau des TMB-Anlagenmodells

Nach der Anlagenschaltung aus Abb. 2.4 besteht das TMB-Anlagenmodell aus den Modellen der vier Abschnitte unterschiedlicher Länge sowie aus Mischer- und Split-Modellen, über die die vier Abschnitte – im Gegensatz zum SMB-Modell – *fest* miteinander und mit den Zuflüssen und Abzügen verschaltet sind.

2.3.2 Modell eines TMB-Abschnitts

Das Modell für einen TMB-Abschnitt der Länge L_T , eine Adsorptionssäule mit Gegenstrom von Fluid und Adsorbens, wird aus dem Modell der SMB-Einzelsäule entsprechend Abb. 2.9 entwickelt, indem zusätzlich die hypothetische Strömung des Adsorbens mit Makroporen und Adsorbat in Betracht gezogen wird. Diese Strömung ist rein konvektiv, es wird keine Dispersion berücksichtigt. Es ergibt sich somit eine modifizierte Differentialgleichung für das Adsorbens, die übrigen Gleichungen werden vom SMB-Modell übernommen.

Ein differentielles Volumenelement für den TMB-Prozess ist in Abb. 2.11 dargestellt. Der mit dem Adsorbens transportierte Massenstrom $J_{a,i}(z, t)$ der Komponente i ist bei einer Adsorbensgeschwindigkeit u :

$$J_{a,i} = (1 - \psi) A_S u (\epsilon_P \rho_{P,i} + \epsilon_A \rho_{A,i}) \quad (2.19)$$

oder mit dem flächenbezogenen Komponenten-Massenstrom $j_{a,i}(z, t)$ und $\rho_{K,i}(z, t)$ entspre-

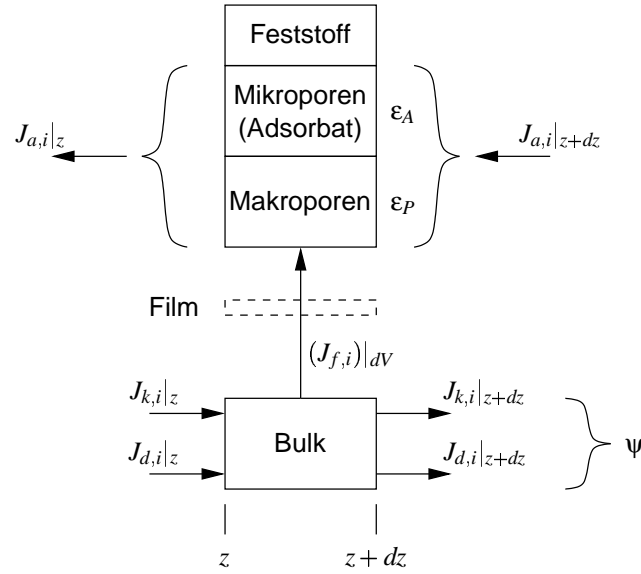


Abbildung 2.11: Differentielles Volumenelement für das Modell eines TMB-Abschnitts (Säule mit Gegenstrom von Fluid und Adsorbens).

chend Gl. (2.15):

$$J_{a,i} = (1 - \psi)(\epsilon_P + \epsilon_A)A_S \dot{j}_{a,i} \quad , \quad \dot{j}_{a,i} = u \rho_{K,i} \quad (2.20)$$

Der flächenbezogene Komponenten-Volumenstrom $\tilde{j}_{a,i}(z, t)$ ist dann

$$\tilde{j}_{a,i} = \dot{j}_{a,i} / \rho_G = u g_{K,i} \quad (2.21)$$

Eine Komponenten-Massenbilanz für das Adsorbens in einem differentiellen Volumenelement der Länge dz (Abb. 2.11) führt schließlich entsprechend der Herleitung von Gl. (2.16) auf folgende partielle Differentialgleichung für den Gewichtsbruch $g_{K,i}(z, t)$:

$$\frac{\partial g_{K,i}}{\partial t} = \frac{\partial \tilde{j}_{a,i}}{\partial z} + \frac{\omega}{(1 - \psi)(\epsilon_P + \epsilon_A)} \tilde{j}_{f,i} \quad , \quad 0 \leq z < L_T \quad (2.22)$$

Einsetzen der Ausdrücke für die Ströme führt auf

$$\frac{\partial g_{K,i}}{\partial t} = u \frac{\partial g_{K,i}}{\partial z} + \frac{\omega}{(1 - \psi)(\epsilon_P + \epsilon_A)} k_f (g_{B,i} - g_{P,i}) \quad , \quad 0 \leq z < L_T \quad (2.23)$$

Aus einer Bilanz für ein differentielles Randelement ergibt sich folgende Randbedingung für den rechten Rand der Adsorbensphase:

$$\tilde{j}_{a,i}|_{L_T} = u g_{K,i,zu} \quad \text{oder} \quad g_{K,i}|_{L_T} = g_{K,i,zu} \quad (2.24)$$

Am linken Rand wird keine Randbedingung benötigt.

Tabelle 2.2: Modellgleichungen eines TMB-Abschnitts, jeweils für die Komponenten $i = 1, \dots, n_c - 1$. Zusätzlich gelten die im vorausgehenden Text angegebenen Ausdrücke für die Ströme.

PDGL Bulk Gl. (2.8)	$\frac{\partial g_{B,i}}{\partial t} = -\frac{\partial \tilde{j}_{k,i}}{\partial z} - \frac{\partial \tilde{j}_{d,i}}{\partial z} - \frac{\omega}{\psi} \tilde{j}_{f,i}, \quad 0 < z < L_S$
RB Bulk Gl. (2.11)	$\tilde{j}_{k,i} _0 + \tilde{j}_{d,i} _0 = v g_{B,i,zu}, \quad \tilde{j}_{d,i} _{L_S} = 0$
PDGL Korn Gl. (2.22)	$\frac{\partial g_{K,i}}{\partial t} = \frac{\partial \tilde{j}_{a,i}}{\partial z} + \frac{\omega}{(1-\psi)(\epsilon_P + \epsilon_A)} \tilde{j}_{f,i}, \quad 0 \leq z < L_T$
RB Korn Gl. (2.24)	$\tilde{j}_{a,i} _{L_T} = u g_{K,i,zu}$
Definitionsgleichung g_K Gl. (2.15)	$(\epsilon_P + \epsilon_A) g_{K,i} = \epsilon_P g_{P,i} + \epsilon_A g_{A,i}$
Adsorptionsgleichgewicht Gl. (2.18)	$g_{A,i} = \frac{\alpha_{i,n_c} g_{P,i}}{1 + \sum_{j=1}^{n_c-1} (\alpha_{j,n_c} - 1) g_{P,j}}$

Zusammenfassung der Modellgleichungen

Das *vollständige Modell eines TMB-Abschnitts* besteht damit aus den in Tabelle 2.2 zusammengefassten Gleichungen. Wie beim Modell der SMB-Säule können auch hier aus (2.15) und (2.18) die Größen $g_{A,i}(z, t)$, $i = 1, \dots, n_c - 1$ eliminiert werden. Die Gewichtsbrüche der Komponenten n_c können wiederum aus den jeweiligen Schließbedingungen berechnet werden.

Im TMB-Gesamtmodell werden die Gleichungen aus Tabelle 2.2 für jeden der vier unterschiedlich langen TMB-Abschnitte verwendet. Die Zustandsgrößen sowie der Längen-Parameter L_T sind dazu wie bei der SMB-Säule wiederum mit einem zusätzlichen Index k zu versehen. Die Länge der TMB-Abschnitte ergibt sich aus der Gesamtlänge der Teilsäulen in den entsprechenden SMB-Abschnitten.

2.3.3 Analogie mit SMB-Modell

Um das TMB-Modell als vereinfachtes Modell für den SMB-Prozess verwenden zu können, müssen im TMB-Modell eine geeignete Adsorbengeschwindigkeit und passende Fluid-Strömungsgeschwindigkeiten gewählt werden. Sie sind so einzustellen, dass im Grenzfall beliebig vieler infinitesimal kurzer SMB-Säulen der SMB-Prozess in den TMB-Prozess mit den passenden Parametern übergeht. Dieser Übergang wurde bereits in Abschnitt 2.1 erläutert.

Beim SMB-Prozess werden nach jedem Schaltintervall der Länge ΔT_S die Zuläufe und Abzüge um eine Säule der Länge L_S weitergeschaltet. Dies entspricht einer Wanderungsgeschwindigkeit

keit u des Adsorbens mit

$$u = \frac{L_S}{\Delta T_S} \quad (2.25)$$

Die Fluid-Strömungsgeschwindigkeiten $v_{\text{TMB}}(t)$ im TMB-Modell sind in jedem Abschnitt so zu wählen, dass sich die gleiche Relativgeschwindigkeit zwischen Fluid und Adsorbens wie beim SMB-Prozess ergibt, also

$$u + v_{\text{TMB}} = v_{\text{SMB}} \quad (2.26)$$

Anders ausgedrückt bedeutet dies, dass die Geschwindigkeit des Fluids relativ zu den (beim SMB bewegten) Zufluss- und Abzugsstellen bei beiden Prozessen identisch ist, d. h.

$$v_{\text{TMB}} = v_{\text{SMB}} - \frac{L_S}{\Delta T_S} \quad (2.27)$$

2.4 Performance-Maße

Für die in dieser Arbeit betrachtete Trennung der C_8 -Aromaten Paraxylol (PX), Metaxylol (MX) und Ethylbenzol (EB) in Toluol sind die wesentlichen Betriebsgrößen die Reinheit r_{Ex} von PX im Extrakt und die Ausbeute a_{PX} an PX. Die Reinheit wird auf die zu trennenden Komponenten bezogen, die Lösungsmittelkonzentration spielt dabei keine Rolle. Mit den Partialdichten $\rho_{\text{Ex},i}$ der Komponenten im Extrakt gilt:

$$r_{\text{Ex}} = \frac{\rho_{\text{Ex},\text{PX}}}{\rho_{\text{Ex},\text{PX}} + \rho_{\text{Ex},\text{MX}} + \rho_{\text{Ex},\text{EB}}} \quad (2.28)$$

Die Ausbeute setzt den im Extrakt gewonnenen Paraxylol-Massenstrom in Beziehung zum insgesamt abgezogenen PX-Strom. Das Paraxylol im Raffinat geht im Sinne der Ausbeute verloren (auch wenn es durch Rückführung des Raffinats in vorgeschaltete Prozessstufen erhalten bleibt). Mit den Strömen q_{Ex} und q_{Ra} in Extrakt bzw. Raffinat ist die Ausbeute

$$a_{\text{PX}} = \frac{\rho_{\text{Ex},\text{PX}} q_{\text{Ex}}}{\rho_{\text{Ex},\text{PX}} q_{\text{Ex}} + \rho_{\text{Ra},\text{PX}} q_{\text{Ra}}} \quad (2.29)$$

Da im stationären Betrieb der insgesamt zugeführte Paraxylol-Strom mit dem insgesamt abgeführten identisch ist, kann die Ausbeute alternativ mit dem Feed-Strom q_{Fe} definiert werden:

$$a_{\text{PX}}^* = \frac{\rho_{\text{Ex},\text{PX}} q_{\text{Ex}}}{\rho_{\text{Fe},\text{PX}} q_{\text{Fe}}} \quad (2.30)$$

Mit der oben getroffenen Annahme gleicher Partialdichten aller Komponenten lauten die Ausdrücke für Reinheit und Ausbeute in Gewichtsbrüchen g wie folgt:

$$r_{\text{Ex}} = \frac{g_{\text{Ex},\text{PX}}}{g_{\text{Ex},\text{PX}} + g_{\text{Ex},\text{MX}} + g_{\text{Ex},\text{EB}}} \quad (2.31)$$

$$a_{\text{PX}} = \frac{g_{\text{Ex},\text{PX}} q_{\text{Ex}}}{g_{\text{Ex},\text{PX}} q_{\text{Ex}} + g_{\text{Ra},\text{PX}} q_{\text{Ra}}} \quad (2.32)$$

2.5 Modellparameter für SMB- und TMB-Modell

Die in den vorhergehenden Abschnitten hergeleiteten Modelle enthalten einige Parameter, die die Säulen-Geometrie, den Stoffaustausch und das Adsorptionsgleichgewicht betreffen. Für die Parameter werden teilweise vom Kooperationspartner Institut Français du Pétrole (IFP) angegebene Werte verwendet, teilweise wurden sie durch eine Parameteranpassung an beim IFP gemessene SMB-Ortsprofile bestimmt. Eine Zusammenstellung der Modellparameter und der verwendeten Werte findet sich in Anhang E.

Der Dispersionskoeffizient D_B wird aus der häufig verwendeten Korrelation von Chung und Wen [15] berechnet. Bei den hier vorliegenden niedrigen Reynoldszahlen ergibt sich

$$D_B = 10R_P\psi v_{\text{SMB}} \quad (2.33)$$

Für die regelungstechnischen Untersuchungen zur asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung in Kapitel 6 wird zur Vereinfachung der Modellstruktur ein fester Dispersionskoeffizient verwendet. Dieser ist ebenfalls in Anhang E angegeben.

2.6 Vereinfachte Modelle

Das TMB-Modell soll, wie bereits in Abschnitt 2.1 angedeutet, in der Prozessführung als vereinfachtes Modell für den SMB-Prozess verwendet werden. Das in den vorhergehenden Abschnitten hergeleitete Modell für den TMB-Prozess in Form gekoppelter partieller Differentialgleichungen und algebraischer Gleichungen führt nach einer Ortsdiskretisierung, siehe Anhänge B und C, auf ein Differential-Algebra-Gleichungssystem sehr hoher Ordnung. Für Prozessführungsaufgaben wird jedoch ein Modell möglichst niedriger Ordnung benötigt. Im folgenden wird diskutiert, inwieweit ein solches Modell mit Hilfe von Vereinfachungen aus dem ursprünglichen Modell gewonnen werden kann.

Gleichgewichtsannahmen

Eine klassische in der Verfahrenstechnik verwendete Methode zur Modellreduktion ist es, eine Annahme über das Gleichgewicht zweier Phasen, zwischen denen Stoffaustausch stattfindet, zu treffen. Dadurch werden die beiden Phasen zu einem Bilanzraum vereinigt und die Anzahl der Modellzustände entsprechend verringert. Beim TMB-Modell kommt eine Gleichgewichtsannahme für Bulk-Fluid und Fluid in den Makroporen des Adsorbens in Frage. Wegen des Gegenstroms dieser beiden Phasen führt eine solche Annahme jedoch zu großen Abweichungen vom ursprünglichen Modell, und ist somit für diesen Prozess nicht sinnvoll.

Wellenansätze

Die stationären Ortsprofile der Zusammensetzung in Gegenstrom-Trennprozessen können als nichtlineare Wellen interpretiert werden [36, 54]. Aus diesen theoretischen Überlegungen her-

aus lassen sich Ansätze für vereinfachte Modelle herleiten. Solche zur Modellreduktion praktisch verwendbaren Ansätze sind jedoch bisher auf Zwei-Komponenten-Gemische beschränkt, so dass sie für SMB- bzw. TMB-Prozesse, die erst ab drei Komponenten sinnvoll sind, nicht verwendet werden können. In jüngster Zeit wurden am Institut für Systemdynamik und Regelungstechnik erste Arbeiten zu vereinfachten Modellen begonnen, die auf der nichtlinearen Wellentheorie basieren und für eine größere Anzahl Komponenten geeignet sind [37, 38]. Im weiteren Verlauf dieser Arbeiten wird sich die Möglichkeit ergeben, auch für SMB-Prozesse nichtlineare Wellenmodelle zu entwickeln.

Polynomansätze für die Ortsprofile der Zusammensetzung

Aus der im vorhergehenden Abschnitt angesprochenen Wellentheorie ergibt sich, dass bei dem in dieser Arbeit betrachteten Vier-Stoff-Gemisch die Ortsprofile in jedem TMB-Abschnitt aus der Überlagerung dreier nichtlinearer Wellen entstehen [36]. Entsprechend besitzen die Ortsprofile – wenn man jeden TMB-Abschnitt für sich betrachtet – eine relativ einfache Form, siehe z. B. Abb. 3.1. Diese Profile lassen sich durch Polynome niedriger Ordnung sehr gut approximieren. Daraus ergibt sich, dass das Modell für einen TMB-Abschnitt mit dem Verfahren der Orthogonalen Kollokation (Anhang C) mit einer entsprechend geringen Anzahl von Kollokationspunkten diskretisiert werden kann. Man erhält so ein differential-algebraisches Gleichungssystem mit einer im Vergleich zu einer herkömmlichen Ortsdiskretisierung sehr viel niedrigeren Systemordnung.

Das auf diese Weise diskretisierte Modell ist als *vereinfachtes* Modell zu interpretieren, da – wie bei einem Wellenansatz – die komplexen schnellen Übergangsvorgänge bei der Ausbildung einer neuen Profilform nach einer Störung nicht mehr mit dem Modell wiedergegeben können [54]. Diese Vorgänge sind aber für die Dynamik des Systems im Zusammenhang mit der Entwicklung von Regelungsverfahren ohne Bedeutung, so dass das auf diese Weise vereinfachte Modell für Zustandsschätzung und modellbasierte Regelung sehr gut geeignet ist.

2.7 Modifizierte Randbedingungen für das TMB-Modell

Zur Verwendung des TMB-Modells für Zustandsschätzung und Reglerentwurf muss eine Ortsdiskretisierung der partiellen Differentialgleichungen aus dem Modell des TMB-Abschnitts nach Tabelle 2.2 erfolgen. Dazu wird die in Anhang C beschriebene Methode der Orthogonalen Kollokation verwendet. Dabei ergeben sich Schwierigkeiten, die eine Modifikation des oben hergeleiteten Modells erforderlich machen.

Die Schwierigkeiten entstehen im einzelnen bei der Ortsdiskretisierung der partiellen Differentialgleichungen für die Bulk-Zusammensetzung, und sind auf die rechte Randbedingung $\partial g_{B,i}/\partial z = 0$ für das Bulk-Fluid zurückzuführen: bei dem hier vorliegenden Gegenstromsystem mit relativ geringem Einfluss der Dispersion wirkt sich diese Randbedingung nur unmittelbar am Rand auf die Form der Ortsprofile aus. Daher können die Ortsprofile der Zusam-

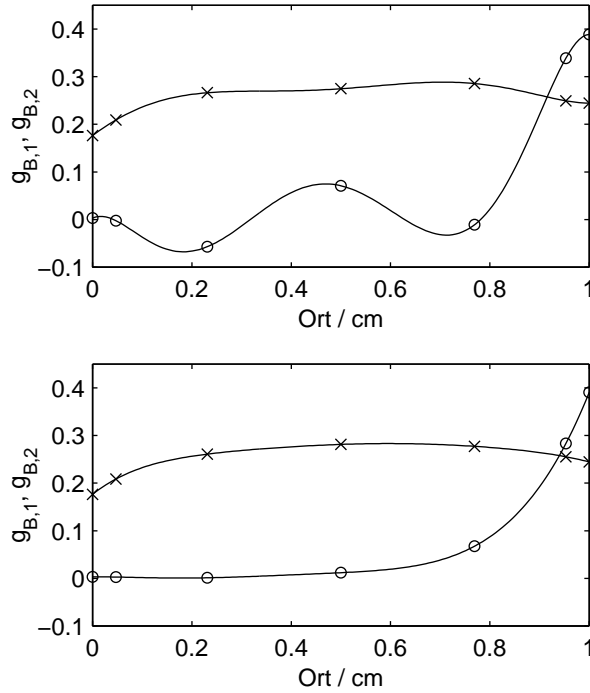


Abbildung 2.12: Ortsprofile der Zusammensetzung in einem TMB-Abschnitt (normierte Ortskoordinate) bei Trennung zweier Komponenten in einem Lösungsmittel und Diskretisierung mit Orthogonaler Kollokation. Die Kollokationspunkte sind mit „x“ (Komponente 1) und „o“ (Komponente 2) markiert. Oben: stationäre Ortsprofile für das ursprüngliche Modell, unten: Ortsprofile für das Modell mit modifizierter Behandlung des rechten Randes, identisch mit dem Ergebnis einer FVM-Diskretisierung des unmodifizierten Modells.

mensetzung in der Nähe des rechten Randes einen deutlich von Null verschiedenen Gradienten besitzen. Abb. 2.12, unten, zeigt typische Ortsprofile in einem TMB-Abschnitt bei zwei zu trennenden Komponenten, berechnet mit einer FVM-Diskretisierung. Das Ortsprofil für Komponente 2, markiert mit „o“, weist am rechten Rand einen steilen Verlauf auf. Ein solcher Verlauf kann unter Berücksichtigung der rechten Randbedingung mit den in der Orthogonalen Kollokation verwendeten Polynomen niedriger Ordnung nicht richtig wiedergegeben werden, da die Randbedingung einen Gradienten des Approximations-Polynoms von Null am rechten Rand erzwingt. Dies führt zu einer mangelhaften Approximation der Ortsprofile im Inneren des Abschnitts, und es ergeben sich die Verläufe in Abb. 2.12, oben.

Um die Methode der Orthogonalen Kollokation erfolgreich anwenden zu können, muss also die Randbedingung und damit das Modell modifiziert werden. Da die Dispersion im gesamten System ohnehin eine untergeordnete Rolle spielt, kann dies leicht dadurch geschehen, dass bei der Herleitung der Randbedingung entweder Dispersion über den Rand hinaus zugelassen wird, oder aber der Dispersionskoeffizient schon im Innern des Systems in der unmittelbaren Nähe des Randes vernachlässigt wird. In beiden Fällen führt eine Komponenten-Massenbilanz für ein differentielles Volumenelement am Rand auf eine Identität, d. h. hier ergibt sich keine Randbe-

dingung, und die partielle Differentialgleichung gilt auch auf dem Rand. Diese Modifikation der Modellierung des rechten Randes lässt sich mit vergleichenden Simulationsexperimenten sehr gut rechtfertigen. Mit dem modifizierten Modell erhält man auch bei einer Diskretisierung mit Orthogonaler Kollokation die in Abb. 2.12, unten, gezeigten korrekten Verläufe der Ortsprofile.

Aus diesen Betrachtungen ergibt sich die generelle Frage, ob die weitverbreitete Verwendung von Randbedingungen vom Danckwerts-Typ wie Gl. (2.12) bei der Modellierung von Konvektions/Diffusions-Systemen überhaupt sinnvoll ist. Diese Frage wurde schon häufig untersucht, siehe z. B. [63], lässt sich aber nicht abschließend klären. Die den Danckwerts-Randbedingungen zugrunde liegende Annahme, der Dispersions- bzw. Diffusionskoeffizient ändere sich an den Rändern des Systems schlagartig, ist zwar streng physikalisch betrachtet nicht haltbar und führt zu entsprechenden Artefakten bei der Lösung der Modellgleichungen (wie z. B. einem Sprung im Verlauf der Zusammensetzung am linken Rand des Systems). Dennoch bieten die Randbedingungen vom Danckwerts-Typ eine konsistente und in der Regel praktikable Grundlage zur Beschreibung von Konvektions/Diffusions-Systemen. Bei Systemen mit steilen Profilen an den Rändern, wie sie bei Gegenstromprozessen, aber auch bei Batch-Chromatographieprozessen vorkommen, ist jedoch bei der Ortsdiskretisierung besondere Sorgfalt erforderlich.

2.8 Zusammenfassung

Beim SMB-Prozess wird ein scheinbarer Gegenstrom zwischen dem zu trennenden Fluid und dem Adsorbens dadurch erzeugt, dass an einer Reihe im Kreis verschalteter Adsorptionssäulen die Zufluss- und Abzugsstellen getaktet weitergeschaltet werden. Für diesen Prozess wird ein gemischt kontinuierlich / diskretes Modell entwickelt, das eine detaillierte Prozesssimulation ermöglicht.

Für Prozessführungsaufgaben ist das SMB-Modell nicht geeignet. Als rein kontinuierliches vereinfachtes Modell kann für diesen Zweck das TMB-Modell verwendet werden. Es geht von einem echten Gegenstrom zwischen Fluid und Adsorbens aus, die Zuflüsse und Abzüge werden nicht bewegt.

Die hier hergeleiteten Anlagenmodelle sind verkoppelte Systeme partieller Differentialgleichungen und algebraischer Gleichungen. Für die dynamische Prozesssimulation und für die Entwicklung von Zustandsschätzern und Reglern ist eine Ortsdiskretisierung erforderlich, die auf gekoppelte Systeme von Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen führt. Die hierfür verwendeten Verfahren werden in den Anhängen B und C dargestellt.

Die nun bereitgestellten Modelle bilden die Grundlage für die folgenden Untersuchungen zur Prozessdynamik und zur Prozessführung.

Kapitel 3

Simulation und Prozessverhalten

Für eine Simulation werden die im vorigen Abschnitt hergeleiteten Modelle für TMB-Abschnitt und SMB-Säule in Form verkoppelter partieller Differentialgleichungen und algebraischer Gleichungen örtlich diskretisiert und damit in Differential-Algebra-Gleichungssysteme überführt. Dazu wird die in Anhang B ausführlich beschriebene Finite-Volumen-Methode verwendet. Sie besitzt gegenüber der sonst häufiger verwendeten Finite-Differenzen-Methode den Vorteil einer garantierten Massenerhaltung auch für das ortsdiskretisierte System. Die Verschaltung zu Anlagenmodellen entsprechend der in Abb. 2.1 und Abb. 2.4 angegebenen Anlagenschaltungen, die Realisierung der für das SMB-Modell erforderlichen Modellumschaltungen sowie die numerische Lösung der Modellgleichungen erfolgen innerhalb der Simulationsumgebung DIVA [32, 44, 58, 66]. Im folgenden wird das stationäre und dynamische Verhalten von TMB- und SMB-Prozess untersucht und verglichen.

3.1 TMB-Prozess

Das TMB-Modell besitzt, wie schon in Abb. 2.5 gezeigt wurde, im Gegensatz zum SMB-Prozess einen stationären Zustand, da es sich um ein rein zeitkontinuierliches System handelt. Für die in dieser Arbeit betrachtete Stofftrennaufgabe, die Trennung der C_8 -Aromaten Paraxylol (PX), Metaxylol (MX) und Ethylbenzol (EB) im Lösungsmittel Toluol stellen sich für die in Anhang E angegebenen Modell- bzw. Betriebsparameter stationäre Ortsprofile der Gewichtsbrüche wie in Abb. 3.1 gezeigt ein. Im Extrakt kann Lösungsmittel mit Paraxylol in hoher Konzentration und Reinheit abgezogen werden, da diese Komponente als am stärksten adsorbierende Komponente mit dem Adsorbensstrom durch Abschnitt II nach links wandert. Die beiden anderen Komponenten, Metaxylol und Ethylbenzol, werden im Raffinat abgezogen. Im Raffinat ist der Gewichtsbruch von Paraxylol sehr gering, so dass sich eine hohe Produktausbeute ergibt.

Abb. 3.2 zeigt das dynamische Verhalten der TMB-Ortsprofile nach einer Störung bei der der Fluidstrom q_{z1} in Abschnitt I sprunghaft um 5% verringert wird. Die Ströme in den anderen Abschnitten sinken um den gleichen Betrag, da die Zuläufe und Abzüge konstant gehalten

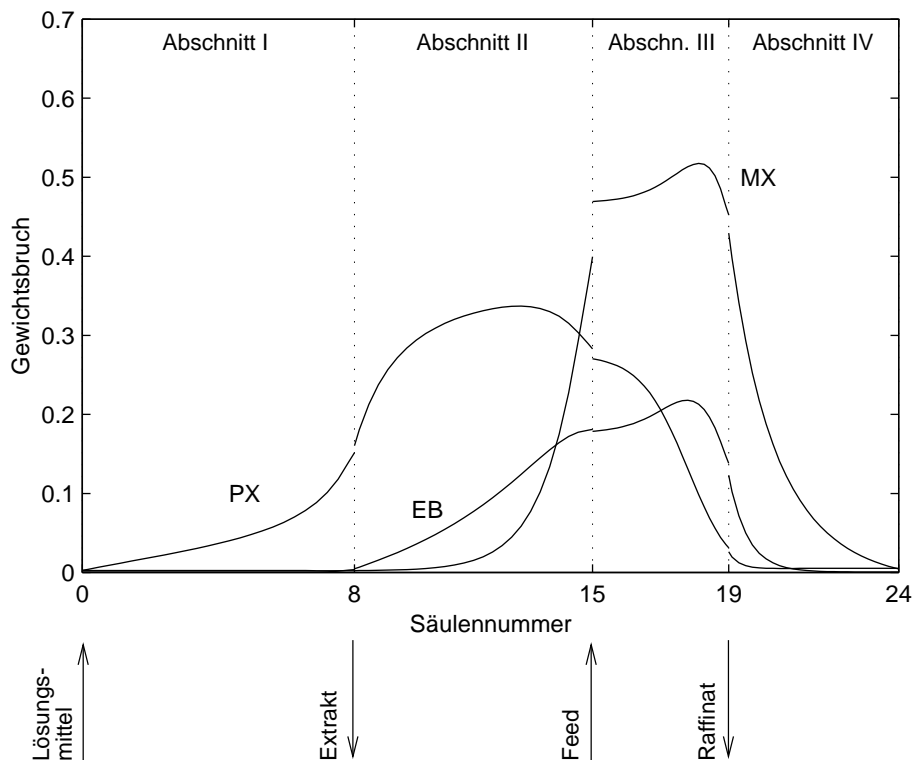


Abbildung 3.1: Stationäre TMB-Ortsprofile für die Trennung der C₈-Aromaten Paraxylol (PX), Metaxylol (MX) und Ethylbenzol (EB) im Lösungsmittel Toluol.

werden. Ausgehend vom stationären Zustand aus Abb. 3.1, hier fett durchgezogen, verändern die Ortsprofile ihre Lage und Form, bis sich ein neuer stationärer Zustand einstellt (jeweils letzte Kurve in Pfeilrichtung). Wegen des nun erhöhten Ethylbenzol-Anteils im Extrakt ist die Produktreinheit gegenüber dem ursprünglichen stationären Zustand signifikant verschlechtert.

Bereits eine geringfügige Verringerung von q_{Z1} um 1% führt schon zu einem Absinken der Reinheit von 98% auf den nicht mehr akzeptablen Wert von 96.4%. Eine solche geringfügige Abweichung eines Volumenstroms vom nominalen Wert ist als Störung im praktischen Betrieb einer SMB-Anlage jederzeit möglich. Es ist dann eine Korrektur durch geeignete Prozessführungsmaßnahmen erforderlich, um die Einhaltung der Produktspezifikationen zu gewährleisten.

Nichtlineares Prozessverhalten

Der SMB-Prozess und der TMB-Prozess weisen ein stark nichtlineares Verhalten auf. Dies ist beispielsweise an den Verläufen von Reinheit und Ausbeute in Abhängigkeit eines Betriebsparameters, des umlaufenden Stroms q_{Z1} , deutlich zu erkennen, Abb. 3.3. Das nichtlineare Prozessverhalten ergibt sich zum einen daraus, dass die Reinheit sehr nahe an der Grenze des physikalisch Möglichen liegt – 100% Reinheit können schon nicht mehr erreicht werden. Zum anderen wird bei der Auslegung des Prozesses grundsätzlich ein Arbeitspunkt gewählt, bei dem die Trennleistung der Anlage so weit als möglich ausgenutzt wird. Es sind dann selbst bei be-

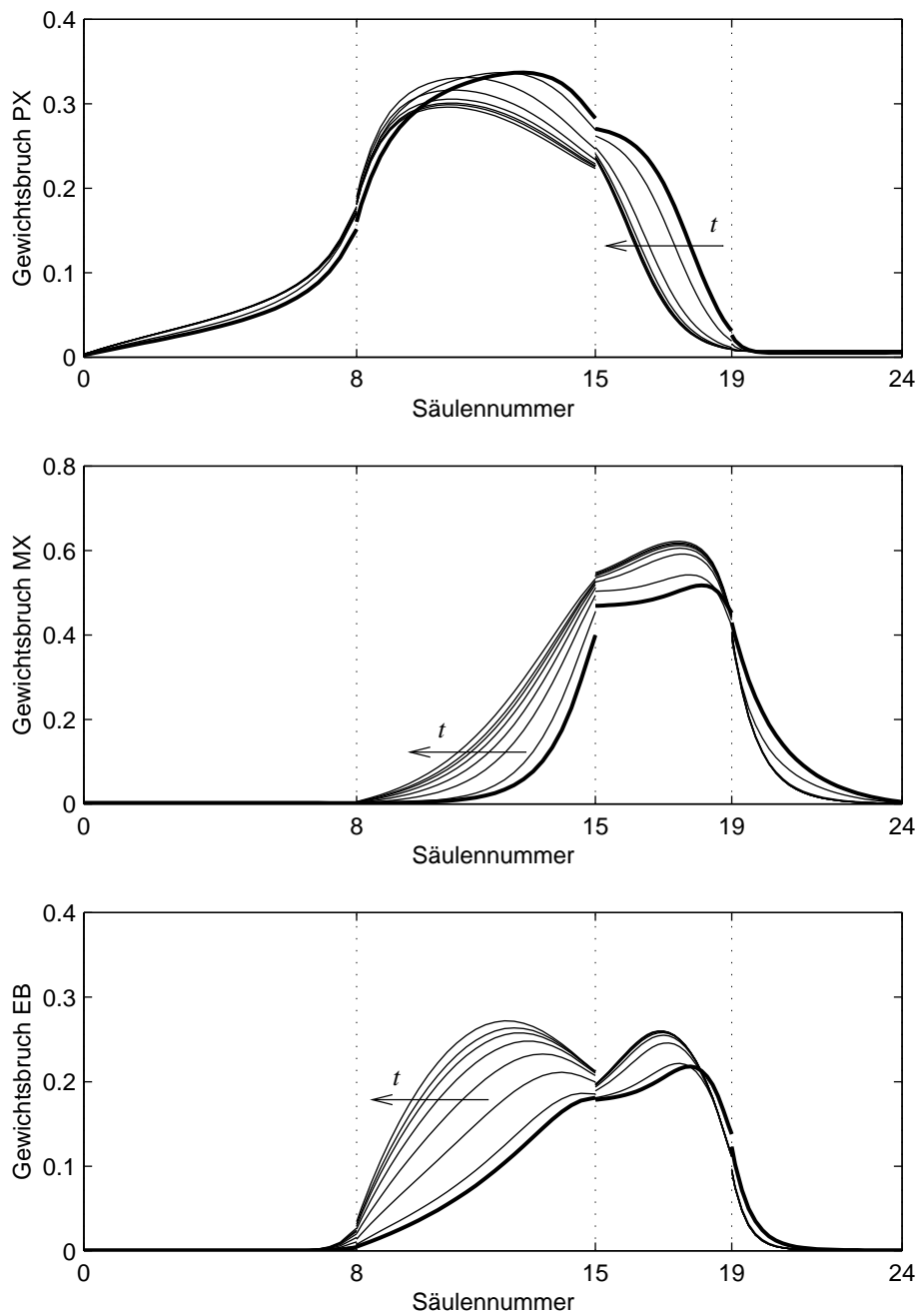


Abbildung 3.2: Übergangsverhalten der TMB-Ortsprofile nach einer sprungförmigen Verringerung des Fluidstroms q_{Z1} in Abschnitt I um 5%. Ausgehend vom alten stationären Zustand (fett durchgezogen) wandern die Profile in Pfeilrichtung und ändern ihre Form, bis sich ein neuer stationärer Zustand einstellt (jeweils letzte Kurve in Pfeilrichtung).

