



**37. Országos Tudományos Diákköri
Konferencia
2025**



**Hőáram becslése és hőátszármaztatási tényezők modell-alapú
identifikálása szakaszos üvegreaktoron végzett mérésekkel**

Készítette: Fricz Balázs

Témavezető: Dr. Nagy Lajos

Mérnöki Kar, Folyamatmérnöki Intézeti Tanszék

A pályamunka lezárásának dátuma: 2024.10.22.

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés.....	1
2. Elméleti háttér.....	2
3. Gyakorlati tevékenység alap elemei.....	8
3.1. Vizsgált rendszer	8
3.2. Hőmérleg általános alakja	10
3.3. Mérés menete	12
4. Modell módosítása	13
4.1. Veszteségmentes modell	13
4.2. Veszteségi taggal kiegészítve.....	15
4.3. Hőátszármaztatás polinomként kifejezése	17
4.4. Köpenytéri holtidő számítása	19
4.5. Hőbevitel szűrése	20
4.6. Köpenytéri hőmérséklet szűrése	21
4.7. Reaktortéri hőátszármaztatás átlag hajtóerővel	23
4.8. Veszteség hőátszármaztatása átlag hajtóerővel.....	24
4.9. T4 időbeli változásának figyelembe vétele	25
4.10. Modelllezés eredményeinek értékelése	26
4.11. Hőáram becslő modul irányítórendszerhez illesztése	27
4.12. Kristályosítási vizsgálatok elvégzése.....	27
5. Konklúzió	30
6. Irodalomjegyzék	31

1. Bevezetés

Modellnek nevezzük a valóság környezetétől elkülönített, egyszerűsített leírását. A modellek feladata sokrétű lehet: a szolgálhatják egy létező rendszer különböző fizikai-kémiai jellemzőinek becslését, optimális üzemelési paraméterek meghatározását, vagy akár egy még nem létező rendszer elvi működésének megértését is.

Egy rendszer matematikai modellezésére több lehetőségünk is van: lehetnek feketedoboz modellek, itt nem ismert a fizikai-kémiai struktúrája a rendszernek, csak meglévő üzemelési adatokból hozunk létre olyan egyenleteket, amelyek a legjobban illeszkednek az adatokra. Ezek a modellek könnyen elkészíthetőek, viszont az a hátrányuk, hogy csak a mérési tartományon belül alkalmazhatóak, extrapolációra nem alkalmasak, éppen ezért az irányítástechnikában főleg ezek terjedtek el. A fehérdoboz modellek visszatükrözik a fizikai-kémiai struktúráját a valós rendszernek, ezért alkalmasak analízisre és optimalizálásra. Azonban részben öröklök a valós rendszer komplexitását is, megoldásuk komoly számítási kapacitást igényelhet.

Munkám célja egy olyan rendszer létrehozása volt, amellyel lehetséges egy szakaszos reaktor hőtani modelljének meghatározása, a meghatározott modell pedig felhasználható legyen a reaktorban lejátszódó folyamatok hőáramainak becslésére. A kutatás lényegét a modell-központúsága adja, a létrejövő modell általános, eltérő méretű reaktorokon is értelmezhető elemeket tartalmaz csak. Emellett az is kiemelendő, hogy a végleges modell pontosságát úgy sikerült elérni, hogy kaloriméterekhez képest egyszerűbb, olcsóbban beszerezhető alkatrészekből áll a rendszer, így szűk eszközkészlet esetén is alkalmazható a módszer.

Ehhez először a reaktor belső terének hőmérsékletét állítottam fel és bővítettem ki a szakirodalom áttekintésével megismert megfontolásokat figyelembe véve. Ennek részeként először megvizsgáltam, hogy milyen mértékben javítja a modellezési pontosságot a környezeti veszteség figyelembevétele. Következő átalakításként a hőátszármaztatási tényező hőmérsékletfüggését vittem be a modellbe. Ezután a reaktor egyes részeinek termikus tehetetlenségének hatását elemeztem, a tehetetlenséget holtidőkként és elsőrendű átviteli függvényként kialakított szűrőkként formalizáltam. Végül több módosítást végeztem a hőmérsékletfüggő hőátszármaztatási tényezők hőmérsékletfüggő tagján, a reaktortéri hőmérsékletet a reaktor- és köpenytér közötti átlagos hajtóerőre cserélve. A végső modellt a reaktort szabályozó számítógéphez kapcsoltam, ezzel kialakítva egy on-line hőáram mérő rendszert. A modellt ezután felhasználtam kristályosítási vizsgálatokban a kristályosodás hőáramainak követése érdekében.

2. Elméleti háttér

A vegyipar számára fontos, hogy a reaktorok működését megfelelően követni és modellezni tudják, ide tartozik a hőtani jelenségek ismerete is. A téma sokféle formában került vizsgálatra a szakirodalomban, köztük az, hogy milyen módokon lehet kifejezni egy művelethez tartozó hőátvitel hőátszármaztatási tényezőjét (dimenziómentes számokkal, matematikai átalakításokkal és egyszerűsítésekkel), hogyan lehet azt a gyakorlatban számolni (modellek, számítástechnikai megoldások és mesterséges intelligencia segítségével) valamint megtalálhatóak olyan cikkek is amelyek a korábban elfogadott konvenciókat vizsgálják felül, hogy a valóságban mennyire állják meg a helyüket. Ezenfelül az elméleti vizsgálatok mellett gyakorlati kísérleteken, valós ipari rendszereken is alkalmazták már az imént felsorolt eredményeket a vegyipar mindenféle ágazatában.

A gyakorlatban egy reaktorban a hőmérséklet szabályozás kétféle módon mehet végbe: az egyik a reaktor belső terének szabályozása, ezt izotermikus módnak is nevezik, valamint a köpenytér hőmérsékletének szabályozásával, amit izoperibolikus módnak hívnak. A két mód megfeleltethető a kaszkád szabályozásban alkalmazott master és slave körnek [1].

Jelen munkához szükséges volt először is áttekinteni, hogy kisméretű rendszereken hogyan történik meg a hőáramok meghatározása, vannak-e olyan elvek, amelyek ipari méretű rendszerekre átvihetők. A rendszerek, amelyeken ez megtörténik gyakran kalorimetriás feladatokat lát el, viszont általános rendszertani vizsgálatok esetén is alkalmazzák az alábbiakban bemutatott megoldásokat.

A „heat flow” számítás során a köpeny és a reaktortér közötti hőforgalom számításával történik a hőáram becslése. Azonban a mérés érzékeny a rendszer keverésének minőségére (a keverés növelheti a felületet), a reaktor töltöttségére (befolyásolja a hőátadó felületet, reagens adagolás is hat rá) és a folyadék viszkozitására is, ezenkívül még a mérés pontosságát az is rontja, ha a reaktor falán lerakódás van, ami nagymértékben befolyásolni tudja a hőátszármaztatási tényezőt. Az (1) egyenlet mutatja be a „heat flow” módszert, Q a hőáramot, T_r és $T_{k,ki}$ a reaktor és a köpenyből kilépő hőmérsékleteket, A a hőátadó felszín, U a hőátszármaztatási tényezőt jelöli. [1, 2]

$$Q = (T_r - T_{k,ki}) * A * U \quad (1)$$

További gondot jelenthet az is, ha a folyamat lejátszódása során nagymértékben változik a folyadékelegy viszkozitása, ami hatással van a hőátszármaztatási tényező értékére, azon

keresztül pedig a hőáram becslés pontosságára. Éppen emiatt bevett gyakorlat a reakció kalorimetriás vizsgálatok esetén, hogy a reakció lejátszatása előtt és után is történik egy kalibráció, ez általában egy beépített fűtőszál felhasználásával zajlik, ami képes rögzített mennyiségű hőt közölni a rendszerrel. A mérés előtt és után kapott hőátszármaztatási tényező megadja a két határpontot, a reakció lejátszódása közben pedig e kettő között változik a tényező, melyet a folyamattól függő módon lehet interpolálni (például: lineárisan, keveréshez szükséges teljesítmény alapján, konverziótól függően stb.) [3].

A „heat balance” számítás módszere a hőáramot a köpeny be- és kilépő hőmérsékletének különbségével adja meg. Az előző számítási módhoz képest a hőmérleg esetében kizárólag a reaktor köpenyoldala kerül vizsgálatra, ami azt jelenti, hogy az előző esettel ellentétben itt nem befolyásolja a mérési pontosságot a viszkozitás, a keverő fordulatszáma és a reaktor töltöttsége sem. A (2) egyenlet mutatja be a hőáram számítás módját ebben az esetben és látható, hogy a hőmérséklet (T), a sűrűség (ρ), a hőkapacitás (c_p) és a térfogatáram (F) is csak a köpenytérre vonatkozik. Azonban a gyakorlatban a köpenytér végpontjai között mérhető hőmérséklet különbség sokkal kisebb, mint a reaktor és a köpenytér között, emiatt ha zajjal terhelt a mérőműszer jele, akkor az, nagymértékben befolyásolni tudja a számítás pontosságát. Emellett további pontosságot csökkentő hatás lehet még a környezet hőmérsékletének ingadozása, ami miatt szükséges lehet a rendszer szigetelése vagy termosztáló szekrénybe szerelése. [1, 2]

$$Q = (T_{k,ki} - T_{k,be}) * \rho_k * c_{p,k} * F_k \quad (2)$$

A teljesítmény kompenzációs módon üzemelő kaloriméterek esetén a reaktortérben megtalálható egy fűtőelem, amely pontosan szabályozható hőáramot visz a rendszerbe. Eközben a kaloriméter a köpeny hőmérsékletét szabályozással állandó értéken tartja. Ennek eredményeképpen a reaktor hőmérsékletszabályozása a fűtőelem teljesítményének változtatásán keresztül történik meg, a csökkentésével lehet „hűteni” a reaktort. Nagyon előnyös tulajdonsága ennek a kialakításnak az, hogy a reakciók hőhatásainak megfigyeléséhez semmilyen számítást nem szükséges végezni, az direkt módon leolvasható a fűtőszál teljesítményének változásából [2].

A Peltier kaloriméterek esetén a reaktor fűtését és hűtését is Peltier elemek végzik el. Ebben az esetben a reakcióhő számítása az elemek elektromos fogyasztásának és az elemek hőmérsékletprofiljának felhasználásával történik meg. A köpenyoldal hőmérsékletét a teljesítménykompenzációs esethez hasonlóan egy termosztát tartja állandó értéken [2].

Lehetséges, hogy egy adott laboratóriumban/üzemben nem áll rendelkezésre az adott feladathoz megfelelő pontosságú kaloriméter, a beszerzés pedig nagymértékű kiadást/ hosszú beszerzést eredményezne. A kaloriméterek (és bármilyen hőtani vizsgálatot végző rendszerek) pontosságának növelését meg lehet oldani egyfelől azzal, hogy magát a berendezést átalakítjuk, új műszerekkel vagy akár saját megoldásokkal (viszont ennek megfelelően validálni kell az új rendszert). Erre példa az Akzo Nobel cég által dokumentált eset, melyben a Mettler Toledo cég által szolgáltatott, hőátszármaztatási tényező meghatározására alkalmas kísérleti kalibrációs fűtőeszközöket teszteltek. A vizsgálatokat kisméretű (50 ml) rendszereken végezték és a hőáram becslési pontosság a Mettler Toledo RC1 pontosságát megközelítette [4]. Paufler és társai egy RC1e kaloriméterbe helyezett HD polietilén fallal javították a becsült hőáram jelének erősségét a hőátszármaztatási tényező csökkentésén keresztül, majd anaerob sejttenyésztési folyamattal tesztelték a rendszert. Ezzel a változtatással sikeresen elérték, hogy a mérési érzékenység egy nagyságrenddel jobb legyen, alkalmassá téve azt a biológiai folyamat nyomon követésére [5].

A pontosság javításának másik lehetőségét a rendszer kalibrálásának változtatása jelenti. A leggyakrabban alkalmazott módszer az, hogy egy fűtőszál segítségével ismert nagyságú hőáramot visznek a rendszerbe, majd abból történik meg az adott paraméter (pl. hőátszármaztatási tényező, hőkapacitás stb.) meghatározása. Ez alapvetően egy elfogadható precizitású megoldás, a piacon elérhető kaloriméterek általában ezt alkalmazzák, ezen belül is például a Mettler Toledo kaloriméterek esetén van „normál” és „gyors” kalibrálás is (a gyors esetén nem feltétlenül van stacioner állapotig fűtés). Viszont új módszerek alkalmazásával ebben az irányban is lehet javítani az identifikálás pontosságán [6].

Luca és társai a kalibrálási módszer változtatásával igyekeztek pontosabban becsülni a hőátszármaztatási tényezőt, ami szükséges a hőáram számításához. A reaktor hőmérsékletének szinuszos hullám jellegű oszcilláltatásával kalorimetriás mérés közben is képesek voltak nagy pontossággal meghatározni a hőátszármaztatási tényezőt [3]. Xu és társa is egy oszcillációs módszert alkalmaztak a hőátszármaztatási tényező meghatározására egy teljesítménykompenzációs kaloriméterben. Az ő esetükben viszont egy két lépéses kalibrációt végeztek, egyszer a köpenytér majd a kalibráló fűtés változtatásával, valamint a hőáram számítására szolgáló modell tartalmazta a belső tér környezet felé történő veszteségét is. Az eredményeik alapján ez az új kalibrációs módszer gyorsabb, mint a „normál” és pontosabb, mint a „gyors” kalibráció, és egy vizsgált szimulált reakció esetén jó pontossággal adja vissza a bevitt hőáramot [6].

A hőtani vizsgálatok eredményeinek értékelése során lehetőség van a modern számítástechnika és matematika alkalmazásával javítani az identifikálás és szimulációk pontosságát. Fard és társai egy laboratóriumi reaktor modelljének megalkotásával, majd a modell paramétereinek Kálmán-szűrőkkel történő becslésével végezték el a reaktorban lezajló reakció hőjének becslését. A munkájukkal létrejövő rendszer jól képes megközelíteni a valós reaktorban fellépő hőáramokat, követve a hőáram mintázatát és nagyságát is [7]. Khodadadi és társa egy kettős Kálmán szűrő („dual extended Kalman filter”) alkalmazásával végeztek paraméter becslést egy reaktor modellen, a vizsgálat során változtatott paraméterek között a hőátszármaztatási tényezőt is becsülték. Az általuk kialakított rendszer a vizsgált, zajjal terhelt folyamatszimuláció eredményeit jól közelítette meg [8]. Gandhi és társai „support vector machine” mélytanulási módszerrel végeztek hőátszármaztatási tényező meghatározási vizsgálatokat buborékoltató reaktor oszlopokra. A szakirodalomban található adatok felhasználásával tanították a modellt a mintázatok felismerésére, az eredményeik azt mutatják, hogy a létrehozott rendszer jól közelíti az irodalmi adatokat [9].

