

Controle Linear Ótimo e a Supressão do Caos em Reações Químicas Multicomponentes Modeladas por Equações Diferenciais Ordinárias Não Lineares

Henrique A. M. Faria,¹ Jorge M. V. Capela,² Fábio R. Chavarette³
DEFM/IQ-Unesp, Araraquara, SP

Resumo. Este estudo propõe o controle do comportamento caótico em reações químicas de quatro componentes presentes em um reator contínuo com tanque agitado. A estratégia do controle linear ótimo utilizada tem como objetivo minimizar a equação funcional de Hamilton-Jacobi-Bellman e permitir a supressão do comportamento caótico do sistema. As simulações numéricas indicaram que a estabilidade do comportamento caótico das reações químicas neste sistema com quatro variáveis foi alcançada satisfatoriamente. O movimento oscilatório caótico das concentrações de massa do sistema multicomponente foi conduzido a uma flutuação periódica senoidal estável. Esta técnica de controle foi eficiente para este problema e pode ser aplicada para outras reações químicas com múltiplos componentes.

Palavras-chave. Reações Químicas, Controle Linear Ótimo, Supressão de Caos.

1 Introdução

Os sistemas dinâmicos evoluem ao longo do tempo e são descritos por um conjunto de variáveis, sendo analisados por meio de equações diferenciais ou de diferenças. A teoria dos sistemas dinâmicos estuda propriedades como estabilidade, existência de soluções únicas, comportamento caótico, órbitas periódicas e trajetórias de longo prazo [12]. Com o desenvolvimento do cálculo diferencial e integral os conceitos iniciais de taxa de variação começaram a ser utilizados para descrever esses sistemas dinâmicos. A abordagem newtoniana analítica teve êxito ao solucionar problemas envolvendo duas variáveis, chamados de problemas de dois corpos quando aplicados ao sistema solar. Cabia ampliar a estratégias para sistemas com maior número de corpos. No entanto, as gerações seguintes, incluindo Pierre Laplace (1749-1827), constataram que mesmo os problemas envolvendo três corpos eram insolúveis analiticamente, ou seja, não possuíam solução analítica exata que descrevesse o movimento a partir de uma posição e velocidade iniciais [12]. A possibilidade de modelar sistemas com três ou mais corpos surgiu quando Henri Poincaré (1854-1912) percebeu que as propriedades qualitativas das soluções poderiam ser investigadas sem que tais soluções fossem determinadas explicitamente.

Muitos sistemas dinâmicos como os modelos de previsão meteorológica apresentam sensível dependência das condições iniciais e comportamento aperiódico, sendo chamados de sistemas caóticos [12]. Na análise do comportamento de sistemas dinâmicos caóticos, o diagrama de fases, ou espaço dos estados, relaciona as variáveis envolvidas, sendo um plano para duas delas, um espaço tridimensional para três variáveis e um hiperespaço para n variáveis [12]. Em sistemas com mais

¹henrique.faria@unesp.br

²jorge.capela@unesp.br

³fabio.chavarette@unesp.br

de três variáveis, é comum a construção de diagramas bidimensionais que relacionam as variáveis duas a duas. Para sistemas dinâmicos contínuos, o comportamento caótico só pode surgir em três ou mais dimensões e requer ainda a presença de não linearidades nas equações diferenciais.

A primeira proposta de criação de uma teoria geral da estabilidade de sistemas dinâmicos com três ou mais variáveis, foi sugerida por Aleksandr Lyapunov (1857-1918). O trabalho de Lyapunov desvinculou o problema da estabilidade dos estudos dos corpos do sistema solar [6]. A partir desse ponto, começou a ser desenvolvida uma teoria mais ampla para a interpretação de sistemas dinâmicos, no entanto, os termos anteriores, como trajetórias e órbitas, continuaram sendo utilizados atualmente.