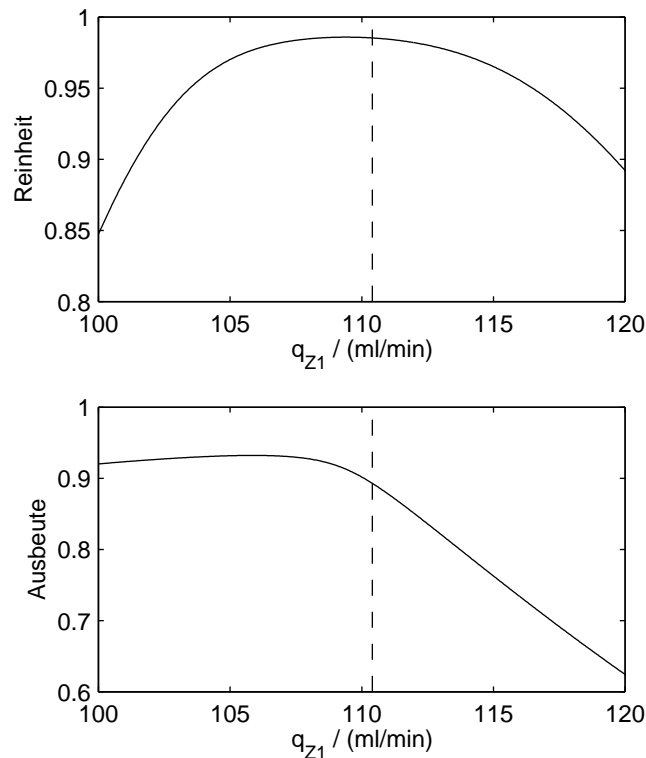


Abbildung 3.3: Stationäre Reinheit und Ausbeute für den TMB-Prozess in Abhängigkeit vom umlaufenden Volumenstrom q_{Z1} in der Nähe des Arbeitspunkts bei $q_{Z1} = 110.4$ ml/min.

liebig erhöhtem Lösungsmittelverbrauch keine Verbesserungen in Reinheit und Ausbeute oder im Durchsatz mehr möglich.

3.2 SMB-Prozess

Beim SMB-Prozess bewegen sich die Ortsprofile mit der Fluidströmung entlang der Ortskoordinate durch die ruhende Adsorbensschüttung. Abb. 3.4 zeigt die Bewegung der Profile der Komponente Paraxylol während eines Schaltintervalls, also im Zeitraum zwischen zwei Schaltzeitpunkten. Beim vollständig ausgebildeten („eingeschwungenen“) zyklischen Zustandsverlauf ist das Ortsprofil am Ende eines jeden Schaltintervalls (rechte Kurve) mit dem um eine Säule verschobenen Profil vom Beginn des Schaltintervalls (linke Kurve) identisch. Dies ergibt sich durch das Weiterschalten der Zu- und Abflüsse um eine Säule am Ende jedes Schaltintervalls – äquivalent mit einer Bewegung der Säulen um eine Säule nach links: das Endprofil eines Intervalls wird so zum Anfangszustand für das nächste Intervall.

3.3 Vergleich SMB / TMB

Der SMB-Prozess ist für eine unendliche Anzahl infinitesimal kurzer Teilsäulen mit dem TMB-Prozess identisch, siehe Abschnitt 2.1. Für endliche SMB-Säulenanzahlen in einer praktisch

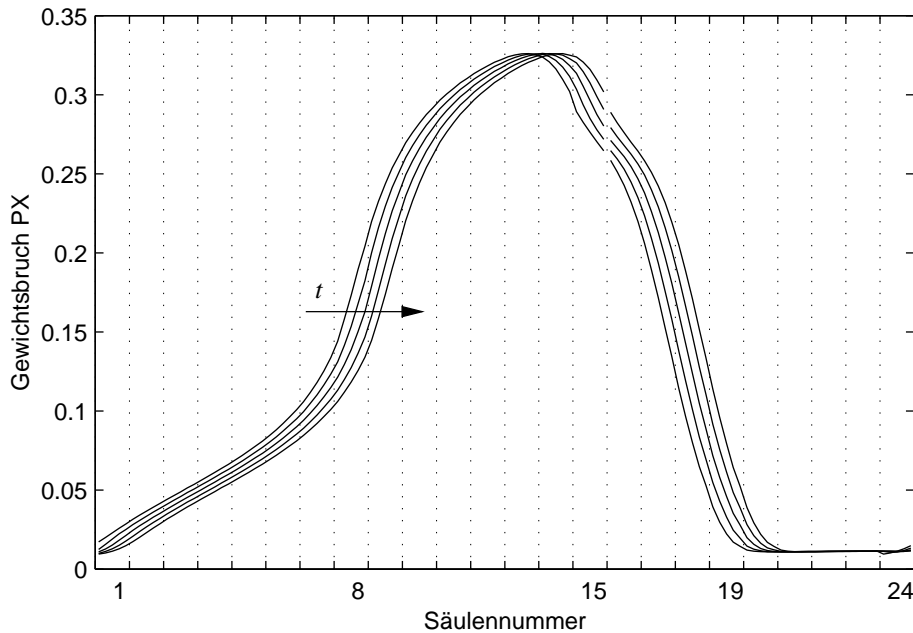


Abbildung 3.4: Bewegung der SMB-Profile von Paraxylol während des Verlaufs eines Schaltintervalls um eine Säulenlänge in Richtung der Fluidströmung.

relevanten Größenordnung bietet das TMB-Modell immer noch eine sehr gute Approximation für das Verhalten des SMB-Prozesses, selbstverständlich abgesehen von der zyklischen Bewegung der Profile innerhalb eines jeden Schaltintervalls. Damit kann das TMB-Modell für Auslegungs- und Prozessführungsaufgaben als kontinuierliches vereinfachtes Modell des gemischt kontinuierlich/diskreten SMB-Prozesses verwendet werden.

Abb. 3.5 zeigt den Vergleich der stationären TMB-Ortsprofile mit den entsprechenden SMB-Ortsprofilen in der Mitte eines Schaltintervalls für die hier betrachtete SMB-Anlage mit 24 Teilsäulen. Die Übereinstimmung ist sehr gut.

Auch das dynamische Verhalten des SMB-Prozesses bei Störungen oder Änderungen der Betriebsparameter wird vom TMB-Modell sehr gut wiedergegeben, wenn man beim SMB-Prozess die mittlere Zusammensetzung in einem Schaltintervall oder die Zusammensetzung in der Mitte eines Schaltintervalls betrachtet. Dies zeigt der Vergleich der Zeitverläufe des Metaxylol-Gewichtsbruchs im Raffinat nach einer Störung, Abb. 3.6. Der obere Teil der Abbildung zeigt durchgezogen den sägezahnförmigen Verlauf des Gewichtsbruchs am Raffinatabzug, der mit der Bewegung der Ortsprofile in Abb. 3.4 korrespondiert. Gestrichelt ist der entsprechende Zeitverlauf für das TMB-Modell eingetragen. Abb. 3.6, unten, zeigt den Verlauf der SMB-Werte *in der Mitte der Schaltintervalle* im Vergleich zum TMB-Verlauf für einen größeren Zeithorizont. Die Dynamik ist identisch, es ist jedoch eine geringfügige quantitative Abweichung in Form eines konstanten Offsets zu beobachten. Die Genauigkeit ist für eine Verwendung des TMB-Modells zur Entwicklung modellbasierter Regelverfahren für den SMB-Prozess hinreichend gut.

Es wird hier auch deutlich, dass die für eine Prozessführung relevante Dynamik Zeitkonstanten

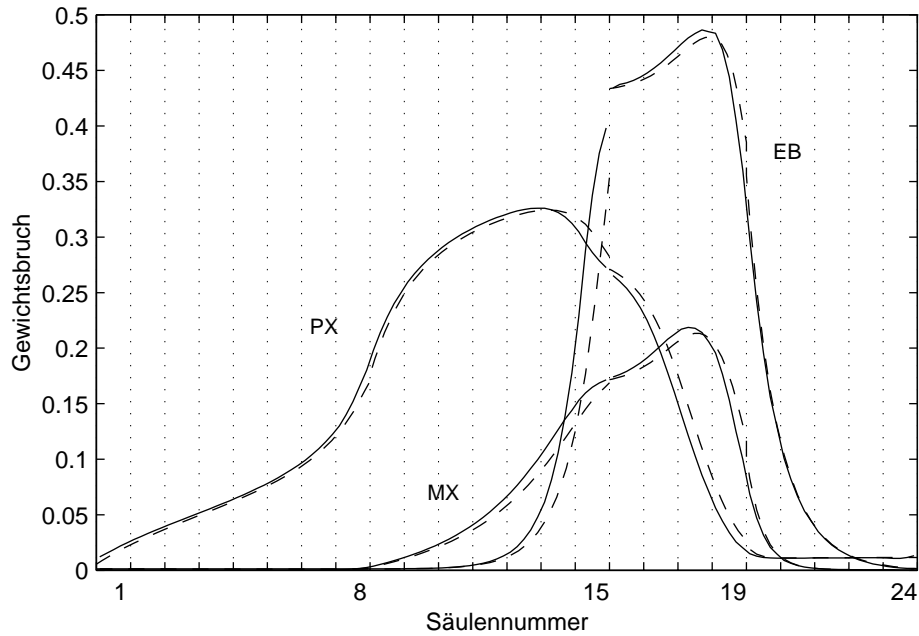


Abbildung 3.5: Vergleich von SMB und TMB, axiale Profile der Gewichtsbrüche. Durchgezogene Kurven: SMB in der Mitte eines Schaltintervalls, gestrichelte Kurven: stationärer TMB-Zustand.

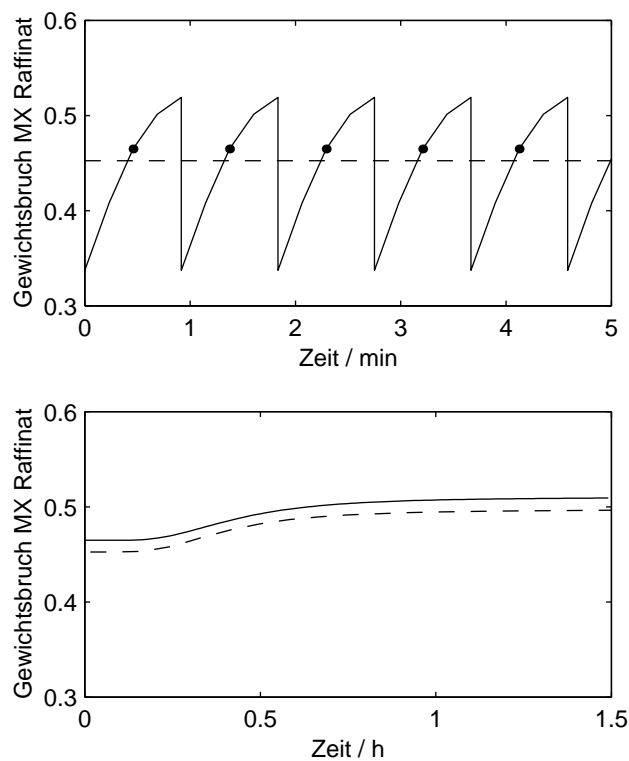


Abbildung 3.6: Vergleich von TMB und SMB, Übergangverhalten des Volumenanteils von MX im Raffinat. Durchgezogene Kurven: SMB, gestrichelte Kurven: TMB. Unterer Bildteil: Werte in den Mitten der Schaltintervalle entsprechend den schwarzen Punkten im oberen Teil, größerer Zeithorizont.

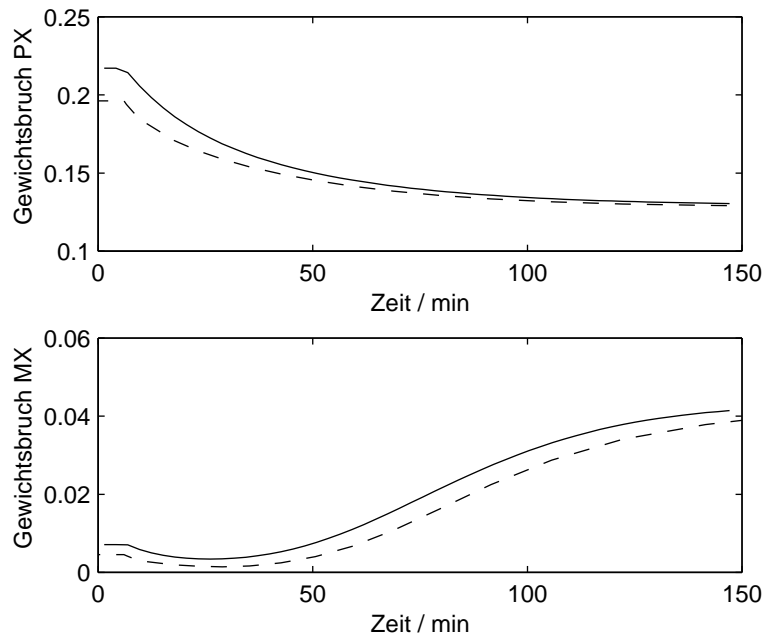


Abbildung 3.7: Vergleich von TMB-Modell und 8-Säulen-SMB-Prozess, Übergangsverhalten der Extrakt-Zusammensetzung nach einer Änderung des umlaufenden Stroms. Durchgezogene Linien: SMB, Intervall-Mittelwerte; gestrichelte Linien: TMB.

in einer Größenordnung besitzt, die wesentlich über der Länge des SMB-Schaltintervalls liegt.

Selbst für SMB-Anlagen mit nur 8 Säulen eignet sich das TMB-Modell, obwohl hier die Auswirkungen der diskreten Schaltvorgänge bzw. der diskreten Adsorbensbewegung beim SMB-Prozess noch größer sind. Dennoch ist die *Dynamik* der mittleren Gewichtsbrüche der Schaltintervalle immer noch sehr ähnlich zur Dynamik der Gewichtsbrüche im TMB-Modell, siehe Abb. 3.7.

3.4 Zusammenfassung

Mit den in Kapitel 2 entwickelten Modellen wurde das stationäre und dynamische Verhalten des SMB-Prozesses und des hypothetischen TMB-Prozesses untersucht. Zur numerischen Lösung der Modellgleichungen in DIVA erfolgte eine örtliche Diskretisierung mit der Finite-Volumen-Methode.

Das rein kontinuierliche TMB-Modell besitzt einen stationären Zustand mit einer charakteristischen Lage und Form der örtlichen Konzentrationsprofile. Im SMB-Prozess stellt sich bei konstanten äußeren Bedingungen ein zyklischer Zustandsverlauf ein, der sich in jedem Schaltintervall wiederholt. Während eines Schaltintervalls bewegen sich die Konzentrationsprofile um eine Teilsäule weiter. Dadurch ergibt sich ein sägezahnförmiger Zeitverlauf der Zusammensetzungen der Abzüge.

Bei einer Änderung der Betriebsbedingungen des TMB-Prozesses bewegen sich die Ortsprofi-

le der Zusammensetzung mit geringer Formänderung entlang der Ortskoordinate, bis sich ein neuer stationärer Zustand einstellt. Das entsprechende Übergangsverhalten beim SMB-Prozess ist ungleich komplexer. Betrachtet man hier jedoch nur die Konzentrationsprofile in der Mitte der Schaltintervalle, ergibt sich ein dem TMB-Modell sehr ähnliches Verhalten.

Eine Prozessführung für den SMB-Prozess muss zum Ziel haben, bei Störungen die über ein Schaltintervall gemittelte Produkt-Reinheit und -Ausbeute konstant zu halten. Die dafür relevante Prozessdynamik wird vom TMB-Modell sehr gut wiedergeben und besitzt im Vergleich zum SMB-Schaltintervall sehr große Zeitkonstanten. Das TMB-Modell kann damit zur Entwicklung einer modellbasierten Prozessführung für einen SMB-Prozess verwendet werden.

Kapitel 4

Prozessführungsaufgabe

Die Auslegung einer SMB-Anlage erfolgt in Abhängigkeit vom geforderten Feed-Durchsatz, von Anforderungen an die Produkte (Reinheit, Ausbeute), Wirtschaftlichkeits-Kriterien sowie sonstigen Randbedingungen [13, 60]. Aus den Auslegungsrechnungen ergibt sich zum einen die Dimensionierung der Anlage, also Länge und Anzahl der SMB-Säulen, die Aufteilung der Teilsäulen auf die Intervalle sowie der Säulendurchmesser. Zum anderen werden die Betriebsparameter festgelegt. Dies sind die Größe der Volumenströme für die Zuflüsse, Abzüge und den umlaufenden Strom sowie die Länge des Schaltintervalls. Mit der Wahl dieser Parameter liegt ein Soll-Betriebspunkt fest. In der vorliegenden Arbeit werden Fragestellungen, die die Auslegung betreffen, nicht betrachtet, sondern es wird von einer vorgegebenen Auslegung aus der Kooperation mit dem IFP ausgegangen.

Beim Betrieb einer SMB-Anlage mit den in der Auslegung bestimmten Betriebsparametern werden sich in der Regel Abweichungen vom Soll-Betriebspunkt ergeben. Die Konzentrationsprofile und damit die Zusammensetzungen von Extrakt und Raffinat weichen von den in der Auslegung festgelegten Werten ab, so dass insbesondere die Anforderungen an die Produktreinheit und -ausbeute nicht mehr erfüllt sind. Dies kann unterschiedliche Ursachen haben, wie z. B.:

- Abweichung des Auslegungsmodells vom Prozess.
- Nicht vorhersehbare Störungen wie plötzliche Änderung der Feed-Zusammensetzung.
- Degeneration des Adsorbens im Laufe der Zeit mit der Folge einer Veränderung der Selektivität.
- Ungenauigkeit der eingestellten Ströme bei Pumpen ohne Durchflussregelung.

Um dennoch die der Auslegung zugrundeliegenden Anforderungen im Betrieb zu erfüllen, müssen daher die Betriebsparameter laufend angepasst werden.

Beim SMB-Prozess ist es nicht möglich, diese Abweichungen vom Soll-Betriebspunkt entsprechend dem Vorgehen bei Destillationskolonnen durch Modifikation einzelner Volumenströme

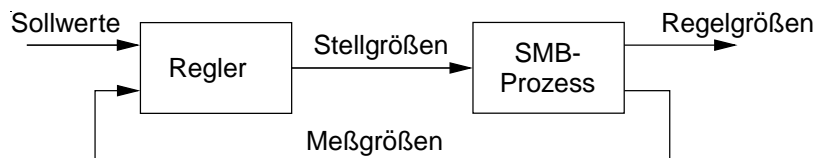


Abbildung 4.1: Geschlossener Regelkreis für die anlagenübergreifende Regelung eines SMB-Prozesses.

von Hand oder mit Eingrößenreglern zu korrigieren. Wegen der direkten Verbindung zwischen Abschnitt I und Abschnitt IV (Anlagenschaltung Abb. 2.6) und der gegenseitigen Beeinflussung aller Komponenten über das Mehrkomponenten-Adsorptionsgleichgewicht weist der Prozess ein relativ komplexes Verhalten auf – eine Änderung des Volumenstroms in einem Abschnitt wirkt sich auf die Konzentrationsprofile in allen Abschnitten aus. Aus diesem Grund ist eine anlagenübergreifende Regelung mit Mehrgrößen-Regelungsverfahren erforderlich. Damit können die umfangreichen Abhängigkeiten zwischen allen Stell- und Regelgrößen beim Entwurf direkt berücksichtigt werden. In Abschnitt 3.1 wurde zudem gezeigt, dass das Prozessverhalten stark nichtlinear ist. Es kommen also insbesondere nichtlineare, modellbasierte Mehrgrößen-Regelungsverfahren in Frage.

Den grundsätzlichen Aufbau des Regelkreises zeigt Abb. 4.1. Zur Definition der im folgenden aufgeführten Stell- und Regelgrößen sei noch einmal auf die Anlagenschaltungen von SMB- und TMB-Prozess in Abb. 2.1 und Abb. 2.4 verwiesen.

Stellgrößen

Als Stellgrößen für die Regelung stehen zur Verfügung: der umlaufende Strom, drei der vier externen Ströme, also z. B. Extrakt, Feed und Raffinat, sowie das Schaltintervall (bzw. die Adsorbengeschwindigkeit beim TMB-Prozess). In der Praxis muss wegen der Integration mit vorgeschalteten Prozessstufen der Feed-Strom konstant gehalten werden, damit der Anlagen-Durchsatz nicht von der Regelung beeinflusst wird. Das Schaltintervall wird im folgenden ebenfalls konstant gehalten und nicht als Stellgröße verwendet: Simulationsstudien und Sensitivitätsanalysen zeigen, dass Änderungen des Schaltintervalls sehr ähnliche Auswirkungen auf die Konzentrationsprofile und damit auf die Regelgrößen haben wie Änderungen im umlaufenden Strom. Dies ist darin begründet, dass die Relativgeschwindigkeit zwischen Fluid und Adsorbens eine wesentlich größere Bedeutung für das Prozessverhalten hat als die Absolutgeschwindigkeiten der einzelnen Phasen.

Unter diesen Voraussetzungen bleiben als mögliche Stellgrößen der umlaufende Strom sowie zwei der drei Ströme Extrakt, Raffinat und Lösungsmittel. Die Größe des noch freien externen Stroms ergibt sich aus der Gesamtvolumenbilanz.

Regelgrößen

Der in dieser Arbeit betrachtete Prozess dient zur Abtrennung des Produkts Paraxylol aus einem Gemisch von C₈-Aromaten. Damit sind die entscheidenden Größen für den Betrieb der Anlage und für eine Prozessführung die in Gl. (2.31) definierte Reinheit r_{Ex} von Paraxylol im Extrakt und die Paraxylol-Ausbeute a_{PX} nach Gl. (2.32).

Diese Größen ergeben sich als abgeleitete Größen aus den Zusammensetzungen des Extrakt- und des Raffinat-Stroms. Man könnte daher daran denken, als Regelgrößen die Extrakt- und die Raffinat-Zusammensetzung zu wählen. Um eine vorgegebene Reinheit und Ausbeute zu erreichen, müsste dann jedoch der Gewichtsbruch jeder einzelnen Komponente in Extrakt und Raffinat festgelegt werden. Damit würde die Anzahl der Regelgrößen die Anzahl der Stellgrößen überschreiten, und eine Regelung wäre nicht mehr möglich. Selbst für eine ausschließliche Regelung der Reinheit mit drei Regel- und drei Stellgrößen wäre dieses Konzept ungünstig, da auf diese Weise eine flexible Reaktion der Prozessführung auf Änderungen in der Feed-Zusammensetzung und damit Änderungen im Verhältnis der Massenströme der einzelnen Komponenten nicht mehr möglich ist.

Sinnvoll ist es also vielmehr, als Regelgrößen direkt Reinheit und Ausbeute zu verwenden.

Messgrößen

Voraussetzung für eine Prozessführung ist die Online-Verfügbarkeit von Information über den Prozesszustand. Am hier untersuchten SMB-Prozess stehen dazu Messungen der Zusammensetzung von Extrakt und Raffinat sowie der Zusammensetzung an zwei Stellen im umlaufenden Fluid der SMB-Anlage zur Verfügung. Die Messkonfiguration und die Entwicklung eines Zustandsschätzers wird ausführlich in Kapitel 5 dargestellt.

Zusätzliche Forderungen an die Regelung

Über das einfache Ausregeln von Abweichungen der oben definierten Regelgrößen hinaus können noch zusätzliche Anforderungen an eine Regelung gestellt werden. Für den hier betrachteten Prozess sind dies zunächst die Berücksichtigung von Stellgrößenbeschränkungen und von Beschränkungen des umlaufenden Volumenstroms.

Des weiteren soll der Lösungsmittelverbrauch minimiert werden – nach einer Änderung beispielsweise der Feed-Zusammensetzung soll ein neuer optimaler Arbeitspunkt erreicht werden, ohne dass dieser mit einer gesonderten Auslegungsrechnung bestimmt werden muss. Der Lösungsmittelverbrauch bestimmt zu einem großen Teil die Betriebskosten, da das zugeführte Lösungsmittel in nachfolgenden Prozessstufen durch Destillation wieder von den Produkten abgetrennt werden muss.

Und schließlich ist die Regelgröße *Reinheit* gegenüber der Regelgröße *Ausbeute* bevorzugt zu behandeln, da die Extraktreinheit entscheidend die Qualität der mit dem Extrakt erzeug-

ten Endprodukte bestimmt. Es muss also zum einen bei Übergangsvorgängen und im stationären Betrieb mehr Wert auf geringe Abweichungen der Reinheit gelegt werden, als auf eine Verringerung von Ausbeute-Abweichungen. Zum anderen sollen im Falle des Erreichens von Beschränkungen, wenn nicht mehr beide Regelgrößen am Sollwert gehalten werden können, ausschließlich Abweichungen bei der *Ausbeute* zugelassen werden.

In der vorliegenden Arbeit betrachtete Varianten der Regelungsaufgabe

Entsprechend den unterschiedlichen, in der Praxis relevanten Anforderungen an die Regelung, die auch von den zu erwartenden Störungen abhängen, werden in dieser Arbeit zwei Varianten der Regelungsaufgabe untersucht.

In der komplexeren Variante I werden die zuletzt beschriebenen zusätzlichen Bedingungen vollständig berücksichtigt. Damit beinhaltet diese Regelungsaufgabe im einzelnen:

- Regelgrößen Reinheit und Ausbeute, Minimierung des Lösungsmittelverbrauchs, bevorzugte Behandlung der Reinheit gegenüber der Ausbeute.
- Berücksichtigung von Stellgrößenbeschränkungen und Beschränkungen der internen Ströme.
- Verwendung von drei Stellgrößen, um alle vorhandenen Freiheitsgrade zu nutzen.

Weitere Details zu Variante I der Regelungsaufgabe werden in Kapitel 7 im Zusammenhang mit der Entwicklung einer modellprädiktiven Regelung ausgeführt.

Wegen der Nebenbedingungen ist die Anzahl der möglichen Regelungsverfahren für Variante I sehr eingeschränkt. Es wird daher zusätzlich eine vereinfachte Variante II der Regelungsaufgabe betrachtet, die diese Bedingungen nicht beinhaltet. Viele Regelungsverfahren setzen zudem voraus, dass die Anzahl der Stellgrößen gleich der Anzahl der Regelgrößen ist, das System also quadratisch ist. Dies wird ebenfalls in Variante II berücksichtigt. Sie ist gekennzeichnet durch

- Regelgrößen Reinheit und Ausbeute.
- Auswahl von zwei Stellgrößen aus den drei verfügbaren Freiheitsgraden.

Auf die Auswahl der Stellgrößen für die Anwendung des Verfahrens der asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung wird in Abschnitt 6.1 näher eingegangen.

Kapitel 5

Zustandsschätzung

Für eine Prozessführung in Form eines modellbasierten Regelungsverfahrens muss Online-Information über den gesamten Prozesszustand verfügbar sein. Bei dem vorliegenden örtlich verteilten System kann der Prozesszustand durch Messungen nur unvollständig erfasst werden. Der Zustand muss also mit einem Beobachter oder Filter aus der vorhandenen Messinformation online rekonstruiert werden.

5.1 Messverfahren

SMB-Prozesse werden bis auf wenige Ausnahmen isotherm betrieben. Es können daher nicht – wie bei Destillations-Prozessen – Temperaturmessungen für eine Zustandsschätzung oder unmittelbar für die Regelung herangezogen werden. Statt dessen muss die Gemischzusammensetzung an verschiedenen Orten der Anlage direkt bestimmt werden.

Dazu können bei Gemischen von C_8 -Aromaten zum einen Gaschromatographen eingesetzt werden, wobei Totzeiten von etwa 10 Minuten zu berücksichtigen sind. Für eine solche Messapparatur fallen erhebliche Kosten an. Das ist besonders dann von Bedeutung, wenn an mehreren Stellen der Anlage gleichzeitig gemessen werden soll: es müssen dann entsprechend viele Gaschromatographen vorhanden sein, oder es sind, bei sequentieller Analyse mit einem Gerät, zusätzliche Totzeiten in Kauf zu nehmen.

Alternativ dazu wurde durch das IFP und andere ein Messverfahren basierend auf der Raman-Spektroskopie entwickelt, mit dem die Zusammensetzung eines Gemischs von C_8 -Aromaten direkt gemessen werden kann [11, 20, 55]. Dieses Verfahren bringt vernachlässigbare Verzögerungszeiten mit sich und lässt durch den Einsatz mehrerer Messzellen, die über Lichtleiter an *einen* Detektor angeschlossen sind, auch die nahezu simultane Messung an mehreren Orten der SMB-Anlage zu. Nachteil dieses Verfahrens gegenüber der Gaschromatographie ist seine geringere Genauigkeit, insbesondere bei niedrigen Konzentrationen. Dies kann jedoch durch eine hinreichende Anzahl an Messzellen und die Verarbeitung der Messwerte mit einem Algorith-

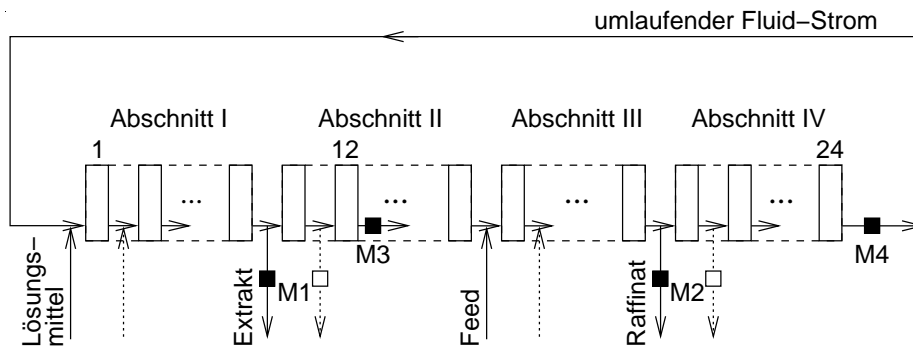


Abbildung 5.1: Position der Messzellen in Extrakt, Raffinat und umlaufendem Fluidstrom in der SMB-Anlage: Quadrate M1, M2, M3 und M4. Nicht ausgefüllte Quadrate: Position von M1 und M2 nach dem Weiterschalten der Zuflüsse und Abzüge.

mus zur Zustandsschätzung kompensiert werden.

Messeinrichtungen am SMB-Prozess

Um für eine Regelung Reinheit und Ausbeute des Produkts zu bestimmen, sind in jedem Fall zwei Messzellen in den Abzügen für Extrakt und Raffinat erforderlich (Quadrate M1 und M2 in Abb. 5.1). Damit ist jedoch noch keine zuverlässige Bestimmung des gesamten Anlagenzustands möglich: zum einen sind im Extrakt die Konzentrationen von Metaxylyl und Ethylbenzol zu gering, um zuverlässig gemessen werden zu können, das gleiche gilt für Paraxylyl im Raffinat. Zum anderen werden Störungen, beispielsweise Änderungen der Feed-Zusammensetzung, zum Teil erst nach einer gewissen Totzeit an den Systemausgängen sichtbar, siehe z. B. Abb. 3.6.

Aus diesem Grund werden zwei zusätzliche Messzellen im umlaufenden Fluidstrom positioniert (M3, M4 in Abb. 5.1). Sie befinden sich an festen Stellen zwischen jeweils zwei aufeinanderfolgenden Säulen – bei der hier betrachteten SMB-Anlage mit 24 Säulen nach den Säulen 12 bzw. 24.

