



UNIVERSIDADE FEDERAL DE ALAGOAS - UFAL
CENTRO DE TECNOLOGIA – CTEC
ENGENHARIA QUÍMICA

JOSÉ DIEGO DA SILVA

**APRENDIZAGEM DE MÁQUINA APLICADA AO DESENVOLVIMENTO DE
SENSORES VIRTUAIS E NA DETECÇÃO E DIAGNÓSTICO DE FALHAS PARA
PROCESSOS QUÍMICOS REATIVOS EM LINGUAGEM PYTHON**

Maceió – AL

2022

JOSÉ DIEGO DA SILVA

**APRENDIZAGEM DE MÁQUINA APLICADA AO DESENVOLVIMENTO DE
SENSORES VIRTUAIS E NA DETECÇÃO E DIAGNÓSTICO DE FALHAS PARA
PROCESSOS QUÍMICOS REATIVOS EM LINGUAGEM PYTHON**

Trabalho de Conclusão de Curso apresentado ao curso de Engenharia Química da Universidade Federal de Alagoas, como requisito parcial para obtenção do título de Bacharel em Engenharia Química.

Orientador: Prof. Dr. Frede de Oliveira Carvalho

Maceió – AL

2022

Catálogo na fonte
Universidade Federal de Alagoas
Biblioteca Central
Divisão de Tratamento Técnico
Bibliotecária: Taciana Sousa dos Santos – CRB-4 – 2062

S586a Silva, José Diego da.

Aprendizagem de máquina aplicada ao desenvolvimento de sensores virtuais e na detecção e diagnóstico de falhas para processos químicos reativos em linguagem Python / José Diego da Silva. – 2022.

98 f. : il. color.

Orientador: Frede de Oliveira Carvalho.

Monografia (Trabalho de Conclusão de Curso em Engenharia Química)
– Universidade Federal de Alagoas. Centro de Tecnologia. Maceió, 2022.

Bibliografia: f. 72-75.

Apêndices: f. 76-98.

1. Indústria 4.0. 2. Sensores virtuais. 3. Aprendizagem de máquina. 4. Redes neurais artificiais. 5. Florestas aleatórias. 6. Python (Linguagem de programação de computador). I. Título.

CDU: 66.0

A Deus e aos meus pais.
Meus pilares, e minha esperança.

AGRADECIMENTOS

Em primeiro lugar, agradeço ao meu bom Deus, que esteve e está presente em todos os momentos de minha vida; especialmente em minha longa jornada acadêmica. Em momentos de dificuldade Ele me inspirou e me deu forças para continuar.

Aos meus pais, que me deram todo o apoio necessário para enfrentar as dificuldades.

A minha namorada, que me acompanhou durante todo o curso. Me ajudando, me aconselhando e me apoiando em cada decisão que tomei.

Aos meus amigos verdadeiros, que estenderam a mão e prestaram apoio.

Ao meu orientador, que prestou todo o suporte necessário, sempre estando a disposição e orientando melhorias no trabalho.

A todos os professores do curso, que contribuíram com minha formação.

“Feliz é o homem que acha sabedoria, e o homem que adquire entendimento.”

[Provérbios, 3:13]

RESUMO

Com o rápido avanço tecnológico, surgiu a chamada quarta revolução industrial, também conhecida como Indústria 4.0. Esta explora sistemas digitais e físicos, fazendo uso de tecnologias como a inteligência artificial estatística. Com a implementação dessas tecnologias, é possível melhorar a produtividade e reduzir os riscos operacionais. Nos processos químicos, por motivos econômicos e de qualidade, são atribuídos diversos sensores para observar e identificar certas variáveis de processo. Os sensores virtuais (*Soft Sensor*) surgem como alternativa às dificuldades atreladas aos sensores tradicionais. As falhas presentes nos processos industriais geram incerteza e instabilidade na segurança do processo e, como forma de contornar isso, pode-se fazer uso de ferramentas computacionais aplicadas com esse propósito. No contexto da indústria 4.0, a aprendizagem de máquina (*Machine Learning*) torna possível a construção de sensores virtuais e detectores automáticos de falhas, de modo que é possível identificar falhas de forma precoce e inferir uma variável de difícil medição. Este trabalho utiliza as técnicas de Rede Neural Artificial (*Artificial Neural Network*) e de Florestas Aleatórias (*Random Forest*), aplicadas para um processo reativo complexo em um CSTR, por meio de rotinas computacionais em Python. Os conjuntos de dados utilizados, foram resultados da modelagem matemática do sistema. Com o trabalho observou-se que um menor tempo amostral, beneficia as métricas de desempenho das técnicas aplicadas. Para a abordagem estabelecida, a Rede Neural Artificial desempenhou melhor resultado, na construção dos sensores virtuais. Já para a detecção e diagnóstico de falhas, as Florestas Aleatórias obtiveram melhores resultados. Por fim, pôde-se concluir que as ferramentas estudadas, são robustas e aplicáveis em sistemas reativos complexos, também são essenciais na formação do engenheiro químico, no contexto da indústria 4.0.

Palavras-Chave: *Soft Sensor*; *Machine Learning*; Indústria 4.0; Reações Complexas.

ABSTRACT

As a result of the fast technological progress, the fourth industrial revolution came about, also known as Industry 4.0. It explores digital and physical systems with the combination of different technologies such as artificial intelligence and statistics. With the implementation of these technologies, it's possible to improve productivity and reduce operational risks. In the chemical process, for economical and quality reasons, sensors are attributed to observe and identify process variables. Soft sensors are seen as an alternative option to the problems related to traditional sensors. The complexity of the industrial process generates uncertainty and instability in the accuracy of the process and with the aim of reducing this problem, the use and applicability of these computational tools are essential. In the Industry 4.0 context, machine learning makes possible the construction of soft sensors and automatic fault detectors. Due to them, it's achievable to identify the faults previously and measure difficult variables. This work makes the use of Artificial Neural Network and Random Forest applied in a CSTR complex reactive process through the computational tool Python. The database used was the result of math system modelling. The results showed good performance metrics of the technics applied with a shorter sample period. Better results were obtained, for the approach established, with the Artificial Neural Network in the construction of the soft sensors. For detection and faults analysis, Random Forest generated greater results. In conclusion, the tools studied are robust and applicable in complex reactive systems and they are also essential to chemical engineers who are progressively involved in the Industry 4.0 context.

Keywords: Soft Sensor; Machine Learning; Industry 4.0; Complex Reactions.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – Esquema do aprendizado supervisionado.	18
Figura 2 – Esquema de um neurônio biológico.	20
Figura 3 – Esquema de um neurônio artificial.	20
Figura 4 – Esquema de Perceptron Multicamadas.	22
Figura 5 – Esquema de uma Árvore de Decisão.	23
Figura 6 – Esquema das Florestas Aleatórias.	25
Figura 7 – Popularidade das linguagens de programação em maio de 2022.	26
Figura 8 – Perfil de interesse das palavras pesquisadas no Google.	26
Figura 9 – Fluxograma da primeira etapa do trabalho.	29
Figura 10 – Fluxograma da segunda etapa do trabalho.	29
Figura 11 – Fluxograma da terceira etapa do trabalho.	30
Figura 12 – Esquema do sistema reacional complexo.	31
Figura 13 – Esquema do sensor virtual	40
Figura 14 – Esquema de detecção e diagnóstico de falhas.	41
Figura 15 – Perfil dinâmico sem modificação e com a modificação A-02.	43
Figura 16 – Superfícies para T_0 a 298 K e a 550K.	45
Figura 17 – Superfícies para T_r	46
Figura 18 – Curva de concentração de C para três temperaturas.	47
Figura 19 – Superfícies para variação de temperatura.	48
Figura 20 – Curva de concentração de C em função da temperatura do fluido da jaqueta.	48
Figura 21 – Perfil dinâmico do modelo com os parâmetros de trabalho.	50
Figura 22 – Perturbações no estado estacionário para F_v	52
Figura 23 – Perfil dos dados gerados para tempo amostral de 3 s.	53
Figura 24 – Gráfico do ajuste do sensor virtual a RNA de melhor resultado.	56
Figura 25 – Perfil predição dinâmica para concentração de C com RNA.	57
Figura 26 – Perfil predição dinâmica para temperatura do reator com RNA.	58
Figura 27 – Gráfico do ajuste do sensor virtual o RF de melhor resultado.	62
Figura 28 – Perfil predição dinâmica para concentração de C com RF.	63
Figura 29 – Perfil predição dinâmica para temperatura do reator com RF.	63
Figura 30 – Matriz de confusão para RNA.	65
Figura 31 – Matriz de confusão para RF.	67