Um dos métodos utilizados para analisar o comportamento inicial de um sistema dinâmico é a determinação dos expoentes (λ) de Lyapunov. Esses expoentes fornecem uma medida da sensibilidade às condições iniciais e da taxa média de divergência das trajetórias em torno de um ponto de equilíbrio [1]. Relacionado ao expoente de Lyapunov está o conceito de atrator, que é definido como um conjunto invariante para o qual órbitas próximas convergem depois de um período relativamente longo. Os atratores estão associados ao conceito de estabilidade, pois as órbitas tendem a contrair em torno dele no espaço de fase quando o sistema é determinístico. Nos sistemas caóticos determinísticos a presença de um atrator indica que, embora as órbitas sejam aperiódicas, elas circundam em torno desse ponto. Um atrator nessas condições é chamado de atrator estranho cuja existência necessita de duas condições: pelo menos um expoente de Lyapunov maior do que zero e dimensão do espaço de fases maior que três [1]. Caso a soma de todos os expoentes seja menor que zero, o sistema, além de caótico, será dissipativo, o que é crucial para a aplicação de funções de controle que introduzam pequenas perturbações capazes de estabilizar as órbitas não periódicas. Nas reações químicas reversíveis e autocatalíticas há evidências experimentais da presença de comportamento caótico [4]. Essas reações são governadas por equações diferenciais não lineares e as evidências de características deterministas foram consolidadas a partir dos anos de 1980 [14]. Portanto, tornam-se essenciais nessas reações os métodos de controle capazes de estabilizar esses sistemas instáveis em um ponto de equilíbrio ou convergir as trajetórias para órbitas periódicas. A necessidade de trajetórias ótimas, que envolvem máxima produtividade e redução de custos operacionais, levou ao problema de controle linear ótimo em reações químicas catalíticas, objeto de estudos recentes [11]. Uma estratégia de controle amplamente utilizada para estabilização desses sistemas está relacionada à teoria de controle ótimo [2]. Esta abordagem utiliza o método hamiltoniano [10], onde restrições não lineares são incluídas nas equações para gerar uma função objetivo apropriada. Para obter o controlador ideal para a tarefa requerida, utiliza-se o princípio do máximo ou mínimo de Pontryagin [3]. Estratégias de controle ótimas são adequadas para levar um sistema dinâmico de um estado para outro, especialmente quando há restrições nas variáveis de estado e nos controles de entrada.

Este estudo tem como propósito sugerir a utilização de controle linear ótimo para estabilizar o comportamento caótico de uma reação química com quatro espécies componentes em um reator contínuo com tanque agitado (do inglês: *continuous stirred tank reactors* - CSTR). A metodologia adotada é baseada no sistema de controle ótimo desenvolvido por Rafikov e Balthazar [9]. Nesse sentido, um controlador de *feedback* linear é empregado para controlar um sistema caótico. A ideia central é minimizar a equação funcional de Hamilton-Jacobi-Bellman por meio de uma função de Lyapunov apropriada. O artigo está organizado da seguinte forma: na seção 2 o modelo dinâmico da reação com quatro componentes é apresentado. Na seção 3 o projeto de controle é aplicado e simulações numéricas são realizadas. Por fim, são indicadas as contribuições para área de modelagem e controle aplicados às reações químicas.

2 Modelo Dinâmico da Reação Química Envolvida

A análise das reações químicas em um reator é relevante para compreensão da multiplicidade em regime permanente, das instabilidades na saída e do comportamento dos parâmetros envolvidos no processo. Para escolher as regiões ótimas de operação, considerando restrições termodinâmicas e cinéticas, que maximizem a produtividade do reator, garantam a segurança do processo e melhorem o custo de operação, frequentemente é necessário empregar um sistema em malha fechada. Esse sistema visa manter as variáveis nos pontos de ajuste selecionados. A operação de um reator contínuo com tanque agitado (CSTR), ilustrado na Figura 1, envolve um fluxo de entrada multicomponente F que alimenta as reações químicas no reator e um fluxo de saída multicomponente composto por um conjunto de variáveis de estado (X_i). Essas variáveis podem ser medidas para gerar as ações do controlador u que atua na válvula C .