Niedzwiedz és társai kialakítottak egy hibrid reaktort (nem játszódik le kémiai reakció a reaktorban csupán az annak megfelelő hőmennyiséget viszi be egy fűtőelem a mintaanyag vízbe), melyben elvégezték a hőátszármaztatási tényező meghatározását. Az identifikáláshoz felhasználták a „heat flow” és „heat balance” módszereket és összehasonlították, hogy a két módszerrel kapott érték mennyire egyezik meg. A vizsgálatot többféle modell kialakításra is elvégezték, végül egy megoldásra bemutatták a szimulációval kapott hőmérséklet értékeket, összehasonlítva a mérési eredményekkel. Az eredményeik azt mutatták, hogy a két identifikálási mód jó közelítéssel azonos eredményeket szolgáltat azonos körülményekre, viszont a szimulációs eredményeik magas hőmérsékleten ($>50\text{ }^{\circ}\text{C}$) jelentősen eltérnek a valós eredményektől [10].

A laboratóriumi kaloriméterek méreteinél nagyobb esetekben is felmerülhet igény a reakciók pontos követésére a reakcióhőn keresztül, erre például szolgálnak a különböző modell alapú predikciós szabályozók (MPC). Ezekben a modell által becsült hőmennyiség és a reaktor köpenyterének dinamikájának ismeretén keresztül lehetőség adódik előre beavatkozni a rendszerbe a reaktor hőmérséklet elfutása előtt úgy, hogy a lehető legközelebb maradjon az ideálshoz az átalakulás menete. A vegyiparban gyakran ilyen szabályozást alkalmaznak a gyógyszeripari vagy polimergyártásra szolgáló reaktorokban. Knut és társai a munkájuk során egy benchmark polimerizációs reaktor modelljének elkészítésével és a modellen alapuló szabályozás megalkotásával foglalkoztak. A munkájuk során a reaktort a rendszert leíró tömeg-

és hőmérleg egyenletekkel modellezték, viszont a szabályozáshoz szükséges időben erősen változó reakcióhőt és a hőátszármaztatási tényezőt folyamatosan újra meg kell becsülni. Ehhez az általános jellegű alkalmazhatóság miatt nem célszerű anyagi minőségtől függő tulajdonságokat felhasználni, hanem empirikus de fizikai tartalommal rendelkező változók létrehozása volt szükséges. A munkájuk által létrejött rendszer alkalmas volt a reaktor hőmérsékletének szabályozására és a hőáram becslésére is [11].

Az (1) egyenlet a vizsgált rendszertől függően egy nagyon durva közelítése a valóságnak, amely nagymértékű pontatlanságot eredményezhet a mérési eredmények értékelésekor. Ezért szükséges lehet a hőtani vizsgálatok során gyakran alkalmazott feltételezések felülvizsgálatára. Johnson és társai a kutatásuk során összegyűjtöttek több feltételezést, amellyel a rendszerek hőtani modellezésekor élnek a tervező és kutató mérnökök. A munkájuk során azt vizsgálták, hogy a feltételezések közül az egyes elemek hogyan alkalmazhatóak a hőmérleg egyenletek átalakítása során és melyek azok, amelyek alkalmazása nem javítja a modell pontosságát. A méréseiket egy 0,5 és egy 5 literes reaktoron végezték el, melyhez megalkották a rendszer diabtikus (nem adiabatikus) hőtani modelljét, melyben a reaktor tetején keresztül a környezettel átadásba kerül a reaktortér. Az eredményeik alapján először bemutatták, hogy a reaktor méreteitől függően milyen hatása van a rendszer egyes részeinek (reaktor fala, csatlakozások/illesztések) a rendszer látszólagos hőkapacitására, valamint hogy az adiabatikus modell akár több K hibával terhelt is lehet magas hőmérsékleten a környezeti veszteség megjelenése miatt [12].

Johnson és társai egy további kutatás során a diabtikus modell kiegészítését végezték el azáltal, hogy több különböző méretű reaktoron bemutatták a látszólagos hőkapacitás hatását, valamint a köpenytér és a környezet közötti hőveszteségi tagot is alkalmazták a korábban említett belső téri veszteség mellett. A tevékenységük során a köpenytéri veszteségen keresztül elemezték a rendszer teljes energiaigényét is, ami egy további lényeges eleme a hatékony és gazdaságos termelésnek. Az eredményeik azt mutatták, hogy a köpenytéri veszteséggént feltételezett jelenség pontosabban értelmezhető úgy, hogy a vizsgált folyadék tömegének és hőkapacitásának szorzatából képzett úgynevezett hőtani tehetetlenség alul van becsülve, ennek egy konstanssal szorzása adja meg a teljes rendszer hőtani tehetetlenségét, ami pedig már a reaktorban lévő folyadék és az összes berendezés elem tömegeinek és a hőkapacitásuk szorzatainak összege. Az eredmények alapján a szerzők azt a feltételezést tették, hogy a kalorimetriás szakirodalmak által alkalmazott adiabatikus rendszer megközelítés nagymértékű pontatlanságot okozhat, ha hőátszármaztatási tényezők meghatározása a feladat [13].

A hőtani vizsgálatok eredményeit vagy modelleket a meghatározás után hasznosítani lehet gyakorlati esetekre is. Müller és társai a Johnson és társai által bemutatott módszerekkel elvégezték egy bioreaktor hőátszármaztatási tényezőjének meghatározását (csapvíz mintaanyag felhasználásával) és ezen keresztül a hőmérsékletek becslését. Az eredmények alapján további statisztikai és modellezési vizsgálatokat végeztek melyek alapján megállapították, hogy a vizsgált berendezés komplex geometriája limitálja a rendszer pontos leírását [14]. Rahman és társai is alapul vették a Johnson és társai által megalkotott diabatikus modellt a Sellafield-ben (Egyesült Királyság) található nukleáris hulladékfeldolgozó nagy aktivitású sűrítményének (magas radioaktív komponens tartalmú evaporáción átesett vizes oldat) átmeneti tárolására szolgáló tárolótartály hőtani kiértékelésére. A bemutatott eredmények alapján a modell képes volt megközelíteni a tartály hőmérsékletét, valamint lehetőséget teremtett a berendezés biztonságtechnikájának felülvizsgálatára [15].

Regestein és társai azt vizsgálták, hogy két hőáram számítására alkalmas módszer („heat flow” és „heat balance”) hogyan képes egy fermentációs reaktor hőtani változásait jellemezni. A „heat flow” módszerhez először dimenziómentes számokon keresztül határozták meg az elméleti hőátszármaztatási tényezőt, majd egy fermentációs reakció során kalibrációs fűtéssel és a „heat flow” egyenlet átrendezésével kiszámították a gyakorlati értékét is. Az eredményeik azt mutatták, hogy a kalibráció szükséges volt és az ezzel kapott eredmények pontosabbak is voltak az elméleti hőátszármaztatási tényezővel történő számításokhoz képest [16].

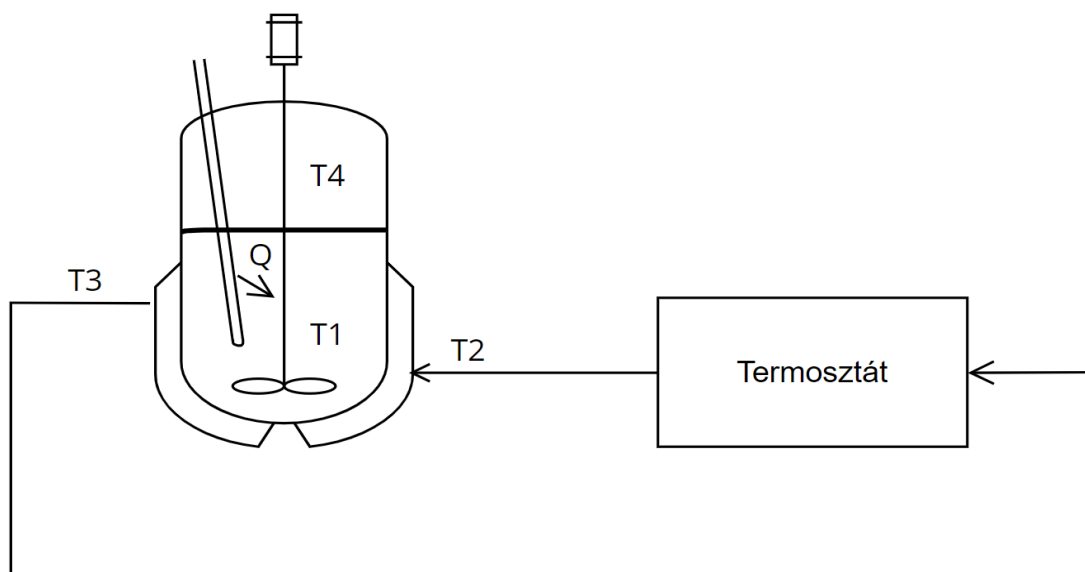
3. Gyakorlati tevékenység alap elemei

Jelen fejezet célja bemutatni azt, hogy a munkám során milyen eszközöket (berendezések/szoftverek) használtam fel, valamint bevezesse a modellezési és identifikálási feladathoz kapcsolódó egyenleteket és definíciókat. Ezt követően a fejezetben bemutatásra kerül a modell identifikálásához használt mérés felépítése és az ahhoz kapcsolódó kísérletezési megfontolások.

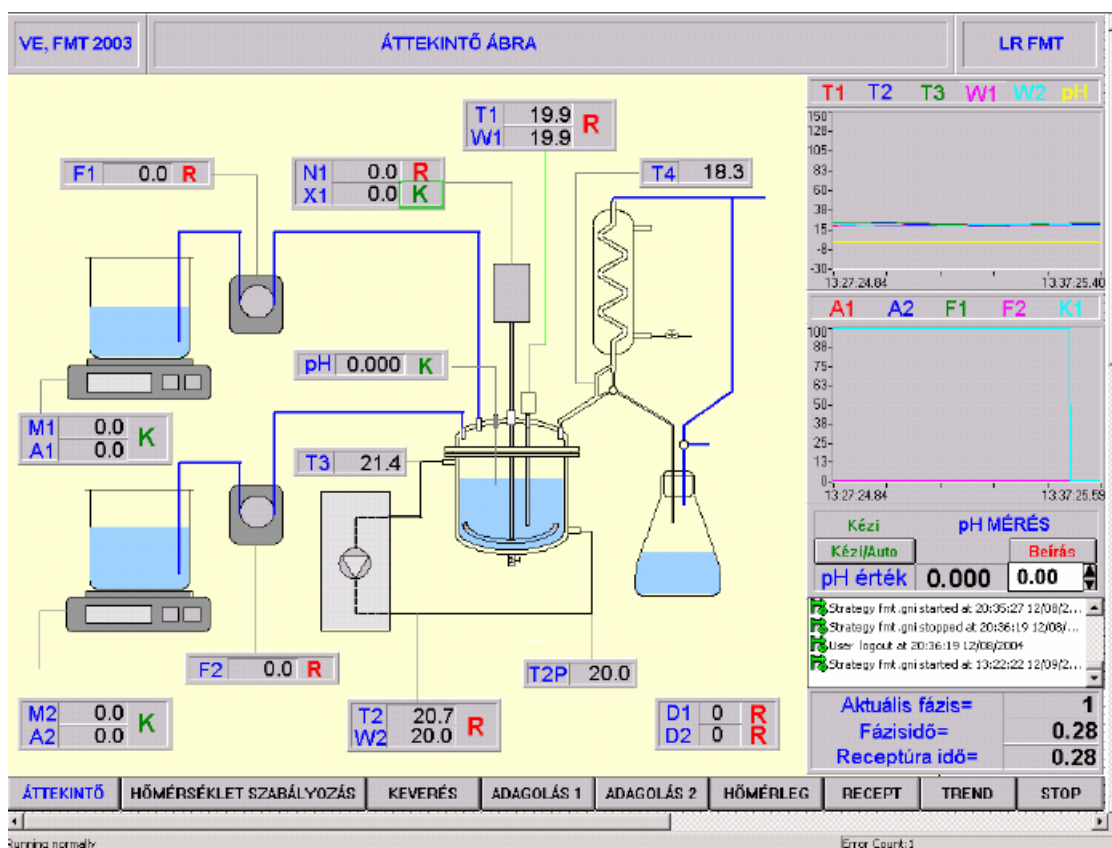
3.1. Vizsgált rendszer

A munkámat a Folyamatmérnöki Intézeti Tanszék laboratóriumában található 1 literes köpenyes üvegreaktoron végeztem el, ezt az 1. ábra mutatja be. A köpenyben glikol és víz elegye áramlik, ezt egy termosztát egység melegíti fel és hűti le. A köpenybe belépő folyadék hőmérsékletét T2, a kilépőt T3, a reaktorét T1, a környezetét pedig T4 jelölésű hőmérő méri. A rendszer tartalmaz egy, a tanszék munkatársai által gyártott keverőelemet is, valamint egy fűtőszálat, melynek a kibocsátott hőáramát Q jelöli. A rendszer részét képezi még egy pH mérő, egy adagolórendszer, egy nyomásmérő és egy desztilláló feltét is, azonban munkám során nem volt szükséges a használatuk ezért nem kerülnek a továbbiakban megemlítésre.

A reaktorhoz kapcsolódik még egy irányító számítógép is, ezen található a GenieDAQ nevű program, ami biztosítja a keretrendszert a reaktor felől érkező adatok gyűjtéséhez és kezeléséhez. A beavatkozók kezelését végző szabályozó programot és a rendszer automatikus üzemeltetéséhez szükséges receptúrák elkészítésére alkalmas programot a FMIT oktatói hozták létre, azon változtatást nem végeztem. A kezelőrendszer egy szekcióját a 2. ábra mutatja be, ezen látható a reaktor a bemutatott mérőeszközökkel, valamint a hozzájuk tartozó mért értékekkel, ahol pedig releváns az alapjelükkel együtt. Az adatgyűjtő- és szabályozó program az egyes receptúra futtatások végén a mérési adatokat egy olyan formátumban menti el, amelyet a Microsoft Excel vagy a Python programozási nyelv könnyen be tud olvasni, ezáltal a későbbiekben bármelyik mérési fájl hozzáférhető és a bennük lévő adathalmaz egyszerűen és gyorsan feldolgozható. A receptúra szerkesztő képes üzemelési fázisok létrehozására és azon belül a fázisok során elvégzendő alapjel változtatások megadására. A receptúra szerkesztővel létrehozható alapjelek a következő beavatkozókra hathatnak: a termosztát által létrehozott T2 hőmérséklet, a keverő fordulatszáma és a fűtőszál által leadott teljesítmény.



1. ábra: A vizsgált üvegreaktor egyszerűsített ábrája.



2. ábra: Az irányítórendszer kezelő felülete.

A termosztát irányítását egy osztott hatáskörű (split-range) szabályozó végzi, ez azt jelenti, hogy az irányító programból egy jel hatására két beavatkozó állapota változik meg, ez a változás egy 0-100 terjedelmű skálához van rögzítve. Ha a kimenő jel 50 alá megy akkor a termosztát hűtőrendszere kapcsol be, ha pedig 50 fölé megy akkor a fűtőkör lép működésbe.