Bezug zum TMB-Entwurfsmodell

Als Entwurfsmodell für Zustandsschätzung und Regelung soll das zeitkontinuierliche TMB-Modell verwendet werden. Wie in Kapitel 3 gezeigt wurde, stimmen die TMB-Ortsprofile mit den SMB-Ortsprofilen in der Mitte der Schaltintervalle sehr gut überein (Abb. 3.5), ebenso TMB-Zeitverläufe mit den Zeitverläufen von SMB-Zuständen an aufeinanderfolgenden Intervallmitten (Abb. 3.6). Es ist daher sinnvoll, mit einem TMB-Modell nur den SMB-Zustand an den Mitten der Schaltintervalle zu schätzen, und die Bewegung der SMB-Profile *innerhalb* eines Schaltintervalls (Abb. 3.4) außer acht zu lassen. Dies wird hier dadurch erreicht, dass mit Abtast/Halte-Gliedern die Messgrößen der SMB-Anlage in den Intervallmitten abgetastet werden. Die Messgrößen aus Sicht des TMB-Zustandsschätzers entsprechen damit den in Abb. 3.6, unten, gezeigten Kurven. Das zyklische Verhalten des SMB-Prozesses bleibt dem

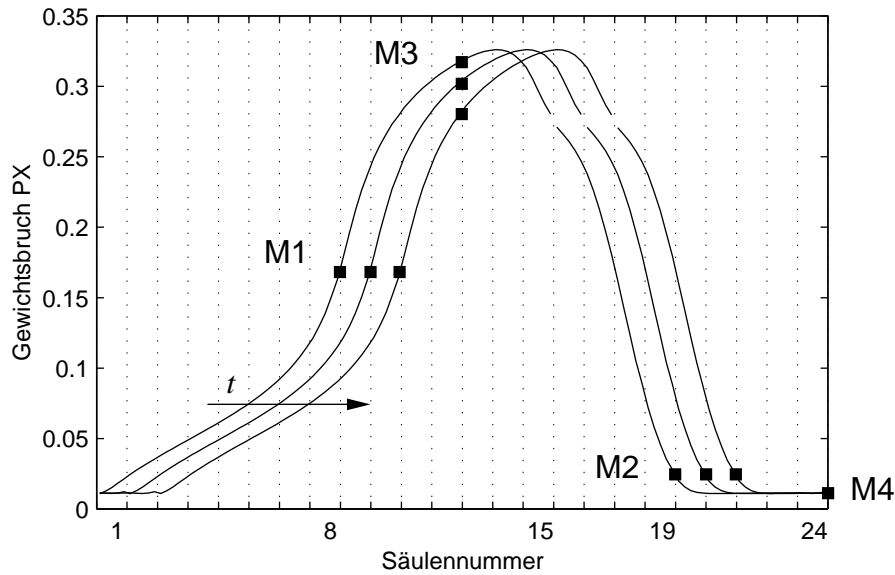


Abbildung 5.2: Position der Messzellen relativ zu den bewegten SMB-Ortsprofilen in der Mitte dreier aufeinanderfolgender Schaltintervalle. Die Messzellen M1 und M2 in Extrakt- und Raffinatstrom „sehen“ in aufeinanderfolgenden Intervallen die gleiche Stelle des Profils, da sie mit den Profilen mitbewegt werden. Im Gegensatz dazu sind die Messzellen M3 und M4 in der SMB-Anlage ortsfest, die Profile bewegen sich an ihnen vorbei. Diese Relativbewegung entspricht im TMB-Entwurfsmodell einer Bewegung der Messzellen entlang der ortsfesten Konzentrationsprofile, siehe folgende Abbildung.

Zustandsschätzer vollkommen verborgen.

Bei der Verwendung der SMB-Messgrößen für den auf einem TMB-Modell basierenden Zustandsschätzer ist weiterhin zu berücksichtigen, dass sich beim SMB-Prozess die Ortsprofile mit dem Fluidstrom durch die Anlage bewegen, beim TMB-Prozess hingegen nicht. Abb. 5.2 zeigt die Ortsprofile des Volumenanteils von Paraxylol in der Mitte dreier aufeinanderfolgender Schaltintervalle zusammen mit den Positionen der Messzellen. Die externen Messzellen M1 und M2 werden mit den Abzügen für Extrakt und Raffinat mit der selben Geschwindigkeit wie die Ortsprofile weiterbewegt und bleiben deshalb an einer konstanten Position relativ zu den Ortsprofilen. Im Gegensatz dazu befinden sich die internen Messzellen M3 und M4 an einer festen physikalischen Position (Säulennummer) und „sehen“ damit in jedem Intervall eine andere Stelle des Konzentrationsprofils. Übertragen auf den TMB-Prozess mit ortsfesten Profilen entspricht dies einer Bewegung dieser internen Messzellen entgegen der Fluidströmung („nach links“) mit der Geschwindigkeit des hypothetischen Adsorbensstroms, Abb. 5.3. Die externen Messzellen M1 und M2 bewegen sich relativ zu den SMB-Ortsprofilen nicht, und besitzen damit beim TMB-Prozess eine konstante Position.

Wird die Bewegung der Messzellen im TMB-Modell berücksichtigt (siehe unten) und damit ein Zustandsschätzer realisiert, so ergibt sich eine Verschaltung des Zustandsschätzers mit dem SMB-Prozess über Abtast/Halteglieder wie in Abb. 5.4 gezeigt.

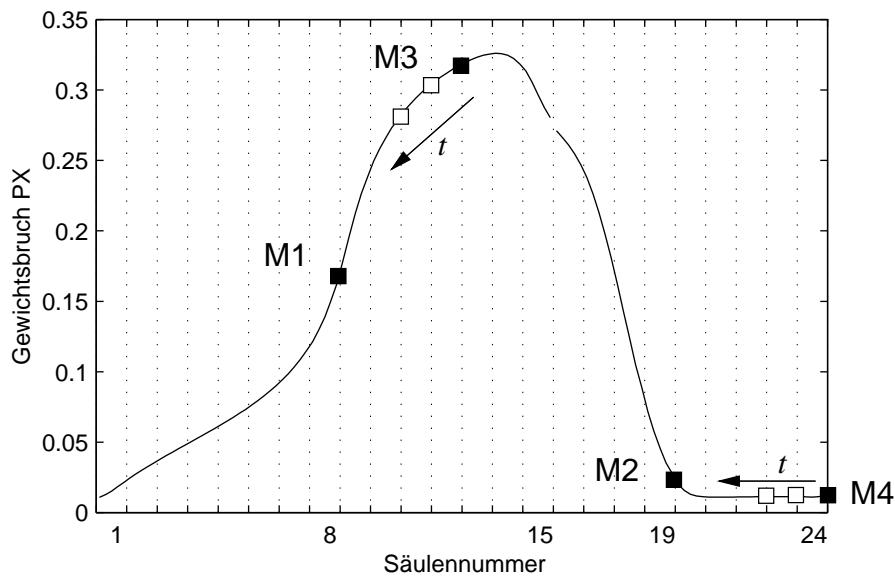


Abbildung 5.3: Position der SMB-Messzellen in Bezug auf das TMB-Modell. Gezeigt werden die Positionen der Messzellen bei einem stationären TMB-Ortsprofil an drei Zeitpunkten im Abstand jeweils eines SMB-Schaltintervalls. M1 und M2 sind ortsfest, M3 und M4 bewegen sich in Richtung des Adsorbensstroms.

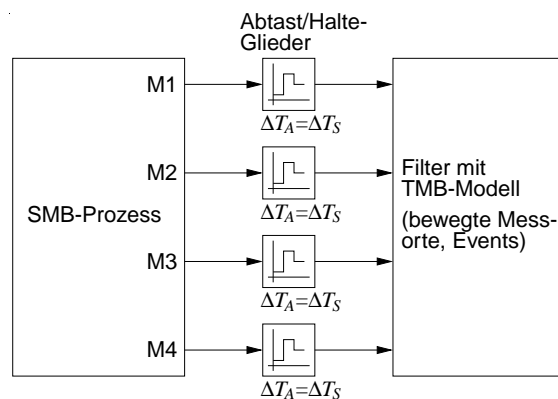


Abbildung 5.4: Verschaltung des TMB-Zustandsschätzers mit dem SMB-Prozess über Abtast/Halte-Glieder, wenn die Bewegung der Messorte in den Messgleichungen des TMB-Modells berücksichtigt wird. Dazu sind eventgesteuerte Modellumschaltungen im Zustandsschätzer erforderlich, da die Messorte vom Ende des TMB-Ortsbereichs zurück zum Anfang springen.

5.2 Lösungsansätze zur Zustandsschätzung

Im folgenden werden unterschiedliche Möglichkeiten der Realisierung eines Zustandsschätzers für die oben beschriebenen Voraussetzungen bezüglich der Messeinrichtungen, also abgetastete Messgrößen und zum Teil zeitvariable Messorte, diskutiert. Für eine Verwendung im Rahmen der asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung, Kapitel 6, muss der zu entwickelnde Zustandsschätzer rein kontinuierlich sein, darf also keine zeitdiskreten Anteile besitzen. Es werden jedoch zunächst auch Ansätze betrachtet, die diese Forderung nicht erfüllen. Wegen der Nichtlinearität des Systems ist ein nichtlinearer Zustandsschätzer erforderlich. Ein analytischer Beobachterentwurf [5] scheidet jedoch wegen der Komplexität des Systems aus. Damit kommen ausschließlich Varianten des Kalman-Bucy-Filters [6, 26, 43] in Frage.

Direkte Berücksichtigung der bewegten Messorte

Um die Bewegung der Messzellen M3 und M4 im örtlich verteilten TMB-Modell explizit zu berücksichtigen, müssen diesem Modell Differentialgleichungen für die Messorte $z_{M3}(t)$ und $z_{M4}(t)$ hinzugefügt werden. Die zugehörigen Messgleichungen lauten dann $y_{i,M3} = g_{B,i}(z_{M3}(t))$ und $y_{i,M4} = g_{B,i}(z_{M4}(t))$. Dabei ist der Übergang der Messorte zwischen den vier TMB-Abschnitten und insbesondere vom Ende des vierten Abschnitts zurück zur Ortskoordinate Null am Beginn von Abschnitt I in Betracht zu ziehen. Dazu sind zeit- oder zustandsabhängige Events erforderlich, und das Modell erhält somit ereignisdiskrete Anteile. Ein mit diesem Modell entwickelter Zustandsschätzer ist dann ebenfalls diskontinuierlich.

Gemischt zeitkontinuierlich/ereignisdiskretes erweitertes Kalman-Bucy-Filter

Die beiden in den Intervallmitten abgetasteten internen Messzellen M3 und M4, die relativ zu den Ortsprofilen im TMB-Prozess wandern, können repräsentiert werden durch Messzellen am Ende jeder der 24 SMB-Säulen, die um jeweils ein Intervall zeitversetzt in jedem zwölf-ten Intervall abgetastet werden. Die Zuordnung zu den entsprechenden 24 Messpunkten im TMB-Modell muss nach jedem Intervall um eine Säulenlänge verschoben werden, wie bereits mit Hilfe von Abb. 5.3 gezeigt wurde. Auf diese Weise lässt sich das gegebene Schätzproblem mit bewegten Messorten in ein etwas einfacheres Schätzproblem mit abgetasteten Messungen und festen Messorten überführen. Es ergibt sich die in Abb. 5.5 gezeigte Verschaltung von Zustandsschätzer und SMB-Prozess. Für diese Problemstruktur ist ein gemischt kontinuierlich/diskretes erweitertes Kalman-Bucy-Filter geeignet [26]. Die mit heuristischen Überlegungen durchzuführende Auslegung der Filterkorrekturen im Falle des vorliegenden komplexen Systems dürfte sehr schwierig sein. Der Zustandsschätzer besitzt wiederum diskontinuierliche Anteile.

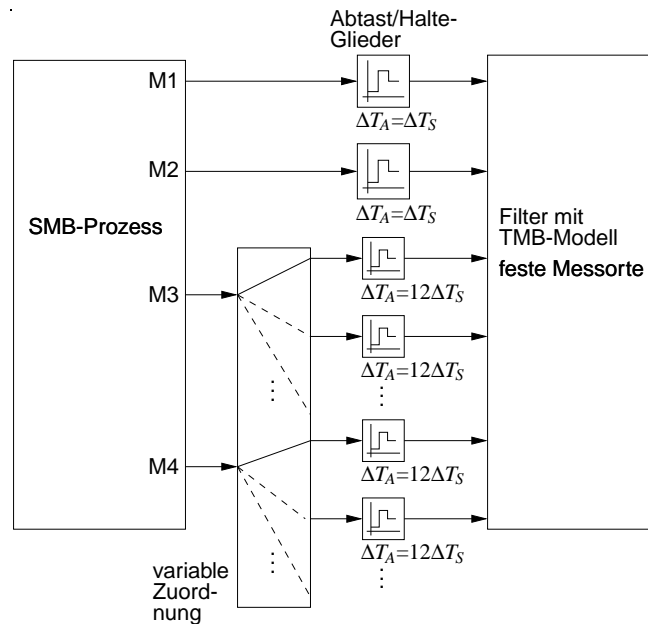


Abbildung 5.5: Verschaltung von TMB-Zustandsschätzer und SMB-Prozess für feste Messorte im TMB-Modell und variable Zuordnung der internen SMB-Messzellen zu den seltener abgetasteten TMB-Messzellen an allen auftretenden Messpositionen.

Zeitkontinuierliches erweitertes Kalman-Bucy-Filter

Anstatt das Abtasten der Messgrößen durch zeitdiskrete Filterupdates zu berücksichtigen, kann noch eine andere Möglichkeit gewählt werden: die abgetasteten Messgrößen werden wie für das gemischt kontinuierlich/diskrete Kalman-Filter auf das TMB-Modell abgebildet, aber nun als zeitkontinuierliche Signale betrachtet und in einem zeitkontinuierlichen erweiterten Kalman-Bucy-Filter verwendet. Bei der Auslegung der Filterkorrektur wird dann berücksichtigt, dass Signalanteile der Messgrößen oberhalb der Nyquistfrequenz, also der halben Abtastfrequenz, stark gedämpft werden müssen, damit sie sich nicht auf den geschätzten Zustand auswirken. Dabei wird unterschieden zwischen den häufig (in jeden Schaltintervall) abgetasteten Messgrößen der Messzellen M1 und M2 einerseits und den nur in jedem zwölften Intervall abgetasteten Größen aus M3 und M4 andererseits.

Das so entwickelte Filter ist zeitkontinuierlich und kann damit in der asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung verwendet werden. Daher wird dieser Ansatz im weiteren verwendet. Die Verschaltung mit dem SMB-Prozess entspricht der bereits in Abb. 5.5 gezeigten Struktur.

5.3 Entwurf eines zeitkontinuierlichen stationären erweiterten Kalman-Bucy-Filters

Für Entwurf und Implementierung des Filters werden die Modelle der vier TMB-Abschnitte

nach Tabelle 2.2 mit der modifizierten Bulk-Randbedingung entsprechend Abschnitt 2.6 mit dem Verfahren der Orthogonalen Kollokation örtlich diskretisiert. Dieses Diskretisierungsverfahren ist in Anhang C dargestellt. Es eignet sich, um bei eher geringen Genauigkeitsanforderungen zu einem System möglichst niedriger Ordnung zu gelangen, wie es für den Entwurf eines Zustandsschätzers und für die Entwicklung von Reglern erforderlich ist.

Als Kollokationspunkte werden dazu die Abschnittsränder und die Nullstellen des auf den Ortsbereich $[0, L_T]$ verschobenen Legendre-Polynoms fünfter Ordnung verwendet. Bei dieser geringen Anzahl Kollokationspunkte können die schnellen Übergangsvorgänge bei der Ausbildung neuer Profilformen nach Störungen nicht mehr mit dem diskretisierten Modell wiedergegeben werden. Das ortsdiskretisierte Modell kann damit, wie schon in Abschnitt 2.6 angedeutet, als reduziertes Modell interpretiert werden.

Durch Verschalten der diskretisierten Modelle der TMB-Abschnitte zur Gesamtanlage ergibt sich ein differential-algebraisches Gleichungssystem mit einer Ordnung von 284. Das System besitzt die Form

$$\dot{x} = f(x, z, u), \quad x(0) = x_0, \quad z(0) = z_0 \quad (5.1a)$$

$$0 = k(x, z, u) \quad (5.1b)$$

$$y = h(x, z, u) \quad (5.1c)$$

mit dynamischen Zuständen x , algebraischen Zuständen z , Eingängen u und Ausgängen oder Messgrößen y . Die Anfangsbedingungen x_0, z_0 müssen Gl. (5.1b) für $u = u(0)$ erfüllen (Konsistenz der Anfangsbedingungen, siehe Anhang D).

Instationäres erweitertes Kalman-Bucy-Filter

Gleichung (5.1b) lässt sich lokal nach z auflösen, $z = \bar{k}(x, u)$, es handelt sich also um ein System mit Index Eins [21, 57]. Damit kann das System als Differentialgleichungs-System geschrieben werden:

$$\dot{x} = \bar{f}(x, u), \quad x(0) = x_0 \quad (5.2a)$$

$$y = \bar{h}(x, u) \quad (5.2b)$$

Für den Filterentwurf ist System- und Messrauschen zu berücksichtigen. Das Entwurfsmodell lautet dann

$$\dot{x} = \bar{f}(x, u) + Gw \quad (5.3a)$$

$$y = \bar{h}(x, u) + v \quad (5.3b)$$

mit unkorrelierten weißen Rauschprozessen v und w passender Dimension sowie Kovarianzmatrizen Q und R ,

$$E[v] = 0, \quad E[w] = 0, \quad E[ww'] = Q, \quad E[vv'] = R, \quad E[ww'] = 0$$

Das Systemrauschen wird mit $G = I$ modelliert.

Die Gleichungen für das erweiterte Kalman-Bucy-Filter (EKF) zu Gl. (5.3) lauten wie folgt [43]:

$$\dot{\hat{x}} = \bar{f}(\hat{x}, u) + K_F(t)(y - \hat{y}), \quad \hat{x}(0) = E[x_0] \quad (5.4a)$$

$$\hat{y} = \bar{h}(\hat{x}, u) \quad (5.4b)$$

oder als DAE-System geschrieben

$$\dot{\hat{x}} = f(\hat{x}, \hat{z}, u) + K_F(t)(y - \hat{y}), \quad \hat{x}(0) = E[x_0], \quad \hat{z}(0) = \bar{k}(\hat{x}(0), u(0)) \quad (5.5a)$$

$$0 = k(\hat{x}, \hat{z}, u) \quad (5.5b)$$

$$\hat{y} = h(\hat{x}, \hat{z}, u) \quad (5.5c)$$

Die zeitabhängige Korrektur-Matrix $K_F(t)$ ergibt sich mit

$$K_F = \Sigma C^T R^{-1} \quad (5.6)$$

aus der Lösung $\Sigma(t)$ der nichtlinearen Matrix-Ricatti-Differentialgleichung

$$\dot{\Sigma} = -A\Sigma - \Sigma A^T + \Sigma C^T R^{-1} C \Sigma - Q, \quad \Sigma(0) = \Sigma_0 \quad (5.7)$$

mit A und C aus einer Linearisierung des Systems (5.2) um den aktuellen Schätzwert \hat{x} bei Eingängen u :

$$A(t) = \left. \frac{\partial \bar{f}(x, u)}{\partial x} \right|_{\hat{x}(t), u(t)}, \quad C(t) = \left. \frac{\partial \bar{h}(x, u)}{\partial x} \right|_{\hat{x}(t), u(t)} \quad (5.8)$$

Stationäres erweitertes Kalman-Bucy-Filter

Der Rechenaufwand zur Lösung der Matrix-Ricatti-Differentialgleichung (5.7) ist bei der hier gegebenen hohen Systemordnung für eine Echtzeit-Anwendung bei weitem zu groß. Aus diesem Grund wird im folgenden ein *stationäres* EKF verwendet. Die Linearisierung (5.8) wird dazu an einem Arbeitspunkt x_s, u_s durchgeführt,

$$A = \left. \frac{\partial \bar{f}(x, u)}{\partial x} \right|_{x_s, u_s}, \quad C = \left. \frac{\partial \bar{h}(x, u)}{\partial x} \right|_{x_s, u_s}, \quad (5.9)$$

und für die Berechnung von K_F nach Gl. (5.6) wird die konstante Lösung Σ der algebraischen Matrix-Ricatti-Gleichung

$$0 = -A\Sigma - \Sigma A^T + \Sigma C^T R^{-1} C \Sigma - Q \quad (5.10)$$

verwendet.

Die Filtergleichungen sind wiederum (5.4) oder (5.5), jedoch ist nun $K_F \neq K_F(t)$.

Diese Vorgehensweise kann gewählt werden, da der Zustandsschätzer im Rahmen einer Regelung verwendet werden soll, die dafür sorgt, dass das System in der Nähe des Arbeitspunktes bleibt. Außerdem stehen durch Simulation gute Startwerte $E[x_s]$ für den Zustandsschätzer, ebenfalls in der Nähe des Arbeitspunktes, zur Verfügung.

Entwurf der stationären Filterkorrektur mit linearisiertem Entwurfsmodell

Kernaufgabe beim Filterentwurf ist neben der Bestimmung eines Anfangswertes \hat{x}_0 für den geschätzten Systemzustand die Festlegung der Werte der Kovarianzmatrizen Q und R von System- und Messrauschen. Sie bestimmen die resultierende Filterdynamik. Es ist jedoch für das vorliegende System nicht möglich, diese Matrizen aufgrund physikalischer Überlegungen zu gewinnen. Deshalb werden sie durch wiederholte Filterauslegung für unterschiedliche Werte der Elemente von Q und R und jeweils anschließende Kontrolle der Entwurfsziele bestimmt. Dies sind zum einen ein hinreichend schnelles Abklingen des Filter-Fehlers, zum anderen die Berücksichtigung der Nyquist-Frequenzen der langsam und der schnell abgetasteten Messgrößen: Frequenzen in den Messsignalen oberhalb der Nyquist-Frequenzen müssen stark gedämpft werden.

Die Filterauslegung, d. h. die Wahl von Q und R , wird anhand des an einem Arbeitspunkt linearisierten Systems durchgeführt, da für lineare Systeme bessere Analysemethoden zur Verfügung stehen. Das auf diese Weise bestimmte K_F kommt dann in Gl. (5.5) zum Einsatz. Das linearisierte System an einem Arbeitspunkt x_s für Eingänge u_s ist

$$\dot{\tilde{x}} = A\tilde{x} + B\tilde{u} \quad (5.11a)$$

$$\tilde{y} = C\tilde{x} + D\tilde{u} \quad (5.11b)$$

mit A und C nach Gl. (5.8),

$$B = \left. \frac{\partial \bar{f}(x, u)}{\partial u} \right|_{x_s, u_s}, \quad D = \left. \frac{\partial \bar{h}(x, u)}{\partial u} \right|_{x_s, u_s} \quad (5.12)$$

und

$$\tilde{x} = x - x_s, \quad \tilde{y} = y - y_s, \quad \tilde{u} = u - u_s \quad (5.13)$$

Das zugehörige Kalman-Bucy-Filter lautet

$$\dot{\hat{x}} = (A - K_F C)\hat{x} + K_F(\tilde{y} - \hat{\tilde{y}}) - K_F D\tilde{u} \quad (5.14a)$$

$$\hat{\tilde{y}} = C\hat{x} + D\tilde{u} \quad (5.14b)$$

Die Messgrößen y müssen getrennt für die unterschiedlichen Abtastfrequenzen betrachtet werden. Unter y_1 werden die Messungen mit der höheren Abtastfrequenz bzw. dem kürzeren Abtastintervall $\Delta T_A = \Delta T_S$ zusammengefasst, y_2 bezeichnet die Größen mit $\Delta T_A = 12\Delta T_S$. Die linearen Filtergleichungen können dann wie folgt geschrieben werden:

$$\dot{\hat{x}} = (A - K_F C)\hat{x} + K_{F,1}(\tilde{y}_1 - \hat{\tilde{y}}_1) + K_{F,2}(\tilde{y}_2 - \hat{\tilde{y}}_2) - K_F D\tilde{u} \quad (5.15a)$$

$$\hat{\tilde{y}}_1 = C_1\hat{x} + D_1\tilde{u} \quad (5.15b)$$

$$\hat{\tilde{y}}_2 = C_2\hat{x} + D_2\tilde{u} \quad (5.15c)$$

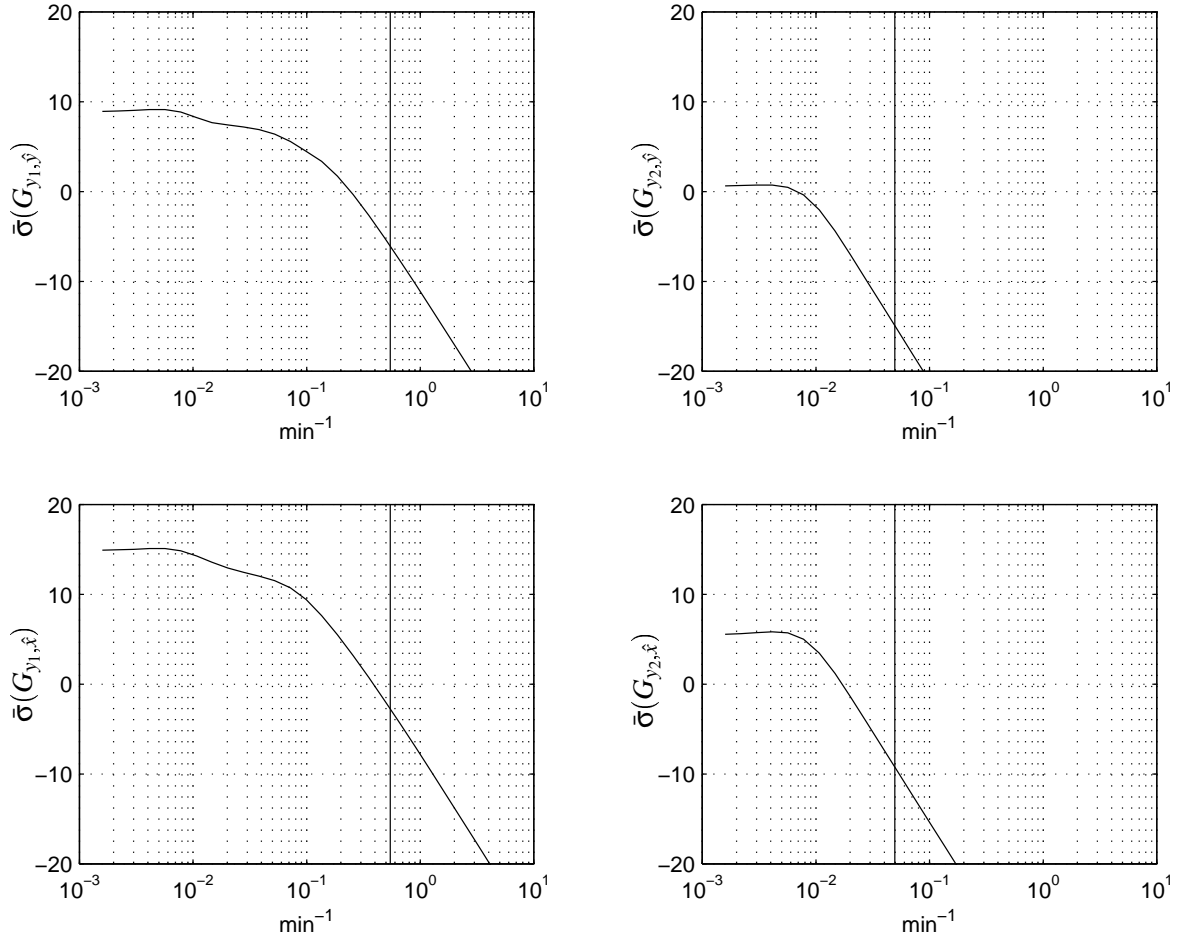


Abbildung 5.6: Größte singuläre Werte der Übertragungsfunktionen (5.16) und (5.17) von den Messgrößen zu den geschätzten Zuständen sowie der Übertragungsfunktionen (5.18) und (5.19) von den Messgrößen zu den Schätzwerten der Messgrößen.

Damit ergeben sich folgende Ausdrücke für die Übertragungsfunktionen von den unterschiedlich schnell abgetasteten Messgrößen zu den geschätzten Zuständen \hat{x} bzw. den geschätzten Messgrößen \hat{y} :

$$G_{\hat{y}_1, \hat{x}}(s) = [sI - (A - K_F C)]^{-1} K_{F,1} \quad (5.16)$$

$$G_{\hat{y}_2, \hat{x}}(s) = [sI - (A - K_F C)]^{-1} K_{F,2} \quad (5.17)$$

$$G_{\hat{y}_1, \hat{y}}(s) = C [sI - (A - K_F C)]^{-1} K_{F,1} \quad (5.18)$$

$$G_{\hat{y}_2, \hat{y}}(s) = C [sI - (A - K_F C)]^{-1} K_{F,2} \quad (5.19)$$

Für jede dieser Übertragungsfunktionen wird mit Hilfe einer Singuläre-Werte-Zerlegung überprüft, ob die Signalanteile in den Messgrößen oberhalb der jeweiligen Nyquistfrequenz stark gedämpft sind. In Abb. 5.6 ist dazu jeweils der größte singuläre Wert $\bar{\sigma}$ über der Frequenz aufgetragen, die Nyquistfrequenzen $1/(\Delta T_A/2)$ bei einem Schaltintervall $\Delta T_S = 0.9167$ min sind mit senkrechten Linien markiert.

Auf der anderen Seite muss eine hinreichend schnelle Fehlerdynamik des Filters gewährleistet

sein. Dies kann für das linearisierte Entwurfsmodell leicht anhand der Eigenwerte des Fehlersystems überprüft werden. Die Kovarianzmatrizen Q und R für Mess- und Systemrauschen werden so lange modifiziert und die Filterauslegung mit Matlab [30] wiederholt, bis die Anforderungen erfüllt sind.

Schätzung der Feed-Zusammensetzung

Bei der Entwicklung einer prädiktiven Regelung in Kapitel 7 wird davon ausgegangen, dass keine Messinformation über die Feed-Zusammensetzung zur Verfügung steht. Die Gewichtsbrüche $g_{\text{Fe},i}$ der Komponenten im Feed müssen daher in diesem Fall durch den Zustandsschätzer bestimmt werden. Dazu werden diese Größen, die ursprünglich Systemeingänge sind, dem Entwurfssystem (5.1) als zusätzliche Zustände mit folgenden Zustandsgleichungen hinzugefügt:

$$\dot{g}_{\text{Fe},i} = 0, \quad i = \text{PX, MX, EB} \quad (5.20)$$

5.4 Simulationsergebnisse

Der im vorhergehenden Abschnitt entwickelte, auf dem TMB-Modell basierende Zustandsschätzer wird mit Hilfe des DIVA-Codegenerators [66] realisiert. Die sehr aufwendige Verschaltung mit dem SMB-Anlagenmodell über Abtast/Halte-Glieder erfolgt ebenfalls in DIVA. Die dazu erforderliche Konfigurationsdatei wird mit einem Hilfsprogramm generiert.

Als Anfangswerte für den Zustandsschätzer dienen mit Hilfe einer Simulation des Entwurfsmodells bestimmte Größen. Insbesondere für die Verwendung des Zustandsschätzers im Rahmen der Regelung (Kapitel 6 und 7) sind gute Anfangswerte von großer Bedeutung, da sonst zunächst aufgrund der falschen Annahmen über den Systemzustand unsinnige Regelbewegungen erfolgen.

Zustandsschätzung bei Abweichung des umlaufenden Volumenstroms

In Kapitel 3, Abb. 3.2 wurde bereits der Effekt einer Absenkung des umlaufenden Volumenstroms um 5% gezeigt. Das System entfernt sich dabei sehr weit vom Arbeitspunkt. Abb. 5.7 zeigt für den Fall dieser Störung oben die Bewegung der SMB-Profile der Komponente Metaxylol in den Intervallmitten, ausgehend von dem fett gezeichneten Profil bei eingeschwungenem zyklischem Zustandsverlauf. Der untere Teil der Abbildung zeigt die mit dem TMB-Filter geschätzten Ortsprofile. Obwohl sich der Prozess weit vom Arbeitspunkt entfernt, wird das qualitative Verhalten des Systems für die Verwendung im Rahmen einer Regelung sehr gut wiedergegeben. Dies zeigt auch der Vergleich des wirklichen und des geschätzten Zeitverlaufs eines Gewichtsbruchs in der Mitte von Anlagen-Abschnitt II, Abbildung 5.8. Die Störung tritt zum Zeitpunkt $t = 60$ min auf.

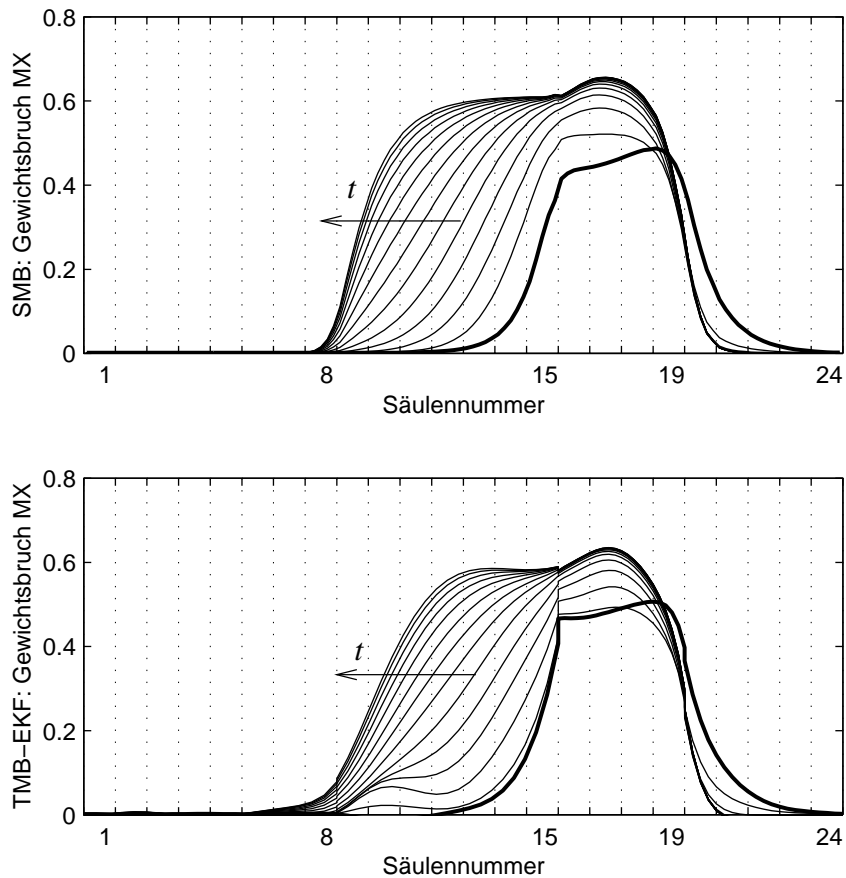


Abbildung 5.7: SMB-Ortsprofile des MX-Gewichtsbruchs in Intervallmitten (oben) und mit dem TMB-Filter geschätzte Ortsprofile (unten) für den Fall einer Störung mit Abfall des umlaufenden Volumenstroms um 5%. Ausgehend vom mittleren Profil bei eingeschwungenem zyklischen Zustandsverlauf (fett) entfernt sich das System nach der Störung mit der Zeit sehr weit vom Arbeitspunkt. Der zeitliche Abstand der Profile entspricht 20 Schaltintervallen. Das Filter kann das qualitative Verhalten des Systems trotz der großen Abweichung vom Arbeitspunkt sehr gut wiedergeben.