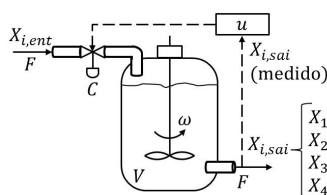
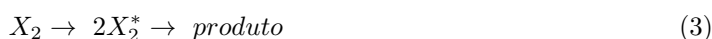


Figura 1: Modelo de um reator contínuo com tanque agitado com controle por realimentação. Fonte: elaborada pelos autores.

O controlador u na Figura 1 compara as concentrações dos multicomponentes na saída com um valor pré-estabelecido e aciona a válvula de controle C para realizar ajuste no fluxo multicomponente de entrada. Esse sistema funciona em regime de malha fechada, também conhecida como realimentação *feedback*. A principal tarefa da válvula de controle C é compensar, por meio da manipulação do fluxo de entrada, o tempo de residência dos reagentes no reator químico, a fim de obter a melhor taxa de reação para o processo.

Para avaliar as operações de controle propostas, o modelo matemático proposto por Kilory et al. [5] foi utilizado como sistema de reação química com quatro componentes. Esse modelo apresenta um sistema dinâmico de quatro estados (X_1 , X_2 , X_3 e X_4) baseado no princípio de conservação de massa. As seguintes suposições são consideradas ao desenvolver o modelo cinético: a reação química ocorre de forma homogênea em um reator com tanque agitado em operação isotérmica; as reações de X_4 a X_1 , X_4 a X_2 e X_1 a X_2 seguem uma cinética de primeira ordem; o reagente X_1 atua como catalisador na produção do composto X_3 ; as duas reações de X_1 são catalisadas por X_2 e X_3 ; a reação de X_4 é catalisada por X_3 . Além disso, todas as reações entre as espécies químicas seguem o modelo cinético de Michaelis-Menten [5]. As equações (1) a (5) representam as vias cinéticas do processo:



onde X_i^* para $i = 1, 2, 3, 4$ representa os complexos químicos ativados correspondentes, os quais são considerados em estado pseudoestacionário. Esse modelo cinético é estendido para operação

contínua do reator, que pode apresentar oscilações complexas. O modelo matemático é representado por um sistema de equações diferenciais ordinárias não lineares, que são as equações (6) a (9). Essas equações descrevem os balanços de massa para cada um dos compostos químicos (X_1 , X_2 , X_3 e X_4) em termos das concentrações de massa (x_1 , x_2 , x_3 e x_4) correspondentes.

$$\dot{x}_1 = d_0 + k_8x_4 - k_1\frac{x_1x_2}{x_1+k} - k_2\frac{x_1x_3}{x_1+k} \tag{6}$$

$$\dot{x}_2 = k_3x_1 + k_4x_2 + k_9x_4 - k_5\frac{x_2}{x_2+k} \tag{7}$$

$$\dot{x}_3 = d_1 + k_6x_1x_3 - k_7x_3 \tag{8}$$

$$\dot{x}_4 = (k_{10} - k_8 - k_9)x_4 - k_{11}\frac{x_3x_4}{x_4+k} \tag{9}$$

sendo, $x = [x_1, x_2, x_3, x_4]$ o vetor das concentrações de massa e $\dot{x} = [\dot{x}_1, \dot{x}_2, \dot{x}_3, \dot{x}_4]$ o vetor das taxas de variação temporais dessas concentrações. Os parâmetros cinéticos apresentam os seguintes valores: $k_1=1,0$; $k_2=1,0$; $k_3=1,0$; $k_4=0,25$; $k_5=152,5$; $k_6=1,0$; $k_7=130$; $k_8=0,001$; $k_9=1,0$; $k_{10}=1,051$; $k_{11}=0,5$; $k=0,001$. As condições iniciais correspondentes são: $x_{10}=129,1$; $x_{20}=76,06$; $x_{30}=0,5895$; e $x_{40}=21,38$, conforme sugerido por Killory e colaboradores [5]. Os parâmetros $d_0 = 90$ e $d_1 = 2,2$ são distúrbios constantes, incluídos para simular a operação realista do processo. A evolução temporal da concentração das espécies químicas e os planos de fase para os parâmetros considerados são mostrados na Figura 2 [7].