A szabályozó master-slave struktúrában működik, vagyis szabályozható a köpeny hőmérséklete (slave kör) valamint közvetlenül a reaktor hőmérséklete, ami a slave kör erőteljesebb változtatásaival igyekszik tartani a megadott alapjelet.

A munkám során az adatok ábrázolását és kiértékelését is MATLAB programban végeztem, mivel ez egy elterjedt és jól használható szoftver akár bonyolultabb matematikai számítások elvégzésére is.

3.2. Hőmérleg általános alakja

Jelen munka a reaktor belső terére vonatkozó, a környezet felé veszteségi tagot tartalmazó mérlegegyenletet veszi alapul a további vizsgálatok elvégzésénél. A veszteségi tag szükségessége egy későbbi fejezetben kerül bemutatásra, a (3) egyenlet azért tartalmazza, hogy teljes egészében látható legyen a munka döntő részében alkalmazott hőmérleg felépítés.

$$m * c_p * \frac{dT_1}{dt} = UA * \left(\frac{T_2 + T_3}{2} - T_1 \right) - UA_{veszt} * (T_1 - T_4) + Q_{fűtés} \quad (3)$$

ahol: m : reaktortérben lévő folyadék tömege [g]

c_p : fajhő [J/g/K]

UA / UA_{veszt} : a hőátzármaztatási tényező és a felület szorzata [W/K]

$Q_{fűtés}$: fűtőpatron által leadott teljesítmény [W]

A modell mérlegegyenletében UA és UA_{veszt} változók esetében sem a hőátzármaztatási tényező értéke sem a felület nem ismert, így egy összevont változóként kerültek meghatározásra a munkám során.

A meghatározáshoz MATLAB Simulink programban létrehoztam egy rendszert, ami beolvassa a szabályozó program által létrehozott adat fájlt, majd abból kiválasztja a szükséges adatsorokat: a mért hőmérsékleteket (T_1, T_2, T_3, T_4) és a fűtőszál teljesítményét ($Q_{fűtés}$), majd ezek felhasználásával kiszámol egy T_1 értéket, ami aztán összehasonlításra kerül az adott időpontban mért T_1 értékkel.

Az eltérés mértékét és ezáltal a minimalizálandó célfüggvényt a legkisebb négyzetek módszerével adtam meg, amelyet (4) egyenlet mutat be. Azért volt szükséges a célfüggvény értékét a mérés adatainak számával (n) elosztani, mivel így kaptam meg az egy adatpontra jutó átlagos hibanégyzet értékét. Ezzel lehetségessé válik a különböző időtartamú mérések identifikációjának összehasonlítása, a modell eredmények általánosíthatóvá válnak.

$$Célfüggvény = \frac{1}{n} * \min \sum_{i=1}^n (T1_{számolt,i} - T1_{mért,i})^2 \quad (4)$$

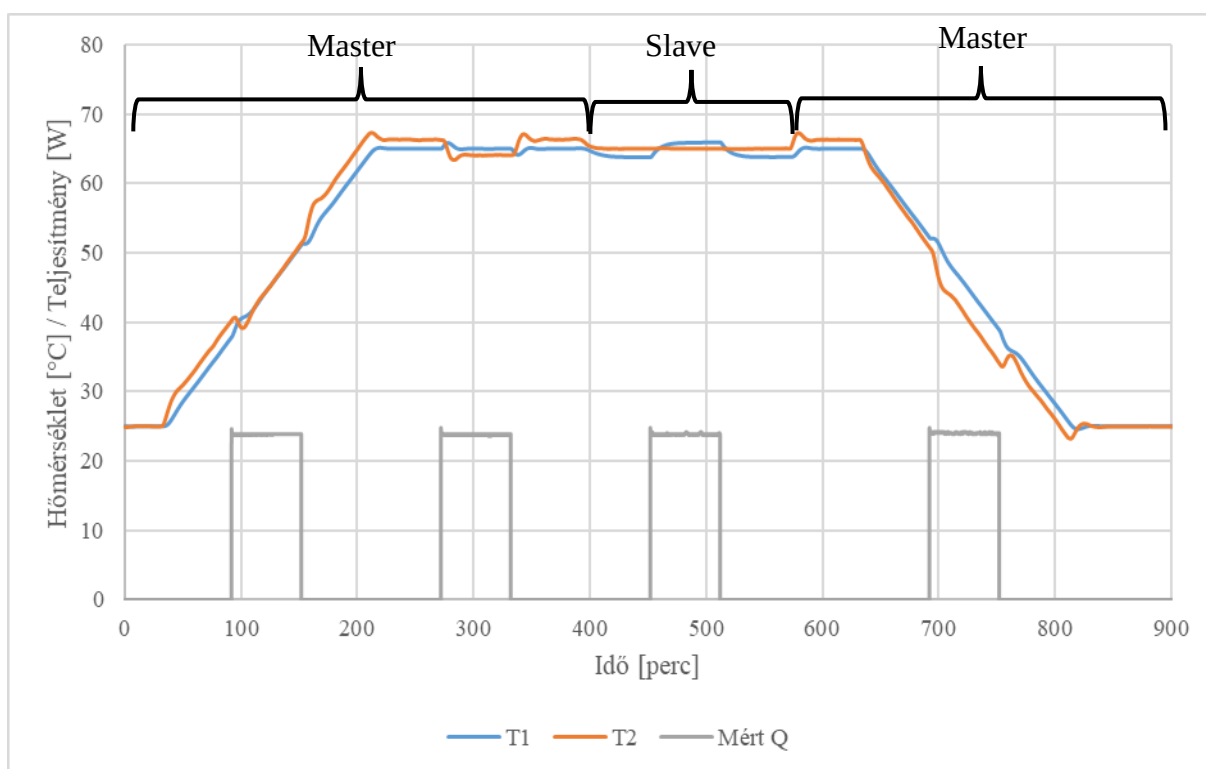
A minimum meghatározásához a mérlegegyenletben és a teljes modellben levő ismeretlen paramétereket változtatja a program. Az egyes paraméterek változtatása után a modell kiértékelésre került, aminek végén létrejött egy új hibanégyzet érték. A paraméterek iterációs változtatását a MATLAB *fmincon* függvényének felhasználásával végeztem, ez egy korlátos szélsőérték kereső algoritmus, amelyet azért választottam, mivel a paraméterek korlátozása elősegítette a szélsőérték gyorsabb megtalálását (amikor már volt előzetes eredmény a várható nagyságrendről). Emellett a későbbiekben alkalmazott átviteli függvények esetén szükséges volt az időállandók értékéhez pozitív számtartományt rendelni, különben az iteráció a modell numerikus hibája miatt megáll.

A mérések elvégzéséhez a reaktor feltöltöttem 1000 g vízzel, majd különböző fűtési és hűtési profilok lettek beállítva, amik közben a fűtőpatron be- és kikapcsolásával létrejöttek olyan szakaszok, ahol hirtelen hőáram változások voltak. Ez azért történt, hogy hirtelen bekövetkező, dinamikus változásokat is tartalmazzon az adatsor, így a paraméterek keresése során a szélsőérték kereső algoritmus „megtanítja” a modellnek azokat a paraméter értékeket, amik képesek ezeket a változásokat kezelni.

Az első mérések csak köpenytéri felfűtésből, stacioner hőmérsékleten végzett fűtőpatronos hőbevitelből és visszahűtésből álltak, viszont a munka során világossá vált, hogy szükséges lesz további mérések elvégzése, ahol a felfűtés és lehűtési szakasz nem master-köri szabályozással történik meg, hanem slave-köri vezetéssel (izoperibolikus) módon. Mivel a kristályosítás is vezetéssel történik majd hűtésre, így a vezetés során bekapcsolva a külső fűtést létrehoztam olyan adatsorokat, amelyek nagymértékben hasonlítanak a kristályosítás hőhatására.

3.3. Mérés menete

A munka során többféle mérési receptúra készült, viszont általánosan egy felfűtési, hőmérsékleten tartási, majd egy hűtési szakaszból álltak. A felfűtési és hűtési szakaszban egy fűtőpatronos fűtési szakasz, míg a hőmérsékleten tartási szakaszban két fűtőpatronos fűtési szakasz volt, az egyik esetben a master-körön történik a szabályozás vagyis T1 értéke van kézben tartva T2 változtatásával, míg a másik esetben a köpenytéri T2 értéke van kézben tartva és a fűtés miatt T1 értéke szabadon változik. A mérés teljes menetét a 3. ábra mutatja be. Látható rajta ahogy a felfűtési és lehűtési tartományon a külső fűtés hatására megtörténik a köpenytéren az új hatás kompenzációja, hogy tartani tudja a rendszer a vezetés menetét. Ezenkívül az is látható, hogy a hőmérsékleten tartás során az első külső fűtési szakasz volt a master-köri üzemelés, mivel T1 értéke csak kilendült de T2 visszahűtötte így a kitérés rövid ideig tartott. A második pedig a köpenytéri hőmérséklettartás, ezen látható ahogy T2 nem változik míg T1 értéke megnő.



3. ábra: Identifikációra használt mérés menete.

4. Modell módosítása

A munkám során különböző változtatásokat végeztem a kiindulási veszteségmentes modellen a pontosabb hőmérséklet becslés érdekében, ezáltal jobban meghatározhatóvá vált a reaktor belső terében megjelenő hőforrás által leadott teljesítmény nagysága és a leadás mintázata. A modellen végzett változtatásokat két szempontból is meg kellett vizsgálni. Először is meg kellett megbizonyosodni arról, hogy a paraméterek értékének meghatározására használt keresőprogram a paraméter értékének globális szélsőértékét találta meg és nem egy lokális szélsőértéket talált meg. Ennek a feladatnak az elvégzése úgy történt meg, hogy a paraméterkeresés elindításakor megadott kiindulási értékek véletlenszerűen, egy széles tartományból kerültek kialakításra, így sokféle indítási pont mellett lehetett valószínűsíteni a globális szélsőérték megtalálását. Jelen esetben minden keresés 12 alkalommal került elvégzésre. A későbbi alfejezetekben látható, sok paramétert tartalmazó modellek jönnek létre, melyekben hosszú ideig tart egy mérési adatsor kiértékelése, valamint többféle nagyságrendbe esnek a paraméterek, ezért szükséges volt normált értékekkel elvégezni a feladatot, a normálást (5) egyenlettel hajtottam végre. Ez azt jelentette jelen munkában, hogy minden paraméter egy 0 és 1 közötti tartományban került ki a szélsőértékkereső algoritmusból, az értékeket pedig a modell számára szükséges tartományú számmá transzformálta a paraméterkereső program az előre megadott minimum- és maximumértékek felhasználásával.

$$\text{Valós érték} = (\text{Maximum} - \text{Minimum}) * \text{Normált érték} + \text{Minimum} \quad (5)$$

Ennek több előnye is volt a munkám során: ilyen beállítások mellett a paraméterkereső program minden lehetséges változtatható dimenzió irányába egyforma nagyságú lépést tesz, ezáltal kevésbé lehetséges az, hogy elkerüli a keresett szélsőértéket kis értékű paraméterek esetén. Továbbá a tapasztalatok alapján normált értékek használata mellett sokkal gyorsabban zajlik a szélsőérték keresése, ami több adatsor kiértékelése esetén szintén fontos tényező.

4.1. Veszteségmentes modell

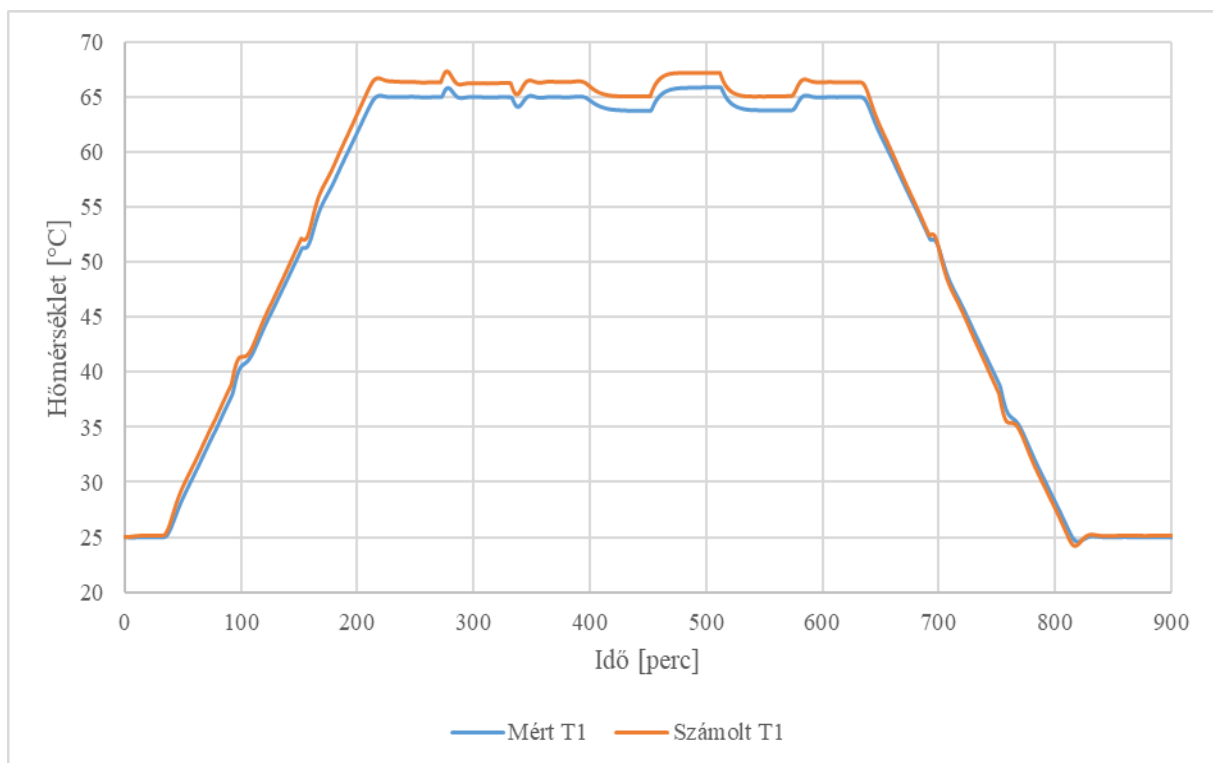
Az első vizsgálat azzal kapcsolatban zajlott, hogy szükséges-e alkalmazni a modellben a környezet felé történő veszteséget tartalmazó tagot. A veszteségi tag hiányában a kétváltozós (3) egyenlet leegyszerűsödik az egyváltozós (6) egyenletté.

$$m * c_p * \frac{dT_1}{dt} = UA * \left(\frac{T_2 + T_3}{2} - T_1 \right) + Q_{fűtés} \quad (6)$$

A kapott paramétert és a hozzá tartozó átlagos hibanégyzetet az 1. táblázat tartalmazza, T1 valós és számolt értékeinek összehasonlítását pedig a 4. ábra mutatja be.