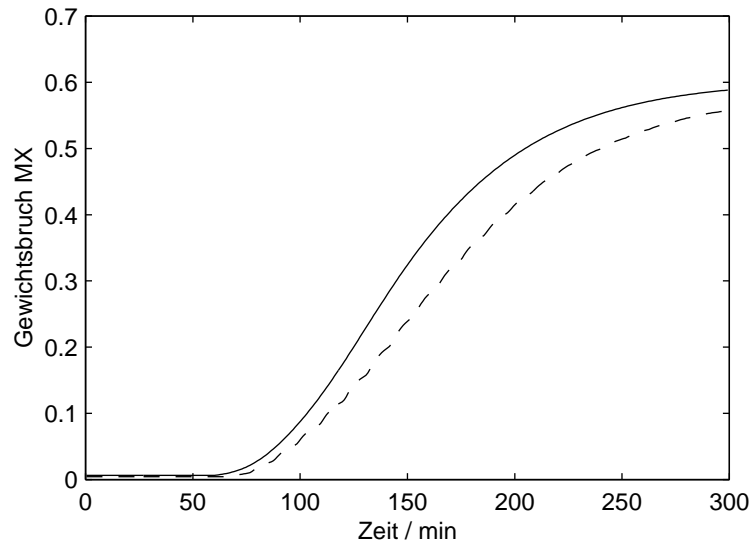


Abbildung 5.8: Zeitverläufe zu den Ortsprofilen in der vorhergehenden Abbildung. Dargestellt ist der tatsächliche und der geschätzte Verlauf des Gewichtsbruchs von MX in der Mitte von Abschnitt II (Mitte der SMB-Teilsäule 12). Durchgezogene Kurve: Werte in den Intervallmitten des SMB-Anlagenmodells, gestrichelte Kurve: TMB-Zustandsschätzer. Das qualitative Verhalten wird bei einer gewissen quantitativen Abweichung trotz großer Entfernung vom Arbeitspunkt gut wiedergegeben.

5.5 Zusammenfassung

Auf der Basis des ortsdiskretisierten TMB-Modells wurde ein Zustandsschätzer für eine SMB-Anlage entwickelt. Es wird der Anlagenzustand in der Mitte der Schaltintervalle geschätzt. Die Dynamik des SMB-Prozesses innerhalb eines Schaltintervalls kann mit dem TMB-Modell nicht wiedergegeben werden, ist aber für eine Regelung des Prozesses auch nicht wesentlich.

Ziel war es, einen im Rahmen der asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung in Kapitel 6 verwendbaren rein kontinuierlichen Zustandsschätzer zu erhalten. Dazu eignet sich für den SMB-Prozess mit seinem nichtlinearen Verhalten ein erweitertes Kalman-Bucy-Filter (EKF). Die Bewegung der SMB-Konzentrationsprofile relativ zu den internen Messzellen muss für das TMB-Entwurfsmodell auf langsam abgetastete ortsfeste Messgrößen abgebildet werden. Die Nyquistfrequenz der Abtastung wird im Filterentwurf berücksichtigt.

Bei der gegebenen hohen Systemordnung ist ein instationäres EKF für eine Echtzeitanwendung nicht geeignet. Da der Zustandsschätzer jedoch im Rahmen einer Regelung zur Anwendung kommen soll, kann davon ausgegangen werden, dass sich das System immer in der Nähe eines festgelegten Arbeitspunktes befindet. Damit ist es möglich, ein stationäres EKF mit konstanter Filter-Korrekturmatrix zu verwenden, das einen wesentlich geringeren Rechenaufwand zur Laufzeit verursacht.

Kapitel 6

Regelung mit asymptotisch exakter Eingangs/Ausgangs-Linearisierung

Die asymptotisch exakte Eingangs/Ausgangs-Linearisierung [25, 28] ist eine Erweiterung des nichtlinearen Regelungsverfahrens der exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung [35, 42] auf den Fall, dass der vollständige Systemzustand nicht direkt gemessen werden kann, sondern mit Hilfe eines Zustandsschätzers aus Messungen bestimmt werden muss. Das Verfahren wurde zunächst für ODE-Systeme formuliert. Eine Erweiterung auf semi-explizite DAE-Systeme mit Index Eins ist relativ einfach möglich, da in diesem Fall die algebraischen Gleichungen lokal nach den algebraischen Variablen aufgelöst werden können [31]. Die Erweiterung auf allgemeine DAE-Systeme oder auch nur auf linear-implizite DAE-Systeme ist ungleich komplizierter [47, 48].

Das Verfahren eignet sich für nichtlineare Regelprobleme ohne Beschränkungen, kann also für die in Kapitel 4 definierte einfachere Variante II des Regelproblems angewendet werden. Das zu regelnde System muss quadratisch sein, d. h. es sind aus den gegebenen drei Freiheitsgraden zwei Stellgrößen auszuwählen, siehe unten.

Das TMB-Entwurfsmodell ist identisch mit dem für die Zustandsschätzung in Kapitel 5 verwendeten Modell, das mit dem Verfahren der Orthogonalen Kollokation diskretisiert wurde, um eine möglichst geringe Systemdimension zu erhalten. Zunächst wird für das Entwurfsmodell unter der Annahme, dass alle Zustände gemessen werden können, eine Zustandsrückführung zur exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung entworfen. Der *asymptotisch* exakt Eingangs/Ausgangs-linearisierende Regler entsteht dann durch geeignete Kombination dieser Zustandsrückführung mit dem in Kapitel 5 entwickelten Zustandsschätzer.

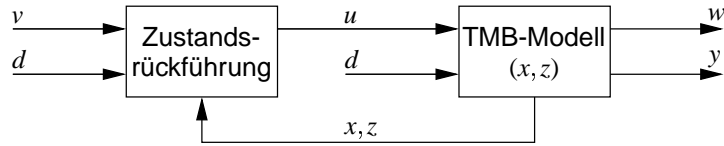


Abbildung 6.1: TMB-Modell mit Zustandsrückführung zur exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung. $x(t)$, $z(t)$: Dynamische bzw. algebraische Zustände des TMB-Modells; $v(t)$: neue Eingänge; $d(t)$: bekannte Störungen; $u(t)$: Stellgrößen; $w(t)$ Regelgrößen; $y(t)$: Messgrößen. Der geschlossene Regelkreis zeigt ein lineares Übertragungsverhalten zwischen den neuen Eingängen $v(t)$ und den Regelgrößen $w(t)$.

6.1 Herleitung einer Zustandsrückführung

Entwurfmodell

Das ortsdiskretisierte TMB-Modell besitzt folgende, gegenüber Kapitel 5 leicht modifizierte semi-explizite DAE-Form

$$\dot{x} = f(x, z, u, d) \quad (6.1a)$$

$$0 = k(x, z, u, d) \quad (6.1b)$$

$$y = h(x, z, u, d) \quad (6.1c)$$

$$w_j = q_j(x, z, u, d), \quad j = 1, 2 \quad (6.1d)$$

mit den dynamischen Zuständen $x(t)$ und den algebraischen Zuständen $z(t)$. In Kapitel 5 wurden alle Systemeingänge mit $u(t)$ bezeichnet. Im Gegensatz dazu wird hier nun zwischen Stellgrößen $u(t)$ und bekannten bzw. messbaren Störungen $d(t)$ unterschieden. Dies ist im vorliegenden Fall die Feed-Zusammensetzung. $y(t)$ bezeichnet die Messgrößen, $w_j(t)$ die Regelgrößen *Extrakt-Reinheit* und *Paraxylol-Ausbeute* nach den Definitionen in Gl. (2.30) und Gl. (2.31).

Mittels einer exakt Eingangs/Ausgangs-linearisierenden Zustandsrückführung kann für das geregelte System ein lineares Übertragungsverhalten zwischen neuen Eingängen $v(t) = [v_1, v_2]^T$ und den Systemausgängen $w(t) = [w_1, w_2]^T$ erreicht werden, wenn alle Systemzustände $x(t)$, $z(t)$ bekannt sind, siehe Abb. 6.1. Die Eingänge $v(t)$ sind dann Sollwerte für die Regelgrößen Reinheit und Ausbeute.

Damit das System quadratisch ist, müssen aus den drei zur Verfügung stehenden Freiheitsgraden zwei Stellgrößen gewählt werden. Es werden im folgenden die Ströme in Extrakt und Raffinat verwendet, also

$$u = [q_{\text{Ex}}, q_{\text{Ra}}]^T \quad (6.2)$$

Der Strom im TMB-Abschnitt IV, q_{Z4} wird konstant gehalten, um den dritten Freiheitsgrad abzudecken.

Mit dieser Wahl der Stellgrößen und der zusätzlich eingeführten Bedingung besitzt die Regelgröße *Reinheit* den relativen Grad Eins, siehe unten. Die Regelgröße *Ausbeute* ist dagegen von relativem Grad Null, da die Stellgröße *Extrakt-Strom* direkt in die Berechnung der Ausbeute eingeht.

Zustandsrückführung

Die folgende Berechnung der Zustandsrückführung geht auf die Darstellung in [31] zurück, bedient sich aber einer anschaulicheren Schreibweise. In [31] wird von einem semi-expliziten DAE-System mit relativem Vektorgrad Eins ausgegangen. Die entsprechenden Ergebnisse werden hier auf den Fall von Regelgrößen mit relativem Vektorgrad Null erweitert.

Unter der Annahme konstanter Störungen d lautet die erste Ableitung der Ausgänge w_j :

$$\dot{w}_j = \frac{\partial q_j}{\partial x} f + \frac{\partial q_j}{\partial z} \dot{z} + \frac{\partial q_j}{\partial u} \dot{u} \quad (6.3)$$

Für konstante Störungen d kann \dot{z} aus der totalen Ableitung von (6.1b) nach der Zeit berechnet werden:

$$\dot{z} = - \left(\frac{\partial k}{\partial z} \right)^{-1} \left(\frac{\partial k}{\partial x} f + \frac{\partial k}{\partial u} \dot{u} \right) \quad (6.4)$$

Damit ist

$$\dot{w}_j = \left(\frac{\partial q_j}{\partial x} - \frac{\partial q_j}{\partial z} \left(\frac{\partial k}{\partial z} \right)^{-1} \frac{\partial k}{\partial x} \right) f + \left(\frac{\partial q_j}{\partial u} - \frac{\partial q_j}{\partial z} \left(\frac{\partial k}{\partial z} \right)^{-1} \frac{\partial k}{\partial u} \right) \dot{u} \quad (6.5)$$

Ein Ausgang ist von relativem Grad Null, wenn er algebraisch von einem Eingang abhängt, d. h. wenn gilt:

$$\frac{\partial w_j}{\partial u} \neq 0 \quad \text{oder} \quad \frac{\partial \dot{w}_j}{\partial \dot{u}} \neq 0 \quad (6.6)$$

Der Fall $\partial \dot{w}_j / \partial \dot{u} \neq 0$, also ein Auftreten der Zeitableitung \dot{u}_i eines Eingangs in der Zeitableitung \dot{w}_j eines Ausgangs, bedeutet für das gegebene Index-Eins-System, dass der Ausgang indirekt über eine algebraische Zustandsgröße vom Eingang abhängt.

Ein Ausgang ist von relativem Grad Eins, wenn die erste Zeitableitung des Ausgangs von einem Eingang abhängt. Dies ist genau dann der Fall, wenn der Ausgang nicht von relativem Grad Null ist und gleichzeitig $d\dot{w}/du \neq 0$. Anders ausgedrückt:

$$\frac{\partial w_j}{\partial u} = 0, \quad \frac{\partial \dot{w}_j}{\partial \dot{u}} = 0 \quad \text{und} \quad \frac{\partial \dot{w}_j}{\partial u} \neq 0 \quad (6.7)$$

oder

$$\frac{\partial w_j}{\partial u} = 0, \quad \frac{\partial \dot{w}_j}{\partial \dot{u}} = 0, \quad \frac{\partial \dot{w}_j}{\partial u} = 0 \quad \text{und} \quad \frac{\partial \ddot{w}_j}{\partial \dot{u}} \neq 0 \quad (6.8)$$

Für Eingänge $u = [q_{\text{Ex}}, q_{\text{Ra}}]^T$ und konstanten Strom q_{IV} ist die Reinheit von relativem Grad Eins entsprechend Gleichung (6.8). Die Ausbeute ist von relativem Grad Null wegen $\partial w_j / \partial u \neq 0$.

Zwischen den Eingängen v_j und den Ausgängen w_j kann nun ein lineares Übertragungsverhalten mit einer dem relativem Grad des jeweiligen Ausgangs entsprechenden Ordnung vorgegeben werden. Für die Reinheit wäre dies die Ordnung Eins, für die Ausbeute die Ordnung Null, also eine reine Verstärkung. Letzteres würde zu starken Stellausschlägen führen, deshalb wird im folgenden für beide Ausgänge ein Übertragungsverhalten erster Ordnung vorgegeben. Die Differentialgleichungen für das lineare Übertragungsverhalten lauten mit den Parametern β_j und K_j wie folgt:

$$\beta_j \dot{w}_j + w_j = K_j v_j, \quad j = 1, 2 \quad (6.9)$$

Damit sind die Ausgänge voneinander entkoppelt. Es werden die stationären Verstärkungen $K_{1,2} = 1$ gewählt, so dass die w_j im stationären Zustand mit der zugehörigen Vorgabe v_j identisch sind, v_j also einen Sollwert für w_j darstellt.

Das Regelgesetz in Form einer Zustandsrückführung ergibt sich nun, indem in Gleichung (6.9) die analytischen Ausdrücke für w_j und \dot{w}_j aus Gl. (6.1d) und (6.5) eingesetzt werden:

$$\begin{aligned} & \beta_j \left(\left(\frac{\partial q_j}{\partial x} - \frac{\partial q_j}{\partial z} \left(\frac{\partial k}{\partial z} \right)^{-1} \frac{\partial k}{\partial x} \right) f + \left(\frac{\partial q_j}{\partial u} - \frac{\partial q_j}{\partial z} \left(\frac{\partial k}{\partial z} \right)^{-1} \frac{\partial k}{\partial u} \right) \dot{u} \right) \\ & + q_j(x, z, u, d) = v_j, \quad j = 1, 2 \end{aligned} \quad (6.10)$$

Für das hier gegebene System sind dies eine Differentialgleichung erster Ordnung und eine algebraische Gleichung für die Stellgrößen $u = [u_1, u_2]^T = [q_{\text{Ex}}, q_{\text{Ra}}]^T$. Sie besitzen die Form

$$0 = b_1(x, z, u, \dot{u}_1, d, v_1), \quad u_1(0) = u_{1,0} \quad (6.11a)$$

$$0 = b_2(x, z, u, d, v_2) \quad (6.11b)$$

Anhand dieser Gleichungen ist nun zu überprüfen, ob das System (6.1) tatsächlich einen relativen Vektorgrad von $[1, 0]^T$ entsprechend den relativen Graden der einzelnen Regelgrößen besitzt. Das ist dann der Fall, wenn aus (6.11) die Stellgrößen u_1 und u_2 berechnet werden können [31]. Diese Forderung ist hier erfüllt.

Um die Stabilität der Nulldynamik des geschlossenen Kreises entsprechend Abbildung 6.1 zu überprüfen, muss das TMB-Modell mit der Zustandsrückführung an einem Arbeitspunkt linearisiert und die Eigenwerte überprüft werden. Für die hier gewählte Kombination von Stell- und Regelgrößen ist Stabilität gegeben. Alle weiteren hier untersuchten Varianten der Auswahl von Stell- und Regelgrößen mit relativen Graden von Null bzw. Eins führen zu Instabilität des geschlossenen Regelkreises.

Realisierung der Zustandsrückführung

Zur Implementierung des Regelgesetzes sind die in Gl. (6.10) auftretenden partiellen Differentiale für die tatsächlichen TMB-Modellgleichungen auszuführen. Eine explizite Berechnung des Terms $(\partial k/\partial z)^{-1}$ ist dabei wegen der hohen Dimension des Systems nicht möglich – die Anzahl der algebraischen Variablen bzw. Gleichungen, also die Dimension von z bzw. k ist 140. Es können jedoch die Terme $(\partial q_j/\partial z)(\partial k/\partial z)^{-1}$ mit Hilfe des Computer-Algebra-Programms Mathematica [74] und einer geeigneten Programmierung berechnet werden. Die Zustandsrückführung liegt damit vollständig in analytischer Form vor. Um für diese Berechnungen die Modellstruktur etwas zu vereinfachen, wurde der axiale Dispersionskoeffizient D_B als konstant angenommen.

Eine andere, in [31] gewählte Möglichkeit zur Berechnung des Terms $(\partial k/\partial z)^{-1}$ besteht darin, bei der numerischen Lösung der Differentialgleichungen (6.10) unterlagert für jeden Zeitschritt eine numerische Inversion von $(\partial k/\partial z)$ durchzuführen. Dies bringt jedoch einen hohen Implementierungsaufwand und einen vergrößerten Rechenzeit-Aufwand für Simulationsrechnungen mit sich.

Die Umsetzung des nun in Mathematica vorliegenden Regelgesetzes in ein Codegenerator-Eingabefile für DIVA kann mit Hilfe von am ISR entwickelten Funktionsbibliotheken [7] durchgeführt werden.

6.2 Rückführung geschätzter Zustände

Zur Regelung des SMB-Prozesses müssen *geschätzte* TMB-Zustände für die Zustandsrückführung verwendet werden. In der klassischen Struktur einer modellbasierten Regelung erfolgt eine Verschaltung von Zustandsschätzer und Zustandsrückführung wie in Abb. 6.2 gezeigt, jedoch *ohne* den gestrichelt gezeichneten Pfeil. Bei dieser Struktur ist nun zwischen den Eingängen v und den Ausgängen \hat{w} des Filters nicht mehr das exakt lineare Übertragungsverhalten gegeben, das für die Eingänge v und die Ausgänge w mit der echten Zustandsrückführung erreicht wird. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Dynamik des Entwurfsmodells durch die Rückführung der Filterkorrektur r modifiziert wird. Ein exakt lineares Verhalten zwischen v und \hat{w} wäre nur im Falle nicht vorhandener Modellfehler vorhanden, wenn r also gleich Null ist.

Bei der *asymptotisch* exakten E/A-Linearisierung [25, 28] wird der Einfluss der Filterkorrektur auf die Dynamik des Entwurfsmodells bereits bei der Berechnung der Zustandsrückführung berücksichtigt, siehe unten Gl. (6.12). Die Filterkorrektur r geht dann entsprechend dem gestrichelten Pfeil in Abb. 6.2 auch in das Regelgesetz ein. Auf diese Weise wird eine exakte Linearisierung zwischen den Eingängen v und den Ausgängen \hat{w} auch im Fall $r \neq 0$ erreicht. Die Messgrößen y können für den geschlossenen Kreis aus Zustandsschätzer und Zustandsrückführung als Störgrößen angesehen werden.

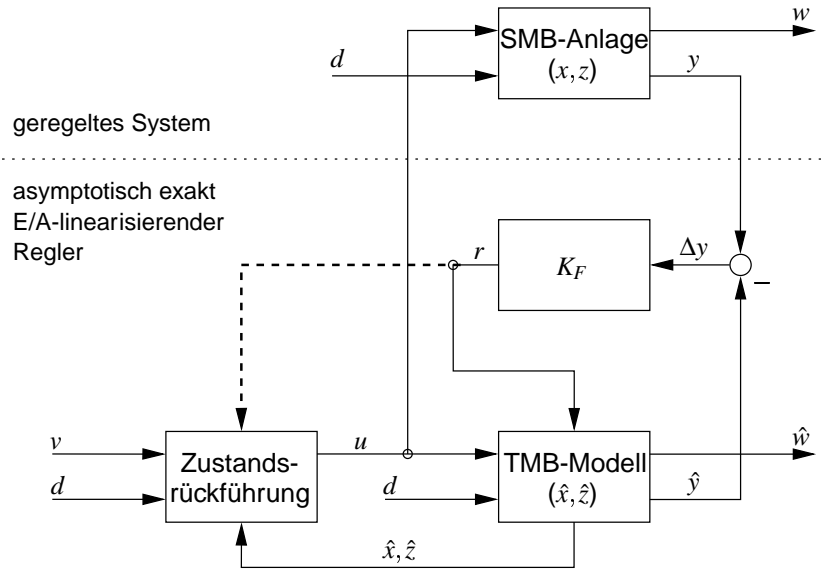


Abbildung 6.2: Verschaltung von Zustandsschätzer und Zustandsrückführung zur asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung. x, z : Dynamische und algebraische Zustände der SMB-Anlage; \hat{x}, \hat{z} : geschätzte Zustände (TMB-Modell); v : neue Eingänge; d : bekannte Störungen; u : Stellgrößen; w : Regelgrößen; \hat{w} : Schätzwerte der Regelgrößen; y : Messgrößen; \hat{y} : Schätzwerte der Messgrößen.

Der Entwurf der Zustandsrückführung erfolgt jetzt also für den Zustandsschätzer, die Systemgleichungen lauten mit den in Abb. 6.2 definierten Größen wie folgt:

$$\dot{\hat{x}} = f(\hat{x}, \hat{z}, u, d) + K_F \cdot (y - \hat{y}) = \tilde{f}(\hat{x}, \hat{z}, u, d, y) \quad (6.12a)$$

$$0 = k(\hat{x}, \hat{z}, u, d) \quad (6.12b)$$

$$\hat{w}_j = q_j(\hat{x}, \hat{z}, u, d), \quad j = 1, 2 \quad (6.12c)$$

Auf dieses System wird nun wiederum das in Abschnitt 6.1 beschriebene Verfahren der exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung angewendet.

Für die auf diese Weise berechnete Zustandsrückführung wird mit der Regelkreisstruktur in Abb. 6.2 eine exakte Eingangs/Ausgangs-Linearisierung des Zustandsschätzers erreicht. Wenn gleichzeitig – wie beim Entwurf des Zustandsschätzers vorgesehen – der geschätzte Systemzustand gegen den tatsächlichen Prozesszustand konvergiert, konvergiert das Verhalten des Prozesses gegen den exakt linearisierend geregelten Zustandsschätzer. Nur in diesem Grenzfall ergibt sich eine exakte Eingangs/Ausgangs-Linearisierung auch für das geregelte System selbst. Darin liegt der Name des Verfahrens, *asymptotisch exakte Eingangs/Ausgangs-Linearisierung*, begründet.

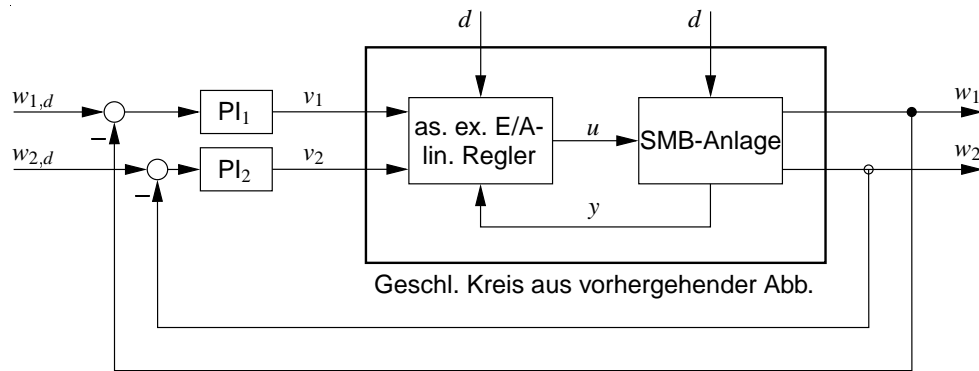


Abbildung 6.3: SMB-Anlage mit Regler zur asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung und zwei zusätzlichen PI-Reglern mit Sollwerten $w_{1,d}$, $w_{2,d}$ für die Regelgrößen w_1 , w_2 .

6.3 Zusätzliche PI-Regler

Die asymptotisch exakte E/A-Linearisierung führt zu einem exakt linearen Verhalten zwischen den neuen Eingängen v_j und den echten Anlagenausgängen w_j nur dann, wenn das Filtermodell mit der Anlage identisch ist und alle Störungen bekannt sind. Abweichungen des Modells von der Anlage bzw. Störungen führen zu einer bleibenden Abweichung der Regelgrößen von den Sollwerten. Hinzu kommt, dass beim SMB-Prozess die Werte von Reinheit und Ausbeute in der Mitte eines Schaltintervalls, die hier als Regelgrößen verwendet wurden, nicht exakt mit den integralen Werten von Reinheit und Ausbeute über ein Schaltintervall übereinstimmen, die letztlich relevant sind.

Zwischen jedem Eingang v_j und dem zugehörigen Ausgang w_j des geregelten Prozesses liegt jedoch eine in etwa lineare Dynamik vor, die von den anderen Ein- und Ausgängen nahezu vollständig entkoppelt ist (nur für das Entwurfsmodell ist die Entkoppelung wirklich vollständig). Wenn die w_j gemessen werden können, ist es daher möglich, wie in Abb. 6.3 gezeigt, zusätzliche PI-Regler zur Regelung der w_j mit den v_j als Stellgrößen zu verwenden. Damit kann eine vernachlässigbare bleibende Regelabweichung der w_j von den Sollwerten $w_{j,d}$ erreicht werden. Diese Möglichkeit wurde hier nicht weiter untersucht.

6.4 Simulationsergebnisse

Der oben entwickelte Regler wurde in verschiedenen Simulationsexperimenten in dem in Abb. 6.2 gezeigten geschlossenen Regelkreis getestet. Es wurde dazu das in Abschnitt 2.2 eingeführte SMB-Modell verwendet, das den realen Prozess sehr gut repräsentiert. Der Regler ist, wie bei der Zustandsschätzung in Kapitel 5 beschrieben, mit dem SMB-Modell über Abtast/Halte-Glieder verbunden, so dass auch die Messdatenerfassung den Gegebenheiten am realen Prozess entspricht.

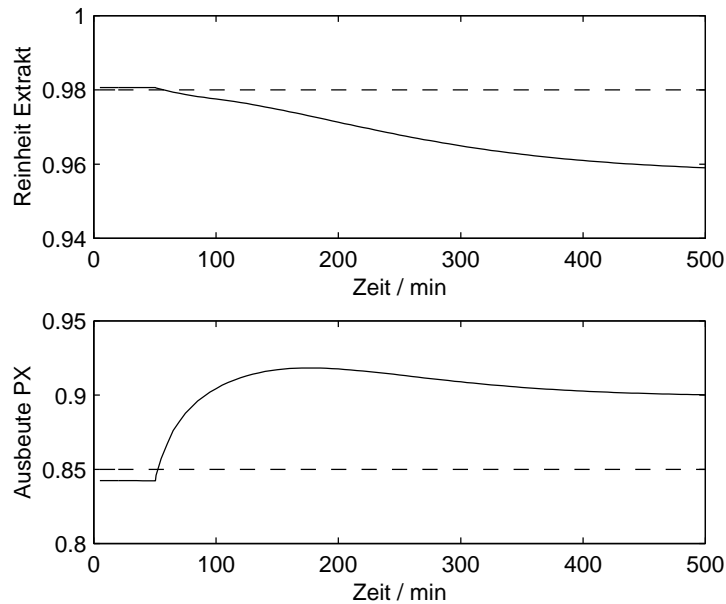


Abbildung 6.4: Ungeregelter SMB-Prozess: Zeitverläufe von Reinheit und Ausbeute in den Intervallmitten, wenn zum Zeitpunkt $t = 50$ min der Volumenstroms in Anlagen-Abschnitt I um 1% reduziert wird.

6.4.1 SMB-Prozess mit nominellen Parametern

Die Modellparameter in TMB-Modell und SMB-Modell seien zunächst identisch. Es werden mit Hilfe des TMB-Modells berechnete optimale Werte der Fluidströme für eine Sollreinheit und -ausbeute von 0.98 bzw. 0.85 verwendet. Mit diesen Betriebsparametern ist die integrale Reinheit beim ungeregelten SMB-Modell 0.979, die integrale Ausbeute beträgt 0.853. Diese Werte liegen sehr nahe an der Spezifikation, da im Falle von 24 SMB-Teilsäulen bei identischen Modellparametern das TMB-Modell den SMB-Prozess sehr gut wiedergibt. Für das geregelte SMB-Modell im Regelkreis nach Abb. 6.2 beträgt die integrale Reinheit 0.978 und die integrale Ausbeute 0.857, was ebenfalls sehr nahe an der Spezifikation liegt.

6.4.2 Störung des umlaufenden Volumenstroms

In Abb. 3.2 wurde bereits am TMB-Modell gezeigt, wie sich ein Abfall des Volumenstroms im TMB-Abschnitt I um 5% auf die Ortsprofile auswirkt. Eine solche Abweichung kann beispielsweise auftreten durch Unzulänglichkeiten der Pumpe für das umlaufende Fluid. Die Fluidströme in allen Abschnitten sind davon betroffen.

Bereits bei einer Abweichung dieses Volumenstroms um 1% nach unten sinkt für das ungeregelte SMB-Modell die Reinheit auf etwa 0.96 ab. Die Zeitverläufe von Reinheit und Ausbeute für ein Auftreten der Störung zum Zeitpunkt $t = 50$ min zeigt Abb. 6.4.

Nimmt man beim geregelten SMB-Modell ein plötzliches Auftreten der Störung zum Zeitpunkt $t = 50$ min an, so ergeben sich die in Abb. 6.5 und Abb. 6.6 gezeigten Verläufe für die Regel- und Stellgrößen. Der Regler kann Reinheit und Ausbeute bei moderater Stellgrößenbewegung

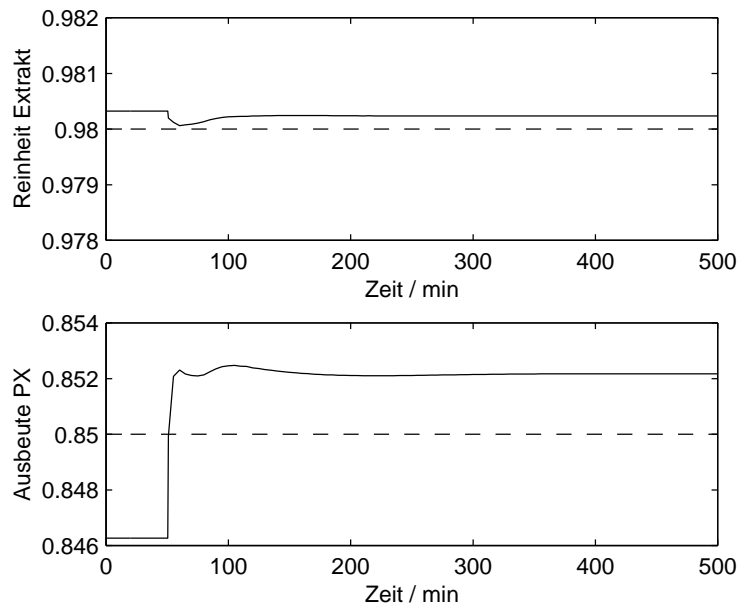


Abbildung 6.5: Asymptotisch exakte Eingangs/Ausgangs-Linearisierung: Übergangsverhalten der Regelgrößen Reinheit und Ausbeute für den geregelten SMB-Prozess nach einer Änderung des Volumenstroms in Anlagen-Abschnitt I. Gestrichelte Linien: Sollwerte.

nahezu konstant halten.

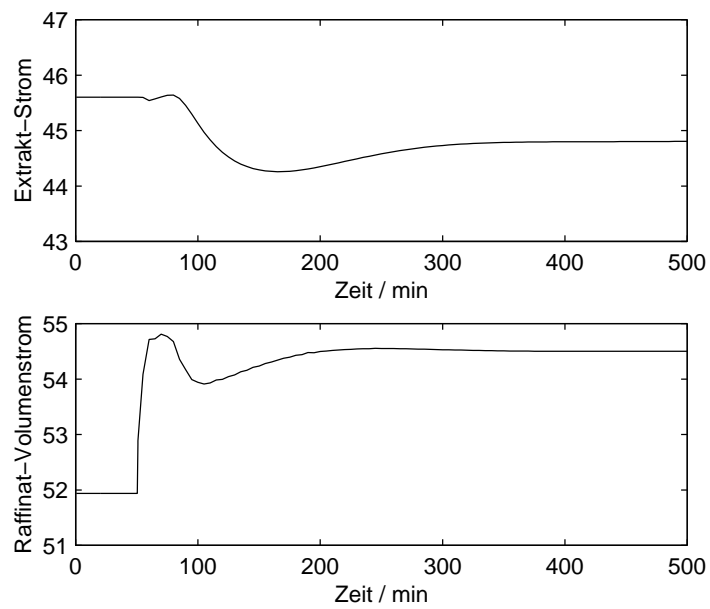


Abbildung 6.6: Stellgrößen am geregelten SMB-Prozess zu den Verläufen der Regelgrößen in Abb. 6.5 nach einer Änderung des Volumenstroms in Anlagen-Abschnitt I.