A matriz jacobiana do sistema de equações (6) a (9), considerando os valores das constantes cinéticas, apresentou um único autovalor positivo (5,07) e três autovalores negativos (-13,30, -10,58, -0,10). Esse resultado evidencia a existência de três pontos de estabilidade no sistema. O cálculo dos expoentes de Lyapunov resultou em três valores positivos ($\lambda_1=0,093182$; $\lambda_2=0,091607$; $\lambda_3=0,031976$) e um valor negativo ($\lambda_4=-0,876800$). O espectro dos expoentes [+ , + , + , -] indica o comportamento caótico no sistema. Os expoentes positivos evidenciam a existência de um atrator estranho, o que está em concordância com o diagrama de fase X_2 versus X_1 apresentado na Figura 2e. O somatório desses expoentes de Lyapunov ($\sum_{n=1}^4 \lambda_i = -0,66 < 0$) caracteriza um sistema dissipativo e garante a contração no espaço de fase [8]. Assim, o controle linear ótimo é proposto com o objetivo de estabilizar o comportamento caótico observado no sistema de quatro variáveis.

3 Controle Linear Ótimo

3.1 Estratégia do Controle Linear Ótimo

O controle linear ótimo para sistemas não lineares, desenvolvido por Rafikov e Balthazar [9], é sintetizado como segue. Seja a equação diferencial de primeira ordem e a condição inicial expressa como:

$$\frac{\partial y}{\partial t} = f(y, t), \quad y(0) = y_0 \tag{10}$$

A equação (10) pode ser descrita na forma de variáveis de estado, a qual não é única:

$$\frac{\partial y}{\partial t} = A(t)y + g(y)y + U \tag{11}$$

U é o vetor de controle que consiste de duas partes: \tilde{u} -*feedforward* e u_f -*feedback*, tal que $u_f = Bu$, onde B representa uma matriz constante. Toma-se o desvio da trajetória da equação para a trajetória desejada, $x = y - \tilde{y}$, escrita como:

$$\frac{\partial x}{\partial t} = Ax + G(y, \tilde{y})x + Bu \tag{12}$$

onde G é uma matriz limitada e \tilde{y} caracteriza a trajetória desejada. Considerando-se o teorema devido a Rafikov e Balthazar [9], o qual afirma que se existem matrizes Q (simétricas) e R , positivo-definidas, tal que \tilde{Q} também é positivo-definida, como expressa a equação (13):

$$\tilde{Q} = Q - G^T(y, \tilde{y})P - PG(y, \tilde{y}) \tag{13}$$

Então, o controle u em (14)

$$u = -R^{-1}B^T Px \tag{14}$$

é ótimo, no sentido de transferir o sistema não linear dado, de qualquer estado inicial para o estado final $x(t_f) = 0$, quando o funcional \tilde{J} é minimizado:

$$\tilde{J} = \int_0^{t_f} (x^T \tilde{Q} x + u^T R u) dt \tag{15}$$

A matriz P é simétrica e satisfaz a condição $P(t_f) = 0$, e é obtida pelo cálculo da equação não linear algébrica de Riccati, dada por:

$$\dot{P} + PA + A^T P - PBR^{-1}B^T P + Q = 0 \tag{16}$$

Além disso, existe uma vizinhança da origem tal que a solução do sistema controlado é localmente assintoticamente estável.

$$J_{min} = X_o^T P(0)x_o \tag{17}$$

Bem como o sistema controlável é globalmente assintoticamente estável.

3.2 Aplicação do Método de Controle e Simulação Numérica

De maneira semelhante ao que ocorre em sistemas mecânicos [13], a aplicação do controle linear ótimo no sistema de quatro variáveis permite estabilizar o comportamento caótico em órbitas periódicas. Reescrevendo o sistema de equações (6) a (9), e adicionando a função de controle U definida como $\dot{x} = Ax + g(x)$, obtêm-se as equações (18) a (21):

$$\dot{x}_1 = d_0 + k_8 x_4 - k_1 \frac{x_1 x_2}{x_1 + k} - k_2 \frac{x_1 x_3}{x_1 + k} + U \tag{18}$$

$$\dot{x}_2 = k_3 x_1 + k_4 x_2 + k_9 x_4 - k_5 \frac{x_2}{x_2 + k} \tag{19}$$

$$\dot{x}_3 = d_1 + k_6 x_1 x_3 - k_7 x_3 \tag{20}$$

$$\dot{x}_4 = (k_{10} - k_8 - k_9)x_4 - k_{11} \frac{x_3 x_4}{x_4 + k} \tag{21}$$