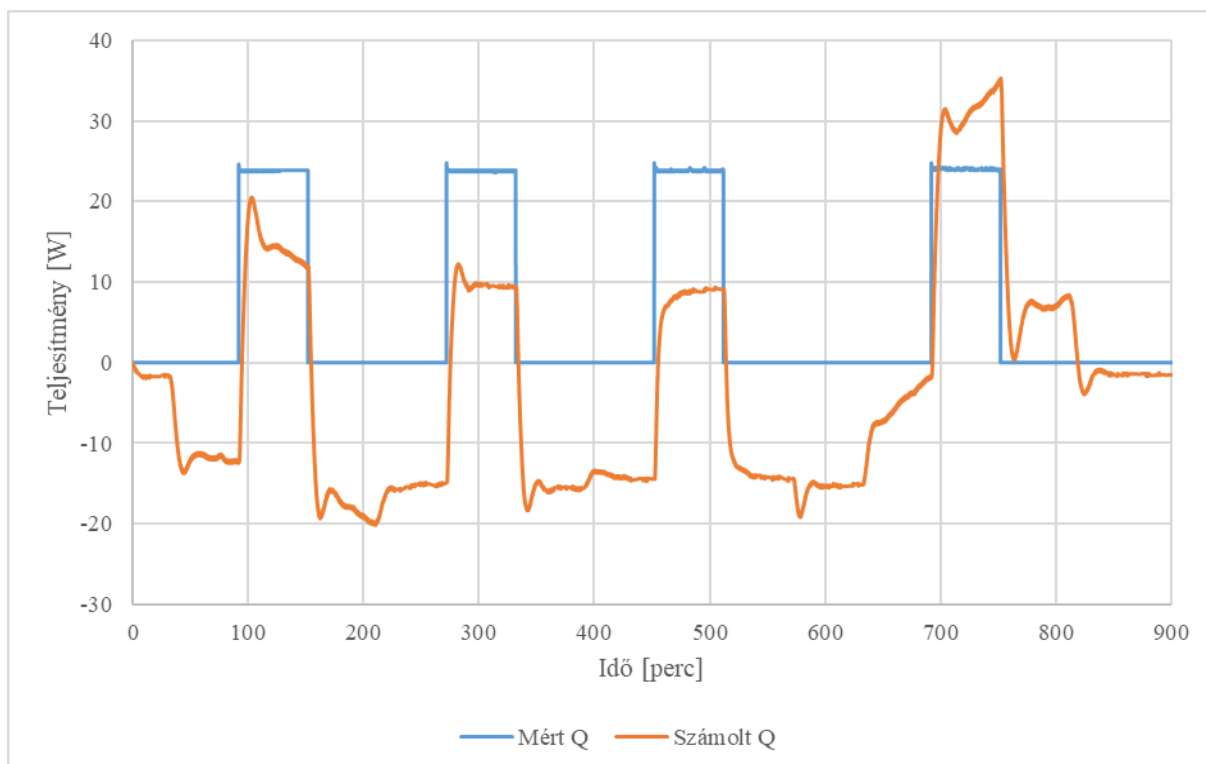
1. táblázat: Veszteségmentes modell eredményei.

Paraméter	Értéke
UA	11,2398
Átlagos hibanégyzet	1,1467



4. ábra: Veszteségmentes modell hőmérséklet diagramja.

A identifikálás során ismertnek tekintettem a bevitt hőáram nagyságát és a modell paraméterek keresése zajlott, a modell hőáram becslésének ellenőrzése során pedig a paramétereket rögzítettem és (6) egyenletet átrendeztem $Q_{fűtés}$ (általánosítva Q) meghatározásához. Ezt a becsült Q hőáramot hasonlítottam össze a mért $Q_{fűtés}$ értékeivel. Ahogy a 5. ábra mutatja, a négyszögjel formát közelíteni tudja a modell, viszont T1 túlbecslése miatt nem pontos a hőáram számítása.



5. ábra: Veszteségmentes modell hőáram diagramja.

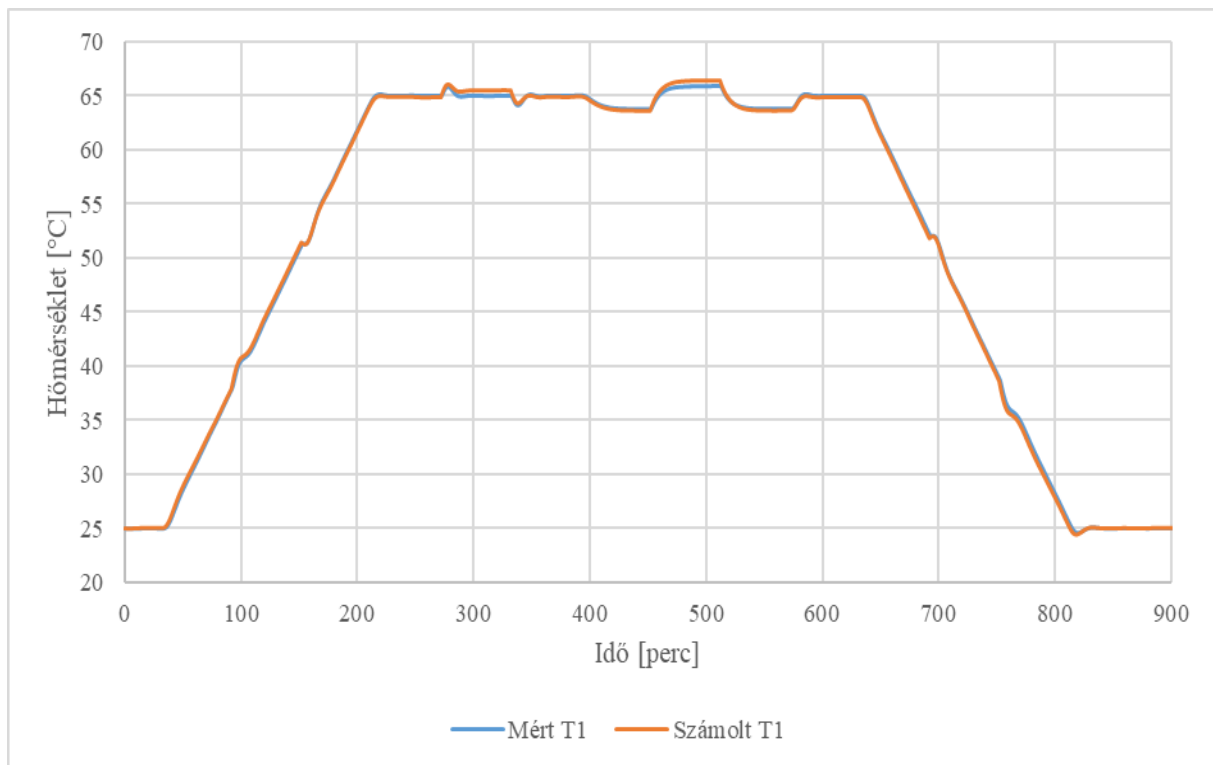
4.2. Veszteségi taggal kiegészítve

A következő lépésben elvégeztem a veszteséggel kiegészített hőmérleg paramétereinek becslését, ezzel megvizsgálva azt, hogy mennyit javított a pontosságon az újabb tag. A 2. táblázat eredményeiből látható, hogy a veszteség hőátszármaztatási tényezője egy nagyságrenddel kisebb a reaktortér és köpeny közötti értéknél. Ez egy várható eredmény mivel a veszteség a reaktortér és a környezet levegője közötti átadás, míg a másik eset a kevert reaktortér és az áramló köpenytéri folyadék közötti átadás.

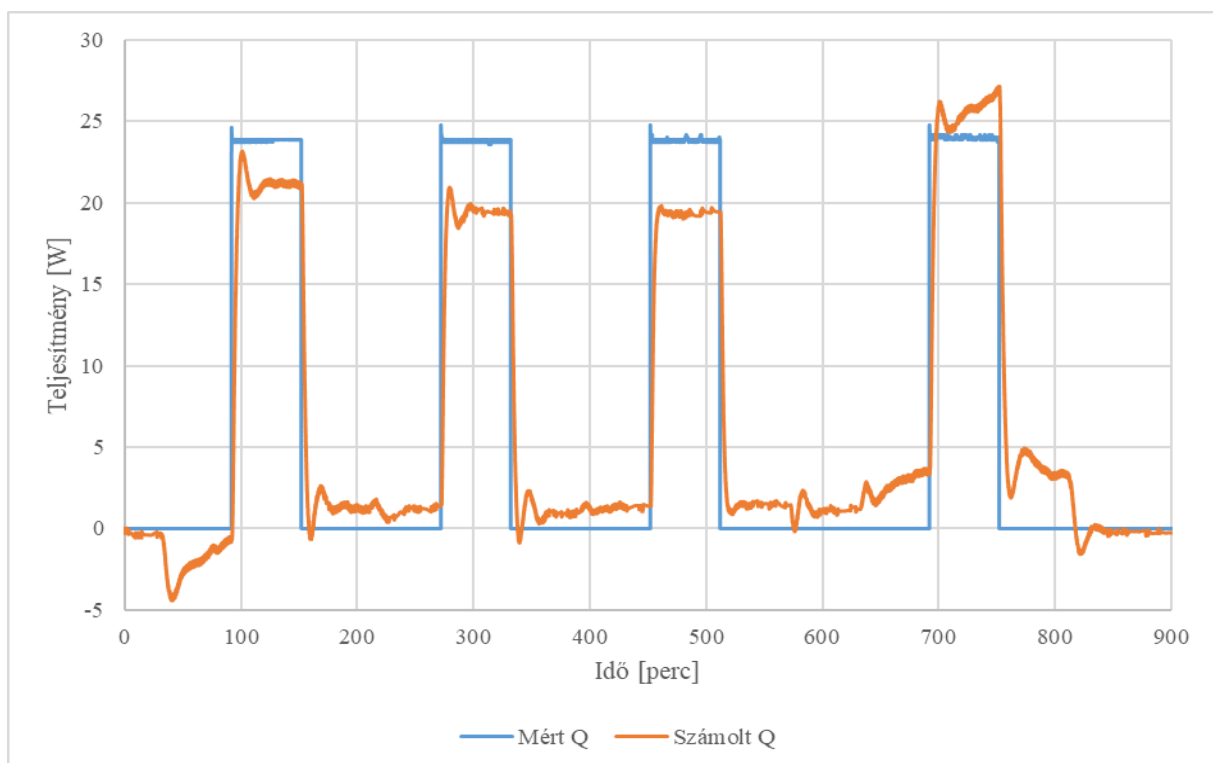
2. táblázat: Veszteségi taggal kiegészített modell eredményei.

Paraméter	Értéke
UA	8,3242
UA _{veszt}	0,2890
Átlagos hibanégyzet	0,06575

Az átlagos hibanégyzet alapján az vehető ki, hogy már egy újabb tag bevonása is tizedére csökkenti a hiba mértékét. Ahogy látható az 6. ábra eredményein, elég jól közelíti a számolt a mért eredményeket. A 7. ábra pedig azt mutatja, hogy alakban és nagyságban is sokkal jobb az illeszkedés a mérés és becslés között.



6. ábra: Veszteségi taggal kiegészített modell hőmérséklet diagramja.



7. ábra: Veszteségi taggal kiegészített modell hőáram diagramja.

4.3. Hőátszármaztatás polinomként kifejezése

Következő vizsgálatként elvégeztem a két hőátszármaztatási tényező polinom formában kifejezését (7-8. egyenlet). Az előnye ennek a formának az, hogy nem egy konstans hőátszármaztatás van feltételezve és ezáltal hőátszármaztatás hőmérséklet függése (például sűrűség, viszkozitás stb. változásának a hatása) is figyelembe van véve. A két hőátszármaztatási tényezőt egy-egy elsőrendű polinom formájában írtam fel és feltételeztem, hogy az átadási tényező hőmérsékletfüggésének meghatározó tagja a reaktortéri hőmérséklet.

A kapott paraméterek azt mutatják (3. táblázat), hogy a veszteségi tag esetén b_2 értéke több nagyságrenddel kisebb a_2 értékénél, viszont azt feltételeztem, hogy ez megváltozhat a további vizsgálatok során, így minden egyes esetben kiszámoltam b_2 értékét.