Figura E - 1 – Caso A-01.	89
Figura E - 2 – Caso A-03 e A-04.	89
Figura E - 3 – Caso A-05 e A-06.	90
Figura E - 4 – Caso A-07 e A-08.	90
Figura E - 5 – Caso A-09 e A-10.	91
Figura E - 6 – Caso A-11 e A-12.	91
Figura E - 7 – Caso A-13 e A-14.	92
Figura F - 1 – Perturbação em CA_0	93
Figura F - 2 – Perturbação em CB_0	93
Figura F - 3 – Perturbação em Fv_j	94
Figura F - 4 – Perturbação em T_0	94
Figura F - 5 – Perturbação em T_{j0}	95
Figura G - 1 – Perfil de dados 12 s.	96
Figura G - 2 – Perfil de dados 48 s.	97
Figura G - 3 – Perfil de dados novo conjunto de teste.	98

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Tendência do processo.....	44
Tabela 2 – Parâmetros usados para o estado de referência.....	49
Tabela 3 – Variáveis no estado estacionário.....	50
Tabela 4 – Tempos para atingir o novo estado estacionário.....	51
Tabela 5 – Métricas para RNA com amostragem de 3 s.	54
Tabela 6 – Métricas para RNA com amostragem de 12 s.	55
Tabela 7 – Métricas para RNA com amostragem de 48 s.	55
Tabela 8 – Desempenho RNA para regressão.	57
Tabela 9 – Métricas para RF com amostragem de 3 s.	59
Tabela 10 – Métricas para RF com amostragem de 12 s.	60
Tabela 11 – Métricas para RF com amostragem de 48 s.	61
Tabela 12 – Desempenho RF para regressão.....	62
Tabela 13 – Desempenho RNA para classificação.....	66
Tabela 14 – Principais métricas de desempenho na classificação usando RNA.	66
Tabela 15 – Desempenho RF para classificação.	68
Tabela 16 – Principais métricas de desempenho na classificação usando RF.....	68
Tabela A - 1 – Parâmetros para determinação do calor específico.....	76
Tabela A - 2 – Parâmetros para determinação da entalpia de formação gás.	77
Tabela A - 3 – Parâmetros para determinação da entalpia de vaporização 1.	77
Tabela A - 4 – Parâmetros para determinação da entalpia de vaporização 2.	78
Tabela A - 5 – Parâmetros para determinação da massa específica.	78

LISTA DE QUADROS

Quadro 1 – Funções de ativação para RNA.	21
Quadro 2 – Sistema reacional complexo.	30
Quadro 3 – Constantes cinéticas	32
Quadro 4 – Ferramentas computacionais utilizadas.	34
Quadro 5 – Perturbações para análise do perfil dinâmico.	35
Quadro 6 – Limites das variáveis de entrada.	36
Quadro 7 – Limites das variáveis de perturbação.	36
Quadro 8 – Falhas impostas.	37
Quadro 9 – Organização do conjunto de dados com 1 tempo de atraso.	39
Quadro 10 – Organização do conjunto de dados com 2 tempos de atraso.	39
Quadro 11 – Organização do conjunto de dados com 3 tempos de atraso.	39
Quadro 12 – Hiperparâmetros de busca para RNA.	42
Quadro 13 – Hiperparâmetros de busca para RF.	42
Quadro 14 – Melhores hiperparâmetros para RNA para regressão.	56
Quadro 15 – Melhores hiperparâmetros para RF para regressão.	61
Quadro 16 – Melhores hiperparâmetros para RNA para classificação.	64
Quadro 17 – Melhores hiperparâmetros para RF para classificação.	67

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	14
2	OBJETIVOS	16
2.1	Geral	16
2.2	Específicos	16
3	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	17
3.1	Indústria 4.0	17
3.2	Aprendizagem de Máquina.....	18
3.2.1	Rede Neural Artificial	19
3.2.2	Florestas Aleatórias	23
3.3	Linguagem Python.....	25
3.4	Sensor Virtual	27
3.5	Diagnóstico e Detecção de Falhas.....	27
3.6	Sistema Reativo Complexo	28
4	METODOLOGIA.....	29
4.1	Sistema Reativo Complexo	30
4.1.1	Construção do Modelo Matemático	31
4.1.1.1	<i>Propriedades Físico-Químicas e Cinética de Reação.....</i>	<i>31</i>
4.1.1.2	<i>Balanço de Massa.....</i>	<i>32</i>
4.1.1.3	<i>Balanço de Energia</i>	<i>33</i>
4.1.2	Implementação em Python	34
4.1.3	Estudo do Modelo Matemático.....	34
4.1.3.1	<i>Sensibilidade do Modelo</i>	<i>35</i>
4.1.3.2	<i>Parâmetros do Sistema Reacional Complexo</i>	<i>35</i>
4.1.4	Geração de Dados.....	36
4.1.4.1	<i>Dados Para o Sensor Virtual.....</i>	<i>36</i>
4.1.4.2	<i>Dados para Detecção e Diagnóstico De Falhas</i>	<i>37</i>

4.2	Sensor Virtual	38
4.3	Detecção e Diagnóstico De Falhas	40
4.4	Hiperparâmetros	41
5	RESULTADOS E DISCUSSÃO.....	43
5.1	Sistema Reativo Complexo	43
5.1.1	Sensibilidade do Modelo	43
5.1.1.1	<i>Parâmetros do Sistema Reacional Complexo</i>	<i>44</i>
5.1.2	Geração de Dados.....	51
5.2	Sensor Virtual	54
5.2.1	Rede Neural Artificial	54
5.2.2	Florestas Aleatórias	59
5.3	Detecção e Diagnóstico de Falha	64
5.3.1	Rede Neural Artificial	64
5.3.2	Florestas Aleatórias	66
6	CONCLUSÃO.....	70
	REFERÊNCIAS	72
	APÊNDICE A – Propriedade dos Compostos	76
	APÊNDICE B – Dedução Balanço de Massa	79
	APÊNDICE C – Dedução Balanço de Energia para o Reator	81
	APÊNDICE D - Dedução Balanço de Energia Para a Jaqueta Térmica.....	87
	APÊNDICE E – Perfis de Sensibilidade Dinâmica.....	89
	APÊNDICE F – Perfis Após Perturbação.....	93
	APÊNDICE G – Perfil dos Dados Gerados.....	96

1 INTRODUÇÃO

As indústrias têm passado por inúmeros melhoramentos na cadeia produtiva, ao longo dos anos desde sua concepção. Com as revoluções industriais sofridas nas últimas décadas, os processos químicos estão saindo de sistemas com pouca ou nenhuma automação para processos cada vez mais automáticos e inteligentes; sendo capazes de controlar, otimizar e até mesmo prever comportamentos e problemas futuros ligados a operação do processo. Esse conceito de integração industrial com o mundo digital é fruto da chamada Indústria 4.0, ou quarta revolução industrial (THIENEN et al., 2016).

O grande volume de dados proveniente de processos industriais tem corroborado por uma necessidade cada vez maior de processamento e análise dos dados para melhoramento operacional. Os métodos estatísticos tradicionais por vezes são limitados quando se trabalha com um número elevado de dados, principalmente quando resultam em problemas de comportamentos não lineares. Sendo assim, nas últimas décadas propõe-se o emprego de técnicas de aprendizagem de máquina, que é uma subárea da inteligência artificial capaz de resolver problemas complexos de forma computacional (ALLENDE-CID, 2019).

Se tratando de processos químicos, principalmente os processos de operação complexa e delicada, surge a necessidade do controle e de tomada de decisões de forma rápida e precisa. Para que o operador conheça o processo são empregados inúmeros dispositivos de sensores. Por conta da construção desses equipamentos sensores e por possuir limitações técnicas de aplicação, ou até mesmo por conta do custo relativo a operação, muitas das variáveis de processo não são medidas, ou são medidas com erros altos o suficiente para que não seja viável sua utilização. A depender do tipo da variável, a dificuldade de medição é elevada de tal forma que torna impraticável sua medição (LOTUFO; GARCIA, 2008).

A segurança operacional é de extrema importância em um processo industrial, pois além do fator econômico agregado, ainda existe a possibilidade de acidentes fatais, que são perdas irreparáveis. Por isso é imprescindível para a segurança do processo identificar e resolver possíveis erros ligados ao processo, que de forma direta ou indireta podem afetar a qualidade e a segurança do processo industrial (CACCAVALE et al., 2009). Alguns acidentes podem ser evitados caso sejam constatados indícios do surgimento do problema. Por esse motivo muitas empresas usam do conhecimento técnico dos operadores para que, com base na experiência profissional, sejam capazes de identificar o problema e fazer a manutenção antes do equipamento apresentar falhas.