As matrizes relacionadas com o sistema controlado são: $B = \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \\ 1 \end{bmatrix}$ $y = \begin{bmatrix} x_1 - \tilde{x}_1 \\ x_2 - \tilde{x}_2 \\ x_3 - \tilde{x}_3 \\ x_4 - \tilde{x}_4 \end{bmatrix}$

$$\tilde{x} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad Q = I_4 \quad A = \begin{bmatrix} -0,0150 & -0,9999 & -0,9999 & 0,0010 \\ 1,0000 & 0,2349 & 1,0000 & 0 \\ 0,5895 & 0 & -0,9149 & 0 \\ 0 & 0 & -0,4999 & 0,0349 \end{bmatrix}$$

O controle da matriz R para o par $[A, B]$ é obtido por $R = [B|AB|A^2B|A^3B]$. Assim, $R = (1)$ e, em seguida, a matriz $P(t)$ é dada por: $P = \begin{bmatrix} 1, 1146 & -0, 4964 & 0, 3464 & -1, 6519 \\ -0, 4964 & 2, 2418 & 0, 01032 & 3, 0735 \\ 0, 3464 & 0, 1032 & 2, 1749 & -3, 6690 \\ -1, 6519 & 3, 0735 & -3, 6690 & 14, 6312 \end{bmatrix}$

Por fim, o controle ótimo é definido por:

$$u = 6181x_1 + 1, 7454x_2 + 0, 4497x_3 + 1, 4215x_4 \quad (22)$$

Os resultados do método de controle linear ótimo proposto são mostrados na simulação numérica da Figura 3. Após a aplicação do controle em 100 segundos, ocorre a estabilização das concentrações dos quatro componentes, em flutuações periódicas em torno dos valores das concentrações desejadas, como ilustra as Figuras 5a, 5b, 5c e 5d. Tanto o diagrama de fase x_2 versus x_1 da Figura 5e, quanto o diagrama de fase x_4 versus x_3 da Figura 5f, mostram a convergência da trajetória para um ponto fixo.

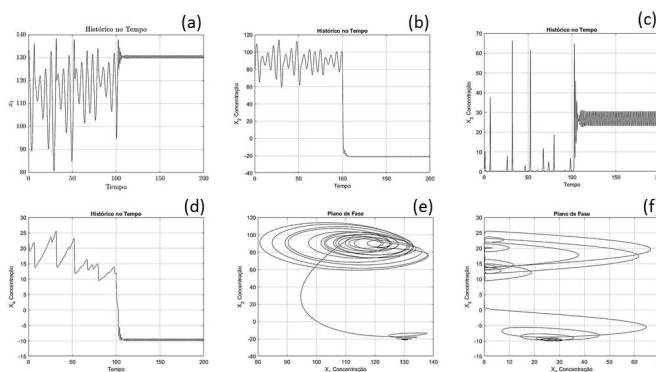


Figura 2: Dinâmica temporal do sistema com controle linear ótimo: (a) Concentração de x_1 ; (b) Concentração de x_2 ; (c) Concentração de x_3 ; (d) Concentração de x_4 ; Planos de Fase: (e) x_2 versus x_1 e (f) x_3 versus x_4 . Fonte: elaborada pelos autores.

4 Considerações Finais

Neste estudo, propomos um método para controlar o comportamento caótico de reações químicas associadas às concentrações de quatro componentes em um reator contínuo com tanque agitado. Para solucionar as flutuações caóticas presentes, aplicamos a técnica de controle linear ótimo a um sistema de equações diferenciais que governam as taxas de variação das concentrações de massa das espécies químicas. Após a ação do sistema de controle, o comportamento caótico das flutuações de concentração convergiu para oscilações periódicas em torno da concentração desejada. Os resultados evidenciam a eficácia do controlador linear ótimo proposto na resolução do problema de instabilidade. Esta estratégia pode ser aplicada a sistemas de reações químicas multicomponentes, facilitando o projeto de processos industriais que utilizem reatores de fluxo contínuo.