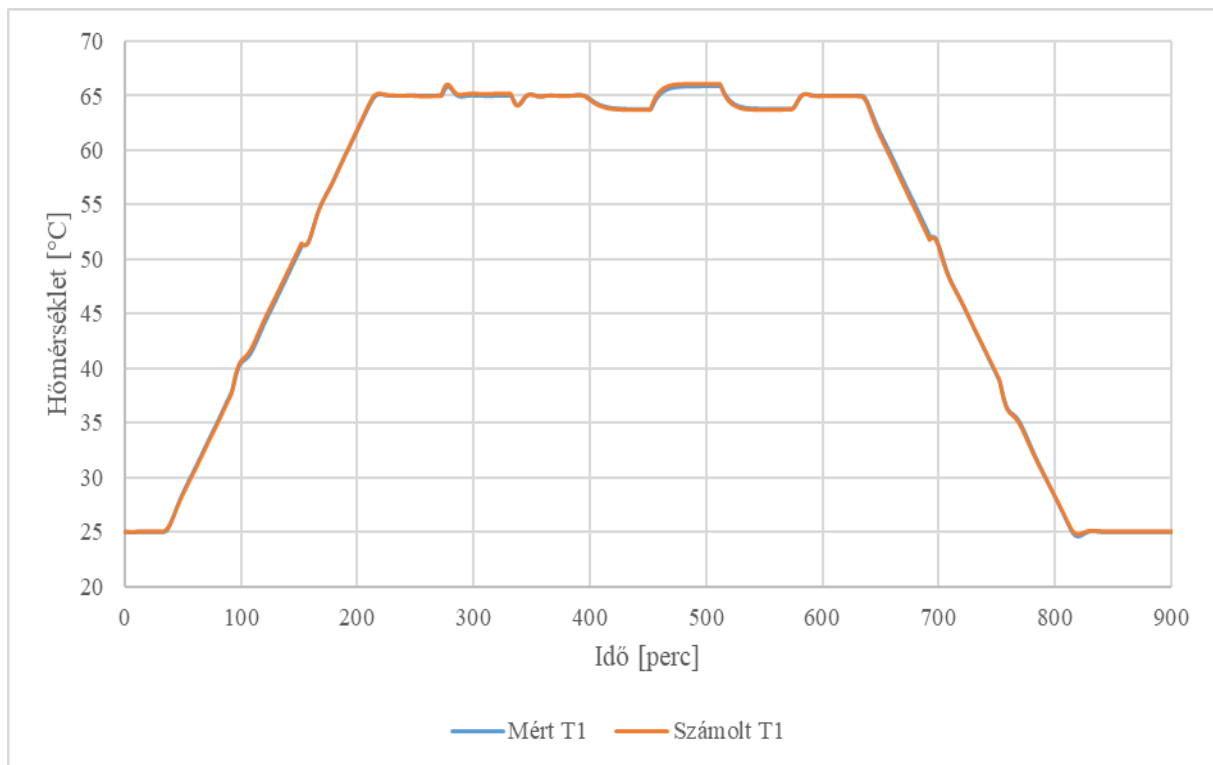
$$UA = a_1 + b_1 * T_1 \quad (7)$$

$$UA_{veszt} = a_2 + b_2 * T_1 \quad (8)$$

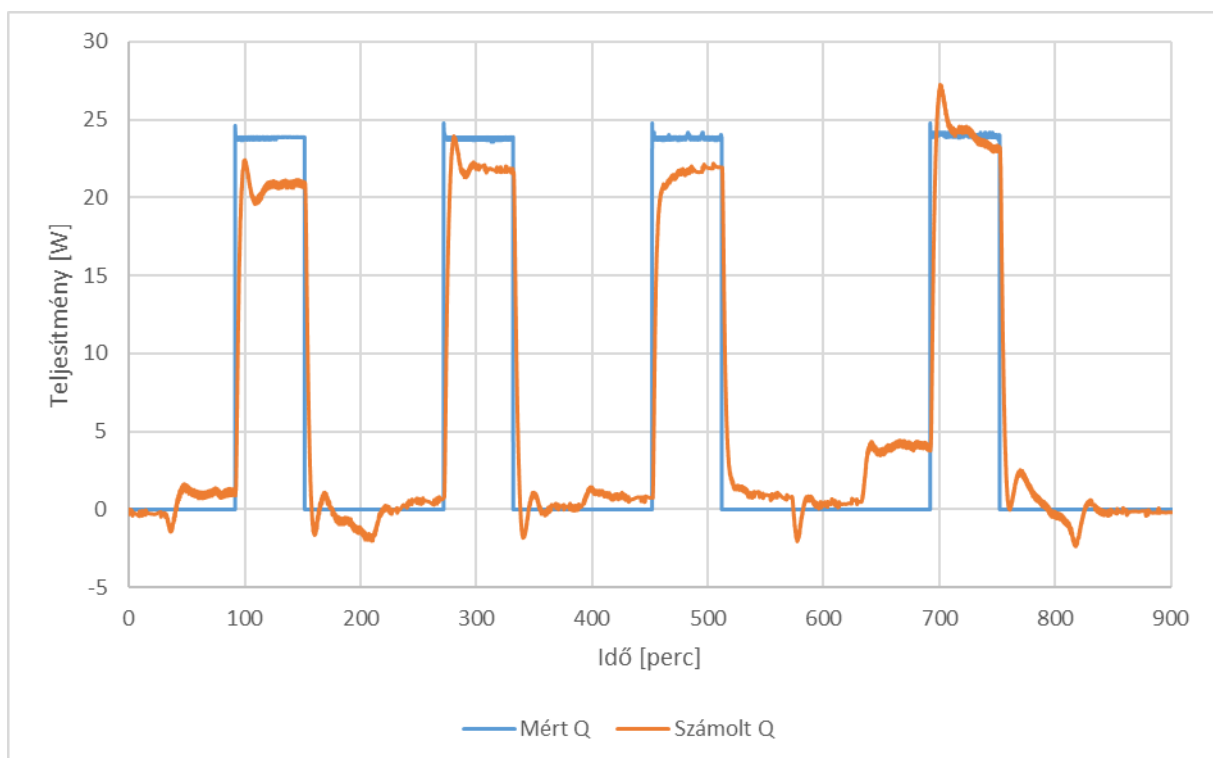
3. táblázat: Polinomokat tartalmazó modell eredményei.

Paraméter	Értéke
a₁	4,2700
b₁	0,08396
a₂	0,1687
b₂	$2,277 \cdot 10^{-3}$
Átlagos hibanégyzet	0,02739

Az eredményül kapott 8. ábra és az 6. ábra összehasonlításából az vehető ki, hogy a felfűtési és hűtési szakasz illeszkedésében nem történt jelentős javulás, viszont a stacioner szakasz esetében igen. Ez a javulás alátámasztható a 7. ábra és 9. ábra második és harmadik felfűtésénél, ahol a számított értékek már 20 W felett vannak, míg az előző lépében 20 W alatt voltak. Emellett az első felfűtés esetén egy enyhe romlás látható az eredményekben, viszont a romlással ellentétes módon a negyedik felfűtés esetén pontosabbá vált a modell. Összességében mivel a hőáram diagramon több szakaszon is jelentős pontosság javulást hozott a hőátszármaztatási tényezők polinom formájában való felírása, valamint mivel az átlagos hibanégyzet értéke az előző mérés ~42%-ra esett, így ezt a változtatást elfogadhatónak tekintettem, a továbbiakban is alkalmaztam.



8. ábra: Polinomokat tartalmazó modell hőmérséklet diagramja.



9. ábra: Polinomokat tartalmazó modell hőáram diagramja.

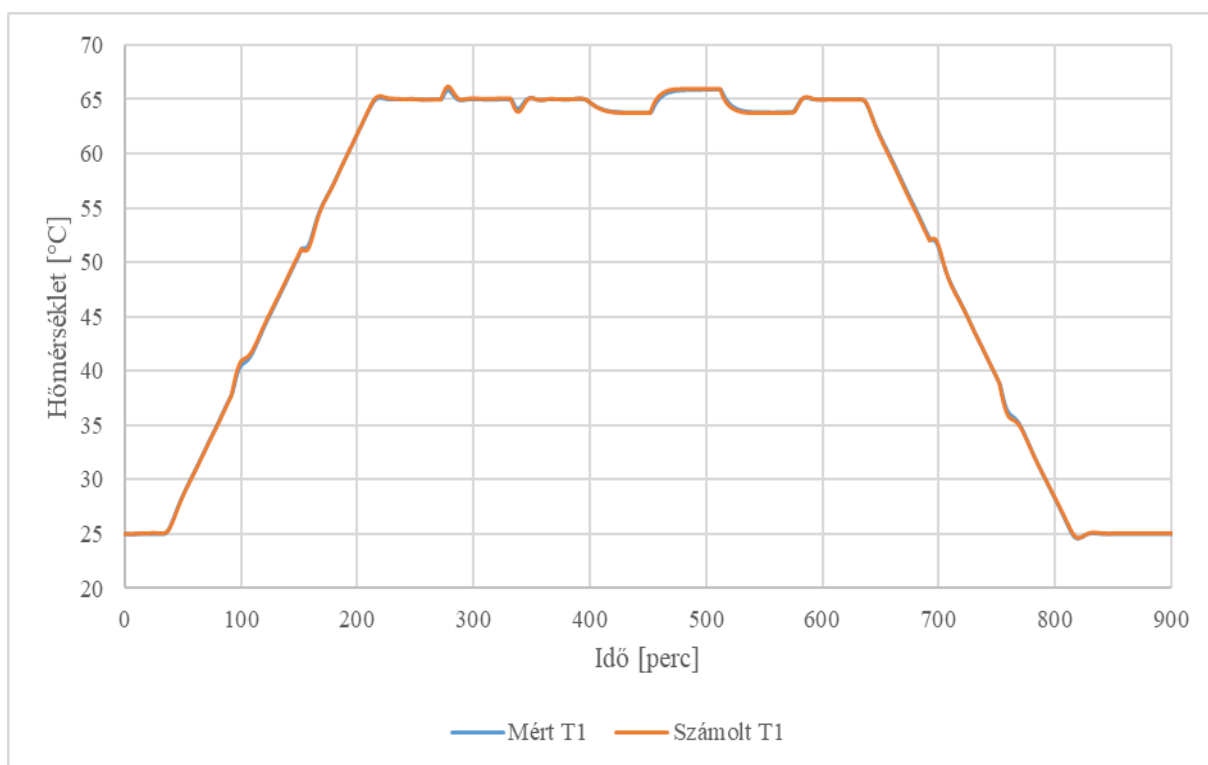
4.4. Köpenytéri holtidő számítása

A valós reaktor belső tere később reagál a hőmérsékleti változtatásokra, mint ahogyan azok megjelennek a köpenytéri közegben, de a modell a fal termodinamikai tehetetlenségét nem tartalmazza, ezért megvizsgáltam, hogy holtidővel való eltolás mennyivel javítja a számolt T1 értékek illeszkedését. A holtidős eltolás a T2 és T3 hőmérsékletek átlagán került alkalmazásra mivel közvetlenül ez az érték szerepel a hőmérlegben.

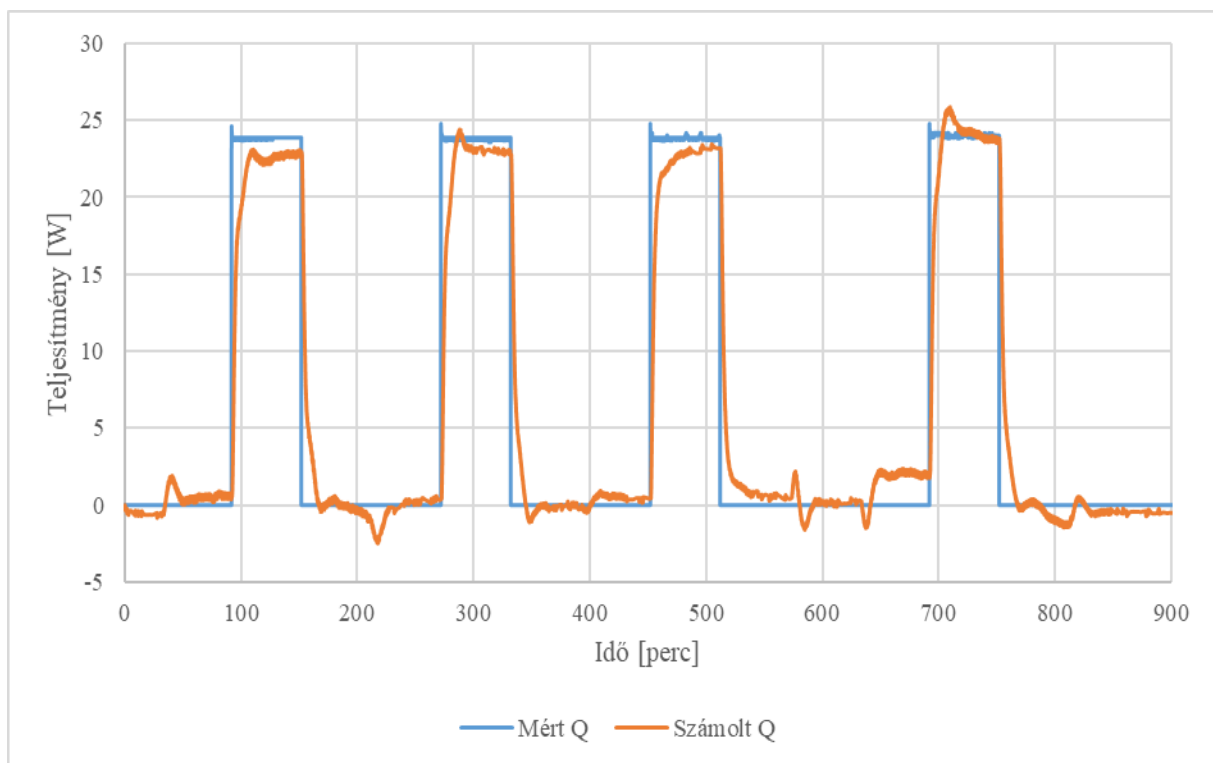
Az átlagos hibanégyzet értékén (4. táblázat) és a 11. ábra eredményein jól kivehető, hogy ezzel a kialakítással közel felére csökkent a hiba nagysága, a 10. ábra közel tökéletes illeszkedést mutat a mért és számolt T1 között. A felfűtött szakaszokon a mért és a számolt teljesítmények közötti eltérést sikerült nagyjából 1-3 W közötti értékre szorítani.

4. táblázat: Holtidős modell eredményei.

Paraméter	Értéke
a₁	5,3696
b₁	0,07706
a₂	0,05352
b₂	$4,276 \cdot 10^{-3}$
Holtidő	72,30 s
Átlagos hibanégyzet	0,01351



10. ábra: Holtidős modell hőmérséklet diagramja.



11. ábra: Holtidős modell hőáram diagramja.

A hőáram diagramon (11. ábra) látható hibák közül a hőáram „tüskéket” az okozta, hogy a reaktor hőtani tehetetlenségét a szabályozás nem veszi figyelembe. Ennek következtében az alapjelváltás során a termosztát nagymértékben megnöveli a köpeny hőmérsékletét, hogy az előírt felfűtési sebességet tartani tudja a rendszer. Ezt azonban a hőtani tehetetlenség miatt a valós rendszer nem tudja követni hőmérséklet emelkedéssel, viszont mivel ezt a jelenséget nem sikerült tökéletesen modellezni, így a szimulációban a hőmérséklet sokkal gyorsabban kezd el változni. Ezért a mért és számolt hőmérsékletek különbségével meghatározott hőáram egy kilendülést eredményez.

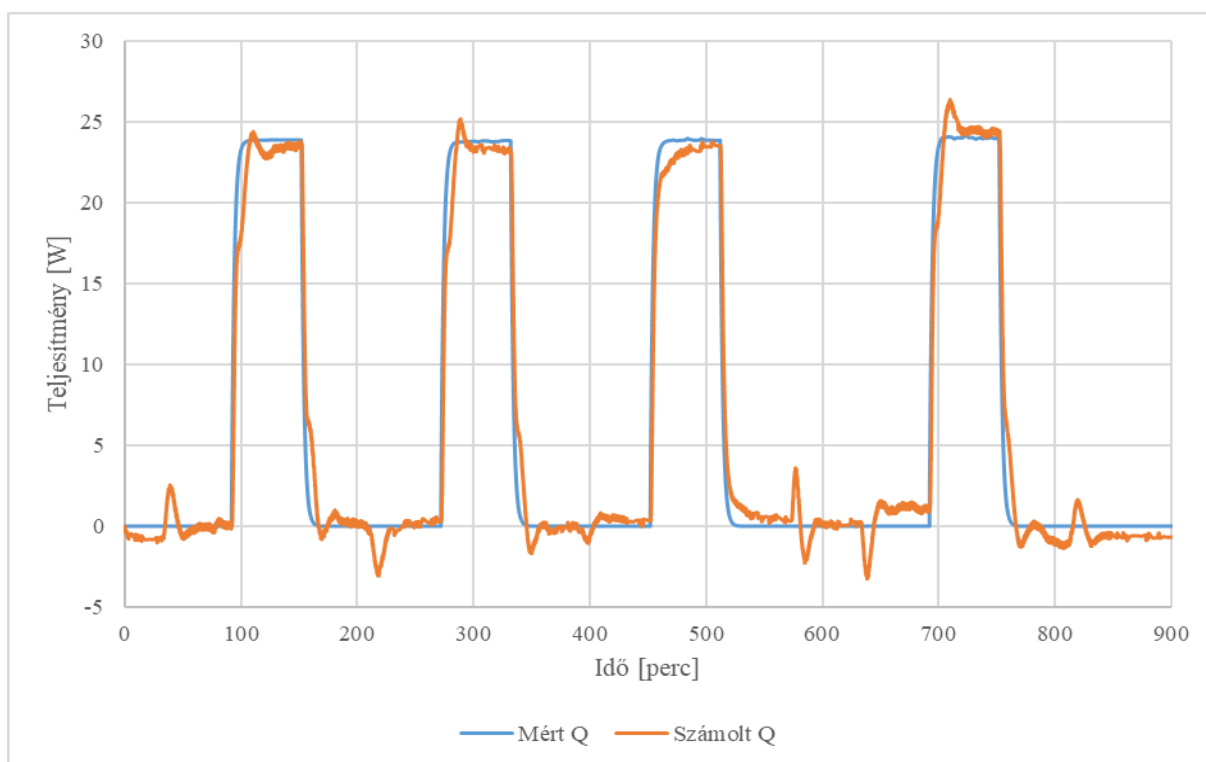
4.5. Hőbevitel szűrése

A holtidős eltolás után a következő lépésben $Q_{\text{fűtés}}$ hőáram szűrése történt meg. Ez azt jelenti, hogy egy elsőrendű átviteli függvénnyel közelítettem a fűtőszál bemenő teljesítményét, ezáltal vettem figyelembe a tokozás hőkapacitását, amely nem szerepel a modellben. Jelen esetben már annyira azonos a mért és a becsült hőmérséklet, hogy az ábrázolás szempontjából illeszkednek egymásra, így a továbbiakban már csak az adott módosítás hőáram diagramját mutatom be.