Com a crescente demanda por uma produção otimizada, também cresce a utilização de técnicas de aprendizagem de máquina para resolução de problemas industriais no campo de dados. Tem-se o caso dos sensores virtuais, que são sensores que operam de modo digital e que são capazes de inferir variáveis de processos; fazendo isso de forma rápida, eficaz e barata. Também existe o emprego da aprendizagem de máquina no desenvolvimento de detectores de falhas, que também são capazes de diagnosticar a falha rapidamente mantendo a economia e a segurança do processo (CACCAVALE et al., 2009; LOTUFO; GARCIA, 2008).

Na implementação dos algoritmos de aprendizagem de máquina várias linguagens de programação podem ser utilizadas, porém o Python possui destaque por ser gratuito e ser uma das linguagens que mais crescem na atualidade. Além disso, sua robustez e grande acervo de bibliotecas são capazes de auxiliar o desenvolvedor a resolver e aplicar técnicas complexas, então muitas empresas o estão adotando como ferramenta operacional (CARBONNELLE, 2022; CAVALCANTE, 2018; PIATETSKY, 2019).

O engenheiro químico deve estar preparado para trabalhar com o conceito das indústrias 4.0 cada vez mais presente em sua área de atuação. Conhecimentos fundamentais como balanço de material e de energia são uma ferramenta poderosa nesse novo segmento tecnológico, pois a partir de modelagens matemáticas do processo é possível estudar comportamentos e fornecer dados para a aprendizagem de máquina; tornando-se um conjunto de ferramentas completo.

Com base nisso, este trabalho busca unir o conceito da indústria 4.0 com a engenharia química, utilizando-se da aprendizagem de máquina aplicada para o desenvolvimento de sensores virtuais e para detectores e classificadores automáticos de falhas para um sistema reativo complexo, utilizando a robustez e a versatilidade do Python.

2 OBJETIVOS

2.1 Geral

Elaborar modelos computacionais na linguagem Python, destinados para modelagem de um sistema reacional complexo para o desenvolvimento de sensores virtuais e para detecção e diagnóstico de falhas com o uso de técnicas de aprendizagem de máquina.

2.2 Específicos

- Estudar, desenvolver e implementar um modelo fenomenológico baseado no balanço de massa e de energia, que represente um sistema reativo complexo, utilizando um reator do tipo CSTR.
- Estudar e aplicar metodologias para desenvolvimento de sensores virtuais, utilizando Rede Neural Artificial e Florestas Aleatórias, implementadas em Python.
- Estudar e aplicar metodologias de detecção e diagnóstico de falhas utilizando Rede Neural Artificial e Florestas Aleatórias, implementadas em Python.
- Analisar os resultados obtidos confrontando as diferentes técnicas empregadas, assim como seus parâmetros utilizados.
- Adquirir conhecimento sobre as técnicas e metodologias empregadas.

3 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Para a execução deste trabalho é necessário o conhecimento prévio de alguns tópicos. Dessa forma serão abordados: a indústria 4.0; técnicas de aprendizagem de máquina, com ênfase na Rede Neural Artificial e nas Florestas Aleatórias; a linguagem Python, que servirá como plataforma para o desenvolvimento dos sensores virtuais e dos detectores automáticos de falhas, que também serão abordados. Por fim, será apresentado o sistema reacional complexo que será utilizado para o estudo de caso.

3.1 Indústria 4.0

Com a evolução dos computadores em dispositivos inteligentes, a computação onipresente está se tornando realidade; resultando na convergência entre o mundo físico e o virtual (KEGERMANN; WAHLSTER; HELBIG, 2013). Essa união ocorre através do estabelecimento de registros digitais que capturam informações do mundo físico para criar um mundo digital para então analisar e visualizar através de máquinas que estão interconectadas. A partir disso, esses registros geram e aplicam algoritmos de automação para traduzir as decisões e ações tomadas, interligando assim o mundo físico e o digital (THIENEN et al., 2016). A soma de todos esses fatores também é sentida pelas indústrias; sendo assim esta evolução tecnológica é descrita como o quarto estágio da industrialização, ou indústria 4.0 (KEGERMANN; WAHLSTER; HELBIG, 2013).

A indústria 4.0 traz consigo uma série de potenciais; como a flexibilidade, a tomada de decisão de forma otimizada, a produtividade e a eficiência de recursos. Por meio dela também será possível fazer com que as máquinas se adaptem aos humanos e não o contrário (KEGERMANN; WAHLSTER; HELBIG, 2013). No contexto da indústria química, a indústria 4.0 possibilita a melhoria da produtividade, redução de riscos e adição de receitas. Essas transformações na indústria ocorrem por meio da chamada fabricação inteligente, planejamento da cadeia de suprimentos, pesquisa e desenvolvimento e produtos e serviços inteligentes (THIENEN et al., 2016).

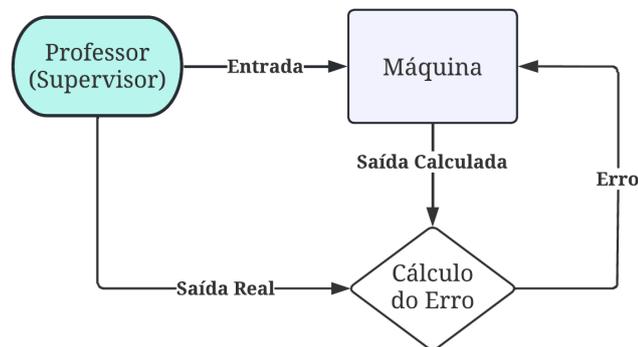
A indústria 4.0 possui nove pilares, dentre eles a *Big Data and Analytics*, que compreende de forma ampla a análise de dados; englobando assim a aprendizagem de máquina que é o eixo central desse trabalho (VAIDYA; AMBAD; BHOSLE, 2018).

3.2 Aprendizagem de Máquina

A aprendizagem de máquina é uma subárea da Inteligência Artificial também conhecida pelo termo em inglês *Machine Learning*, e refere-se a um algoritmo computacional que é capaz de executar uma determinada tarefa sem que necessariamente seja programada uma rotina computacional para produzir os resultados específicos. Para isso, esses algoritmos são automaticamente ajustados por meio de repetições até que se adaptem e se adequem da melhor forma para realizar a tarefa especificada. Para que ocorra esse auto ajuste existe a etapa de aprendizagem, que é conhecida como etapa de treinamento (ALLENDE-CID, 2019; EL-NAQA; MURPHY, 2015).

A etapa de treinamento é fundamental no algoritmo de aprendizagem de máquina e pode ter algumas classificações de acordo com a metodologia empregada. Dentre as diversas técnicas utilizadas pode-se citar o aprendizado supervisionado e o aprendizado não supervisionado. No aprendizado supervisionado, além dos dados de entrada, é fornecido as saídas correlacionadas por um supervisor externo também referido como professor (BRAGA; LUDERMIR; CARVALHO, 2000). Os algoritmos de aprendizado supervisionado são ainda classificados como algoritmos de classificação ou de regressão (ALLOGHANI et al., 2020). A Figura 1 esquematiza a metodologia do aprendizado supervisionado.

Figura 1 – Esquema do aprendizado supervisionado.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Já os algoritmos de aprendizado não supervisionado precisam apenas do conjunto de entrada, reconhecendo os padrões presentes nesse grupo; ou seja, não possuem supervisor externo. Eles são adequados para técnicas de agrupamento com base em padrões aparentes no conjunto de dados (ALLOGHANI et al., 2020; BRAGA; LUDERMIR; CARVALHO, 2000).

Dentre as variadas técnicas de aprendizagem de máquina pode-se citar a Rede Neural Artificial e as Florestas Aleatórias. No contexto da indústria 4.0, tanto a Rede Neural Artificial quanto as Florestas Aleatórias podem ser aplicadas no desenvolvimento de sensores virtuais; como apresentado nos trabalhos de Gonzaga et al. (2009), que usou a Rede Neural Artificial para inferência da viscosidade do polímero de PET ; e Guedes (2020), que por sua vez utiliza Rede Neural Artificial e Florestas Aleatórias para predição do teor de ferro presente no concentrado de minério de ferro resultante do processo de flotação. Também é possível o desenvolvimento de detectores de falhas, como presente no trabalho de Granzotto (2020) , que dentre as técnicas aplicadas utiliza Rede Neural Artificial; e no trabalho de Oliveira (2018), que faz uma aplicação robusta detalhada em vários processos da indústria química. Já nos trabalhos de Yang, Di e Han (2008), e Noshad et al. (2019) podem ser vistas aplicações de Florestas Aleatórias na detecção de falhas. No trabalho de Han et al. (2017) os autores comparam Rede Neural Artificial, *support vector machine* e Florestas Aleatórias na detecção de falhas buscando analisar o desempenho delas.