Agradecimentos

Os autores agradecem a Fundação de Amparo a Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP Proc. No. 2022/10599-6) e ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico

(CNPq Proc. No. 301401/2022-5).

Referências

- [1] A. Bacciotti e L. Rosier. **Liapunov functions and stability in control theory**. 2a. ed. Berlin: Springer-Verlag, 2005. ISBN: 9783540273974.
- [2] N. Ghadipasha, W. Zhu, J. A. Romagnoli, T. McAfee, T. Zekoski e W. F. Reed. “On-line optimal feedback control of polymerization reactors: Application to polymerization of acrylamide–water–potassium persulfate (kps) system”. Em: **Mathematics** 56.25 (2017), pp. 7322–7335. DOI: 10.1021/acs.iecr.7b01074.
- [3] R. Kamalapurkar, P. Walters, J. Rosenfeld e W. Dixon. **Reinforcement learning for optimal feedback control**. Cham: Springer, 2018. ISBN: 978-3-319-78384-0.
- [4] M. Katsanikas, M. Agaoglou e F. G. Montoya. “Introduction to special issue: Chaos Indicators, Phase Space and Chemical Reaction Dynamics”. Em: **Physica D: Nonlinear Phenomena** 439.3 (2022), p. 133385. DOI: 10.1016/j.physd.2022.133385.
- [5] H. Killory, O. E. Röessler e J. L. Hudson. “Higher chaos in a four-variable chemical reaction model”. Em: **Physics Letters A** 122.6-7 (1987), pp. 341–345. DOI: doi.org/10.1016/0375-9601(87)90839-5.
- [6] A. M. Lyapunov. “The general problem of the stability of motion”. Em: **International journal of control** 55.3 (1992), pp. 531–534. DOI: 10.1080/00207179208934253.
- [7] M. Matlab. “The language of technical computing”. Em: **The MathWorks, Natick, MA** (2012).
- [8] S. K. Y. Nikraves. **nonlinear systems stability analysis: Lyapunov-based approach**. London: CRC Press, 2018. ISBN: 9781315215990.
- [9] M. Rafikov e J. M. Balthazar. “On control and synchronization in chaotic and hyperchaotic systems via linear feedback control”. Em: **Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation** 13.7 (2008), pp. 1246–1255. DOI: doi:10.1016/j.cnsns.2006.12.011.
- [10] H. Saberi Nik e S. Shateyi. “Application of optimal HAM for finding feedback control of optimal control problems”. Em: **Mathematical Problems in Engineering** 2013.ID 914741 (2013), pp. 1–10. DOI: doi.org/10.1155/2013/914741.
- [11] M. Sakharov, K. Koledina, I. Gubaydullin e A. Karpenko. “Studying the Efficiency of Parallelization in Optimal Control of Multistage Chemical Reactions”. Em: **Mathematics** 10.19 (2022), p. 3589. DOI: 10.3390/math10193589.
- [12] S. H. Strogatz. **Nonlinear dynamics and chaos with student solutions manual: With applications to physics, biology, chemistry, and engineering**. 2a. ed. London: CRC press, 2018. ISBN: 9780429399640.
- [13] J. P. G. Vicente, F. R. Chavarette e L. G. P. Roefero. “Chaos control via Mathieu-Van der Pol system and Linear Optimal Control design with a non-ideal excitation and parametric uncertainties”. Em: **Revista internacional de métodos numéricos para cálculo y diseño en ingeniería** 35.3 (2019), pp. 1–5. DOI: 10.23967/j.rimmi.2019.08.001.
- [14] C. Vidal e A. Pacault. **Nonlinear Phenomena in Chemical Dynamics: Proceedings of an International Conference, Bordeaux, France, September 7–11, 1981**. Berlin: Springer-Verlag, 2012. ISBN: 9783642817809.