A 12. ábra azt mutatja, hogy a felfűtött szakaszokon az illeszkedés eltérése a legtöbb pontban 1 Watt alatt van, viszont az előző alfejezet végén bemutatott hőáram tüskék nagyobbak lettek.

5. táblázat: Szűrt modell eredményei.

Paraméter	Értéke
a_1	6,2639
b_1	0,06569
a_2	$3,018 \cdot 10^{-3}$
b_2	$5,117 \cdot 10^{-3}$
Holtidő	97,87 s
τ_Q	133,2 s
Átlagos hibanégyzet	$4,680 \cdot 10^{-3}$



12. ábra: Szűrt modell hőáram diagramja.

4.6. Köpenytéri hőmérséklet szűrése

A holtidős modell kialakítása után megnéztem, hogy a köpenytér hőmérsékletének szűrésével javítható-e még a számolt T1 hőmérséklet illeszkedése, ezáltal még tovább csökkentve a tervezett kristályosítási vizsgálatok hibáját. A szűrés a modellbe érkező T2 és T3 hőmérsékletek átlagát szűrte, mivel közvetlenül csak az átlagérték szerepel a hőmérlegben.

Az eredmények jobb illeszkedést mutatnak, viszont a hőmérséklet szűrése esetén a modellben a holtidő értéke 1-et vesz fel, ami a paraméterkeresés során a holtidő alsó korlátja volt, kisebb

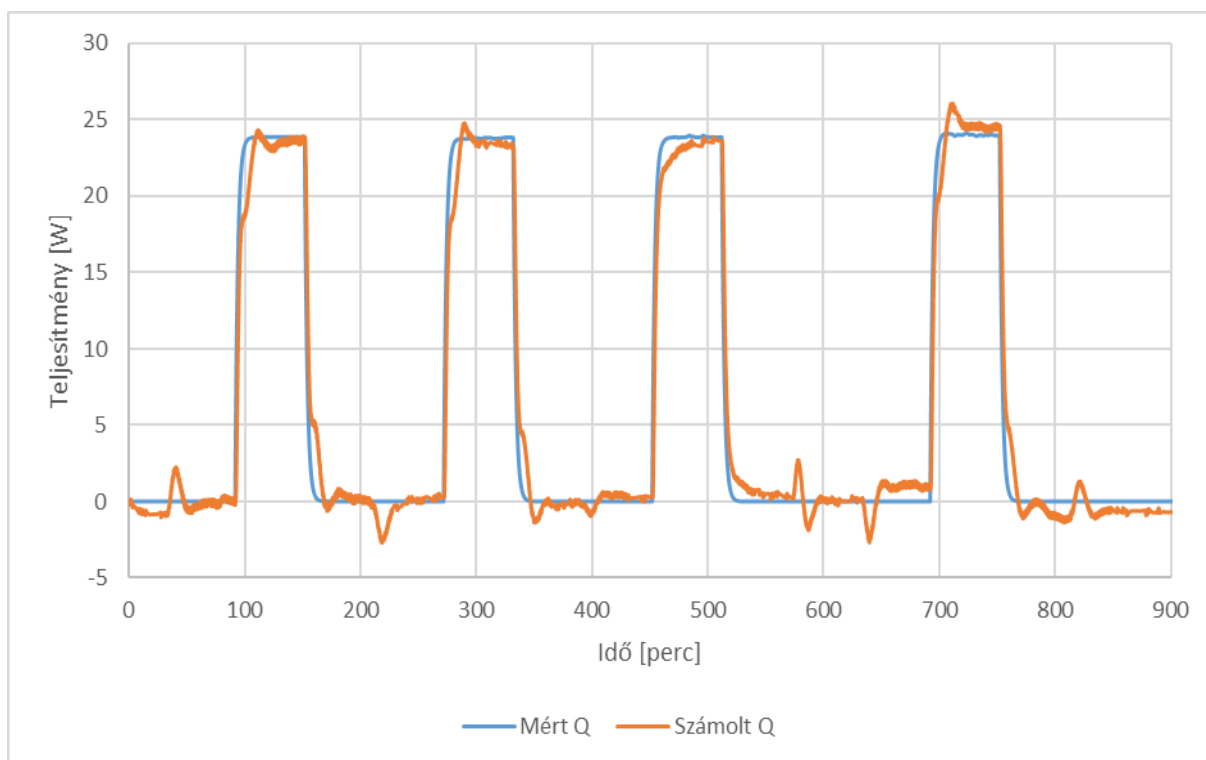
érték esetén a modell lefutása nagymértékben lassulna mivel a számítások során az időbeli lépések nagysága 1. A jelenséget azzal lehet magyarázni, hogy a valós rendszerben lévő holtidőt a szűrő (amely egy elsőrendű átviteli függvény) kiszűrte a paraméterkeresés során és az ezzel létrejött rendszer jobb illeszkedést mutatott a korábbi holtidős rendszernél.

Az ábra alapján az látható, hogy a hőmérséklet illesztés közel tökéletes, a 13. ábra pedig azt mutatja, hogy sikerült tovább javítani az illeszkedést a felfűtött szakaszokon, valamint a hőáram tüskék nagysága is csökkent.

Az 4. táblázat, 5. táblázat és 6. táblázat eredményei azt mutatják, hogy a_2 értéke élesen csökken a modell javulásával, így a további vizsgálatokban elhagytam ezt a tagot.

6. táblázat: Hőmérséklet szűrt modell eredményei.

Paraméter	Értéke
a_1	6,3473
b_1	0,06552
a_2	$2,78 \cdot 10^{-6}$
b_2	$5,177 \cdot 10^{-3}$
Holtidő	1,001 s
τ_Q	131,1 s
τ_2	101,3 s
Átlagos hibanégyzet	$4,305 \cdot 10^{-3}$



13. ábra: Hőmérséklet szűrt modell hőáram diagramja.

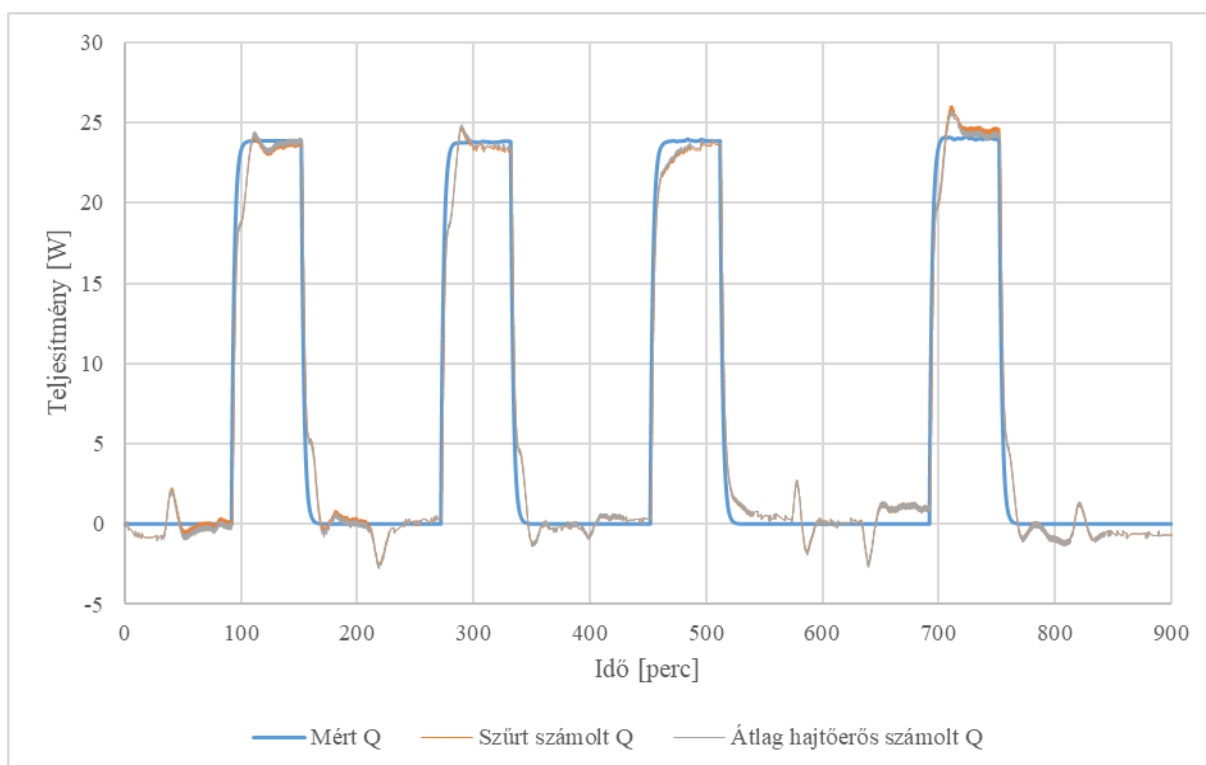
4.7. Reaktortéri hőátszármaztatás átlag hajtóerővel

Az előző esetben kapott modell már jól illeszkedik a mért adatokra, viszont a további pontatlanságok és stacioner hibák kiküszöbölését szükségesnek ítélt meg, így folytattam a modell módosítását. Következő vizsgálatként megnéztem azt, hogy hogyan befolyásolja a modell pontosságát, ha a (7) egyenlet a reaktortéri hőmérséklet helyett a reaktor belső tere és a köpenytér közötti átlagos hajtóerőt veszi alapul. A 7. táblázat és a 14. ábra további javulást mutatnak az előző vizsgálathoz képest, így a változtatást megtartottam a modellben.

$$UA = a_1 + b_1 * \frac{T1 + T2 + T3}{3} \quad (9)$$

7. táblázat: Reaktortéri átlag hajtóerős modell paraméterei.

Paraméter	Értéke
a₁	6,4643
b₁	0,06424
b₂	5,216*10 ⁻³
τ_Q	132,0 s
τ₂	104,2 s
Átlagos hibanégyzet	4,0843*10 ⁻³



14. ábra: Reaktortéri átlag hajtóerős modell hőáram becslése.

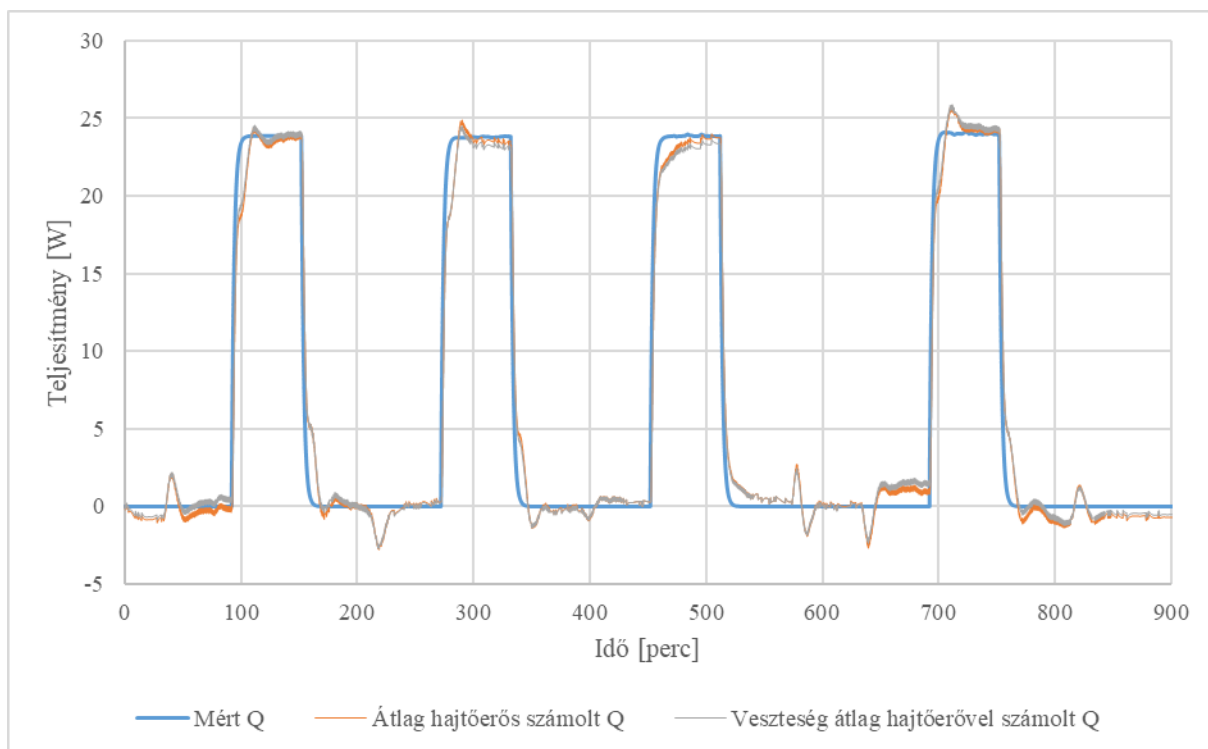
4.8. Veszteség hőátszármaztatása átlag hajtóerővel

Következő lépésként a reaktortér környezet felé irányuló veszteségi tagját alakítottam át úgy, hogy (5) egyenlet a két fázis közötti átlagos hajtóerőt tartalmazta. Az átlagos hibanégyzet és a 15. ábra azt mutatják, hogy ez a változtatás az előző állapothoz képest rontotta a modellezési pontosságot így a továbbiakban nem alkalmaztam a modellezés során.

$$UA_{veszt} = b_2 * \frac{T_1 + T_4}{2} \quad (10)$$

8. táblázat: Veszteség átlag hajtóerős modelljének paraméterei.