3.2.1 Rede Neural Artificial

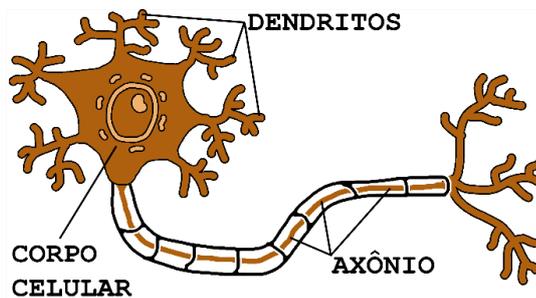
As Redes Neurais Artificiais (RNAs) possuem alguns aspectos e características bem particulares. Para Haykin (2001), as RNAs podem ser definidas como um processador constituído de unidades de processamento simples paralelamente distribuídos; sendo cada célula computacional utilizada nas RNAs denominadas de “neurônios”.

As RNAs são semelhantes ao cérebro humano, adquirindo conhecimento através de um processo de aprendizagem no qual pesos sinápticos são utilizados para armazenar conhecimento. Sua semelhança com o cérebro não é mera coincidência, pois foi a partir de observações biológicas que ocorreu a inspiração para o desenvolvimento das RNAs. Dentre os benefícios das RNAs está sua capacidade de generalização, ou seja, a rede neural é capaz de produzir saídas que se adequam às entradas que não estavam presentes no treinamento. Por esses e outros motivos as RNAs são muito atrativas para solucionar problemas complexos. (BRAGA; LUDERMIR; CARVALHO, 2000; HAYKIN, 2001).

No escopo da biologia, os neurônios são divididos em três seções: *o corpo da célula*, os *dendritos* e *o axônio* (Figura 2). Suas funções são únicas, porém complementares. Os dendritos recebem as informações na forma de impulsos nervosos, vindos de outros neurônios. As informações são conduzidas até o corpo celular, onde é processada, e novos impulsos são

gerados. Os novos impulsos são transmitidos a novos neurônios através dos axônios e o ciclo se repete. O ponto de contato entre o axônio de um neurônio com o dendrito de outro neurônio é chamado de *sinapse*. Logo, é por meio de sinapses que existe a união dos nodos de forma funcional, formando as chamadas redes neurais. As sinapses são responsáveis por transmitir ou não novos impulsos nos nodos da rede neural. Como o comportamento das sinapses é variável os neurônios são adaptáveis. Dessa forma, os sinais pré-sinápticos são passados para o corpo do neurônio pós-sinápticos, essa decisão ocorre com base na intensidade dos impulsos recebidos e, se suficientemente alto, é transmitido um novo impulso (BRAGA; LUDERMIR; CARVALHO, 2000).

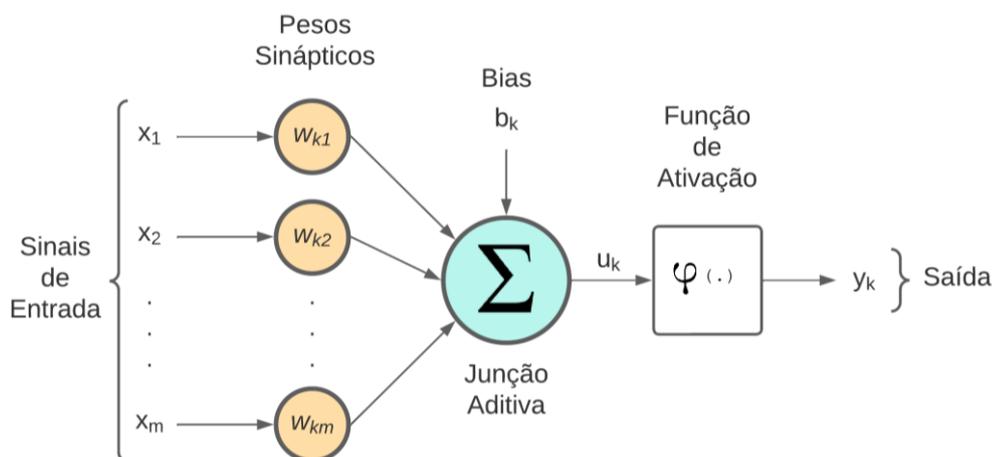
Figura 2 – Esquema de um neurônio biológico.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Semelhante ao neurônio biológico, temos o neurônio artificial (Figura 3); que é a unidade de processamento para operação de uma rede RNA. Ele também é constituído por três elementos básicos: um conjunto de sinapses, um somador e uma função de ativação (HAYKIN, 2001).

Figura 3 – Esquema de um neurônio artificial.



Fonte: Adaptado de Haykin (2001).

O conjunto de sinapses conta com peso próprio, sendo caracterizado por um sinal x_j na entrada da sinapse j , que é conectada ao neurônio k e é multiplicado pelo peso sináptico w_{kj} . (HAYKIN, 2001).

A junção aditiva, também chamado de somador, tem a função de somar os sinais de entrada de forma ponderada com base nas sinapses do neurônio; sua saída u_k é a saída do combinador linear (HAYKIN, 2001).

A função de ativação é responsável por restringir a amplitude da saída de um neurônio. Por esse motivo é chamada de *função restritiva*. Também existe o termo *bias*, que é aplicado externamente. Na prática esse termo é responsável por aumentar ou diminuir a entrada líquida da função de ativação. Dessa forma o uso do bias b_k tem efeito de aplicar uma transformação afim à saída u_k . Temos então o conceito de campo local induzido ou potencial de ativação v_k (HAYKIN, 2001).

Observando a Figura 3, matematicamente pode-se escrever o neurônio da seguinte forma:

$$u_k = \sum_{j=1}^m w_{kj}x_j \quad (1)$$

$$v_k = u_k + b_k \quad (2)$$

$$y_k = \varphi(v_k) \quad (3)$$

A função de ativação, como já apresentada, define a saída do neurônio em termos do campo local induzindo v_k (HAYKIN, 2001). Dentre as funções de ativações, podemos citar as mais comuns, que são apresentadas no Quadro 1 (RASAMOELINA; ADJAILIA; SINC~AK, 2020; REBOUÇAS, 2011).

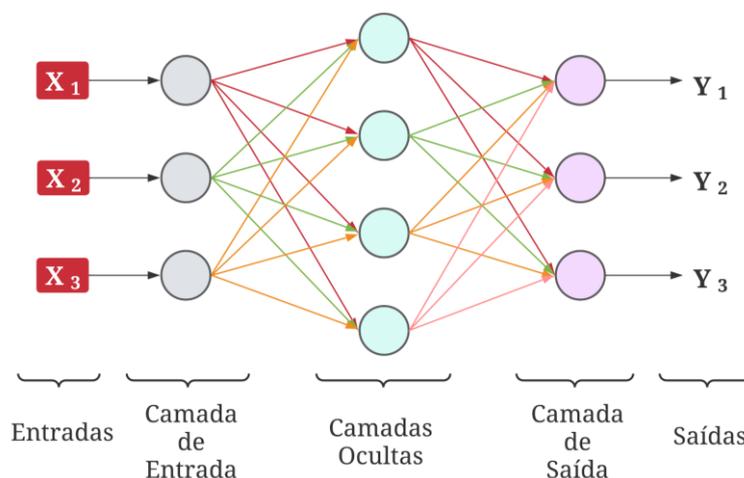
Quadro 1 – Funções de ativação para RNA.

Função de Ativação	
Linear (Identidade)	$f_l(x) = x$
Sigmoidal	$f_s(x) = \frac{1}{1 + e^{-x}}$
Tangente Hiperbólica	$f_t(x) = \tanh(x) = \frac{1 - e^{-x}}{1 + e^{-x}}$
Linear por partes (ReLU)	$f_R(x) = \max(0, x)$

Fonte: Adaptado de Rasamoelina, Adjailia e Sinc~ak, (2020) e Rebouças (2011).