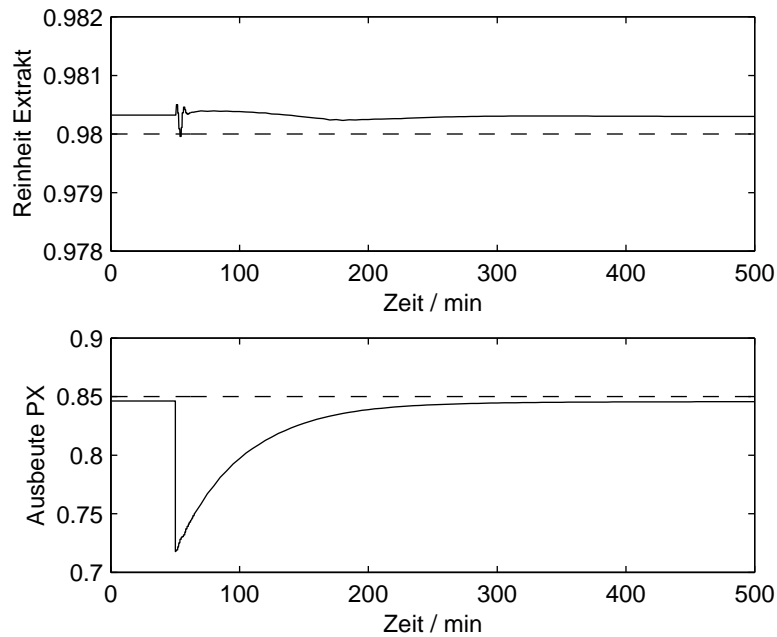


Abbildung 6.7: Übergangverhalten der Regelgrößen Reinheit und Ausbeute für den geregelten SMB-Prozess nach einer Änderung der Feed-Zusammensetzung. Gestrichelte Linien: Sollwerte.

6.4.3 Änderung der Feed-Zusammensetzung

Es wurden die Auswirkungen einer Änderung der Feed-Zusammensetzung untersucht, wobei hier angenommen wird, dass die Feed-Zusammensetzung zu jeder Zeit bekannt ist und dem Zustandsschätzer zur Verfügung steht. Die Zusammensetzung (Massenanteile von PX, MX und EB) wird zum Zeitpunkt $t = 50$ min von $(0.25, 0.56, 0.18)$ nach $(0.3, 0.5, 0.1)$ geändert. Für das unregelte System ergeben sich dadurch selbstverständlich sehr große Abweichungen von der Produktspezifikation: die Ausbeute von PX sinkt auf 0.73.

Im geschlossenen Regelkreis wird die Reinheit nach dieser Störung von vorneherein sehr nah am Sollwert gehalten, Abb. 6.7. Die Ausbeute ändert sich zunächst wegen ihrer algebraischen Abhängigkeit von der Feed-Zusammensetzung wie beim unregulierten System sehr stark. Sie wird dann mit einem Übergangverhalten erster Ordnung zum Sollwert zurückgeführt. Abb. 6.8 zeigt die zugehörigen Verläufe der Stellgrößen.

Im Zeitraum unmittelbar nach der Störung ergibt sich ein schnelles Einschwingen des Regelkreises, bis sich das exakt lineare Eingangs/Ausgangs-Verhalten des geregelten Systems einstellt. Den entsprechenden Ausschnitt der Zeitverläufe zeigen Abb. 6.9 und Abb. 6.10.

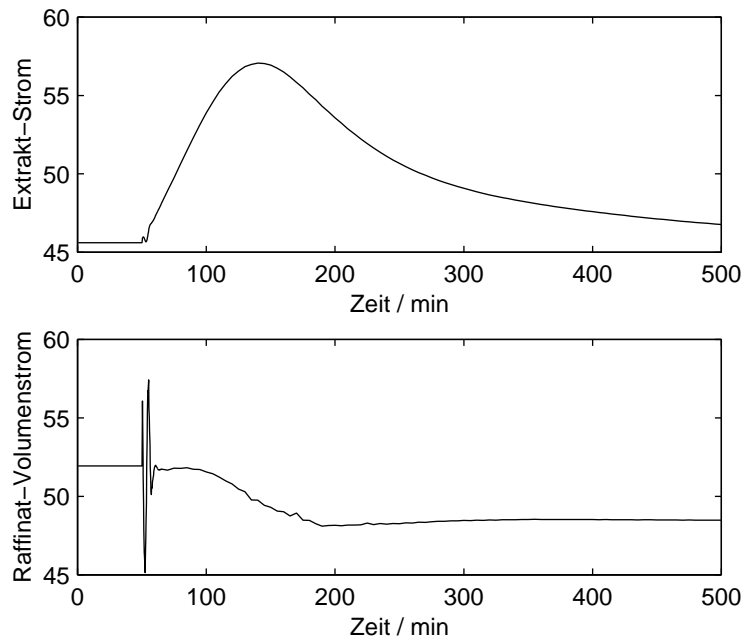


Abbildung 6.8: Stellgrößen am geregelten SMB-Prozess zu den Verläufen der Regelgrößen in Abb. 6.7 nach einer Änderung der Feed-Zusammensetzung.

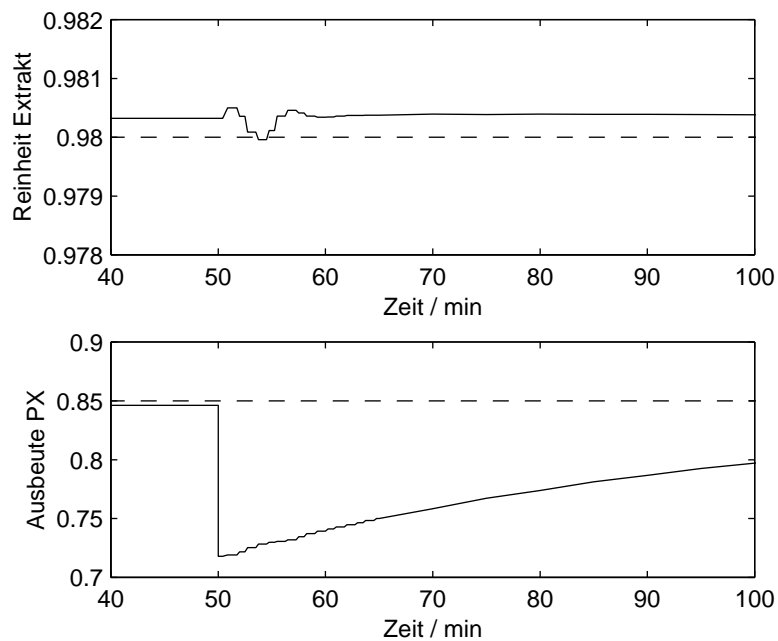


Abbildung 6.9: Übergangverhalten der Regelgrößen Reinheit und Ausbeute für den geregelten SMB-Prozess nach einer Änderung der Feed-Zusammensetzung, kurzes Intervall nach der Störung.

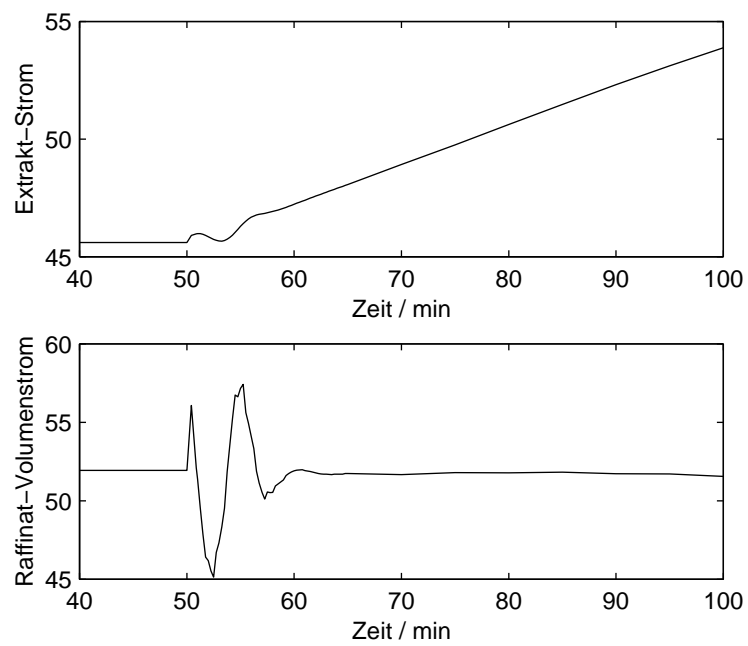


Abbildung 6.10: Stellgrößen nach einer Änderung der Feed-Zusammensetzung, geregelter SMB-Prozess. Kurzes Intervall nach der Störung.

6.5 Zusammenfassung

Das Verfahren der asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung [25, 28] konnte in Verbindung mit dem in Kapitel 5 entwickelten Zustandsschätzer erfolgreich zur Regelung eines SMB-Modells angewendet werden. Eine besondere Herausforderung stellte dabei die hohe Systemdimension dar. Als Entwurfsmodell diente das mit orthogonaler Kollokation ortsdiskretisierte TMB-Modell (Kapitel 5). Das Verhalten des geschlossenen Regelkreises wurde für verschiedene Störszenarien in Simulationsstudien untersucht.

Wegen der in Kapitel 3, Abb. 3.7 gezeigten guten Übereinstimmung der Dynamik von TMB- und SMB-Modell auch für einen SMB-Prozess mit nur 8 Säulen ist zu erwarten, dass das hier vorgestellte Regelungsverfahren auch in diesem Fall angewendet werden kann.

Kapitel 7

Modellprädiktive Regelung

Eine modellprädiktive Regelung basiert auf dem Grundprinzip der Moving-Horizon-Strategie [14, 65]. Ausgehend vom gemessenen oder geschätzten Prozesszustand zu einem bestimmten Zeitpunkt wird mit Hilfe eines Prozessmodells das Systemverhalten für ein sich in die Zukunft erstreckendes Zeitintervall prädiziert und auf dieser Grundlage geeignete aktuelle Werte für die Steuergrößen bestimmt. Diese werden für ein kurzes Zeitintervall, das Regelintervall, am Prozess verwendet. Dann wird der Prädiktionshorizont um die Länge des Regelintervalls in die Zukunft verschoben und es erfolgt eine erneute Prädiktion zur Bestimmung neuer Werte der Steuergrößen. Dieser Vorgang wiederholt sich zyklisch.

Die Bestimmung der Steuergrößen in jedem Regelintervall geschieht durch die Optimierung eines dynamischen Systems. Dies ist mit analytischen Methoden nur für lineare Systeme ohne Beschränkungen bei quadratischem Gütekriterium möglich [18]. Im allgemeinen Fall eines nichtlinearen Systems mit Beschränkungen muss die Optimierung mit numerischen Methoden erfolgen [2, 50].

Eine modellprädiktive Regelung bietet die Möglichkeit, für ein nichtlineares System sehr komplexe Regelungsaufgaben zu lösen. Es können insbesondere ohne weiteres Stellgrößenbeschränkungen berücksichtigt und mehrere Regelgrößen unterschiedlich gewichtet werden, wie es für die in Kapitel 4 beschriebene Variante I der Regelungsaufgabe erforderlich ist. Das ist mit einer asymptotisch exakten Eingangs/Ausgangs-Linearisierung (Kapitel 6) nicht möglich.

Die große Flexibilität der Methode geht jedoch mit gewissen Nachteilen einher. Dies sind zum einen ein großer Rechenzeit-Aufwand für die numerische Optimierung zur Berechnung der Stellgrößen, zum anderen sind bei der Reglerentwicklung viele Entscheidungen auf heuristischer Basis zu treffen, was oft nur durch Versuch und Irrtum möglich ist und daher mit großem Aufwand verbunden ist. Eine weitere Schwierigkeit beruht darauf, dass zur Berechnung der Stellgrößen in jedem Regelintervall eine Optimalsteuerungsberechnung durchgeführt wird. Es muss für eine Echtzeitanwendung sichergestellt werden, dass diese numerische Optimierungsberechnung innerhalb des zur Verfügung stehenden Zeithorizonts zu einem Ergebnis führt.

Die Stabilität des geschlossenen Regelkreises kann für bestimmte Problemklassen und spezielle Varianten des Regelverfahrens analytisch nachgewiesen werden [14]. Für das hier gegebene Regelproblem lässt sie sich jedoch nur heuristisch durch Simulationsuntersuchungen zeigen.

Für die in dieser Arbeit betrachtete sehr komplexe Regelstrecke mit einem Modell hoher Dimension werden wegen der entsprechend langen Rechendauern die Grenzen der Methode der modellprädiktiven Regelung erreicht. Nur durch die Kombination verschiedener Maßnahmen ist es möglich, die Zeit für die Optimalsteuerungsberechnung in einem akzeptablen Rahmen zu halten. Dies sind: Ortsdiskretisierung der Abschnitte des TMB-Modells mit der Methode der orthogonalen Kollokation und einer sehr geringen Anzahl von Ortsstützstellen, enge Beschränkung der Anzahl der Optimierer-Iterationen, geringe Anzahl von Parametrierungs-Intervallen für die Stellgrößen, Einsatz schneller Rechner.

Im folgenden wird die in Kapitel 4 als Regelproblem I zusammengefasste Regelungsaufgabe betrachtet. Gefordert ist die Regelung von Reinheit und Ausbeute, die Minimierung des Lösungsmittelverbrauchs und die Berücksichtigung von Schranken für die verschiedenen Volumenströme. Zur Regelung stehen drei Freiheitsgrade zur Verfügung, siehe die TMB-Anlagenschaltung in Abb. 2.4. Der Feedstrom q_{Fe} ist fest, als Steuergrößen werden q_{Ex} , q_{Ra} und q_{Z1} gewählt. Damit ergeben sich alle übrigen Ströme, insbesondere auch der Lösungsmittelstrom $q_{Lsg} = q_{Ex} + q_{Ra} - q_{Fe}$.

7.1 Zeitlicher Ablauf des Regelalgorithmus

Der zeitliche Ablauf der in diesem Kapitel entwickelten prädiktiven Regelung und das Zusammenwirken der verschiedenen Komponenten des Regelkreises ist in Abb. 7.1 dargestellt. Der Zustandsschätzer aus Kapitel 5 läuft simultan zum SMB-Prozess, so dass aufgrund der Messungen jederzeit eine aktuelle Zustandsschätzung $\hat{\xi} = [\hat{x}, \hat{z}]^T$ zur Verfügung steht.

In festen Zeitintervallen (Regelintervall ΔT_R) wird ausgehend vom geschätzten Zustand $\hat{\xi}_k$ zum Zeitpunkt t_k eine Berechnung optimaler Stellgrößen für das Intervall $[t_{k+1}, t_{k+2}]$ durchgeführt. Dazu erfolgt zunächst eine Prädiktion des Prozessverhaltens bis zum Zeitpunkt t_{k+1} , also eine Simulation mit den aktuellen Werten der Stellgrößen, die für Prozess und Zustandsschätzer in diesem Zeitraum gelten.

Im Anschluss an diese einfache Prädiktion werden optimale diskrete Steuertrajektorien für das Zeitintervall $[t_{k+1}, t_{k+1} + \Delta T_{Opt}]$ berechnet (Länge ΔT_{Opt} des Optimierungshorizonts). Dabei sind die Steuertrajektorien auf den Diskretisierungs- bzw. Regelintervallen der Länge ΔT_R zeitlich konstant, siehe folgenden Abschnitt. Auf das Optimierungskriterium für die Optimalsteuerungsberechnung wird ebenfalls weiter unten eingegangen.

Die Werte für das *erste* Diskretisierungsintervall der auf diese Weise erhaltenen Steuergrößenverläufe werden dann als Stellgrößen für Prozess und Zustandsschätzer im Intervall $[t_{k+1}, t_{k+2}]$ verwendet. Die gesamten Steuergrößenverläufe bilden – um ein Regelintervall verschoben –

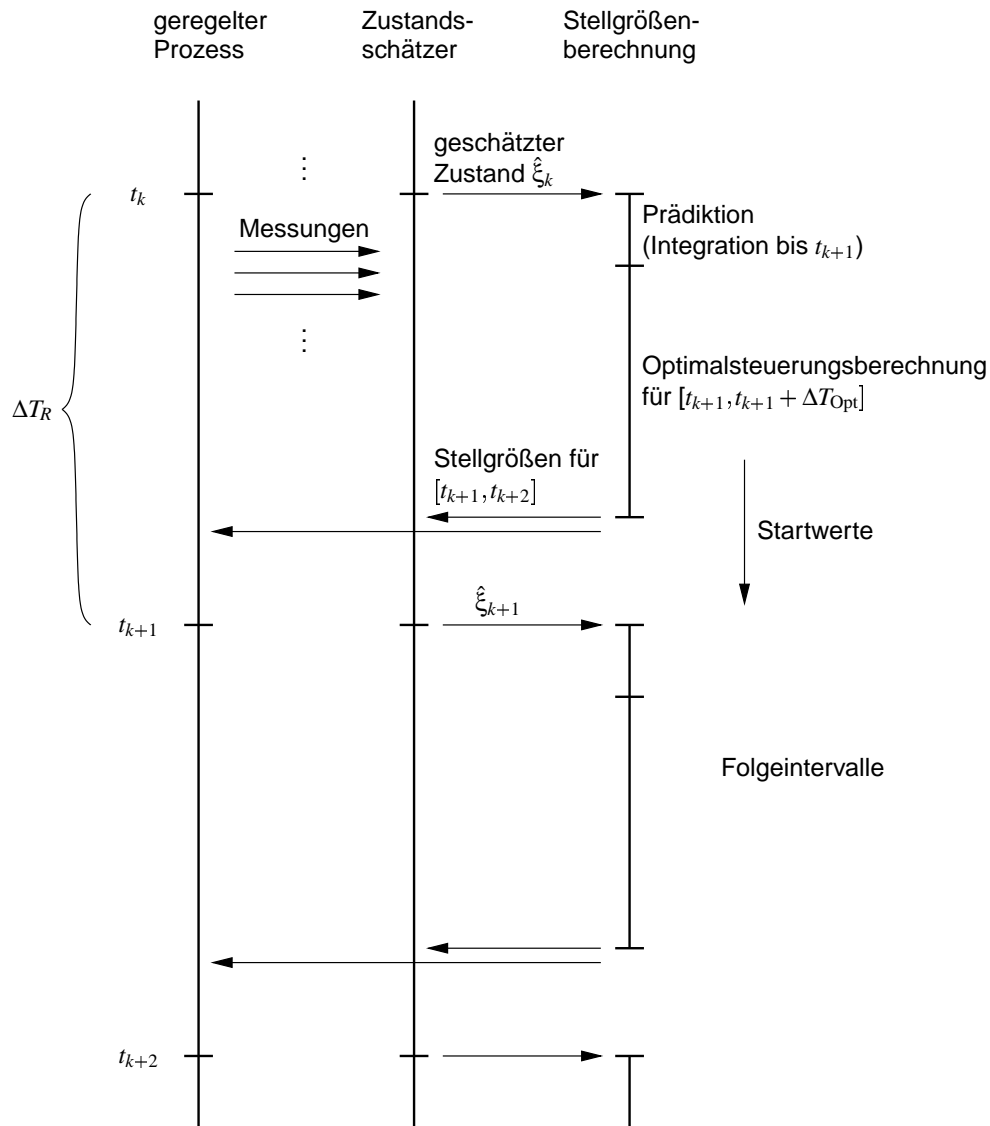


Abbildung 7.1: Zeitlicher Ablauf der prädiktiven Regelung. Der Zustandsschätzer läuft simultan zum Prozess. In festen Zeitintervallen (Regelintervall ΔT_R) wird eine Stellgrößenberechnung für das Folgeintervall durchgeführt. Sie setzt sich aus einer einfachen Prädiktion über ein Regelintervall und einer anschließenden Optimalsteuerungsberechnung für den Optimierungshorizont ΔT_{Opt} zusammen.

sehr gute Startprofile für die Optimalsteuerungsberechnung während des folgenden Regelintervalls.

7.2 Optimalsteuerungsberechnung in Echtzeit

Für die Anwendung des Regelalgorithmus an einem realen Prozess muss der Algorithmus echtzeitfähig sein. Dies bedeutet, dass am Ende eines Regelintervalls ΔT_R die Berechnung der Stellgrößen für das Folgeintervall in jedem Fall abgeschlossen sein muss. Nur durch geeignete Wahl des Modells bzw. der Ortsdiskretisierung sowie zusätzliche Maßnahmen bei der Implementierung und Parametrierung der Optimalsteuerungsberechnung kann dies erreicht werden.

Für die in jedem Regelintervall durchgeführte Optimalsteuerungsberechnung wird ebenso wie für die Zustandsschätzung das mit Orthogonaler Kollokation diskretisierte TMB-Modell aus Abschnitt 5.3 verwendet. Ein solches Modell mit möglichst niedriger Ordnung zu verwenden ist hier essentiell, da sonst die Optimalsteuerungsberechnung zu lange dauert und der Algorithmus nicht angewendet werden kann. Außerdem ist es selbstverständlich sinnvoll, wenn Filter und Optimierung auf dem gleichen Modell basieren, da der Filterzustand als Anfangswert für die Stellgrößenberechnung dient und somit andernfalls eine Umrechnung der Zustände zwischen verschiedenen Modellformulierungen erforderlich wäre. Auf der anderen Seite muss das diskretisierte Modell jedoch auch hohe Genauigkeitsanforderungen erfüllen, damit nicht numerische Artefakte das Ergebnis der Optimalsteuerungsberechnung bestimmen.

Es sind, wie bereits im vorausgehenden Abschnitt 7.1 angedeutet, auf dem Optimierungsintervall $[t_{k+1}, t_{k+1} + \Delta T_{\text{Opt}}]$ optimale Zeitverläufe für die Steuergrößen zu berechnen (im Sinne eines noch zu definierenden Gütekriteriums). Dazu wird eine Parametrierung der Steuergrößen in Form stückweise konstanter Verläufe mit n_p Diskretisierungsintervallen gewählt, siehe Abb. 7.2. Die Länge der Diskretisierungsintervalle entspricht dem Regelintervall ΔT_R , außer für das letzte Intervall ab t_{k+n_p-1} , das die Länge $\Delta T_{\text{Opt}} - (n_p - 1) \cdot \Delta T_R$ besitzt. Auf dem ersten Intervall $[t_k, t_{k+1}]$ erfolgt eine Prädiktion (Simulation) des Prozessverhaltens mit den im vorhergehenden Regelintervall bestimmten Steuergrößen $u_{i,k}$, $i = 1 \dots 3$. Gegenstand der Optimierung sind die Größen $u_{i,k+1}, \dots, u_{i,k+n_p-1}$ für $i = 1 \dots 3$.

Die Wahl des Regelintervalls ΔT_R erfolgt unter Berücksichtigung verschiedener Gesichtspunkte. Ist ΔT_R sehr klein, müssen die Steuertrajektorien für die Optimalsteuerungsberechnung mit sehr vielen Intervallen parametrisiert werden, was zu einer großen Anzahl Optimierungsvariablen und damit zu einer großen Rechendauer führt. Ist andererseits das Intervall ΔT_R sehr groß, kann innerhalb eines Intervalls der zu regelnde Prozess weit vom Sollwert abweichen, ein schlechtes Regelverhalten mit einer großen bleibenden Regelabweichung wäre die Folge. Ein Wert von $\Delta T_R = 60$ min hat sich für die hier betrachtete SMB-Anlage als geeignet erwiesen.

Das letzte Intervall $[t_{k+n_p-1}, t_{k+1} + \Delta T_{\text{Opt}}]$ bzw. der Optimierungshorizont ΔT_{Opt} wird sehr lang gewählt, um in der Optimierung einen stationären Endzustand des Prozesses zu erzwin-

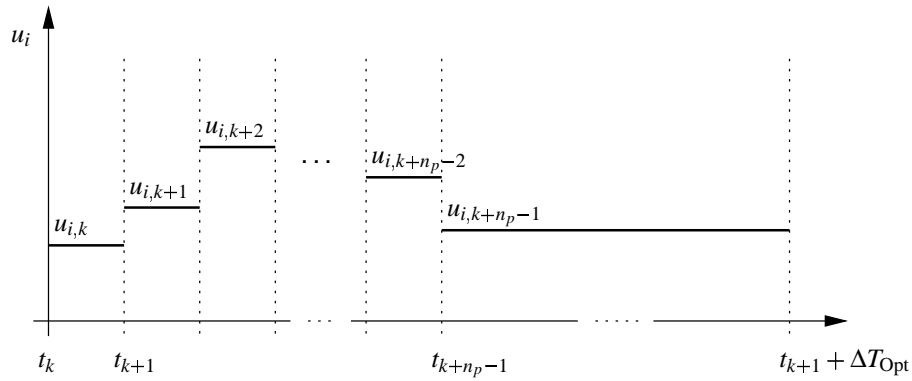


Abbildung 7.2: Parametrierung einer Stellgröße u_i über den Optimierungshorizont ΔT_{Opt} für die Optimalsteuerungsberechnung im Rahmen der modellprädiktiven Regelung. Die Länge der ersten $n_p - 1$ Diskretisierungsintervalle ist gleich dem Regelintervall ΔT_R .

gen. Dies ist erforderlich, damit die berechneten Steuertrajektorien einen optimalen Übergang in einen stationären Zustand bewirken und das Optimierungskriterium nicht nur in einem transienten Zustandsverlauf minimiert wird. In letzterem Fall wäre das Erreichen eines optimalen stationären Zustands mit der prädiktiven Regelung nicht zu erwarten.

Die Länge des letzten Intervalls bestimmt im Optimierungskriterium die Gewichtung des Endzustands relativ zum Übergangsverhalten. Für den betrachteten Prozess wurde $\Delta T_{\text{Opt}} = 840$ min gewählt. Dies entspricht in etwa der Zeit, die der Prozess benötigt, um einen stationären Zustand zu erreichen. Für die Rechendauer der Simulationen innerhalb der Optimalsteuerungsberechnung ist die genaue Länge des letzten Intervalls von geringer Bedeutung, da bei einer Integration in der Nähe eines stationären Zustands ohnehin sehr große Zeitschrittweiten gewählt werden können.

Einen wesentlichen Einfluss auf die Rechenzeit für die Optimalsteuerungsberechnung hat die Anzahl n_p der Parametrierungs-Intervalle, da sie die Anzahl der Optimierungsvariablen bestimmt. Diese wirkt sich zum einen auf die Integration der Modellgleichungen mit simultaner Berechnung der Parameter-Sensitivitäten [51, 53] aus, zum anderen hängt von der Dimension des Optimierungsproblems auch die Anzahl der erforderlichen Optimierer-Schritte ab. Es wurde ein Wert von $n_p = 6$ gewählt, was bei den hier gegebenen drei Stellgrößen zu $(n_p - 1) \cdot 3 = 15$ Optimierungsvariablen führt. Diese recht geringe Anzahl von Intervallen erwies sich als hinreichend. Eine größere Anzahl kann hier wegen zu großer Rechendauer nicht verwendet werden, ist jedoch wünschenswert, da das nichtlineare Prozessverhalten dann bei Übergangsvorgängen noch besser ausgenutzt werden kann.

Weiterhin wird die Rechenzeit für die Optimierung dadurch begrenzt, dass eine niedrige Schranke für die Anzahl der Optimierer-Schritte vorgegeben wird. Im ersten Regelintervall nach einer Störung am Prozess wird der Optimierer im allgemeinen sehr viele Schritte benötigen, um eine neue Steuertrajektorie zu berechnen, da das um ein Intervall in die Zukunft verschobene

Ergebnis aus der vorhergehenden Optimalsteuerungsberechnung in diesem Fall *keinen* guten Startwert bildet. Die Rechnung wird in diesem Fall frühzeitig – also vor Erreichen des Optimums – abgebrochen, und die bis dahin berechneten Steuergrößen des ersten Optimierungsintervalls werden als Stellgrößen für den Prozess verwendet. Tritt nun im nächsten Regelintervall keine neue Störung auf, so ändert sich das Optimierungsproblem durch das Fortschreiten des Zeitverlaufs um ein Intervall nur unwesentlich. Die vorher berechneten Steuertrajektorien sind jetzt gute Startwerte für die neue Optimalsteuerungsberechnung, und die Annäherung an das Optimum kann fortgesetzt werden. Etwa zwei bis drei Regelintervalle nach einer Störung kann das Optimalsteuerungsproblem erfahrungsgemäß wieder in der zur Verfügung stehenden Zeit vollständig gelöst werden.

Für eine effiziente Optimierungsrechnung werden die Gradienten des Optimierungskriteriums nicht mittels einer externen Differentiation mit finiten Differenzen berechnet, sondern es werden bei der Integration simultan Parameter-Sensitivitäten mitberechnet und daraus die erforderlichen Gradienten bestimmt. Dazu dient der Algorithmus DDASAC in einer Sparse-Version [53]. Die Optimalsteuerungsberechnungen erfolgen innerhalb der Simulationsumgebung DIVA [58] mit dem SQP-Optimierungsalgorithmus E04UCF aus der NAG-Bibliothek [27, 59]. Die Koordination und der Datenaustausch zwischen Prozess bzw. Prozessmodell, Zustandsschätzer und Optimalsteuerungsberechnung entsprechend Abb. 7.1 wurden in Matlab [56] realisiert.

7.3 Formulierung des Optimierungsproblems

Die in der Regelungsaufgabe (Regelproblem I) gegebenen Anforderungen, also die Forderung nach einer Regelung von Reinheit und Ausbeute bei Minimierung des Lösungsmittelverbrauchs und Berücksichtigung von Beschränkungen der Volumenströme in der Anlage, müssen für die Optimalsteuerungsberechnung als Optimierungskriterium mit Nebenbedingungen ausgedrückt werden. Eine einfache und daher häufig gewählte Möglichkeit, mit einem Gütekriterium die Annäherung an Sollwerte zu fordern, ist, Terme mit den quadratischen Abweichungen von den Sollwerten zu verwenden. Dies ist jedoch in der Regel nicht sinnvoll, da z. B. die Kosten des Übergangsvorgangs oder die Dauer des Übergangsvorgangs auf diese Weise nicht angemessen berücksichtigt werden. Auch für das in der vorliegenden Arbeit betrachtete Regelproblem ist eine solche Formulierung mit den quadratischen Abweichungen von Reinheit und Ausbeute von ihren Sollwerten nicht sinnvoll, da diese Sollwerte als *untere Grenzen* zu verstehen sind. Abweichungen nach oben explizit zu vermeiden, ist nicht erforderlich.

Durch die in der Regelungsaufgabe geforderte Minimierung des Lösungsmittelverbrauchs werden Reinheit und Ausbeute im stationären Zustand nicht über ihren Sollwerten liegen, da dies immer einen erhöhten Lösungsmittelstrom q_{Lsg} erfordern würde.

Eine erste Formulierung des Optimierungsproblems mit Sollwerten bzw. unteren Grenzen r_{\min} und a_{\min} für Reinheit $r(t)$ und Ausbeute $a(t)$ entsprechend den Definitionen in Gl. (2.31) und

(2.32) könnte also folgendermaßen lauten:

$$\min_u \int_0^{\Delta T_{\text{Opt}}} q_{\text{Lsg}}(t) dt \quad (7.1)$$

$$r(t) \geq r_{\min}, \quad a(t) \geq a_{\min} \quad (7.2)$$

mit $u = [q_{\text{Ex}}(t), q_{\text{Ra}}(t), q_{\text{Zl}}(t)]^T$. Hinzu kommen noch Beschränkungen für verschiedene Volumenströme $q(t)$ in der Form $q_{\min} < q(t) < q_{\max}$, die hier nicht im einzelnen angegeben werden. Es gelten die Modellgleichungen (5.1) aus Kapitel 5

$$\dot{x} = f(x, z, u), \quad x(0) = x_0, \quad z(0) = z_0 \quad (7.3a)$$

$$0 = k(x, z, u) \quad (7.3b)$$

mit dynamischen Zuständen x , algebraischen Zuständen z , Eingängen u und konsistenten Anfangsbedingungen x_0, z_0 . Für die Regelgrößen w gilt

$$w = q(x, z, u) \quad (7.4)$$

Die Formulierung des Optimierungsproblems nach Gln. (7.1) und (7.2) ist jedoch aus verschiedenen Gründen problematisch. Zum einen besitzt das Optimierungsproblem in dieser Form für eine Anfangsbedingung x_0, z_0 , bei der die Nebenbedingungen (7.2) für Reinheit und Ausbeute nicht erfüllt sind, keine Lösung (jeder beliebige Steuergrößenverlauf ist *infeasible*). Dieser Fall tritt beispielsweise auf, wenn durch eine Störung die Reinheit ihren Minimalwert unterschreitet, bevor die Regelung eingreifen kann. Des Weiteren ist in vielen Fällen auch bei Übergangsvorgängen eine zeitweise Verletzung der Nebenbedingungen nicht zu vermeiden. In beiden Fällen würde die Optimalsteuerungsberechnung abgebrochen und damit der Regelalgorithmus scheitern. Und schließlich ist es bei dieser Formulierung nicht möglich, gegebenenfalls die Reinheit auf Kosten einer verringerten Ausbeute zu halten, wie in der Regelungsaufgabe gefordert.

Es ist also notwendig, in der Optimalsteuerungsberechnung eine Verletzung der unteren Grenzen r_{\min} und a_{\min} für Reinheit bzw. Ausbeute zuzulassen. Dazu müssen diese Größen anstelle der unteren Schranken nach Gl. (7.2) mit entsprechenden Gewichtungsfaktoren in das in (7.1) verwendete Gütefunktional eingebracht werden. Es dürfen jedoch nur Abweichungen nach unten berücksichtigt werden. Dazu wird hier die Sprungfunktion $h(x)$ verwendet:

$$h(x) = \begin{cases} 0, & x \leq 0 \\ 1, & x > 0 \end{cases} \quad (7.5)$$

Das neue Optimierungsproblem lautet dann mit dem Gütefunktional J , dem Integranden $l(t)$

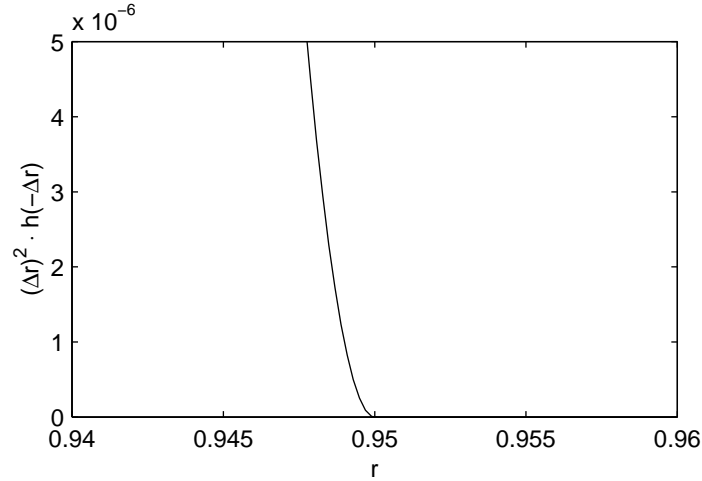


Abbildung 7.3: Term $(\Delta r)^2 \cdot h(-\Delta r)$ im Gütefunktional (7.6) in Abhängigkeit von der Reinheit r bei einer Sollreinheit $r_{\min} = 0.95$.

und den Gewichtungsfaktoren c_1 , c_2 und c_3 :

$$\min_u J, \quad J = \int_0^{\Delta T_{\text{Opt}}} l(t) dt, \quad (7.6)$$

$$l = c_1 \cdot q_{\text{LSg}} + c_2 \cdot (\Delta r)^2 \cdot h(-\Delta r) + c_3 \cdot (\Delta a)^2 \cdot h(-\Delta a) \quad (7.7)$$

Dabei sind Δr und Δa die Abweichungen von Reinheit und Ausbeute

$$\Delta r = r - r_{\min}, \quad \Delta a = a - a_{\min}. \quad (7.8)$$

Hinzu kommen wiederum Beschränkungen verschiedener Volumenströme, die nicht im einzelnen angegeben werden.