Paraméter	Értéke
a₁	6,2110
b₁	0,06636
b₂	7,678*10 ⁻³
τ_Q	124,2 s
τ₂	96,51 s
Átlagos hibanégyzet	4,485*10 ⁻³



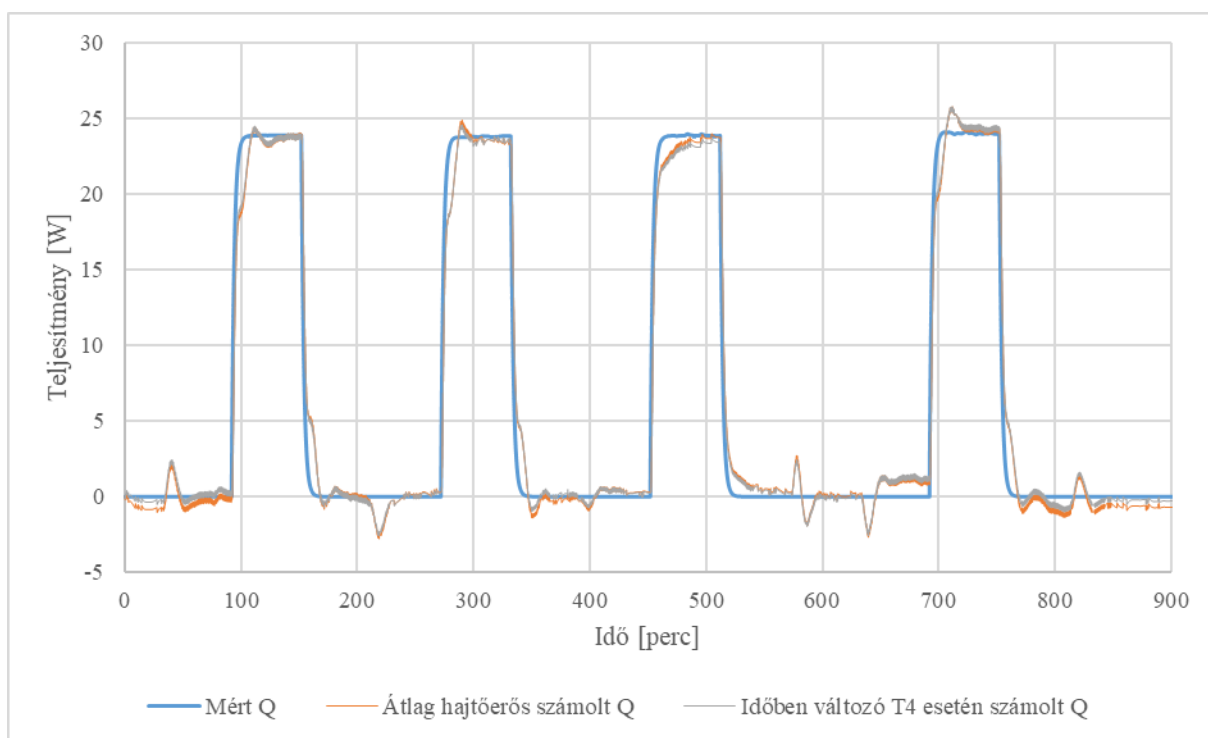
15. ábra: Veszteség átlag hajtóerős modelljének hőáram becslése.

4.9. T4 időbeli változásának figyelembe vétele

A korábbi vizsgálatok során T4 hőmérséklete konstans értéknek volt tekintve (22 °C), nem vette figyelembe a modell annak az időbeli megváltozását. A környezeti hőmérséklet változását a reaktor fűtésével felszabaduló veszteség, valamint az adott napszakra specifikus hőmérséklet változás okozhatta. Éppen ezért a következő vizsgálat azt figyelte meg, hogy hogyan változik a pontosság ha T4 mért értékeit alkalmazza a modell egy konstans érték helyett. A 16. ábra azt mutatja, hogy egyes pontokban kismértékű pontosság romlást okozott az előző modell eredményeihez képest, egyes szakaszokon pedig javította az illeszkedést. Mivel összességében ez a módosítás is csökkentette az átlagos hibanégyzet értékét, így ezt a változtatást elfogadhatónak tekintettem, és a későbbiekben alkalmaztam a modellben.

9. táblázat: Időben változó T4 modell paraméterei.

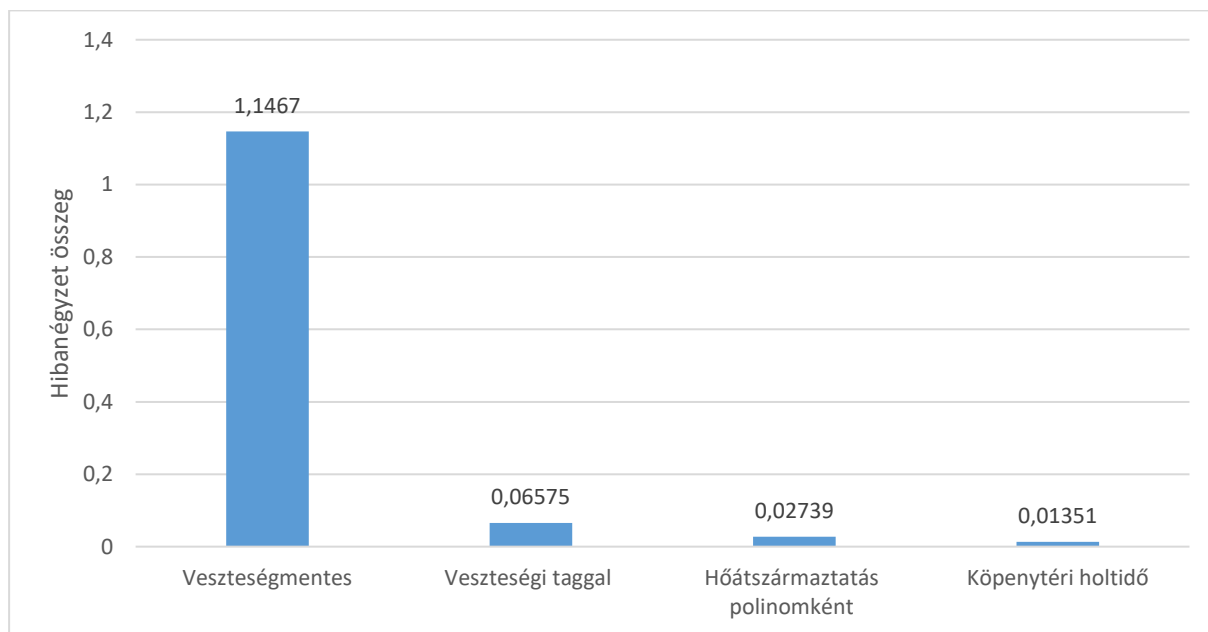
Paraméter	Értéke
a₁	6,338
b₁	0,06487
b₂	$4,841 \cdot 10^{-3}$
τ_Q	129,4 s
τ_2	98,93 s
Átlagos hibanégyzet	$3,465 \cdot 10^{-3}$



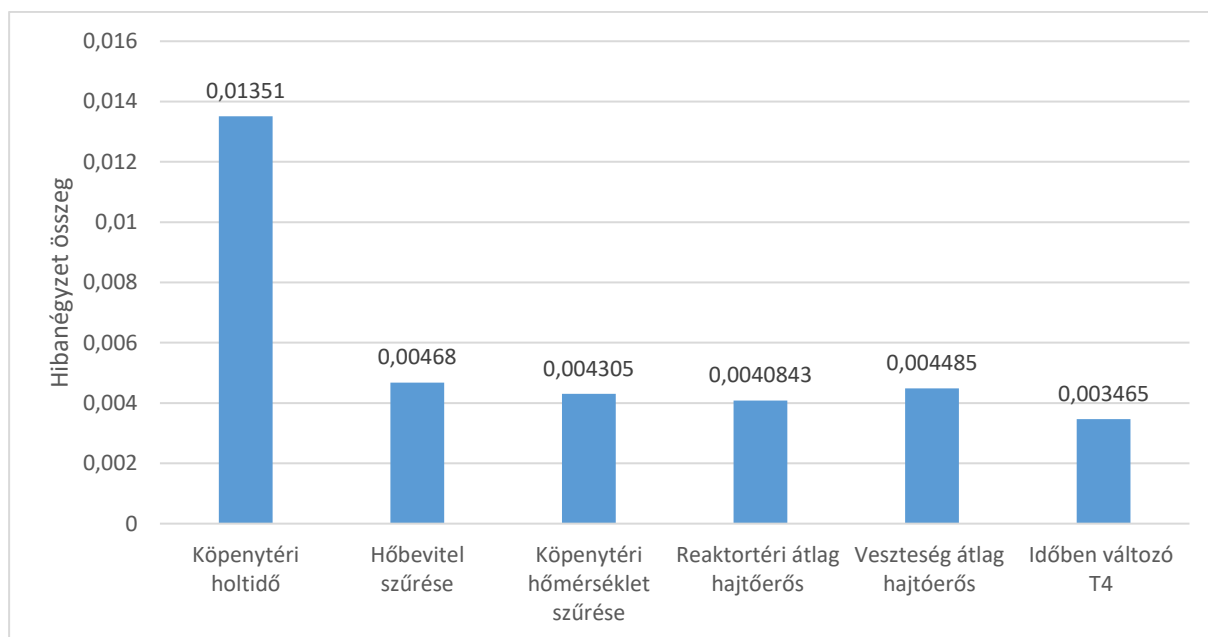
16. ábra: Időben változó T4 modell hőáram becslése.

4.10. Modellezés eredményeinek értékelése

A modell módosításának eredményeit a 17. ábra és 18. ábra mutatja be. Látható, hogy már a veszteségi tag megjelenése két nagyságrenddel javította a modell pontosságát, az ezt követő többi változtatás nem hozott hasonló javulást. Ez a tendencia egészen a hőbevitel szűréséig tartott, amikor is egy nagyságrendű javulás következett be, a többi módosítás a modellen már csak 5-15% csökkenést eredményezett a hiba mértékében. Ezért a munkám további részében az utolsóként kialakított, mért T4 hőmérsékletet is tartalmazó modellt használtam fel.



17. ábra: Változtatások hatása a hibanégyzet összegére.



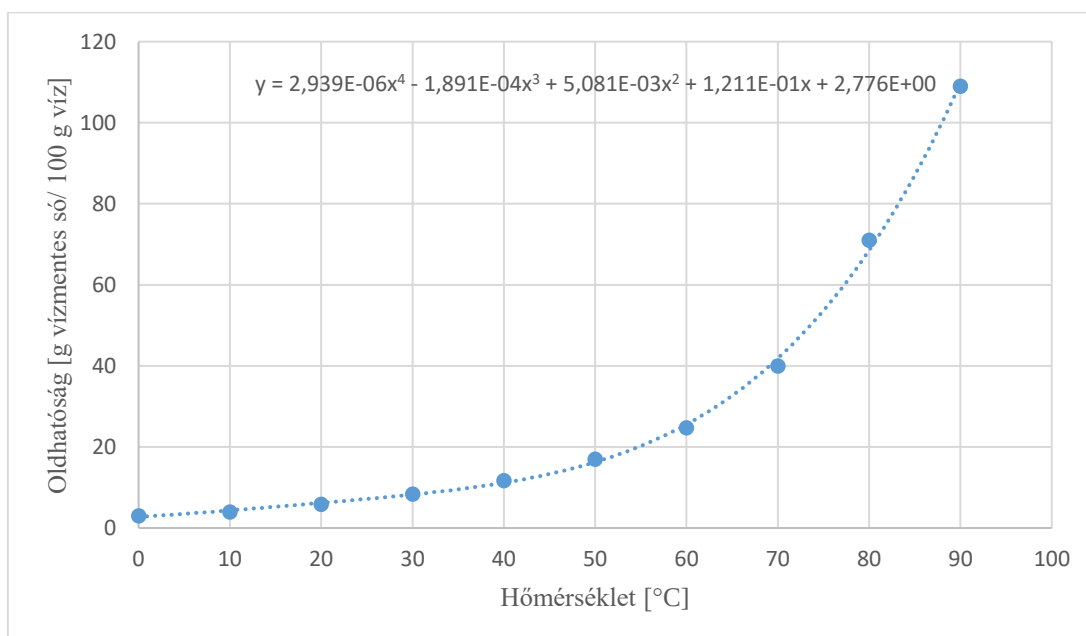
18. ábra: További változtatások hatása a hibanégyzet összegére.

4.11. Hőáram becslő modul irányítórendszerhez illesztése

A késznek tekintett modellt összekapcsoltam az irányítórendszerrel, ezáltal létrehozva egy online hőáram becslő megoldást. Ez a modul nem lett beépítve a szabályozást végző programba, hanem azzal párhuzamosan fut és a szabályozó program által kapott adatokat veszi át. Az adatok átvitele közvetlenül a GenieDAQ programból a hőáram becslésére szolgáló Simulink programba nem volt lehetséges, így ennek megoldását a Matrikon virtuális OPC kialakításra alkalmas szoftverével végeztem el. Az OPC szerverről ezután a Simulink OPC-vel kapcsolatot teremtő eleme átveszi az adatokat, majd (3) egyenlet $Q_{\text{fűtés}}$ (általános esetben Q) hőáramra rendezett alakját kiszámítja és az eredményt eltárolja. Az eddigi vizsgálatokkal azonos módon a hőáram számoló modul működésének tesztelése is víz mintaanyaggal történt.

4.12. Kristályosítási vizsgálatok elvégzése

A jó pontosságú modell kialakítása után lehetőség nyílt elkezdni egy kis hőárammal járó művelet vizsgálatát. A jelen munkában ez a művelet a kristályosítás volt, ehhez pedig a timsót ($\text{KAl}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12 \text{H}_2\text{O}$) választottam minta anyagnak, az oldat elkészítéséhez pedig szükséges volt meghatározni azt, hogy milyen hőmérsékleten telített oldaton történjenek meg a mérések. Az oldhatósági adatokhoz a Perry vegyészmérnök lexikonban lévő értékeket használtam fel, melyeket az illesztett görbével együtt a 19. ábra mutat be [17].

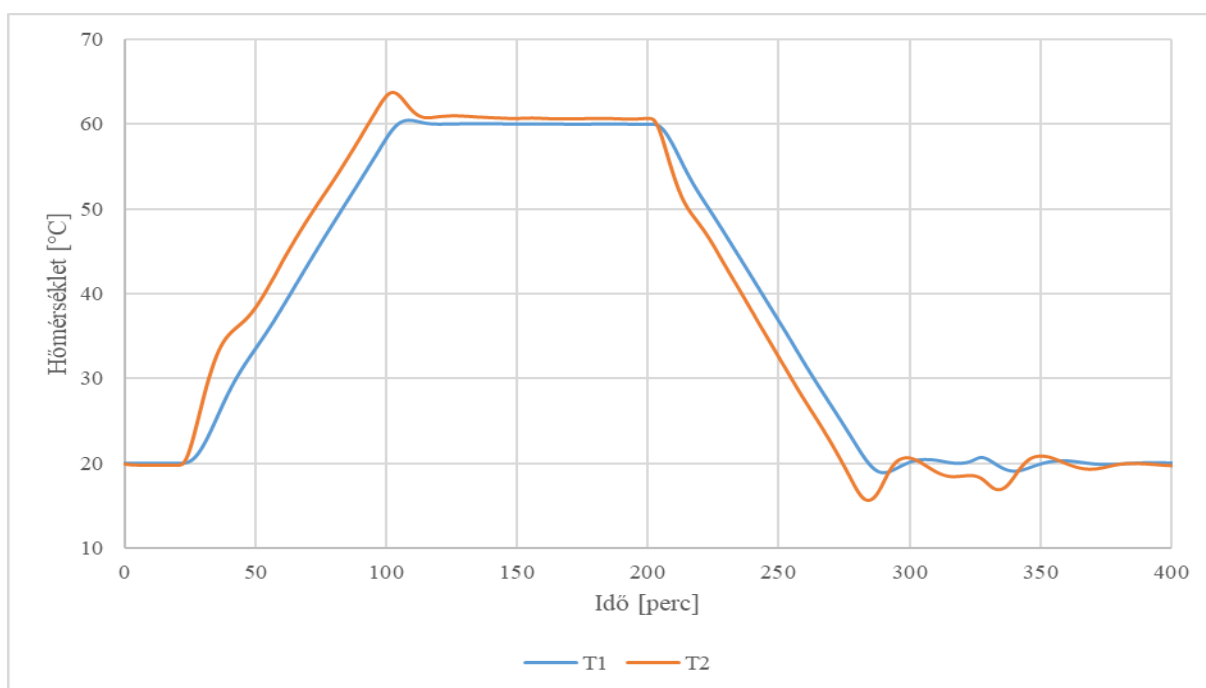


19. ábra: Timsó oldhatóságának hőmérséklet függése.