Dentre os diferentes tipos RNAs, uma das mais comuns e completas é a Perceptron Multicamadas (do inglês *Multilayer Perceptron – MLP*). Assim como o nome indica, possuem múltiplas camadas denominadas de *camadas de entrada*, *camadas ocultas* e *camadas de saída* (Figura 4). A MLP é a forma generalizada de perceptron de única camada (HAYKIN, 2001). Diferentemente da rede perceptron de uma camada, que resolve apenas problemas linearmente separáveis, a MLP é utilizada na solução de problemas não linearmente separável por meio do uso de uma ou mais camadas intermediárias, também chamadas de ocultas (BRAGA; LUDERMIR; CARVALHO, 2000). Por esses motivos a MLP é uma ótima escolha por sua simplicidade e capacidade de aplicação nas mais variadas áreas. Além disso, a configuração da MLP torna esse tipo de rede conhecida como *feedforward*, pois as informações em fluxo sempre são orientadas da camada de entrada em direção a camada de saída, não existindo realimentação (REBOUÇAS, 2011; SILVA; SPATTI; FLAUZINO, 2016).

Figura 4 – Esquema de Perceptron Multicamadas.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Por sua versatilidade, a MLP tem destaque em várias áreas de aplicação, como na aproximação universal de funções, reconhecimento de padrões, identificação e controle de processos, previsão de séries temporais e otimização de sistemas. Por esse motivo que esse trabalho utiliza a MLP (SILVA; SPATTI; FLAUZINO, 2016).

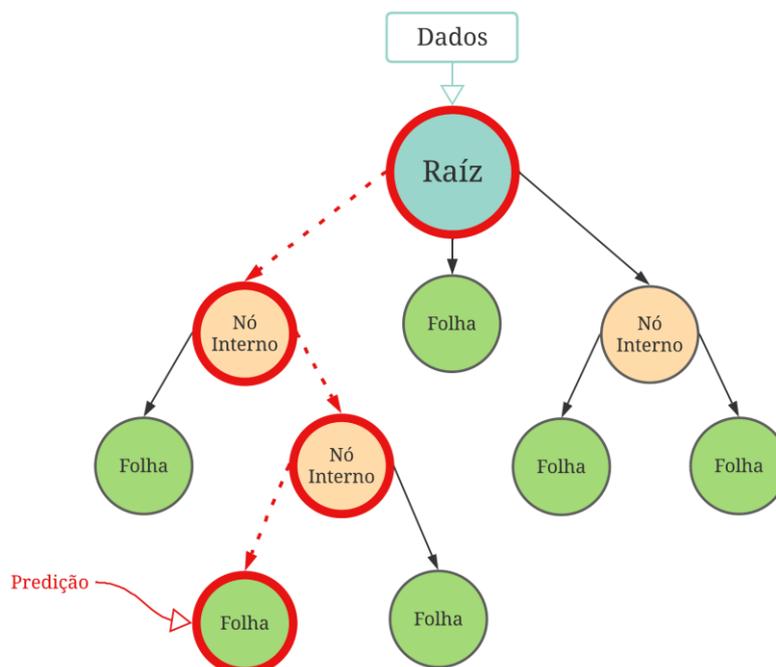
A MLP possui treinamento supervisionado, pois o ajuste dos pesos e do limiar de cada neurônio é realizado utilizando os dados de entrada e saída desejada. Esse processo de treinamento ocorre utilizando algoritmo de *backpropagation*, também conhecido como algoritmo de retropropagação do erro; sendo esse algoritmo um dos responsáveis pela popularidade da MLP (SILVA; SPATTI; FLAUZINO, 2016).

3.2.2 Florestas Aleatórias

As Florestas Aleatórias, do inglês *Random Forest* (RF) ou ainda Florestas Randômicas, é um classificador que une uma coleção de classificadores de Árvores de Decisão, do inglês *Decision Tree* (DT) (BREIMAN, 2001). O RF pode ser aplicado em problemas de classificação com problemas de decisão binária e em problemas de regressão, ou seja, quando o resultado for contínuo. O tipo de arranjo traz alguns benefícios: o RF possui melhor desempenho com menor variância e evita a tendência do *overfitting* (termo inglês para quando o modelo se ajusta muito bem aos dados de treino, porém é incapaz de prever saídas para novos dados), quando comparado com árvores de decisão individuais (BUSKIRK, 2018).

Para entender o RF é imprescindível o entendimento sobre as Árvores de Decisão. Árvores de Decisão é uma técnica popular e de fácil entendimento, porém possui limitação quanto sua robustez. Uma DT é composta por um nó raiz, que recebe o conjunto de dados de entrada. Nesse ponto os dados são consecutivamente divididos até que não seja mais possível dividi-los. A divisão nos nós ocorre com base em critérios predefinidos, de forma a separar subconjuntos de dados. Os nós resultantes que não são mais divididos recebem o nome de folhas e são as respostas previstas pela DT. A depender do tamanho da DT, existe inúmeros nós intermediários que são chamados de nós internos e desempenham função de subdivisões intermediárias (GUEDES, 2020). A Figura 5 traz um exemplo de estrutura de uma DT.

Figura 5 – Esquema de uma Árvore de Decisão.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

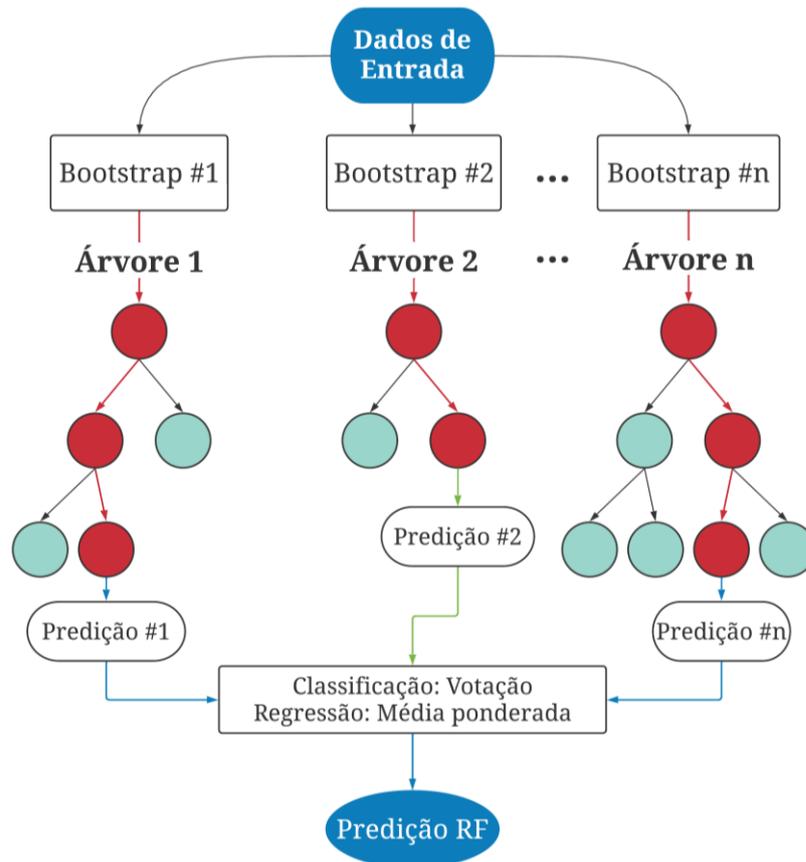
As Florestas Aleatórias fazem parte de um tipo de método denominado de *Ensemble*, que são métodos que reúnem algoritmos de aprendizagem de máquina mais simples e os combinam. Nesses métodos, suas previsões são correlacionadas por pesos ponderados. Assim, no geral, esses métodos apresentam maior eficiência do que os métodos que os originaram. No caso do algoritmo de RF, é um *ensemble* de DT menores (DIETTERICH, 2000).

Para o desenvolvimento de algoritmos *ensemble*, podemos citar as principais técnicas sendo: *bagging*, *boosting* e *stacking*. O termo *Bagging* é derivado de *bootstrap aggregation*, onde essa técnica considera vários subconjuntos para treino de igual tamanho, porém com geração de forma aleatória a partir do conjunto inicial. A geração dos subconjuntos pode conter amostras compartilhadas ou não, ou seja, a geração pode ser com reposição ou sem reposição. Isso implica que determinadas amostras podem aparecer em duplicidade ou até mesmo podem ser desconsideradas nos subconjuntos de treino.