Das Gütefunktional J in (7.6) und seine Gradienten nach den Optimierungsvariablen (Parameter-Sensitivitäten) sollen bei der numerischen Lösung des Systemmodells auf dem Intervall $[0, \Delta T_{\text{Opt}}]$ simultan mitberechnet werden. Dazu wird den Modellgleichungen (7.3) folgende Differentialgleichung mit $l(t)$ nach Gl. (7.7) hinzugefügt:

$$\dot{J} = l, \quad J(0) = 0 \quad (7.9)$$

In Gl. (7.7) werden Terme der Form $x^2 \cdot h(-x)$ mit einer quadratischen Berücksichtigung der Abweichungen Δr und Δa gewählt, da sie an der Stelle $x = 0$ erst in der zweiten Ableitung unstetig sind, nicht bereits in der ersten Ableitung wie Terme der Form $x \cdot h(-x)$. Dadurch werden Schwierigkeiten bei der numerischen Integration der um das Gütekriterium erweiterten Modellgleichungen vermieden. Den Beitrag des Terms für die Abweichung der Reinheit vom Minimalwert zeigt Abb. 7.3.

Eine geeignete Wahl der Gewichte c_1 , c_2 und c_3 ist entscheidend für den Entwurf der modellprädiktiven Regelung. Diese Parameter bestimmen insbesondere

- die Skalierung des Optimierungsproblems,
- die Gewichtung der Reinheit gegenüber der Ausbeute, wenn Beschränkungen greifen und nicht mehr beide Sollwerte erreicht werden können,
- die Gewichtung der Abweichungen in Reinheit und Ausbeute gegenüber dem Lösungsmittelverbrauch, wodurch die Regelgenauigkeit festgelegt wird.

Es wurden mit Hilfe einer größeren Anzahl Simulationsexperimente die Werte $c_1 = 1 \cdot 10^{-4} \text{min/ml}$, $c_2 = 9 \cdot 10^4$ und $c_3 = 3 \cdot 10^1$ für die Gewichte gewählt.

7.4 Simulationsergebnisse

Die vorgeschlagene modellprädiktive Regelung wird für drei unterschiedliche Szenarien in Simulationsrechnungen erprobt. Dabei wird jeweils von einem ausgeregelten Anfangszustand ausgegangen. Zunächst wird eine Störung in Form einer Änderung der Feed-Zusammensetzung untersucht. Es steht keine Messung der Feed-Zusammensetzung zur Verfügung, sie wird durch den Zustandsschätzer mitgeschätzt.

In zwei weiteren Simulationsrechnungen wird die sprungförmige Änderung eines Sollwerts untersucht. Im einen Fall kommt keine Stellgrößenbeschränkung zum Tragen, im anderen Fall wird die Beschränkung dann so eng gewählt, dass sie nach dem Sollwert-Sprung greift, also tatsächlich beschränkend wirkt.

Als Prozessmodell dient hier ein TMB-Modell, an das über Abtast/Halte-Glieder der Zustandsschätzer aus Kapitel 5 angeschlossen ist.

7.4.1 Änderung der Feed-Zusammensetzung

Zum Zeitpunkt $t = 1 \text{ h}$ wird der Gewichtsbruch von Paraxylol im Feed $g_{\text{Fe,PX}}$ sprungförmig von 0.254 auf 0.19 verringert. Dies wirkt sich nahezu unmittelbar in Form einer Erhöhung der Ausbeute aus, Abb. 7.4. Die Reinheit ist erst einige Zeit später betroffen und fällt dann zunächst ab.

Da die Feed-Zusammensetzung hier nicht gemessen, sondern vom Zustandsschätzer bestimmt wird, wird diese Störung erst ein Intervall nach ihrem Auftreten, also zum Zeitpunkt $t = 2 \text{ h}$, dem Regelalgorithmus bekannt (siehe Ablaufdiagramm in Abb. 7.1). Zum Zeitpunkt $t = 3 \text{ h}$ stehen dann die neuen Stellgrößen zur Verfügung, die sich aufgrund der Störung ergeben. Abb. 7.5 zeigt die geschätzten und die tatsächlichen Verläufe der Gewichtsbrüche im Feed, Abb. 7.6 die Verläufe der Stellgrößen.

Besonders hervorzuheben ist, dass in Abb. 7.4 nach dem Eingriff der Regelung die Werte von Reinheit und Ausbeute nahezu ausschließlich oberhalb ihrer Minimal- bzw. Sollwerte liegen, obwohl sie durch die Stellbewegungen noch starken Schwankungen unterworfen sind. Dies ist

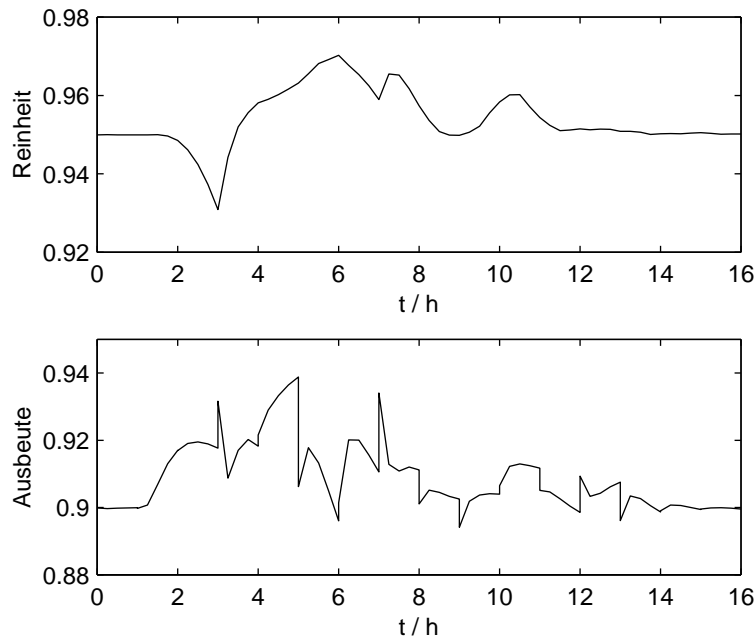


Abbildung 7.4: Modellprädiktive Regelung: Verlauf der Regelgrößen nach einem Sprung des Gewichtsbruchs von Paraxylool im Feed von 0.254 auf 0.19 zum Zeitpunkt $t = 1$ h.

die gewünschte Auswirkung der Sprungfunktion in den Termen für die Regelabweichungen im Gütekriterium.

7.4.2 Sollwert-Sprung

Bei diesem Simulationsexperiment wird der Sollwert für die Reinheit zu Beginn des zweiten Regelintervalls, also zum Zeitpunkt $t = 1$ h von 0.98 auf 0.985 erhöht. Dieser neue Sollwert lässt sich für die gegebene Feed-Zusammensetzung und den gegebenen Feedstrom mit der Anlage gerade noch realisieren. Auslegungsrechnungen zeigen, dass eine Reinheit von z. B. 0.99 auch bei beliebig hohem Lösungsmittelstrom gleichzeitig mit einer Ausbeute von 0.90 mit der gegebenen Anlage nicht mehr zu erreichen ist. Es liegt also ein Anlagenzustand mit starker Nichtlinearität vor.

Die dem neuen Sollwert entsprechenden Stellgrößen werden während des zweiten Regelintervalls berechnet und werden ab Beginn des dritten Intervalls verwendet, Abb. 7.7 und Abb. 7.8.

Wegen der höheren Gewichtung von Sollwert-Abweichungen der Reinheit gegenüber Abweichungen der Ausbeute wird zunächst auf Kosten der Ausbeute die Reinheit stark erhöht. Das Ziel, der Sollwert, wird dabei deutlich übertroffen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Optimalsteuerungsberechnung aufgrund der Beschränkung der Anzahl der Optimierungsschritte vor Erreichen eines Optimums abgebrochen wurde und die bis dahin berechneten suboptimalen Stellgrößen verwendet wurden. Schon am Ende des zweiten Intervalls wird der Sollwert für die

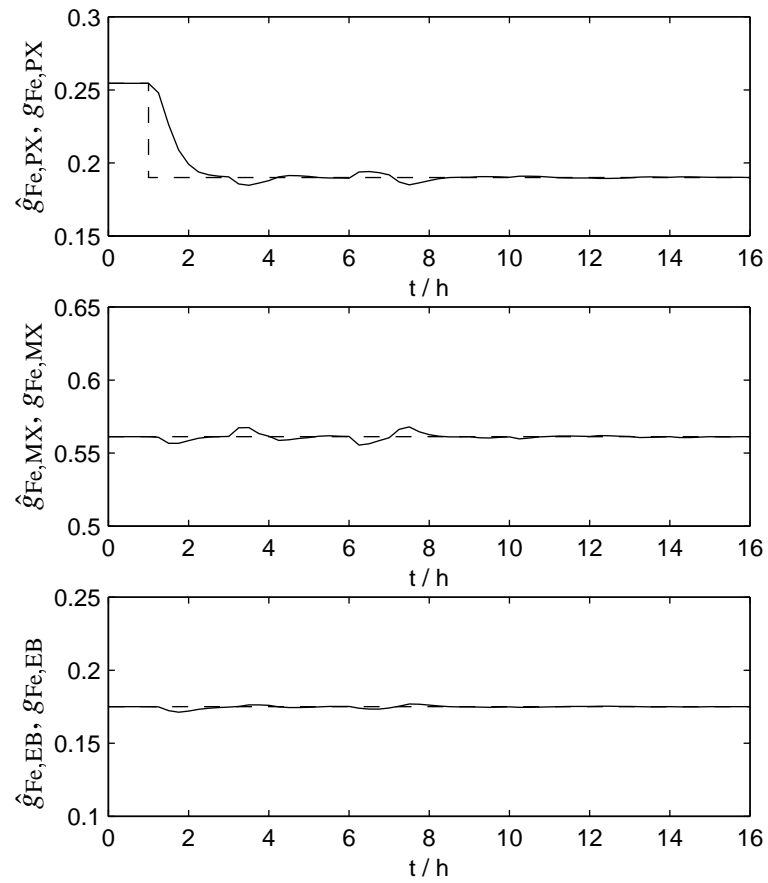


Abbildung 7.5: Geschätzte und tatsächliche Gewichtsbrüche im Feed (durchgezogene bzw. gestrichelte Kurven) nach einem Sprung des Gewichtsbruchs von Paraxylol im Feed von 0.254 auf 0.19.

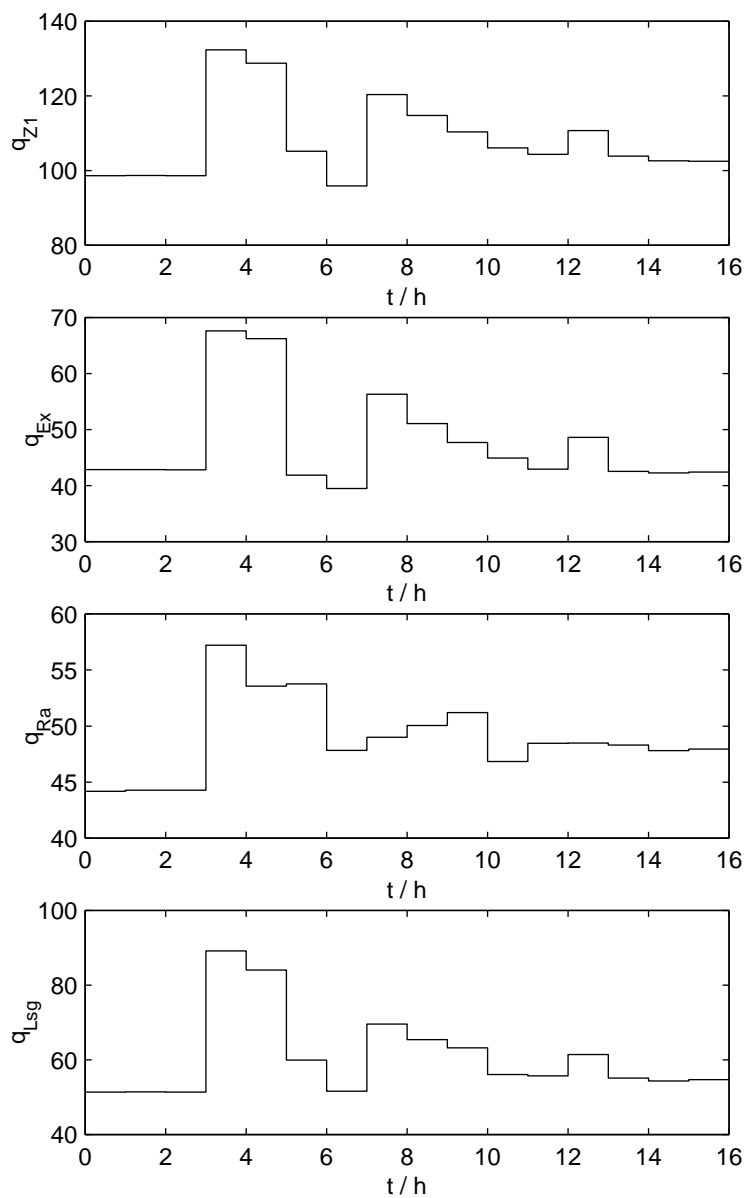


Abbildung 7.6: Verläufe der Stellgrößen und des resultierenden Lösungsmittelstroms nach einem Sprung des Gewichtsbruchs von Paraxylol im Feed von 0.254 auf 0.19.

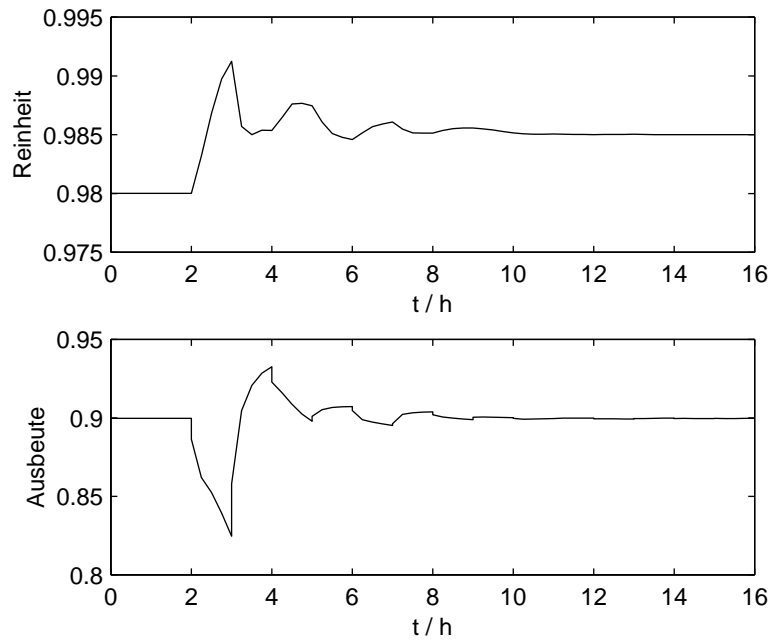


Abbildung 7.7: Verlauf der Regelgrößen nach einer sprungförmigen Erhöhung der Sollreinheit von 0.98 auf 0.985 zum Zeitpunkt $t = 1$ h. Die Stellgrößenbeschränkungen sind so weit gewählt, dass sie keinen Einfluss haben.

Reinheit erstmalig genau erreicht.

Die Schwankungen im weiteren Verlauf ergeben sich im wesentlichen aus den für den Übergang in einen neuen stationären Zustand erforderlichen Stellgrößenverläufen, und nicht etwa aus Problemen im Zusammenhang mit der Zustandsschätzung. Dies wird daran deutlich, dass sich sehr ähnliche Verläufe der Stellgrößen schon in der zum Zeitpunkt $t = 3$ h begonnenen Optimalsteuerungsberechnung zeigen, siehe Abb. 7.9.

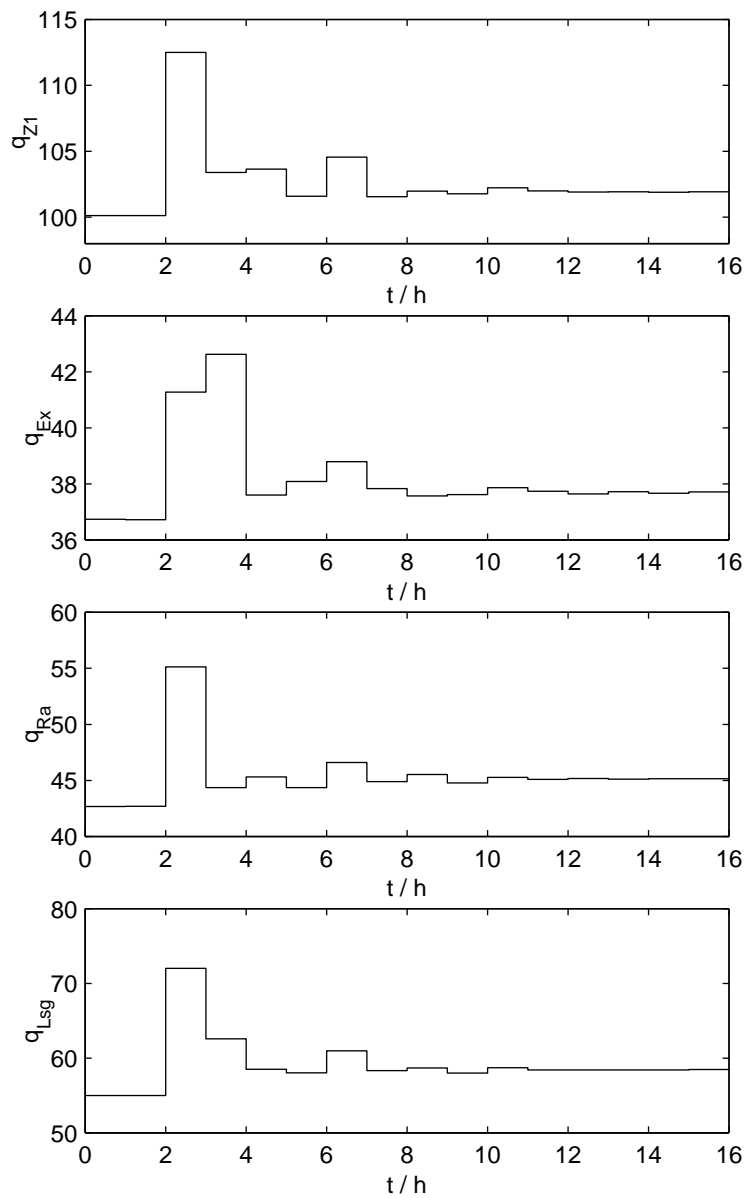


Abbildung 7.8: Verläufe der Stellgrößen und des resultierenden Lösungsmittelstroms nach einer sprungförmigen Erhöhung der Sollreinheit von 0.98 auf 0.985. Es greifen keine Beschränkungen.

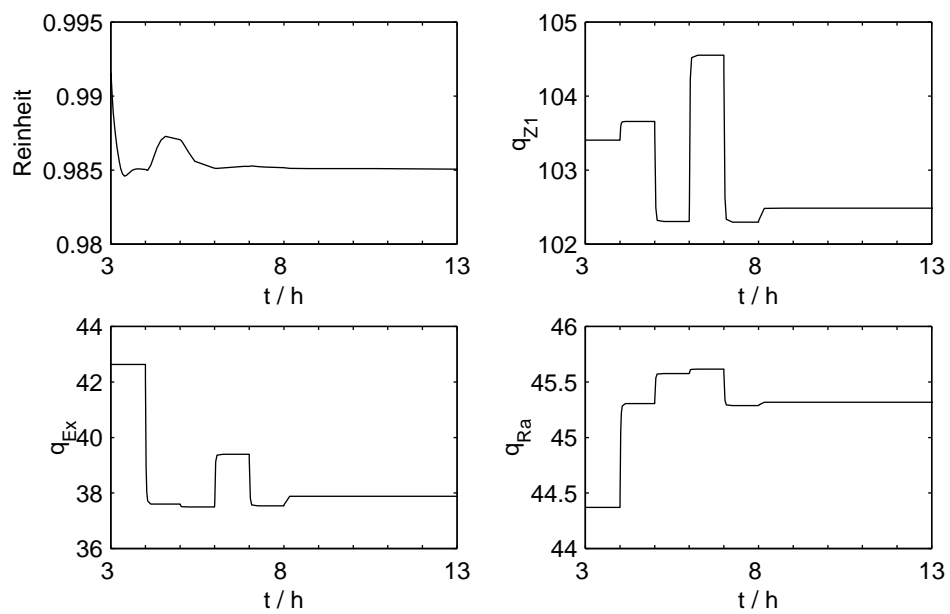


Abbildung 7.9: Ergebnis der Optimalsteuerungsberechnung im Intervall ab $t = 3$ h: Verläufe der Reinheit und der Steuergrößen für einen Sollwertsprung. Es greifen keine Beschränkungen.

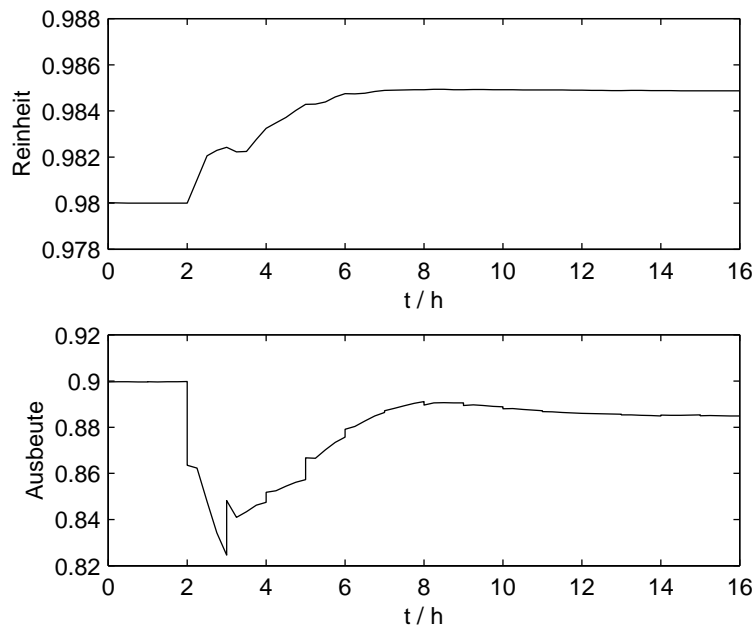


Abbildung 7.10: Verlauf der Regelgrößen nach einer sprungförmigen Erhöhung der Sollreinheit von 0.98 auf 0.985. Nach dem Sprung greift die obere Beschränkung von 44.5 ml/min für den Raffinatstrom.

7.4.3 Sollwert-Sprung mit Greifen einer Stellgrößenbeschränkung

Dieses Simulationsexperiment entspricht demjenigen aus Abschnitt 7.4.2 bis auf einen Unterschied: Die obere Schranke für den Raffinatstrom wurde mit 44.5 ml/min so gewählt, dass sie vor der Erhöhung der Sollreinheit noch nicht erreicht wird, nach der Störung jedoch greift, also beschränkend wirkt.

Die Zeitverläufe für Reinheit und Ausbeute, Abb. 7.10, ähneln denjenigen aus dem vorhergehenden Abschnitt (Abb. 7.7). Der Raffinatstrom kann nun jedoch nicht wie in Abb. 7.8 gezeigt deutlich erhöht werden, um das Regelungsziel zu erreichen, sondern bleibt auf den Maximalwert beschränkt, Abb. 7.11. Dadurch kann nicht mehr für beide Größen Reinheit und Ausbeute der Sollwert erreicht werden. Die schwächere Gewichtung von Abweichungen der Ausbeute im Gütekriterium führt nun dazu, dass bei der Ausbeute größere Abweichungen zugelassen werden, während die Reinheit nach wie vor ihren Sollwert erreicht.

7.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde eine sehr praxisnahe und damit komplexe Regelungsaufgabe für den SMB-Prozess betrachtet. Neben Sollwerten für Reinheit und Ausbeute wurden Beschränkungen der Volumenströme in der SMB-Anlage explizit berücksichtigt. Gleichzeitig erfolgt eine Minimierung des Lösungsmittelverbrauchs. Die Abweichungen in Reinheit und Ausbeute werden unterschiedlich stark gewichtet.

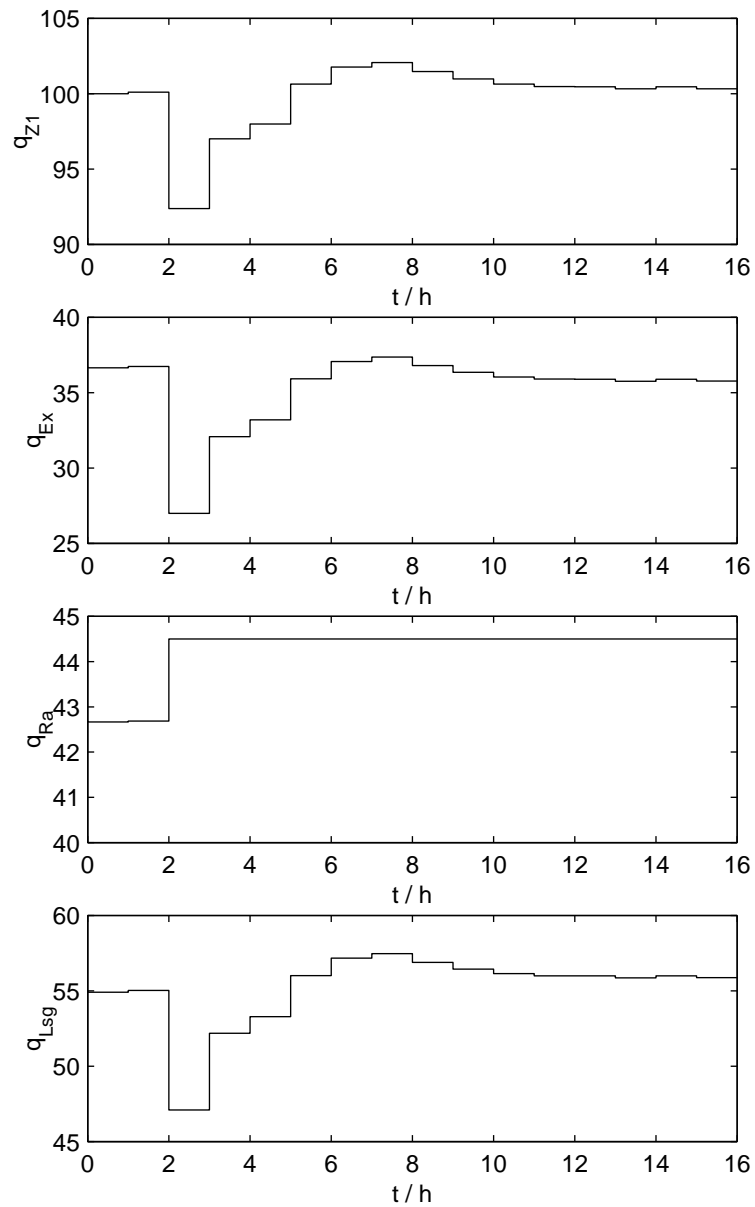


Abbildung 7.11: Verläufe der Stellgrößen und des resultierenden Lösungsmittelstroms nach sprungförmiger Erhöhung der Sollreinheit von 0.98 auf 0.985. Für den Raffinatstrom greift die obere Beschränkung von 44.5 ml/min.

Es konnte eine modellprädiktive Regelung für diesen Fall entwickelt und in Simulationsstudien erfolgreich getestet werden. Sie setzt auf der Zustandsschätzung aus Kapitel 5 auf. Durch verschiedene Maßnahmen ließ sich trotz der hohen Systemordnung eine Echtzeitfähigkeit des Regelalgorithmus erreichen. Die Simulationsstudien zeigen, dass die Entwurfsziele, insbesondere die bevorzugte Behandlung der Reinheit gegenüber der Ausbeute beim Greifen von Stellgrößenbeschränkungen, erreicht wurden.

Kapitel 8

Neue SMB-Betriebsweise mit zyklisch variieren Volumenströmen

SMB-Prozesse sind wegen der Realisierung des Gegenstroms zwischen Fluid und Adsorbens durch das regelmäßige Weitschalten von Zuflüssen und Abzügen sehr komplex (Kapitel 2.1). Die entsprechenden Modelle, siehe Kapitel 2.2, besitzen sowohl zeitkontinuierliche als auch zeitdiskrete Anteile, so dass Berechnungen mit diesen Modellen immer mit großem Aufwand verbunden sind. Auf der anderen Seite steht als vereinfachtes Modell für SMB-Prozesse das hypothetische TMB-Modell mit einem echten Gegenstrom zwischen Fluid und Adsorbens zur Verfügung (Kapitel 2.3). Es ist kontinuierlich und besitzt einen einfach zu berechnenden stationären Zustand. Aufgrund dieser Gegebenheiten werden SMB-Prozesse heute in Analogie zum entsprechenden TMB-Prozess ausgelegt und auch betrieben [13, 60]. Die Zahl der Einzelsäulen der SMB-Anlage wird zum Teil relativ hoch gewählt, um dieser Analogie möglichst nahe zu kommen. Die Abweichungen vom idealen TMB-Verhalten werden als zu minimierende Nicht-Idealitäten angesehen.

Dabei wird übersehen, dass in dem von außen aufgeprägten zyklischen Verhalten einer SMB-Anlage gerade ein besonderes Potenzial liegt. Dieses Potenzial soll hier mit Ergebnissen aus numerischen Optimierungen und Simulationsrechnungen belegt werden. Insbesondere werden beim herkömmlichen Betrieb des SMB-Prozesses die Betriebsparameter, also die Größen der Fluidströme sowie die Taktzeit zeitlich konstant gehalten. Im folgenden wird ein Betrieb einer SMB-Anlage mit innerhalb der Schaltintervalle zeitlich variablen Strömen vorgeschlagen und gezeigt, dass auf diese Weise eine deutliche Verringerung des Lösungsmittelverbrauchs (Betriebskosten) bzw. eine Erhöhung der Reinheit bei gleichem Verbrauch an Lösungsmittel möglich ist.

Die Untersuchungen werden für eine SMB-Anlage mit nur acht Säulen durchgeführt, da bei dieser geringen Säulenzahl die Auswirkungen der diskreten Bewegung des Festbetts im Vergleich zum TMB-Prozess besonders groß sind. Damit ist auch der potenzielle Nutzen einer veränderten Betriebsweise entsprechend groß.

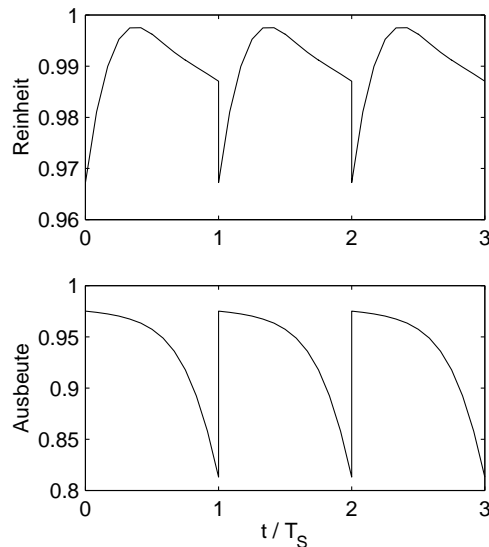


Abbildung 8.1: Zeitlicher Verlauf von Reinheit und Ausbeute über drei Schaltintervalle T_S beim typischen Betrieb eines SMB-Prozesses.

8.1 Zeitlich variable Volumenströme – Motivation

Häufig – wie auch bei den in Kapitel 4 diskutierten Regelungsaufgaben – sind die Zielgrößen für einen SMB-Prozess Reinheit und Ausbeute einer bestimmten Komponente, der Nutzkomponente. Abb. 8.1 zeigt exemplarische Zeitverläufe für diese beiden Größen. Reinheit und Ausbeute sind also zeitlich veränderlich. Die zyklischen Verläufe ergeben sich aus der zyklischen Bewegung der Konzentrationsprofile relativ zu den Abzugsstellen, siehe Abb. 3.4. Maßgeblich für den Betrieb des Prozesses sind die integralen Werte von Reinheit und Ausbeute, also die entsprechenden Größen für die gesamte Abzugsmenge eines Schaltintervalls (diese sind nicht mit den zeitlichen Mittelwerten von Reinheit bzw. Ausbeute identisch).

Aus der beobachteten Änderung der Werte von Reinheit und Ausbeute innerhalb eines Schaltintervalls ergibt sich nun die Idee, beispielsweise, während die Reinheit geringer ist, den Extraktstrom etwas abzusenken, und dann für den Zeitabschnitt mit größerer Reinheit entsprechend anzuheben. So könnte eine erhöhte integrale Reinheit bei insgesamt gleicher Extrakt-Abzugsmenge im Intervall zu erreichen sein. Es ist allerdings zu berücksichtigen, dass durch die Variation eines Zufluss-Volumenstroms auch mindestens ein weiterer zu- oder abfließender Strom sowie der umlaufende Strom in einem oder mehreren Anlagenabschnitten modifiziert wird (Erfüllung der Volumenbilanzen, siehe die SMB-Anlagenschaltung in Abb. 2.1). Damit beeinflusst eine solche Maßnahme die Konzentrationsverläufe aller Komponenten in der gesamten Anlage, und es ist damit zu rechnen, dass es zu einer Verringerung der Ausbeute kommt.