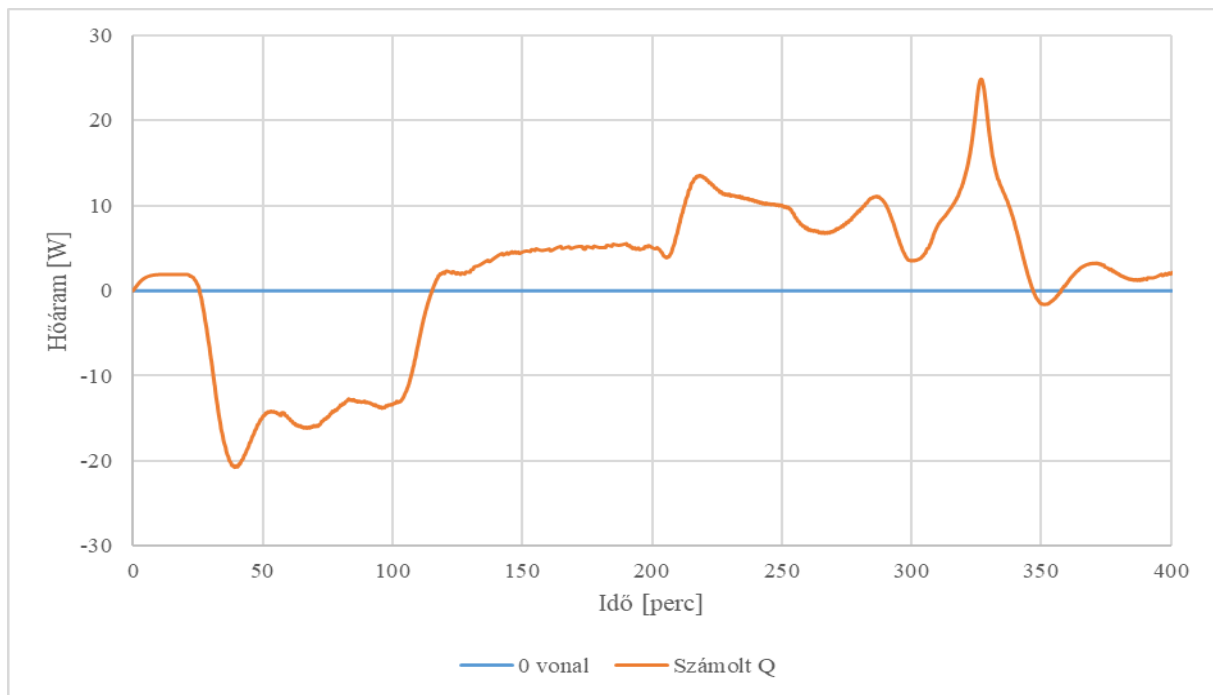
Az elkészített 1000 g oldat 50 °C-on telített, így 266,95 g kristályvizes sót tartalmazott. Az oldaton ezután melegítési és hűtési lépcsőkből álló mérések történtek, ezek közül egy mérés hőmérséklet és becsült hőáram eredményeit mutatja be a 20. ábra és a 21. ábra. A 21. ábra azt mutatja, hogy a felfűtés kezdetén megjelenő “tüske” nem szűnik meg, az oldási szakaszon végig negatív hőáramot becsül a modell. Ezzel ellentétesen a hűtési szakaszon a hőáram végig pozitív, ebből arra tudtam következtetni, hogy a timsó kristályosodása exoterm folyamat.

A munka során várható volt, hogy a kristályosítások során megjelenhetnek zavarások vagy szabályozási pontatlanságok, viszont a 20 °C hőmérsékletre visszahűtés után egy olyan jelenség zajlik le, amely láthatóan a köpenytér kilengését is magával vonta, éppen ezért megvizsgáltam hogy mi okozhatta azt. A tanszék egyik munkatársa egy kristályosodás vizsgálatához használt populációs modell kiértékelése során a 22. ábra által bemutatott hőáram eredményeket kapta [18]. A magyarázata a jelenségnek az, hogy a populációs modellben az egyszerűbb modellezés érdekében a gócképződés nem von magával hőfejlődést, viszont a gócnövekedés igen. Ennek alapján feltételezhető, hogy a valós mérésnél is a gyors gócnövekedés okozta a nagy hőáramot.

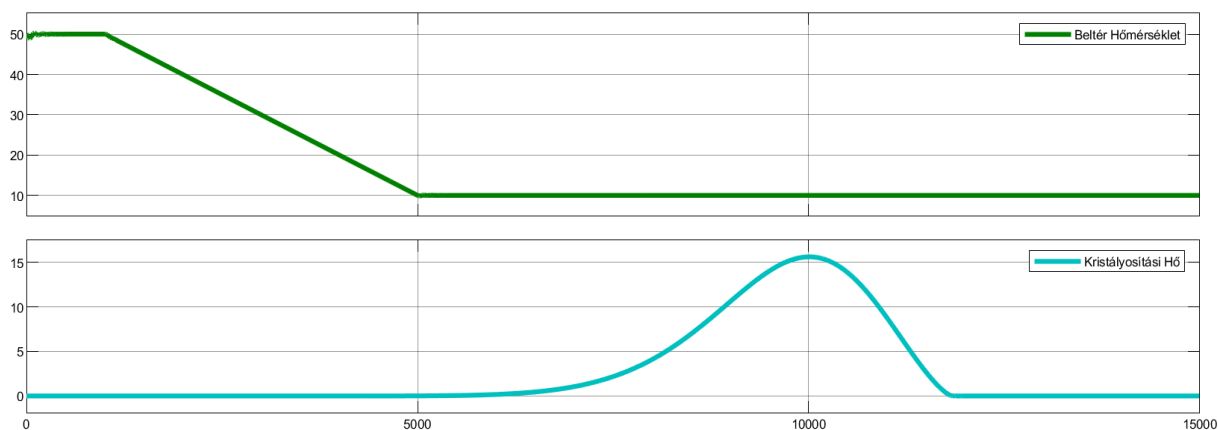
Az oldatot többféle sebességű hűtési profil mellett lehűtve kivehető volt az, hogy a megjelenő hőmérsékleti kilendülés nagysága és helye (a 20 °C-ra hűtéshez képest) függ a hűtési sebességtől. Ez a jelenség felvetette azt a kérdést, hogy lehetséges-e a kristályosodással kapcsolatos kinetikai paramétereket identifikálni a hőmérséklet vagy hőáram mérésén keresztül. Ennek meghatározására további vizsgálatokat kell majd folytatnom a jövőben.



20. ábra: Kristályosítási vizsgálat hőmérséklet diagramja.



21. ábra: Kristályosítási vizsgálat hőáram becslése.



22. ábra: Populációs modellel kapott hőáram becslés.

Az eredmények azt mutatják, hogy még további vizsgálatok szükségesek annak meghatározására, hogy a mérési eredményekből kapott mintázatok a modell pontatlanságából adódnak-e vagy pedig fizikai jelentéssel bírnak. Ehhez a jövőbeni tervek közé további kristályosítás követésére alkalmas módszerek tesztelése és alkalmazása, mint például kamera felvételek készítése, az oldat zavarosságának mérése és szemcseméret analízis.

5. Konklúzió

A kutatásom célja annak a vizsgálata volt, hogy lehetséges-e egy egyszerű, relatívan olcsó eszközökből álló reaktoron nagy pontossággal mérni fizikai-kémiai folyamatok hőhatásait. Ehhez először elvégeztem a szakirodalom áttekintését, mely többféle lehetséges működési elvet mutatott be, valamint szemléltette a reaktorok modellezésének lehetőségeit és kutatási irányait.

A gyakorlati tevékenységem kezdetén megalkottam a reaktortér kiindulási hőmérsékletét, amin végrehajtottam az első identifikációs vizsgálatot. Ennél a modellnél a numerikus hiba nagymértékű volt, így következő vizsgálatként kiegészítettem a mérleget a belső tér hővesztési tagjával, amely két nagyságrenddel csökkentette a hibát.

A hőmérséklet két hőátadási tagjának hőátaszármaztatási tényezőjét konstans érték helyett egy elsőfokú polinomként írtam fel, ezzel figyelembe véve az átadást befolyásoló hőmérsékletfüggő tényezők (pl. viszkozitás, sűrűség stb.) hatását. Az identifikált modellel sikerült kb. 3 Watt pontossággal becsülni a fűtőszállal bevitt hőáramot.

Következőként több identifikálási lépésben megvizsgáltam azt, hogy a rendszer egyes részeinek (a köpeny és a fűtőszál) termikus tehetetlensége mennyire befolyásolja a hőáram becslés pontosságát. Ehhez meghatároztam a köpenytéri hőmérséklet holtidejét, majd a fűtőszál szűrőjének, végül pedig a köpenytéri hőmérséklet szűrésének időállandóját. A köpenytéri holtidő egy nagyságrenddel csökkentette az átlagos hibát, viszont a szűrés alkalmazásával megszűnt a holtidős tag, de a bemutatott változtatásokkal sikerült 1 Watt alá csökkenteni a hibát minden fűtőszállal fűtött szakaszon emiatt a két szűrőt megtartottam a modellben.

A végső modell módosítások során megnéztem, hogyan befolyásolja a pontosságot az, ha a hőátaszármaztatási tényezők polinomjában nem T_1 szerepel, hanem az adott átadásra vonatkozó két oldal közötti átlagos hajtóerő. Ez a reaktor- és köpenytér közötti átadásnál javította, de a veszteségi tagnál rontotta a becslési pontosságot. Az utolsó változtatásnál a környezeti hőmérséklet értékét konstans helyett időben változónak vettem, ami jelentősen csökkentette a hiba mértékét.

A kész modellt ezután összekapcsoltam a reaktor szabályozó rendszerével, létrehozva egy online hőáram mérő programot. A reaktorban végrehajtottam egy kis hőárammal járó folyamatot (kristályosítás) annak érdekében, hogy meggyőződjek arról, hogy a gyakorlatban is használható-e a kidolgozott módszer. A kapott eredmények igazolják, hogy kisebb hőszínezettel járó folyamatok követésére is alkalmas.

6. Irodalomjegyzék

- [1] Meier, P. E. (dátum nélk.). The White Paper of Reaction Calorimetry. System Technik AG.
- [2] ZOGG, Andreas, et al. Isothermal reaction calorimetry as a tool for kinetic analysis. *Thermochimica acta*, 2004, 419.1-2: 1-17.
- [3] DE LUCA, Pierluigi Guerrini; SCALI, Claudio. Temperature Oscillation Calorimetry: Robustness analysis of different algorithms for the evaluation of the heat transfer coefficient. *Chemical engineering science*, 2002, 57.11: 2077-2087.
- [4] https://www.mt.com/dam/mt_ext_files/Editorial/Generic/2/wr_RXEForum_EU05_05_Editorial-Generic_1128071895431_files/eu05_05.pdf
- [5] PAUFLER, Sven, et al. Simple improvement of the sensitivity of a heat flux reaction calorimeter to monitor bioprocesses with weak heat production. *Thermochimica acta*, 2013, 569: 71-77.
- [6] XU, Qiyue; YE, Shuliang. Power oscillation calibration and its application in power compensation reaction calorimetry. *Thermochimica Acta*, 2023, 724: 179504.
- [7] FARD, Arash M. Zadeh, et al. Real-time multi-physical system identification and virtual sensing for a lab-scale chemical stirred tank using parallel estimators. *Chemical Engineering Journal*, 2024, 479: 147698.
- [8] KHODADADI, Hossein; JAZAYERI-RAD, Hooshang. Applying a dual extended Kalman filter for the nonlinear state and parameter estimations of a continuous stirred tank reactor. *Computers & chemical engineering*, 2011, 35.11: 2426-2436.
- [9] GANDHI, Ankit B.; JOSHI, Jyeshtharaj B. Estimation of heat transfer coefficient in bubble column reactors using support vector regression. *Chemical Engineering Journal*, 2010, 160.1: 302-310.
- [10] NIEDZWIEDZ, Malgorzata, et al. Hybrid batch reactor modeling and experimental evaluation of heat transfer process. In: *2017 22nd International Conference on Methods and Models in Automation and Robotics (MMAR)*. IEEE, 2017. p. 976-981.
- [11] GRAICHEN, Knut; HAGENMEYER, Veit; ZEITZ, Michael. Feedforward control with online parameter estimation applied to the Chylla–Haase reactor benchmark. *Journal of process control*, 2006, 16.7: 733-745.

- [12] JOHNSON, Michael; HEGGS, Peter J.; MAHMUD, Tariq. Assessment of overall heat transfer coefficient models to predict the performance of laboratory-scale jacketed batch reactors. *Organic Process Research & Development*, 2016, 20.2: 204-214.
- [13] JOHNSON, Michael, et al. A non-adiabatic model for jacketed agitated batch reactors experiencing thermal losses. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2021, 60.3: 1316-1325.
- [14] MÜLLER, Matthias, et al. Heat transfer characteristics of a stirred single-use bioreactor. *Biochemical engineering journal*, 2018, 140: 168-177.
- [15] RAHMAN, H. S.; HUNTER, T. N.; HEGGS, P. J. Simplified heat transfer model for highly active raffinate contained in buffer storage tanks. *Chemical Engineering Research and Design*, 2023, 190: 464-475.
- [16] REGESTEIN, Lars, et al. Comparison of two methods for designing calorimeters using stirred tank reactors. *Biotechnology and bioengineering*, 2013, 110.1: 180-190.
- [17] PERRY, R. H.; GREEN, D. W. Perry's Chemical Engineers' Handbook, 9th ed. New York: McGraw-Hill, 2018.
- [18] BALOGH, László, et al. Comparison of the Dynamic and Thermal Behavior of Different Ideal Flow Crystallizers. *ChemEngineering*, 2023, 7.2: 21.