A técnica *boosting* lida com problemas em que é necessário escolher uma estratégia mais adequada para a dada situação a partir da combinação de estratégias pouco precisas. Nessa técnica, são atribuídos pesos a cada exemplo, sendo que os exemplos que apresentam maior dificuldade na classificação possuem maiores pesos do que os exemplos de maior facilidade de classificação. Por fim, temos o *stacking*, que nada mais é do que uma técnica mista heterogênea (*ensemble* heterogêneo), ou seja, combina diferentes algoritmos de classificação; ao contrário das duas técnicas citadas anteriormente. Nessa técnica, classificadores diferentes predizem as classes que servem de entrada para o novo classificador (meta-classificador) que irá predizer a classe final (DIETTERICH, 2000; MURRUGARRA-LLERENA, 2011).

O RF é derivado da técnica de *bagging*, sendo assim podemos resumir o algoritmo com base na Figura 6.

Figura 6 – Esquema das Florestas Aleatórias.



Fonte: Adaptado de Han et al. (2017).

3.3 Linguagem Python

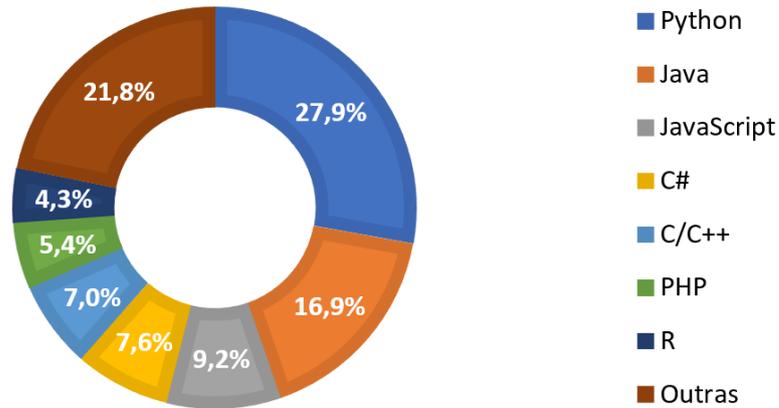
O Python é uma linguagem de programação que normalmente é usada em funções de script. É naturalmente uma linguagem flexível de vastas aplicações. Possui a capacidade de ser utilizado para completar tarefas rapidamente, se tornando uma linguagem atrativa (LUTZ; ASCHER, 2007).

O *PYPL Index* (CARBONNELLE, 2022) traz uma classificação de popularidade baseada na frequência de pesquisas no *Google trends*, onde compara a maioria das linguagens de programação da atualidade. A Figura 7 traz um gráfico indicando a classificação dos primeiros sete colocados, onde é nítida a popularidade do Python no ano em questão.

O sucesso do Python está atrelado principalmente as suas características técnicas particulares. Dentre elas podemos citar que o Python é uma linguagem poderosa, principalmente quando tratamos de ferramentas e bibliotecas. Também pode-se atribuir ao Python a facilidade de aprendizado e de uso, sendo uma linguagem de fácil compreensão. Por fim, o Python é inteiramente gratuito, com uma extensa comunidade que ajuda de forma

colaborativa e online no desenvolvimento da linguagem; mantendo-a atualizada e cada vez mais robusta (LUTZ; ASCHER, 2007).

Figura 7 – Popularidade das linguagens de programação em maio de 2022.

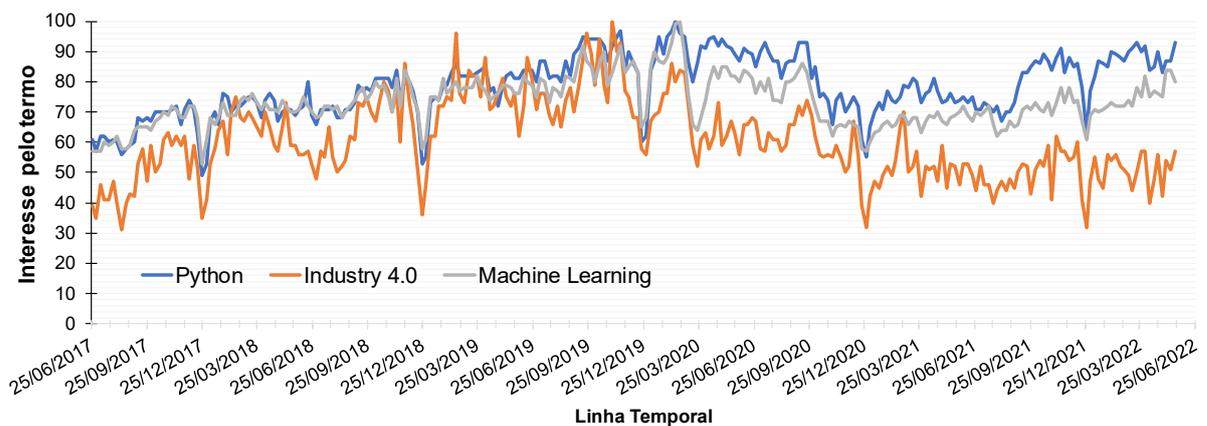


Fonte: Adaptado de Carbonnelle (2022).

Dentro do escopo da ciência de dados, segundo dados da 20ª pesquisa anual de software *KDnuggets* (PIATETSKY, 2019), em 2019 o Python continua liderando sobre seus concorrentes como uma das 11 plataformas preferidas para este fim.

A Figura 8 mostra um gráfico com base nos dados do Google Trends (2022), no qual é avaliado o interesse do público com base nas palavras-chave em questão; que são os tópicos centrais deste trabalho. Para entendimento: o eixo-y varia de 0 a 100, sendo 100 o pico de popularidade, ou seja: 50 significa que o termo está com metade da popularidade na semana em questão.

Figura 8 – Perfil de interesse das palavras pesquisadas no Google.



Fonte: Adaptado de Google Trends (2022).

3.4 Sensor Virtual

Sensor virtual (do inglês *Soft Sensor*), é o termo usado para definir um software que tem a capacidade de processar diversas medições. Por meio de entradas conhecidas, esse software infere um valor para uma determinada variável de processo que não é mensurada. Assim, é capaz de estimar variáveis que são difíceis ou até impossíveis de serem medidas em tempo real (GUEDES, 2020). Dentre as técnicas empregadas em sensores virtuais destacam-se as Redes Neurais Artificiais, reconhecidas por terem grande potencial na execução das tarefas complexas (GONZAGA et al., 2009).

Os sensores são de fundamental importância na instrumentação industrial, possibilitando automação, monitoramento e controle da planta. Porém, os sensores físicos estão sujeitos a erros de medição, disponibilidade do fabricante e confiabilidade. Também pode ocorrer atrasos na medição e sua inserção pode causar interferência no processo, além de o seu preço geralmente ser elevado. Por esses e outros motivos, os sensores virtuais surgem como uma alternativa promissora e eficaz, que opera de forma computacional sem estar conectado fisicamente ao processo (LOTUFO; GARCIA, 2008). O desenvolvimento de sensores virtuais pode ser aplicado a aprendizagem de máquina, que torna os sensores robustos e adaptáveis.

3.5 Diagnóstico e Detecção de Falhas

A detecção de falhas é uma importante ferramenta em processos químicos, pois as falhas ocorridas podem afetar a produtividade e até mesmo a segurança do processo. As principais falhas no processo geralmente são decorrentes de falhas do atuador, falhas de processo e falhas de sensores. Conseqüentemente surge a necessidade do emprego de detectores e classificadores automáticos de falhas (CACCAVALE et al., 2009).

Brandão (2010) apresenta uma definição de falha, que define que o termo “falha” que vem do inglês *fault*, sendo o afastamento de um limite dito aceitável de uma determinada variável que é observada, ou de algum parâmetro calculado que seja associado ao processo. Chen e Patton (1999) conceitua e diferencia o defeito (do inglês *failure*) da falha (do inglês *fault*), sendo a falha um desvio em uma determinada propriedade do sistema, já o defeito provoca uma interrupção permanente do sistema.

Para o funcionamento do detector de falhas empregam-se algoritmos de diagnósticos que buscam falhas com base no conhecimento de dados históricos ou de modelos. Podendo ser

empregado o uso de aprendizagem de máquina para contornar os problemas ligados de modelagem matemática (CACCAVALE et al., 2009).

3.6 Sistema Reativo Complexo

Para reações múltiplas, consecutivas e paralelas dá-se o nome de reações complexas. Dentre os reatores empregados em um sistema reacional, pode-se usar o reator do tipo CSTR (do inglês *Continuous-Stirred Tank Reactor*), um reator de escoamento contínuo também chamado de reator de retro mistura, que na maioria das vezes em processos industriais é operado em estado estacionário considerado perfeitamente misturado (FOGLER, 2009).