Dabei ist nicht die Änderung der Konzentrationsprofile nach einem einzelnen Schaltintervall maßgeblich, sondern der neue zyklische Zustandsverlauf, der sich einstellt, wenn den Volumenströmen in aufeinanderfolgenden Schaltintervallen jeweils gleiche Zeitverläufe aufgeprägt werden.

Wegen dieser komplexen Abhängigkeiten müssen für die Wahl zeitlich variabler Volumenströme Auslegungsrechnungen mit dem detaillierten SMB-Prozessmodell durchgeführt und die verschiedenen Kriterien wie Reinheit, Ausbeute und Lösungsmittelverbrauch in einer numerischen Optimierung gleichzeitig berücksichtigt werden.

8.2 Direkte Berechnung zyklischer Zustandsverläufe

Für Auslegungsrechnungen ist zunächst nur der Betrieb unter konstanten äußeren Bedingungen von Interesse und damit nur der fertig ausgebildete zyklische Zustandsverlauf. Mit dem in Kapitel 2.2 entwickelten gemischt kontinuierlich/diskreten (hybriden) SMB-Modell kann das transiente Verhalten der Anlage untersucht werden. Durch hinreichend lange Simulation ist es auch möglich, den zyklischen Zustandsverlauf zu berechnen, der sich für die gewählten Betriebsparameter einstellt. Dies ist jedoch sehr zeitaufwendig.

Hier wird nun eine Methode zur *direkten* Berechnung dieses Zustandsverlaufs vorgeschlagen. Dabei wird zunächst nur der Fall des herkömmlichen Betriebs mit zeitlich konstanten Volumenströmen betrachtet. Der zyklische Zustandsverlauf ist dadurch gekennzeichnet, dass der örtlich verteilte Anlagenzustand am Ende eines Schaltintervalls genau dem um eine Säulenlänge verschobenen Zustand am Anfang des Schaltintervalls entspricht, siehe Abb. 3.4. Durch das Weiterschalten der Zu- und Abflussstellen am Intervallende wird dann der Endzustand zum Anfangszustand des Folgeintervalls. Somit sind die Anfangszustände aufeinanderfolgender Intervalle bis auf die Verschiebung um eine Säulenlänge identisch. Während der Wanderung der Konzentrationsprofile über eine Säulenlänge ändert sich ihre Form vorübergehend.

Innerhalb des betrachteten Schaltintervalls, in dem keine Umschaltvorgänge auftreten, ist das ortsdiskretisierte SMB-Simulationsmodell ein semi-explizites Differential-Algebra-Gleichungssystem mit Index Eins (siehe Anhang D). Zur direkten Berechnung des zyklischen Zustandsverlaufs wird dieses Modell nun zusätzlich über das Schaltintervall mit der Trapezregel explizit zeitlich diskretisiert, siehe Abb. 8.2. Diesen algebraischen Modellgleichungen wird in Form weiterer Gleichungen die Bedingung hinzugefügt, dass der Endzustand im Intervall gleich dem um eine SMB-Säule verschobenen Anfangszustand ist. Das resultierende Gleichungssystem

$$0 = f_1(\bar{\xi}_1, p_1) \tag{8.1}$$

liefert als Lösung $\bar{\xi}_1$ die zyklischen Zeitverläufe aller Modellzustände über ein Schaltintervall in Abhängigkeit der System- bzw. Betriebsparameter p_1 . Damit stehen auch die integralen Werte für Reinheit und Ausbeute über das Schaltintervall zur Verfügung. Für eine hinreichend feine Diskretisierung ist das Gleichungssystem von sehr hoher Ordnung (> 3000). Es wurde mit zwei verschiedenen Methoden gelöst:

- Modellformulierung in Fortran mittels des DIVA-Codegenerators [58] und Lösung mit dem Solver NLEQ1S [21]. Bei der gegebenen Systemgröße nähert man sich den Grenzen

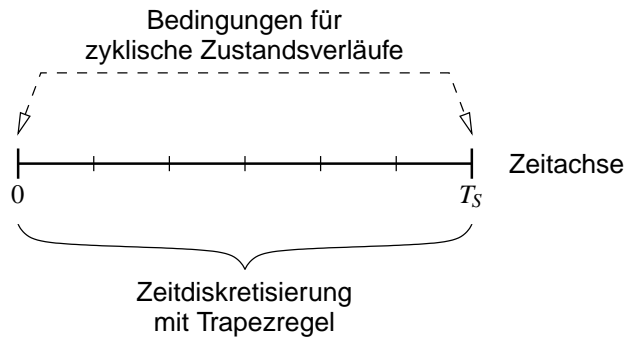


Abbildung 8.2: Herleitung des algebraischen Gleichungssystems zur direkten Berechnung zyklischer SMB-Zustandsverläufe bei konstanten Steuergrößen. Es erfolgt eine Zeitdiskretisierung des ursprünglichen Differential-Algebra-Gleichungssystems über ein Schaltintervall der Länge T_S . Zusätzliche algebraische Gleichungen verknüpfen Anfangs- und Endzustand, um zyklische Zustandsverläufe zu erzwingen.

der im Solver verwendeten direkten Verfahren für die lineare Algebra. Dies führt zu sehr langen Rechenzeiten.

- Modellformulierung in der Modellierungssprache AMPL [24] und Lösung mit dem Large-Scale Solver LANCELOT [17]. Dieser Solver verwendet iterative lineare Verfahren, die für sehr große Systeme prinzipiell besser geeignet sind. Zum Einsatz solcher iterativen Verfahren in der Verfahrenstechnik siehe auch [16].

8.3 Berechnung optimaler zyklischer Verläufe der Volumenströme

Im folgenden wird nun die vorgeschlagene verbesserte Betriebsweise mit innerhalb des Schaltintervalls zeitlich variablen Volumenströmen betrachtet. Die Verläufe der Ströme sind in allen Schaltintervallen identisch, so dass sich insgesamt zyklische Zeitverläufe ergeben. Ziel ist es, optimale Zeitverläufe für die Steuergrößen Extraktabzug, Raffinatabzug, Feed-Zufuhr und umlaufenden Fluid-Strom zu berechnen. Dazu wird das zur Berechnung des zyklischen Zustandsverlaufs dienende algebraische Gleichungssystem (8.1) erweitert und um ein Optimierungskriterium mit Nebenbedingungen ergänzt.

Formulierung des Optimierungsproblems

Die Optimierungsvariablen ergeben sich aus einer Parametrierung der Steuergrößen (Volumenströme) über den betrachteten Zeithorizont, ein Schaltintervall T_S . Es wird ein stückweise konstanter Verlauf der Steuergrößen gewählt (siehe unten Abb. 8.4). Entsprechend dem algebraischen Gleichungssystem (8.1) zur direkten Berechnung eines zyklischen Zustandsverlaufs bei *insgesamt* konstanten Steuergrößen wird nun für jedes *Teilintervall* mit konstanten Steuergrößen eine Diskretisierung mit der Trapezregel durchgeführt, Abb. 8.3. Zusätzlich wird Kontinuität

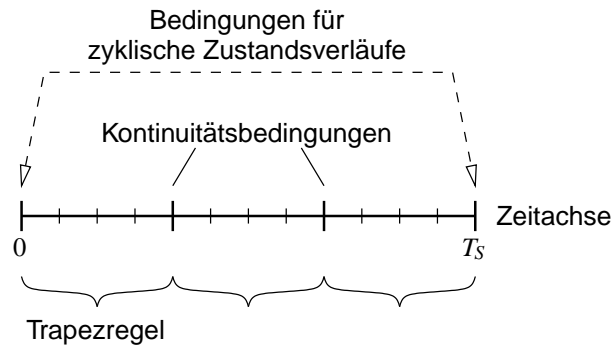


Abbildung 8.3: Direkte Berechnung zyklischer SMB-Zustandsverläufe bei innerhalb des Schaltintervalls variierten Steuergrößen. Die Zeitdiskretisierung erfolgt für stückweise konstante Steuergrößenverläufe auf den Teilintervallen mit jeweils konstanten Steuergrößen. Zusätzlich gelten Kontinuitätsbedingungen an den Grenzen der Teilintervalle und wieder die Anfangs-/End-Bedingung für zyklische Zustandsverläufe.

der Zustandsverläufe an den Grenzen der Teilintervalle gefordert. Die Anzahl der Stützstellen für die Zeitdiskretisierung muss wegen der stärkeren äußeren Anregung des Systems gegenüber dem Fall konstanter Steuergrößen deutlich erhöht werden (abhängig von der Feinheit der Steuergrößen-Parametrierung mindestens um den Faktor zwei). Das resultierende Gleichungssystem ist von der selben Form wie (8.1):

$$0 = f_2(\bar{\xi}_2, p_2) \quad (8.2)$$

Das Optimierungskriterium ergibt sich aus der Forderung nach einer Minimierung des Lösungsmittelverbrauchs. Integrale Reinheit und Ausbeute dürfen dabei vorgegebene Schranken nicht unterschreiten und die mittlere Feed-Zufuhr über ein Intervall muss gleich dem konstanten Wert bei herkömmlicher Betriebsweise sein. Außerdem werden Beschränkungen der Steuergrößen sowie der umlaufenden Ströme in den verschiedenen Abschnitten der Anlage berücksichtigt.

Diese Optimierungsaufgabe kann auch für den herkömmlichen Betrieb mit konstanten Strömen gelöst werden, so dass sich beide Varianten leicht vergleichen lassen.

Numerische Lösung des Optimierungsproblems

Wie bei der Lösung des Gleichungssystems (8.1) zur direkten Berechnung zyklischer Zustandsverläufe wurden auch zur Lösung dieses Optimierungsproblems zwei verschiedene Wege beschritten:

- Pragmatisch orientierter Ansatz: Die eigentliche Optimierung wird mit dem SQP-Optimierer E04UCF aus der NAG-Bibliothek durchgeführt. Dabei erfolgt zur Bestimmung der Werte des Optimierungskriteriums und zur Überprüfung der Beschränkungen in Abhängigkeit von den Optimierungsvariablen eine unterlagerte Berechnung des zyklischen Zustandsverlaufs, also das Lösen von Gl. (8.2), mit NLEQ1S. Die Gradienten des

Optimierungskriteriums und der Nebenbedingungen bezüglich der Optimierungsparameter werden über finite Differenzen berechnet. Dazu wird für perturbede Variablen wiederholt der zyklische Zustandsverlauf berechnet.

- **Simultane Lösung:** Das gesamte Optimierungsproblem wird in der Modellierungssprache AMPL formuliert. Die algebraischen Gleichungen (8.2), die das Modell repräsentieren, sind dabei Gleichungs-Nebenbedingungen des eigentlichen Optimierungsproblems. Die Lösung von (8.2) erfolgt also simultan mit der Optimierung. Es wird wiederum der Large-Scale-Solver LANCELOT verwendet.

Beide Wege führen zu identischen Optimierungsergebnissen. Beim ersten Weg ist jedoch wegen der Größe des Gleichungssystems die Rechendauer unverträglich groß. Der beim zweiten Weg eingesetzte Solver LANCELOT ist speziell auf die Lösung sehr großer Systeme ausgerichtet, konnte jedoch die in ihn gesetzten Erwartungen hinsichtlich Effizienz und Geschwindigkeit nicht ganz erfüllen – die Konvergenz erfolgte teilweise sehr langsam. Es mussten aus diesem Grund bei der Wahl der Anzahl der Teilintervalle für die Steuergrößen-Parametrierung zunächst gewisse Einschränkungen hingenommen werden. Die Aussagekraft der Optimierungsrechnungen wird dadurch nicht beeinträchtigt.

8.4 Ergebnisse

Die Untersuchungen werden am Beispiel eines SMB-Prozesses zur Trennung der C_8 -Aromaten Paraxylol und Metaxylol im Lösungsmittel Toluol durchgeführt. Die betrachtete Anlage (Pilotanlage) besteht aus nur acht Teilsäulen und zeigt damit eine ausgeprägte Abweichung vom idealisierten TMB-Modell. Für Reinheit und Ausbeute sind Werte von 99% bzw. 95% vorgegeben, der mittlere Feed-Strom soll 40.9 ml/min betragen.

Als Referenz wird zunächst die herkömmliche Betriebsweise optimiert, es werden also für den vorgegebenen Feed-Strom optimale *zeitlich konstante* Steuergrößen bei minimalem Lösungsmittelverbrauch berechnet. Es ergeben sich die bereits in Abb. 8.1 gezeigten Zeitverläufe von Reinheit und Ausbeute. Der Lösungsmittelbedarf beträgt 73.7 ml/min.

Für die vorgeschlagene alternative SMB-Betriebsweise werden nun die Steuergrößen mit vier zeitlich konstanten Abschnitten im Schaltintervall parametrieren. Je Teilintervall sind mindestens vier Diskretisierungszeitpunkte erforderlich. Eine feinere Parametrierung ist wegen der dazu erforderlichen Rechendauer nicht vertretbar. Für die gewählte Parametrierung ergeben sich die in Abb. 8.4 gezeigten optimalen Steuerprofile bei einem mittleren Lösungsmittelverbrauch von nur noch 65.5 ml/min. *Es lassen sich also im betrachteten Fall gegenüber der herkömmlichen Betriebsweise 11% Lösungsmittel einsparen.*

In Abb. 8.5 wird gezeigt, dass sich die SMB-Ortsprofile der Zusammensetzung im Schaltintervall-Mittelpunkt für die optimalen parametrieren Steuergrößen deutlich von den ursprünglichen Ortsprofilen mit optimalen zeitlich konstanten Steuergrößen unterscheiden. Dies gilt auch für

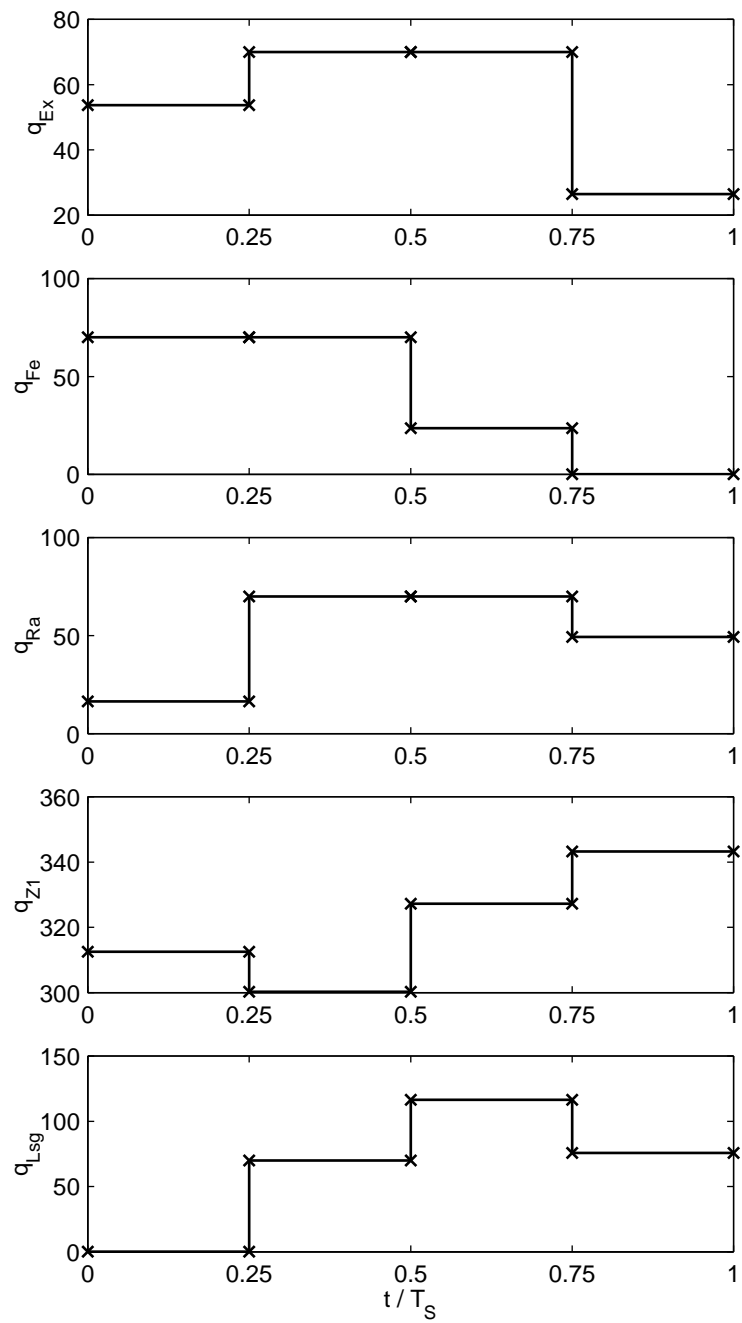


Abbildung 8.4: Optimaler zeitlicher Verlauf der parametrisierten Steuergrößen über ein Schaltintervall (Volumenströme q_{Ex} , q_{Fe} , q_{Ra} in Extrakt, Feed und Raffinat sowie umlaufender Fluidstrom q_{Z1} in Abschnitt I). Dargestellt ist außerdem der sich ergebende Lösungsmittelstrom q_{Lsg} .

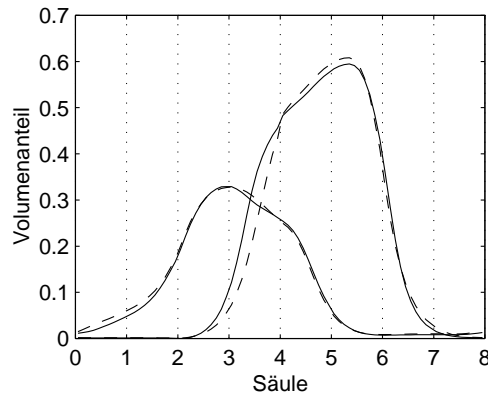


Abbildung 8.5: Vergleich der SMB-Ortsprofile des Paraxylol-Volumenanteils in der Mitte eines Schaltintervalls für die in der numerischen Optimierung berechneten Steuergrößen. Durchgezogen die Kurve für zeitlich konstante und gestrichelt die Kurve für parametrisierte (stückweise konstante) Steuergrößen.

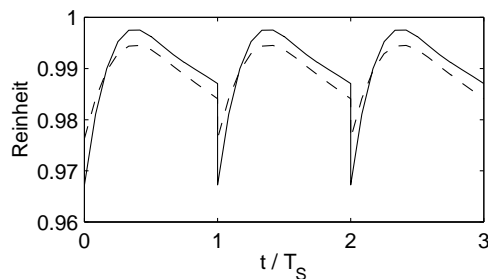


Abbildung 8.6: Zeitlicher Verlauf der Reinheit für zeitlich konstante (durchgezogene Linien) und parametrisierte Steuergrößen (gestrichelte Linien). Die integrale Reinheit ist in beiden Fällen gleich.

die zeitlichen Verläufe der Reinheit, Abb. 8.6, wobei die integrale Reinheit in beiden Fällen gleich ist.

Um sicherzustellen, dass die Optimierungsergebnisse nicht auf Artefakten der für die Optimierung verwendeten Modelle und insbesondere der expliziten zeitlichen Diskretisierung beruhen, werden Simulationen mit dem SMB-Modell aus Abschnitt 2.2 unter Verwendung der optimal berechneten zeitlich variablen Steuergrößen durchgeführt. Die auf diese Weise erhaltenen zyklischen Zustandsverläufe sind mit den entsprechenden Werten aus den Optimierungsrechnungen identisch.

8.5 Zusammenfassung

Die beschriebenen Optimierungsrechnungen zeigen, dass bereits durch eine einfache zeitliche Variation der Steuergrößen des SMB-Prozesses eine erhebliche Menge an Lösungsmittel eingespart werden kann. Nach einer Verbesserung der numerischen Verfahren sind auch Berechnungen mit einer feineren Parametrierung der Steuergrößen möglich. Damit sind dann noch größere

Lösungsmittelleinsparungen zu erwarten. Weiterhin kann die hier beschriebene Optimierungsrechnung auf die gesamte Auslegung einer SMB-Anlage ausgedehnt werden, um simultan alle erforderlichen Prozessparameter zu bestimmen.

Wegen der Abweichung zwischen Simulationsmodell und realem Prozess wird – wie bei jeder Auslegungsrechnung – eine Verwendung der berechneten Steuergrößen am Prozess zunächst zu nicht vollständig befriedigenden Ergebnissen führen. Es ist daher erforderlich, Prozessführungskonzepte zu entwickeln, die die Optimierung der Steuertrajektorien im Schaltintervall mit einer anlagenweiten Regelung verbinden, um das Einsparpotenzial der hier neu entwickelten Betriebsweise an einer gegebenen SMB-Anlage produktiv nutzen zu können.

Anhang A

Adsorptionsgleichgewicht mit konstanten Selektivitäten

Die Gleichgewichtsbeziehung wird auf Gewichtsbrüche umgerechnet und nach den Adsorbens-Gewichtsbrüchen aufgelöst. Aus der resultierenden Beziehung wird schließlich noch die Komponente n_c eliminiert.

Für konstante Selektivitäten $\alpha_{j,i}$ lautet die Gleichgewichtsbeziehung in Molanteilen x in den Makroporen und Molanteilen y in der adsorbierten Phase (Mikroporen) mit konstanten binären Selektivitäten $\alpha_{j,i}$

$$\frac{y_j}{y_i} = \alpha_{j,i} \frac{x_j}{x_i} \quad (\text{A.1})$$

Mit Hilfe der Komponentenmolmassen M_j und der Gemischmolmassen $M_{G,P}$ und $M_{G,A}$ in Porenfluid und Adsorbat erfolgt eine Umrechnung auf Gewichtsbrüche:

$$x_j = \frac{n_{P,j}}{n_P} = \frac{m_{P,j}/M_j}{m_P/M_{G,P}} = g_{P,j} \frac{M_j}{M_{G,P}} \quad (\text{A.2})$$

Entsprechendes gilt für die adsorbierte Phase:

$$y_j = g_{A,j} \frac{M_j}{M_{G,A}} \quad (\text{A.3})$$

Durch Einsetzen von Gl. (A.2) und Gl. (A.3) in Gl. (A.1) ergibt sich dann

$$\frac{g_{A,j}}{g_{A,i}} = \alpha_{j,i} \frac{g_{P,j}}{g_{P,i}}$$

Diese Beziehung wird nun in die Schließbedingung $\sum_{j=1}^{n_c} g_{A,j} = 1$ für das Adsorbat eingesetzt:

$$1 = \sum_{j=1}^{n_c} g_{A,j} = \sum_{j=1}^{n_c} g_{A,i} \alpha_{j,i} \frac{g_{P,j}}{g_{P,i}} = \frac{g_{A,i}}{g_{P,i}} \sum_{j=1}^{n_c} \alpha_{j,i} g_{P,j}$$

Für auf die Komponente n_c bezogene Selektivitäten α_{i,n_c} gilt $\alpha_{j,i} = \alpha_{j,n_c}/\alpha_{i,n_c}$. Damit ergibt sich

$$g_{A,i} = \frac{g_{P,i}}{\sum_{j=1}^{n_c} \alpha_{j,i} g_{P,j}} = \frac{\alpha_{i,n_c} g_{P,i}}{\sum_{j=1}^{n_c} \alpha_{j,n_c} g_{P,j}} \quad (\text{A.4})$$

Aus dem Nenner von (A.4) kann noch g_{P,n_c} eliminiert werden:

$$\begin{aligned} \sum_{j=1}^{n_c} \alpha_{j,n_c} g_{P,j} &= g_{P,n_c} + \sum_{j=1}^{n_c-1} \alpha_{j,n_c} g_{P,j} = 1 - \sum_{j=1}^{n_c-1} g_{P,j} + \sum_{j=1}^{n_c-1} \alpha_{j,n_c} g_{P,j} \\ &= 1 + \sum_{j=1}^{n_c-1} (\alpha_{j,n_c} - 1) g_{P,j} \end{aligned}$$

Damit folgt schließlich

$$g_{A,i} = \frac{\alpha_{i,n_c} g_{P,i}}{1 + \sum_{j=1}^{n_c-1} (\alpha_{j,n_c} - 1) g_{P,j}} \quad (\text{A.5})$$

Anhang B

Ortsdiskretisierung mit der Finite-Volumen-Methode

Die Anlagenmodelle für SMB- und TMB-Prozess sind aus den Modellen mehrerer örtlich verteilter Systeme, der Teil-Säulen bzw. der Gegenstrom-Abschnitte, aufgebaut. Damit ergibt sich eine komplexe Gleichungsstruktur aus partiellen Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen. Um die Modelle für die dynamische Analyse numerisch lösen und für Prozessführungsaufgaben anwenden zu können, muss eine Ortsdiskretisierung erfolgen. Dadurch werden die Modelle in verkoppelte Systeme von Differential-Gleichungen und algebraischen Gleichungen überführt. Dieser Schritt hat einen großen Einfluss auf die Ordnung des resultierenden Gleichungssystems und auf die Genauigkeit der Lösungen.

In dieser Arbeit werden zwei verschiedene Verfahren verwendet, die Finite-Volumen-Methode für genaue und detaillierte Simulationsmodelle, und die Orthogonale Kollokation (Anhang C) für Reglerentwurfs-Modelle, bei denen eine niedrige Systemordnung wichtig ist.

Besondere Eigenschaften der Finite-Volumen-Methode

Auf die Finite-Volumen-Methode (FVM) [49, 64] wird hier im Detail eingegangen, da sie eine große Bedeutung für die Ortsdiskretisierung von Gegenstrom- und Chromatographiemodellen besitzt, aber wenig verbreitet ist. Sehr häufig wird statt dessen für solche Modelle die allgemein bekannte Finite-Differenzen-Methode (FDM) verwendet. Diese Methode ist aber problematisch, wenn steile Konzentrations-Verläufe an den Rändern des betrachteten Systems vorliegen. Dies ist insbesondere bei Gegenstromprozessen der Fall, sowie generell bei Chromatographieprozessen mit sprungförmiger Änderung der Zulaufbedingungen und steilen Peaks am Säulenausgang. In diesen Fällen führt der Approximations-Fehler, der durch die Diskretisierung der Randbedingungen entsteht, dazu, dass im diskretisierten Modell die Massenbilanzen der einzelnen Komponenten über das gesamte betrachtete System signifikant verletzt werden. Dieser Approximationsfehler kann zwar im Prinzip durch eine Verfeinerung des zugrundegelegten Orts-

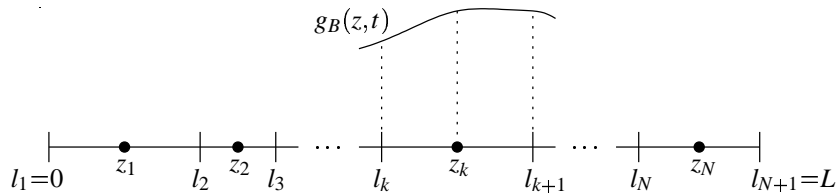


Abbildung B.1: Finite-Volumen-Methode mit Gitterpunkten z_k mittig zwischen den Grenzen l_k der Teilintervalle.

gitters in der Nähe der Ränder beliebig reduziert werden, die damit verbundene Erhöhung der Anzahl der Zustände des diskretisierten Systems führt jedoch zu einer wesentlichen Erhöhung der Rechenzeiten für Simulation und Analyse des Systems.

Dieses Problem kann durch Verwendung der Finite-Volumen-Methode (FVM) umgangen werden. Sie führt zu einer stärker physikalisch motivierten Diskretisierung der partiellen Differentialgleichung als die FDM – insbesondere sind hier für das ortsdiskretisierte System grundsätzlich alle Massenbilanzen unabhängig von der Wahl des Ortsgitters erfüllt. Auch Stufenmodelle, eine weitere Alternative bei der Ortsdiskretisierung, besitzen diese Eigenschaft. Diesen fehlt aber zum einen die mathematische Äquivalenz zu den partiellen Differentialgleichungen für unendliche Stützstellenanzahl, und zum anderen können Dispersions- bzw. Diffusionsterme nur mit Einschränkungen berücksichtigt werden.

Herleitung der Finite-Volumen-Methode

Die folgende Darstellung der FVM nimmt, im Gegensatz zu [64], klar Bezug auf die Diskretisierung eindimensionaler partieller Differentialgleichungen in der Verfahrenstechnik. Die Anwendung der FVM wird anhand der partiellen Differentialgleichung (2.8) mit den Randbedingungen (2.10) aus dem TMB-Modell gezeigt.

Ortsgitter (Finite Volumina)

Für die FVM wird der betrachtete Ortsbereich $[0, L]$ in Teilintervalle unterteilt, und es werden Gitterpunkte festgelegt, an denen eine Approximation der Lösung berechnet wird. Die Teilintervalle werden als „Finite Volumina“ oder „Volumenelemente“ bezeichnet, da sie als Bilanzräume interpretiert werden können, siehe unten Gl. (B.2). Die Diskretisierung des Ortsbereichs kann auf zwei unterschiedliche Arten erfolgen, die sich insbesondere darin unterscheiden, ob Gitterpunkte auf den Systemrändern festgelegt werden oder nicht. Im einen Fall, siehe Abb. B.1, werden zunächst die Elementgrenzen l_k , $k = 1 \dots N + 1$ gewählt, die Gitterpunkte z_k werden in die Mitte der dadurch entstandenen Teilintervalle gelegt. Im anderen Fall, Abb. B.2, werden als erstes N Gitterpunkte festgelegt, wobei auch auf die Ränder jeweils ein Gitterpunkt gelegt wird. Die Elementgrenzen liegen dann mittig zwischen den Gitterpunkten sowie auf beiden Rändern. Mischformen der beiden Varianten sind ebenfalls möglich.

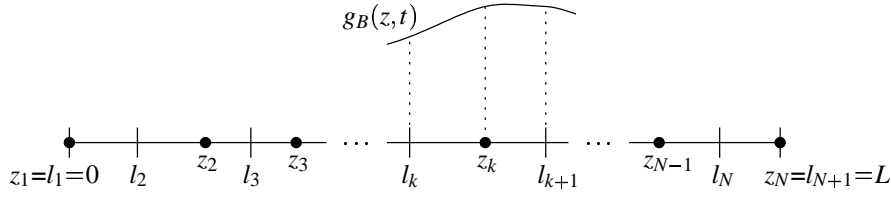


Abbildung B.2: Variante der Finite-Volumen-Methode, bei der die Intervallgrenzen l_k mittig zwischen die Gitterpunkte z_k gelegt werden.

Bei der Diskretisierung der hier betrachteten Gleichungen (2.8) und (2.10) werden die Zustände auf dem rechten Rand benötigt – zum einen wegen der Randbedingung, zum anderen für die Verschaltung mit anderen Teilmodellen der Gesamtanlage. Dafür eignet sich die zuletzt genannte Vorgehensweise mit Gitterpunkten auf den Rändern besser, da sie keine gesonderten Betrachtungen zur Berechnung der Randwerte erfordert. Diese wird daher im folgenden verwendet.

Diskretisierung im Innern des Ortsbereichs

Zunächst wird die partielle Differentialgleichung (2.8) für $g_{B,i}(z, t)$ über ein Teilintervall k integriert, der Komponenten-Index i wird der Übersichtlichkeit halber weggelassen (wegen der Bedeutung der Formelzeichen siehe Kapitel 2):

$$\frac{\partial g_B}{\partial t} = -\frac{\partial \tilde{j}_k}{\partial z} - \frac{\partial \tilde{j}_d}{\partial z} - \frac{\omega}{\psi} \tilde{j}_f, \quad (\text{B.1})$$

$$\int_{l_k}^{l_{k+1}} \frac{\partial g_B}{\partial t} dz = -(\tilde{j}_k|_{l_{k+1}} - \tilde{j}_k|_{l_k}) - (\tilde{j}_d|_{l_{k+1}} - \tilde{j}_d|_{l_k}) - \frac{\omega}{\psi} \int_{l_k}^{l_{k+1}} \tilde{j}_f dz. \quad (\text{B.2})$$

Diese Gleichung ist eine Massenbilanz für das Volumenelement bzw. das Teilintervall k . Die verbleibenden Integrale in Gl. (B.2) werden mit Hilfe der Werte an den Gitterpunkten approximiert:

$$\begin{aligned} \int_{l_k}^{l_{k+1}} \frac{\partial g_B}{\partial t} dz &= \frac{\partial}{\partial t} \int_{l_k}^{l_{k+1}} g_B dz \\ &\approx \frac{d}{dt} \left(g_B|_{z_k} \int_{l_k}^{l_{k+1}} dz \right) = (l_{k+1} - l_k) \frac{dg_B|_{z_k}}{dt}, \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

$$\int_{l_k}^{l_{k+1}} \tilde{j}_f(z, t) dz \approx \tilde{j}_f(z_k, t) \int_{l_k}^{l_{k+1}} dz = (l_{k+1} - l_k) \tilde{j}_f(z_k, t). \quad (\text{B.4})$$

Die konvektiven und dispersiven Ströme \tilde{j}_k bzw. \tilde{j}_d an den Elementgrenzen werden durch Interpolation aus den Werten an benachbarten Gitterpunkten approximiert. Im Fall konstanter

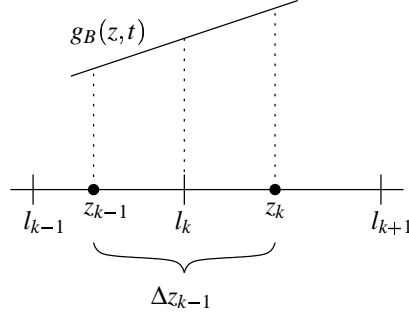


Abbildung B.3: Finite-Volumen-Methode, Approximation von $g_B(z, t)$ und $\partial g_B(z, t)/\partial z$ auf der Elementgrenze l_k mit einem linearen Ansatz.

Koeffizienten in \tilde{j}_k und \tilde{j}_d nach Gleichung (2.2) und (2.3) ist eine Approximation von $g_B(z, t)$ und $\partial g_B(z, t)/\partial z$ an den Elementgrenzen erforderlich. Wird ein linearer Ansatz verwendet, so lassen sich aus Abb. B.3 die folgenden Ausdrücke leicht herleiten:

$$g_B|_{l_k} \approx \frac{1}{2}(g_B|_{z_{k-1}} + g_B|_{z_k}), \quad (\text{B.5})$$

$$\left. \frac{\partial g_B}{\partial z} \right|_{l_k} \approx \frac{g_B|_{z_k} - g_B|_{z_{k-1}}}{\Delta z_{k-1}}. \quad (\text{B.6})$$

Für die Rechnungen in dieser Arbeit wurde eine Parabel zweiter Ordnung durch $g_{B,k-2}$, $g_{B,k-1}$ und $g_{B,k}$ zur Approximation der Größen an den Elementgrenzen verwendet, siehe [49]. Damit ist eine deutliche Verringerung der Anzahl der Gitterpunkte gegenüber dem linearen Ansatz möglich. Für ein äquidistantes Gitter ergeben sich folgende Ausdrücke:

$$g_B|_{l_k} \approx \frac{1}{8}(-g_B|_{z_{k-2}} + 6g_B|_{z_{k-1}} + 3g_B|_{z_k}), \quad (\text{B.7})$$

$$\left. \frac{\partial g_B}{\partial z} \right|_{l_k} \approx \frac{g_B|_{z_k} - g_B|_{z_{k-1}}}{\Delta z}. \quad (\text{B.8})$$

Setzt man nun die Approximationen (B.3), (B.4), (B.5) und (B.6) mit den Definitionen der Ströme (2.2) und (2.3) in Gleichung (B.2) für $k = 2 \dots N - 1$ ein, so ergeben sich Differentialgleichungen für die Werte von $g_B(z, t)$ an den Gitterpunkten. Für ein äquidistantes Gitter lauten diese:

$$\Delta z \frac{dg_B|_{z_k}}{dt} = v \frac{g_B|_{z_{k-1}} - g_B|_{z_{k+1}}}{2} + D \frac{g_B|_{z_{k-1}} - 2g_B|_{z_k} + g_B|_{z_{k+1}}}{\Delta z} - \frac{\omega}{\psi} \Delta z \tilde{j}_f(z_k, t), \quad k = 2 \dots N - 1. \quad (\text{B.9})$$

Man erhält hier also im Inneren des Ortsbereichs identische Gleichungen wie bei der Finite-Differenzen-Methode mit Zentraldifferenzen. Dies gilt jedoch nicht mehr für nichtäquidistante Gitter.

Behandlung der Randbedingungen

Die in Strömen formulierten Randbedingungen (2.10) können direkt in Gleichung (B.2) für $k = 1$ bzw. $k = N$ eingesetzt werden. Es ergeben sich mit $g_{B,ab} = g_B|_{z_N}$ folgende Differentialgleichungen für die Gitterpunkte auf den Rändern:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta z}{2} \frac{dg_B}{dt} \Big|_{z_1} &= v \left(g_{B,zu} - \frac{g_B|_{z_1} + g_B|_{z_2}}{2} \right) + D \frac{g_B|_{z_2} - g_B|_{z_1}}{\Delta z} \\ &\quad - \frac{\omega}{\psi} \frac{\Delta z}{2} \tilde{j}_f(z_1, t), \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

$$\begin{aligned} \frac{\Delta z}{2} \frac{dg_B}{dt} \Big|_{z_N} &= v \left(\frac{g_B|_{z_N} + g_B|_{z_{N-1}}}{2} - g_B|_{z_N} \right) - D \frac{g_B|_{z_N} - g_B|_{z_{N-1}}}{\Delta z} \\ &\quad - \frac{\omega}{\psi} \frac{\Delta z}{2} \tilde{j}_f(z_N, t). \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

Bei Verwendung der Approximation zweiter Ordnung entsprechend Gl. (B.7) und (B.8) müssen Wert und Gradient an der Elementgrenze l_2 dennoch mit einer linearen Approximation berechnet werden, da links von l_2 nur noch *ein* Gitterpunkt liegt.

Gesamtmassenbilanz für das ortsdiskretisierte System

Als großer Vorteil der Finite-Volumen-Methode gegenüber Finite-Differenzen-Methoden wurde weiter oben die garantierte Erfüllung der Gesamtbilanz über das System auch für die diskretisierten Gleichungen genannt. Dass dies tatsächlich der Fall ist, wird im folgenden an der partiellen Differentialgleichung (B.1) für den Fall $\tilde{j}_f = 0$ gezeigt. Für $\tilde{j}_f \neq 0$ wäre zusätzlich die PDGL für die Phase, mit der der Strom \tilde{j}_f ausgetauscht wird, zu berücksichtigen. Wegen der in Gleichung (B.3) verwendeten Approximation

$$\int_{l_k}^{l_{k+1}} g_B dz \approx g_B|_{z_k} \int_{l_k}^{l_{k+1}} dz$$

repräsentieren die Größen $g_B|_{z_k}$ an den Gitterpunkten den Masseninhalte im betreffenden Teilintervall k . Damit kann die Bilanz für die Gesamtmasse $M_d(t)$ im diskretisierten System durch Summation über alle Teilintervalle gebildet werden:

$$\frac{dM_d}{dt} = \sum_{k=1}^N (l_{k+1} - l_k) \frac{dg_B|_{z_k}}{dt}$$

Werden hier nun sowohl die rechte Seite von Gl. (B.2) als auch die Randbedingungen eingesetzt, so ergibt sich schließlich

$$\frac{dM_d}{dt} = v g_{B,zu} - v g_{B,zN}, \quad (\text{B.12})$$

da der abfließende Strom eines jeden Teilintervalls im Inneren des Ortsbereichs mit dem zufließenden Strom des folgenden Intervalls identisch ist. Dabei ist es unerheblich, ob direkt die

rechte Seite von Gl. (B.2) oder aber die diskretisierten Terme für die Stoffströme eingesetzt werden.

Dieses Ergebnis, Gl. (B.12), ist identisch mit dem Ergebnis einer Integration der ursprünglichen partiellen Differentialgleichung (B.1) über den gesamten Ortsbereich, wenn auch dort die Randbedingungen eingesetzt werden. Dies gilt vollkommen unabhängig von der Wahl der Ortsstützstellen für die Diskretisierung und unabhängig von der Form der Konzentrationsprofile, also insbesondere auch bei steilen Fronten an den Systemrändern.

Anhang C

Ortsdiskretisierung mit Orthogonaler Kollokation

Neben der Finite-Volumen-Methode wurde in dieser Arbeit zur Ortsdiskretisierung die Methode der Orthogonalen Kollokation angewendet. Sie ist hier besonderes dann von Vorteil, wenn das diskretisierte Gleichungssystem eine möglichst niedrige Ordnung haben soll und dabei keine extrem hohen Genauigkeitsanforderungen gegeben sind. Die folgende Darstellung der Methode beruht im wesentlichen auf Finlayson [12, 22] und Villadsen/Michelsen [73]. Dort wird vor allem auf die theoretischen Grundlagen eingegangen, ein direkt umsetzbarer Formalismus zur Anwendung der Methode fehlt und wird daher im folgenden angegeben.

Wesentlich an der hier gewählten Vorgehensweise ist, dass sie auf Differentialgleichungen für die Funktionswerte an den Kollokationspunkten führt, nicht auf Differentialgleichungen für Koeffizienten einer Ansatzfunktion. Damit ist das Ergebnis sehr anschaulich.

Bei der Modellierung des TMB-Abschnitts tritt eine PDGL zweiter Ordnung vom Konvektions/Diffusions-Typ auf, Gl. (2.8). Für Gleichungen diesen Typs auf einem in das Intervall $[0, 1]$ transformierten Ortsbereich lautet nach [22, S. 96ff, S. 105] eine geeignete Ansatzfunktion:

$$y(x) = b + cx + x(1-x) \sum_{i=1}^N a_i P_{i-1}(x), \quad 0 \leq x \leq 1 \quad (\text{C.1})$$

mit auf dem Intervall $[0, 1]$ orthogonalen Legendre-Polynomen $P_j(x)$ und Koeffizienten $a_i, i = 1, \dots, N$ sowie b und c . Die Legendre-Polynome erfüllen die Orthogonalitätsbedingungen

$$\int_0^1 x(1-x) P_i(x) P_j(x) dx = \delta_{ij} \quad (\text{C.2})$$

Die Ansatzfunktion $y(x)$ besitzt die Ordnung $N + 1$.

Als Kollokationspunkte werden die N Nullstellen von $P_N(x)$ sowie die Ränder des Ortsbereichs 0 und 1 gewählt, die Anzahl der Kollokationspunkte ist also $N + 2$.

Setzt man die Legendre-Polynome $P_j(x)$ in die Ansatzfunktion (C.1) ein, so ergibt sich mit neuen Koeffizienten d_i folgende Potenzschreibweise der Ansatzfunktion:

$$y(x) = \sum_{i=1}^{N+2} d_i x^{i-1} \quad (\text{C.3})$$

In dieser Form wird die Ansatzfunktion an den Kollokationspunkten x_j , $j = 1, \dots, N+2$ ausgewertet und die ersten beiden Ableitungen im Ort gebildet:

$$y(x_j) = \sum_{i=1}^{N+2} x^{i-1} \Big|_{x=x_j} d_i \quad (\text{C.4})$$

$$\frac{dy}{dx} \Big|_{x=x_j} = \sum_{i=1}^{N+2} \frac{dx^{i-1}}{dx} \Big|_{x=x_j} d_i \quad (\text{C.5})$$

$$\frac{d^2y}{dx^2} \Big|_{x=x_j} = \sum_{i=1}^{N+2} \frac{d^2x^{i-1}}{dx^2} \Big|_{x=x_j} d_i = \sum_{i=1}^{N+2} \frac{d}{dx} \left(\frac{dx^{i-1}}{dx} \right) \Big|_{x=x_j} d_i \quad (\text{C.6})$$

Führt man die Ableitungen auf den rechten Seiten aus, so erhält man

$$\frac{dx^{i-1}}{dx} \Big|_{x=x_j} = \begin{cases} 0, & i = 1 \\ 1, & i = 2 \\ (i-1)x_j^{i-2}, & i > 2 \end{cases} \quad (\text{C.7})$$

$$\frac{d^2x^{i-1}}{dx^2} \Big|_{x=x_j} = \begin{cases} 0, & i = 1, 2 \\ 2, & i = 3 \\ (i-1)(i-2)x_j^{i-3}, & i > 3 \end{cases} \quad (\text{C.8})$$

Eine vektorielle Darstellung der über alle Kollokationspunkte zusammengefassten Gleichungen (C.4), (C.5) und (C.6) lautet dann mit $\bar{d} = [d_1, \dots, d_{N+2}]^T$ und $\bar{y} = [y(x_1), \dots, y(x_{N+2})]^T$:

$$\bar{y} = Q\bar{d}, \quad \frac{d\bar{y}}{dx} = C\bar{d}, \quad \frac{d^2\bar{y}}{dx^2} = D\bar{d} \quad (\text{C.9})$$

Die Matrizen Q , C und D ergeben sich durch Auswertung der rechten Seiten von (C.4), (C.5) und (C.6) mit Hilfe von (C.7) und (C.8).

Darin kann nun der Vektor \bar{d} der Koeffizienten eliminiert werden:

$$\bar{d} = Q^{-1}\bar{y}, \quad \frac{d\bar{y}}{dx} = \underbrace{CQ^{-1}}_A \bar{y}, \quad \frac{d^2\bar{y}}{dx^2} = \underbrace{DQ^{-1}}_B \bar{y} \quad (\text{C.10})$$

also

$$\frac{d\bar{y}}{dx} = A\bar{y}, \quad \frac{d^2\bar{y}}{dx^2} = B\bar{y} \quad (\text{C.11})$$

Durch Einsetzen der Beziehungen (C.11) in die zu diskretisierenden partiellen Differentialgleichungen (2.8) und (2.22) sowie die zugehörigen Randbedingungen ergeben sich Differentialgleichungen und algebraische Gleichungen für die Approximations-Werte $y(x_j)$ an den Stützstellen (Kollokationspunkten). Dabei ist die Modifikation der Randbedingungen entsprechend Abschnitt 2.6 zu beachten. Die Matrizen A und B sind konstant und werden vor einer Verwendung des diskretisierten Modells aus den Kollokationspunkten berechnet. Effiziente Algorithmen zur Bestimmung der Kollokationspunkte als Nullstellen eines Legendre-Polynoms sind in [73] angegeben.

Mit Hilfe von Q kann aus der Lösung \bar{y} nach einer Simulation der Koeffizientenvektor \bar{d} für jeden Lösungszeitpunkt bestimmt werden. Damit ist die Auswertung des Ansatzpolynoms (C.3) an beliebigen Ortskoordinaten möglich.

Ein gewisser Nachteil des Verfahrens der Orthogonalen Kollokation ist, dass die Jakobimatrix des diskretisierten Gleichungssystems voll besetzt ist, da A und B in (C.11) voll besetzte Matrizen sind. Bei einer großen Anzahl Kollokationspunkte, also einem Ansatzpolynom hoher Ordnung, führt dies zu extrem langen Rechendauern für die numerische Lösung der diskretisierten Modellgleichungen. Die vier Abschnitte des TMB-Modells können jedoch wegen der relativ einfachen Form der auftretenden Ortsprofile mit einer geringen Anzahl Kollokationspunkte diskretisiert werden.

Anhang D

Bedeutung einer semi-expliziten Modellformulierung

Aus der Modellierung der SMB-Teilsäulen bzw. der TMB-Abschnitte ergeben sich verkoppelte Systeme von partiellen Differentialgleichungen und algebraischen Gleichungen, Tabellen 2.1 und 2.2. Eine Ortsdiskretisierung mit den in Anhang B und Anhang C angegebenen Verfahren führt auf linear implizite Differential-Algebra-Gleichungssysteme (DAE) für die Teilsysteme. Werden die Teilsysteme zum Modell einer SMB- bzw. einer TMB-Anlage verschaltet, ergibt sich für das Gesamtmodell ebenfalls eine linear implizite Form. Das Anlagen-Gleichungssystem besitzt in beiden Fällen die Form

$$B \dot{\xi} = f(\xi, p, t), \quad \xi(0) = \xi_0, \quad \dot{\xi}(0) = \dot{\xi}_0 \quad (\text{D.1})$$

mit singulärer Matrix B , Zuständen $\xi(t)$ und Parametern p . Die Matrix B ist für die hier verwendeten Modelle konstant. Beim SMB-Prozess gelten diese Modellgleichungen innerhalb eines Schaltintervalls, dann wird auf ein neues Gleichungssystem mit modifizierter Position der Eingriffs-Orte umgeschaltet. Im Falle des TMB-Modells bleibt das Gleichungssystem zeitlich unverändert.

Zu Beginn einer Simulationsrechnung muss ein *konsistenter* Anfangszustand ξ_0 mit passenden Zeitableitungen $\dot{\xi}_0$ vorliegen, der Gl. (D.1) erfüllt [45, 46]. Eine mögliche Vorgehensweise zur Bestimmung eines konsistenten Anfangszustands besteht darin, dass ein Teil der Komponenten der Vektoren ξ_0 und $\dot{\xi}_0$ in Gl. (D.1) festgelegt wird und dann die übrigen Komponenten beider Vektoren aus dem sich ergebenden Konsistenzgleichungssystem berechnet werden. Dazu muss das Konsistenzgleichungssystem lösbar sein, was sich für eine singuläre Matrix B mit allgemeiner Struktur nicht einfach gewährleisten lässt.

Für Modelle physikalischer Systeme ist es in der Regel wünschenswert, als Anfangswerte Zustandsgrößen vorzugeben, die Speichergrößen des Systems entsprechen. Dazu muss eine entsprechende Modellformulierung gewählt werden.

Besitzt die Matrix B Null-Spalten, dann können diejenigen Zustände, deren zeitliche Ableitungen wegen Null-Spalten in B nicht im Gleichungssystem (D.1) auftreten, als algebraische Zustände definiert werden. Damit lässt sich der Zustandsvektor $\xi(t)$ partitionieren in algebraische Zustände $z(t)$ und dynamische Zustände $x(t)$. Besitzt B außerdem Null-Zeilen, enthält also (D.1) rein algebraische Gleichungen, so lässt sich das Modell mit einer entsprechenden Aufteilung von B und f folgendermaßen schreiben:

$$B_{1,1} \dot{x} = f_1(x, z, p, t), \quad x(0) = x_0, \quad z(0) = z_0 \quad (\text{D.2a})$$

$$0 = f_2(x, z, p, t) \quad (\text{D.2b})$$

Damit nun aus der Vorgabe einer Anfangsbedingung x_0 der dynamischen Zustände („Speicher“) die Anfangsbedingungen für \dot{x} und die algebraischen Zustände z berechnet werden können, muss $B_{1,1}$ quadratisch und nichtsingulär sein.

Diese Forderung lässt sich dadurch erfüllen, dass bei der Modellierung darauf geachtet wird, dass jeder dynamische Zustand *genau einer* physikalischen Speichergröße entspricht. Dies ist bei der Modellierung der SMB-Säule in Gleichung (2.14) bzw. bei der Herleitung der entsprechenden Gleichung für den TMB-Abschnitt zunächst nicht der Fall: die beiden *dynamischen* Variablen $g_{P,i}(z, t)$ und $g_{A,i}(z, t)$ sind über die Gleichgewichtsbeziehung Gl. (2.18) algebraisch gekoppelt, und repräsentieren damit gemeinsam nur *einen* Bilanzraum. Um dies zu umgehen, wird mit Gl. (2.15) die Größe $g_{K,i}(z, t)$ definiert, die den gesamten Bilanzraum aus den beiden im Gleichgewicht stehenden Phasen Makroporen-Fluid und Adsorbens repräsentiert. Auf diese Weise ergibt sich eine semi-explizite Modellformulierung ($B_{1,1}$ in Gl. (D.2a) ist eine Einheitsmatrix), und das Konsistenzgleichungssystem wird lösbar.

Anhang E

Modellparameter für SMB- und TMB-Modell

A_S	3.71 cm ²
D_B	160.0 cm ² /min (für Kapitel 6)
L_S	93 cm
R_P	0.21 cm
q_{Z1}	103.0 ml/min (TMB-Modell)
q_{Ex}	45.4 ml/min
q_{Fe}	41.8 ml/min
q_{Ra}	52.0 ml/min
ΔT_S	0.9167 min (SMB-Modell)

α_{PX}	3.53
α_{MX}	0.57
α_{EB}	1.20
β^*	0.169 cm/min
ϵ_P	0.233
ϵ_A	0.145
ψ	0.567

Literaturverzeichnis

- [1] BALANNEC, B.: *Modélisation de la technique de séparation par adsorption en contre-courant simulé – application à la séparation du paraxylène de la coupe C8 aromatique*. Doktorarbeit, Université Pierre et Marie Curie, 1992.
- [2] BALCHEN, J. G., D. LJUNGUIST und S. STRAND: *Predictive Control Based upon State Space Models*. In: *Proceedings of the 1988 American Control Conference*, Band 3, Seiten 2174–2179, Atlanta, 1988.
- [3] BARTON, P. I. und C. C. PANTELIDES: *Modeling of combined discrete/continuous processes*. *AIChE J.*, 40:966–979, 1994.
- [4] BEN THABET, M., M. BAILLY und J. P. CORRIOU: *Nonlinear Control of a Simulated Moving Bed*. In: *AIChE Annual Meeting*, Seiten 1316–1321, Los Angeles, 1997. *AIChE*.
- [5] BIRK, J.: *Rechnergestützte Analyse und Lösung nichtlinearer Beobachtungsaufgaben*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, Düsseldorf, 1992.
- [6] BRAMMER, KARL und GERHART SIFFLING: *Kalman–Bucy–Filter, deterministische Beobachtung und stochastische Filter*. R. Oldenbourg, München, Wien, 1975.
- [7] BREDT, S.: *Datenstrukturen und Schnittstellen für die symbolische Vorverarbeitung von Differential-Algebra-Simulationsmodellen in MATHEMATICA*. Studienarbeit, ISR, Universität Stuttgart, 1996.
- [8] BRENAN, K. E., S. L. CAMPBELL und L. R. PETZOLD: *Numerical Solution of Initial Value Problems in Differential-Algebraic-Equations*. North Holland, 1989.
- [9] BROUGHTON, D. B.: *Molex: Case History of a Process*. *Chem. Eng. Prog.*, 64:60–65, 1968.
- [10] BROUGHTON, D. B., R. W. NEUZIL, J. M. PHARIS und C. W. BREARLEY: *The Parex Process For Recovering Paraxylene*. *Chem. Eng. Prog.*, 66:70–75, 1970.
- [11] CANSSELL, F., D. FABRE, J. P. PETITET und PH. MARTEAU: *La spectrométrie Raman in situ appliquée à l'analyse quantitative et aux études sous haute pressions et en température*. *Revue de l'Institut Français du Pétrole*, 48(3):239–246, Mai/Juni 1993.

- [12] CAREY, G. F. und B. A. FINLAYSON: *Orthogonal Collocation on Finite Elements*. Chemical Engineering Science, 30:587–596, 1974.
- [13] CHARTON, F. und R.-M. NICOUD: *Complete Design of a Simulated Moving Bed*. J. Chromatogr. A, 702:97–112, 1995.
- [14] CHEN, HONG: *Stability and Robustness Considerations in Nonlinear Model Predictive Control*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, Düsseldorf, 1997.
- [15] CHUNG, S. F. und C. Y. WEN: *Longitudinal Dispersion of Liquid Flowing Through Fixed and Fluidized Beds*. AIChE J., 14:857, 1968.
- [16] COFER, H. N. und M. A. STADTHERR: *Reliability of Iterative Linear Equation Solvers in Chemical Process Simulation*. Computers chem. Engng., 20(9):1123–1132, 1996.
- [17] CONN, A. R.: *Lancelot – A FORTRAN Package for Large–Scale Nonlinear Optimization (Release A)*. Springer Verlag, Berlin, 1992.
- [18] CUTLER, C. R. und B. L. RAMAKER: *Dynamic Matrix Control – A Computer Control Algorithm*. In: *AIChE 86th National Meeting*, Houston, Texas, 1979.
- [19] DANCKWERTS, P. V.: *Continuous Flow Systems: Distribution of Residence Times*. Chem. Eng. Sci., 2(1):1–18, 1953.
- [20] DELHAYE, M., M. C. DHAMELINCOURT und E. DA SILVA: *La spectrométrie Raman au service l'analyse de matériaux intéressant l'industrie*. Revue de l'Institut Français du Pétrole, 48(3):183–205, Mai/Juni 1993.
- [21] DEUFLHARD, P., U. NOWAK und M. WULKOW: *Recent Developments in Chemical Computing*. Computers & Chemical Engineering, 14(11):1249–1258, 1990.
- [22] FINLAYSON, B. A.: *The Method of Weighted Residuals and Variational Principles*. Academic Press, 1972.
- [23] FOO, S. C. und R. G. RICE: *On the Prediction of Ultimate Separation in Parametric Pumps*. AIChE J., 21:1149–1158, 1975.
- [24] FOURER, R., D. M. GAY und B. W. KERNIGHAN: *AMPL, A Modeling Language for Mathematical Programming*. boyd & fraser publishing company, 1993.
- [25] FRIEDRICH, M., M. STORZ und E.-D. GILLES: *Asymptotically Exact Linearization of Chemical Processes*. In: *IFAC-Symposium on Dynamics and Control of Chemical Reactors, Distillation Columns and Batch Processes – DYCORN '92*, Seiten 369–374, College Park, MD, 1992. IFAC.
- [26] GELB, A.: *Applied Optimal Estimation*. MIT Press, Cambridge, MA., USA, 1976.
- [27] GILL, P. E., W. MURRAY und M. H. WRIGHT: *Practical Optimization*. Academic Press, London, 1995.

- [28] GILLES, E.-D., M. STORZ und M. FRIEDRICH: *Asymptotisch exakte Linearisierung des Eingangs-/Ausgangsverhaltens nichtlinearer Systeme*. *Automatisierungstechnik*, 42:135–148, 1994.
- [29] GOTTSCHLICH, N., S. WEIDGEN und V. KASCHE: *Continuous biospecific affinity purification of enzymes by simulated moving-bed chromatography – Theoretical description and experimental results*. *J. Chromatogr. A*, 719:267–274, 1996.
- [30] GRACE, A., A. J. LAUB, J. N. LITTLE und C. M. THOMPSON: *Control System Toolbox for Use with MATLAB*. The Mathworks Inc., Natick, Ma., USA, 1998.
- [31] GROEBEL, M.: *Asymptotisch exakte Ein-/Ausgangs-Linearisierung von Destillationskolonnen*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, 1996.
- [32] HELGET, A. und E. D. GILLES: *Dynamische Prozeß- und Anlagensimulation*. In: SCHULER, HANS (Herausgeber): *Prozeßsimulation*, Seiten 109–148. VCH, 1994.
- [33] HOTIER, G. und B. BALANNEC: *Chromatographie A Contre-Courant Simulé*. *Revue de l'Institut Français du Pétrole*, 46:803–818, 1991.
- [34] HULME, R., R. E. ROSENSWEIG und D. M. RUTHVEN: *Binary and Ternary Equilibria for C₈ Aromatics on K-Y Faujasite*. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 30:752–760, 1991.
- [35] ISIDORI, A.: *Nonlinear Control Systems: An Introduction*, 1989.
- [36] KIENLE, A.: *Nichtlineare Wellenphänomene und Stabilität stationärer Zustände in Destillationskolonnen*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, Düsseldorf, 1997.
- [37] KIENLE, A.: *Reduced Models for Multicomponent Separation Processes using Nonlinear Wave Propagation Theory*. In: *CHISA '98, Paper 109*, Prag, Tschechische Republik, 23.–28. August 1998.
- [38] KIENLE, A., E. STEIN, A. REHM und E. KLOPPENBURG: *Low-Order Dynamic Models for two Coupled Distillation Columns*. In: *ECC 1999, Karlsruhe*, 1999. Zur Veröffentlichung angenommen.
- [39] KLOPPENBURG, E. und E.-D. GILLES: *Ein neues Prozessführungskonzept für die Chromatographie mit simuliertem Gegenstrom*. *Chemie-Ingenieur-Technik*, 70(12):1526–1529, Dezember 1998.
- [40] KLOPPENBURG, E. und E.-D. GILLES: *Automatic Control of the Simulated Moving Bed Process for C₈ Aromatics Separation using Asymptotically Exact Input/Output-Linearization*. *Journal of Process Control*, 9(1):41–50, Februar 1999.
- [41] KLOPPENBURG, E. und E.-D. GILLES: *A New Concept for Operating Simulated Moving-Bed Processes*. *Chem. Eng. Technol.*, 22(10):813–817, 1999. Engl. Übers. von [39].

- [42] KRAVARIS, C. und C. B. CHUNG: *Nonlinear State Feedback Synthesis by Global Input/Output Linearization*. *AIChe J.*, 33:592–603, 1987.
- [43] KREBS, V.: *Nichtlineare Filterung*. R. Oldenbourg, München, Wien, 1980.
- [44] KRÖNER, A., P. HOLL, W. MARQUARDT und E. D. GILLES: *DIVA – An Open Architecture for Dynamic Simulation*. *Comp. Chem. Eng.*, 14:1289–1295, 1990.
- [45] KRÖNER, A., W. MARQUARDT und E. D. GILLES: *Computing Consistent Initial Conditions for Differential-Algebraic Equations. European Symposium on Computer Aided Process Engineering 1, ESCAPE-1, 24-28 May 1992 Elsinore, Denmark*. *Computers chem. Engng. (Suppl.)*, 16:131–138, 1992.
- [46] KRÖNER, A., W. MARQUARDT und E.-D. GILLES: *Getting around Consistent Initialization of DAE Systems?* *Comp. Chem. Eng.*, 21(2):145–158, 1996.
- [47] KUMAR, A. und P. DAOUTIDIS: *Feedback Control of Nonlinear Differential-Algebraic Equation Systems*. *AIChe J.*, 41(3):619–636, 1995.
- [48] KUMAR, A. und P. DAOUTIDIS: *Feedback Regularization and Control of Nonlinear Differential-Algebraic-Equation Systems*. *AIChe J.*, 42(8):2175–2198, 1996.
- [49] LEONARD, B. P.: *A Stable and Accurate Convective Modelling Procedure based on Quadratic Upstream Interpolation*. *Comp. Methods in Applied Mech. and Eng.*, 19:59–98, 1979.
- [50] LI, W. C. und L. T. BIEGLER: *Process Control Systems for Constrained Nonlinear Systems*. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 27:1421–1433, 1988.
- [51] MAJER, CLEMENS: *Parameterschätzung, Versuchsplanung und Trajektoptimierung für verfahrenstechnische Prozesse*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, Düsseldorf, 1998.
- [52] MANGOLD, M., G. LAUSCHKE, J. SCHAFFNER, M. ZEITZ und E.-D. GILLES: *State and Parameter Estimation for Adsorption Columns by Nonlinear Distributed Parameter State Observers*. *J. Phys. Chem.*, 4:163–172, 1994.
- [53] MANGOLD, M., K.-D. MOHL, A. KIENLE und E.-D. GILLES: *Nonlinear Computation in DIVA – Methods and Applications*, 1998. Submitted to *Chem. Engng. Sci.*
- [54] MARQUARDT, W.: *Nichtlineare Wellenausbreitung – ein Weg zu reduzierten Modellen von Stofftrennprozessen*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, Düsseldorf, 1988.
- [55] MARTEAU, P., G. HOTIER, N. ZANIER-SZYDLOWSKI, A. AOUIFI und F. CANSSELL: *Advanced Control of C₈ Aromatics Separation with Real-Time Multipoint On-Line Raman Spectroscopy*. *Process Control and Quality*, 6:133–140, 1994.
- [56] THE MATHWORKS INC., Natick, Ma., USA: *Using Matlab*, 1998.

- [57] MATTSON, S. E. und G. SÖDERLIND: *Index Reduction in Differential Algebraic Equations using Dummy Derivatives*. SIAM J. Sci. Comput., 14(3):677–692, 1993.
- [58] MOHL, K. D., A. SPIEKER, E. STEIN und E.-D. GILLES: *DIVA - Eine Umgebung zur Simulation, Analyse und Optimierung verfahrenstechnischer Prozesse*. In: KUHN, A. und S. WENZEL (Herausgeber): *Simulationstechnik, 11. ASIM-Symposium in Dortmund*, Seiten 278–283. Vieweg Verlag, Braunschweig/Wiesbaden, 1997.
- [59] NAG LTD. (ED.): *The NAG Fortran Library, Mark 15, Vol. 1-10*. NAG Ltd., Oxford, 1991.
- [60] NICOUD, R.-M.: *Simulated Moving Bed (SMB): Some Possible Applications for Biotechnology*. In: SUBRAMANIAN, G. (Herausgeber): *Bioseparation & Bioprocessing*, Band 1, Kapitel 1, Seiten 3–39. Wiley-VCH, Weinheim, 1998.
- [61] OHASHI, H., T. SUGAWARA, K.-I. KIKUCHI und H. KONNO: *Correlation of Liquid-Side Mass Transfer Coefficient for Single Particles and Fixed Beds*. J. Chem. Eng. Japan, 14(6):433, 1981.
- [62] PALUDETTO, R., G. STORTI, G. GAMBA, S. CARRÀ und M. MORBIDELLI: *On Multi-component Adsorption Equilibria of Xylene Mixtures on Zeolites*. Ind. Eng. Chem. Res., 26:2250–2258, 1987.
- [63] PARULEKAR, S. J. und D. RAMKRISHNA: *Analysis of Axially Dispersed Systems with General Boundary Conditions, I.-III*. Chem. Eng. Sci., 39(11):1571–1611, 1984.
- [64] PATANKAR, S. V.: *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*. Hemisphere Publ. Corp., 1980.
- [65] PROPOI, A. I.: *Use of Linear Programming Methods for Synthesizing Samples-Data Automatic Systems*. Automation and Remote Control, 24:837–844, 1963.
- [66] RÄUMSCHÜSSEL, STEFAN: *Rechnerunterstützte Vorverarbeitung und Codierung verfahrenstechnischer Modelle für die Simulationsumgebung DIVA*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, Düsseldorf, 1998.
- [67] RUTHVEN, D. M.: *Principles of Adsorption and Adsorption Processes*. John Wiley, New York, 1984.
- [68] RUTHVEN, D. M. und C. B. CHING: *Counter-Current and Simulated Counter-Current Adsorption Separation Processes*. Chemical Engineering Science, 44(5):1011–1038, 1989.
- [69] SANTACESARIA, E., M. MORBIDELLI, P. DANISE, MARCO MERCENARI und S. CARRÀ: *Separation of Xylenes on Y Zeolites. 1. Determination of the Adsorption Equilibrium Parameters, Selectivities, and Mass Transfer Coefficients through Finite Bath Experiments*. Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 21(3):440–445, 1982.

- [70] SCHULTE, M., J. N. KINKEL, R.-M. NICOUD und FRÉDÉRIC CHARTON: *Simulierte Gegenstromchromatographie – eine effiziente Technik zur Herstellung optisch aktiver Verbindungen im industriellen Maßstab*. Chemie Ingenieur Technik, 68:670–683, 1996.
- [71] SPIEKER, A., E. KLOPPENBURG und E.-D. GILLES: *Computer Modeling of Chromatographic Bioseparation*. In: SUBRAMANIAN, G. (Herausgeber): *Bioseparation & Bioprocessing*, Kapitel 13, Seiten 329–362. Wiley-VCH, Weinheim, 1998.
- [72] TRUEI, Y.-H., T. GU, G.-J. TSAI und G. T. TSAO: *Large-Scale Gradient Elution Chromatography*. Adv. Biochem. Eng. / Biotechnology, 47:1–43, 1992.
- [73] VILLADSEN, J. und M. L. MICHELSEN: *Solution of Differential Equation Models by Polynomial Approximation*. Prentice-Hall, 1978.
- [74] WOLFRAM, STEPHEN: *Mathematica – A System for Doing Mathematics by Computer*. Addison Wesley, Redwood City, Ca., USA, 1991.