Para o presente trabalho, estuda-se um sistema reativo complexo formado por cinco compostos e três reações paralelas (RUSSEL; DENN, 1972, apud INGHAM et al., 2007), cujos compostos são nomeados neste trabalho genericamente de A, B, C, D e E. Esse tipo de reação recebe a classificação de complexa por conta de seu arranjo que combina simultaneamente reações em série e reações em paralelo (FOGLER, 2009).

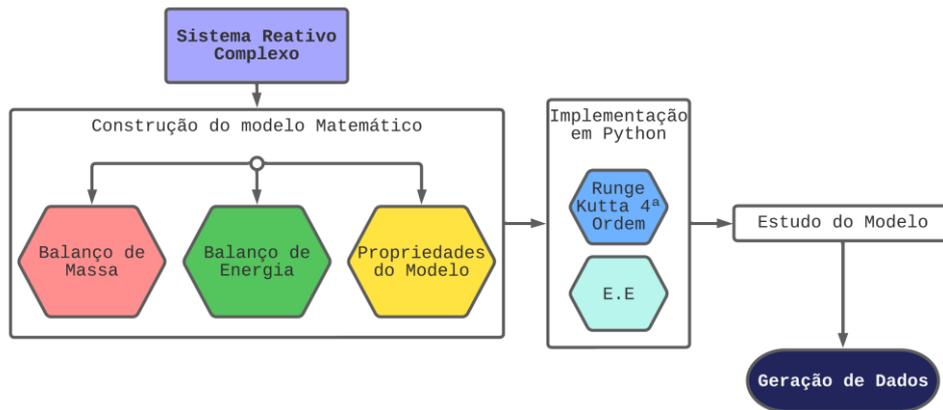
Esse sistema reacional é trabalhado por diversos autores na literatura, principalmente nas áreas de simulação e controle. Entretanto, em sua maioria, os autores limitam-se à reação isotérmica, como encontrado nos trabalhos de Zelinka, Vojtesek e Oplatkova (2006) e Vojtesek, Prokop e Dostal (2017). Estes fazem uma abordagem de controle para o sistema usando um CSTR. Kanse, Dhanke e Thombare (2012) realizam modelagem e simulação também em um CSTR. O trabalho de Sun et al. (2011) traz uma abordagem de modelagem mais criteriosa, onde os autores consideram a dependência da temperatura. No trabalho são salientadas algumas observações importantes sobre os parâmetros reacionais, a respeito da proporção de A e de B, concluindo que essa proporção deve satisfazer o melhor custo benefício levando-se em conta o gasto energético e preço de mercado dos produtos. Já o trabalho de Shvets et al. (2005) utiliza o sistema com um reator tubular de leito fixo para o processo catalítico.

Por se tratar de um processo industrial, é de fundamental importância o conhecimento dos parâmetros reacionais em tempo real para o melhor controle e a otimização da produção do composto de interesse. Aplica-se, portanto, a aprendizagem de máquina, de modo que torne possível o conhecimento e o monitoramento desses parâmetros mencionados. Tornando possível, assim, a identificação de falhas do processo que possam prejudicar a segurança e o rendimento do sistema reativo.

4 METODOLOGIA

Para melhor entendimento, a execução desse trabalho foi subdividida em três blocos. O primeiro deles é nomeado como a construção do modelo fenomenológico (Figura 9), objetivando a modelagem e simulação do sistema reativo complexo para geração de dados que serve de suporte na aprendizagem de máquina.

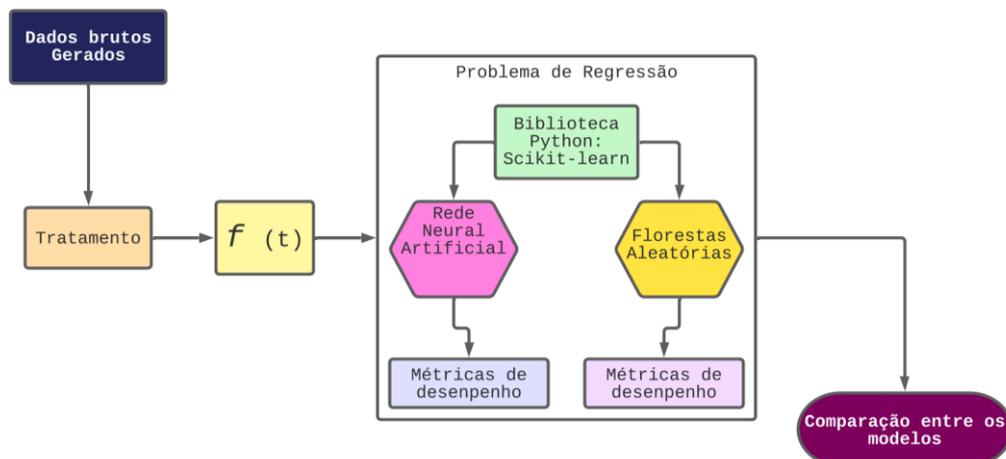
Figura 9 – Fluxograma da primeira etapa do trabalho.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

O segundo bloco é a construção dos sensores virtuais (Figura 10) que utilizam séries temporais para inserção da variável tempo, tornando as técnicas capazes de predição futura das variáveis controladas. Nesse bloco também é estabelecido os critérios de análise e comparação das técnicas empregadas, usando a análise quantitativa baseada em métricas de desempenho disponíveis no conjunto de ferramentas em Python.

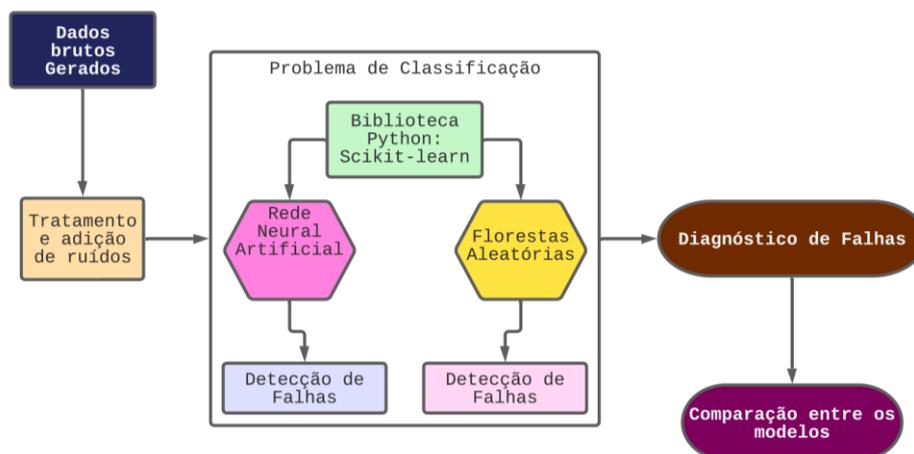
Figura 10 – Fluxograma da segunda etapa do trabalho.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

O terceiro bloco tem-se a utilização das técnicas de aprendizagem de máquina aplicada na detecção e no diagnóstico de falhas (Figura 11). A partir de um conjunto de dados gerados por uma rotina computacional em Python que escabece falhas nas variáveis de processo do sistema reacional complexo, observando falhas recorrente no aspecto industrial de processos químicos. Assim como no bloco anterior, é utilizado métricas disponíveis para comparação qualitativa e quantitativa de desempenho entre as técnicas utilizadas.

Figura 11 – Fluxograma da terceira etapa do trabalho.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

4.1 Sistema Reativo Complexo

Foi estabelecido o sistema reativo complexo referente a produção industrial de monoetilenoglicol, com as reações e respectivos compostos definidos e identificados conforme o Quadro 2.

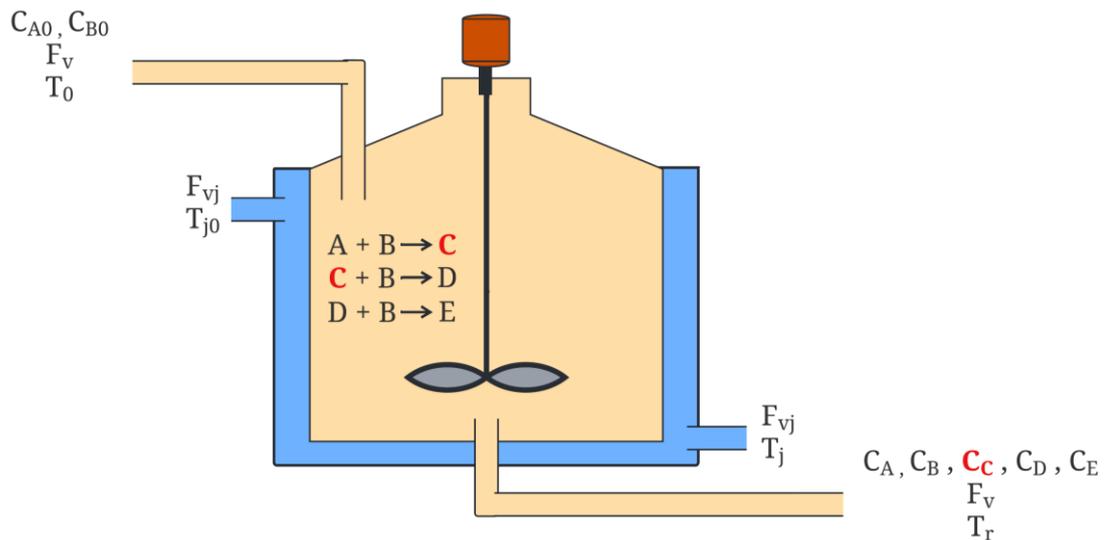
Quadro 2 – Sistema reacional complexo.

Compostos		Reações	
Composto	Identificação do Composto	Reação	Identificação da Reação
A	Água	$A + B \xrightarrow{k_1} C$	r_1
B	Óxido de Etileno	$C + B \xrightarrow{k_2} D$	r_2
C	Monoetilenoglicol	$D + B \xrightarrow{k_3} E$	r_3
D	Dietilenoglicol		
E	Trietilenoglicol		

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

O sistema reativo complexo em estudo (Figura 12) é composto por uma corrente de alimentação de vazão volumétrica F_v , contendo A de concentração molar C_{A0} , e B de concentração molar C_{B0} , em temperatura T_0 . Alimenta-se o reator do tipo CSTR com sistema de controle de temperatura através de uma jaqueta de troca térmica, cujo fluido alimentado tem vazão volumétrica F_{vj} e temperatura T_{j0} .

Figura 12 – Esquema do sistema reacional complexo.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

4.1.1 Construção do Modelo Matemático

O modelo matemático serve de plataforma para simulação computacional do sistema reativo e conseqüentemente para a geração do conjunto de dados. Então, para a construção de um modelo computacional robusto e confiável, estuda-se o sistema no estado transiente e não isotérmico, ou seja: o sistema é modelado levando em consideração que suas propriedades são funções de temperatura e que variam no tempo.

4.1.1.1 Propriedades Físico-Químicas e Cinética de Reação

As constantes cinéticas das reações (Quadro 3) são estabelecidas conforme o trabalho de Altiokka e Akyalçin (2009), que determinaram as constantes de forma empírica.

Quadro 3 – Constantes cinéticas

Reação	Constantes cinéticas	Unidades
r_1	$k_1 = e^{\left(13,62 - \frac{8220}{T}\right)}$	$\frac{L}{(mol \cdot min)}$
r_2	$k_2 = e^{\left(15,57 - \frac{8700}{T}\right)}$	$\frac{L}{(mol \cdot min)}$
r_3	$k_3 = e^{\left(16,06 - \frac{8900}{T}\right)}$	$\frac{L}{(mol \cdot min)}$

Fonte: (ALTIOKKA; AKYALÇIN, 2009).

Prezando pela robustez do modelo, adota-se as demais propriedades dependentes da temperatura. Sendo o calor específico (C_p), a entalpia de formação (ΔH_f°), e a massa específica (ρ), com todas as propriedades mencionadas calculadas para cada composto; por meio de correlações específicas fornecidas pelos autores Coker (2007), Yaws (2003) e Green e Perry (2007). Para tornar a leitura mais dinâmica, as correlações matemáticas, bem como seus coeficientes, são apresentadas detalhadamente no Apêndice A.

4.1.1.2 Balanço de Massa

O balanço de massa para o sistema reativo complexo em estudo pode ser obtido no trabalho de Vojtesek, Prokop e Dostal (2017). A fim de aplicar o conhecimento adquirido durante a graduação, optou-se por seguir a metodologia de dedução estabelecida por Fogler (2009). A dedução detalhada encontra-se no Apêndice B com as respectivas considerações.

O balanço de massa por componente para o reator CSTR no estado dinâmico resulta nas equações:

$$\frac{dC_A}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{A0} - C_A) - C_A \cdot C_B \cdot k_1 \quad (4)$$

$$\frac{dC_B}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{B0} - C_B) - C_A \cdot C_B \cdot k_1 - C_C \cdot C_B \cdot k_2 - C_D \cdot C_B \cdot k_3 \quad (5)$$

$$\frac{dC_C}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{C0} - C_C) + C_A \cdot C_B \cdot k_1 - C_C \cdot C_B \cdot k_2 \quad (6)$$

$$\frac{dC_D}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{D0} - C_D) + C_C \cdot C_B \cdot k_2 - C_D \cdot C_B \cdot k_3 \quad (7)$$

$$\frac{dC_E}{dt} = \frac{F_v}{V}(C_{E0} - C_E) + C_D \cdot C_B \cdot k_3 \quad (8)$$

4.1.1.3 Balanço de Energia

O balanço de energia em sistemas reativos complexos em estado transiente não é detalhado na graduação. Logo, com o objetivo de aplicar e aprimorar o conhecimento na área, optou-se por desenvolver o balanço em detalhes a partir de metodologias proposta por Fogler (2009). Foram necessárias algumas modificações, tendo em vista que o balanço proposto pelo autor faz algumas simplificações, como a consideração que as propriedades físico-químicas são isotérmicas; o que não é o caso nesse trabalho, que considera que as propriedades variam com a temperatura. A dedução detalhada para o balanço de energia do reator considerando a troca térmica com a jaqueta e a energia produzida pelas reações químicas é apresentado no Apêndice C. Em conjunto também é realizada a dedução detalhada da jaqueta térmica disponível no Apêndice D.

O balanço de energia para o reator CSTR resulta na Equação 9, sendo o índice i o composto e w a reação.

$$\frac{dT_r}{dt} = \frac{-F_v \sum_i^n \left[C_{i0} \left(\int_{T_0}^T C_{pi} dT \right) \right] + \dot{Q} + V \sum_w^3 [\Delta H_{rw} (-r_w)]}{V \sum_i^n [C_i C_{pi}]} \quad (9)$$

O balanço de energia para a jaqueta térmica acoplada ao reator resulta na Equação 10, sendo considerado a água como fluido da jaqueta térmica.

$$\frac{dT_j}{dt} = \frac{-\rho F_{vj} \frac{1}{MM} \left(\int_{T_{j0}}^{T_j} C_p dT \right) + \dot{Q}}{m_j \frac{1}{MM} C_p} \quad (10)$$

Sendo a energia de troca térmica definida pela Equação 11.

$$\dot{Q} = U \cdot A_r (T_j - T_r) \quad (11)$$

4.1.2 Implementação em Python

Desenvolveram-se códigos com rotinas computacionais implementadas em Python. No contexto geral do trabalho, utilizaram-se as ferramentas computacionais descritas no Quadro 4. Dentre as técnicas utilizadas, o Runge-Kutta de 4ª ordem foi utilizado através da biblioteca *SciPy* para integração numérica das equações diferenciais do modelo. Para a análise depois que o sistema atinge estado estacionário, foram utilizados os modelos específicos de solução de sistemas não lineares presentes no *SciPy*.

Quadro 4 – Ferramentas computacionais utilizadas.

		Referências
Linguagem de Programação	<i>Python</i> - 3.10.4	-
Bibliotecas Python	<i>SciPy</i> - 1.8.0	(VIRTANEN et al., 2020)
	<i>Matplotlib</i> - 3.5.1	(HUNTER, 2007)
	<i>NumPy</i> - 1.22.3	(HARRIS et al., 2020)
	<i>Scikit-learn</i> - 1.0.2	(PEDREGOSA et al., 2011)
Editor do código	<i>Visual Studio Code</i> - 1.67.2	-

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

O estado estacionário de um sistema ocorre quando não existe variação das variáveis observadas no tempo à medida em que $t \rightarrow \infty$. Matematicamente, isso ocorre quando $\frac{\partial(\cdot)}{\partial t} = 0$.

No escopo da aprendizagem de máquina utilizou-se a biblioteca *Scikit-learn* que possui as técnicas de RNA e RF implementadas, além de possuir métricas específicas para determinação quantitativa do desempenho das técnicas.

A biblioteca *NumPy* foi utilizada como auxílio, pois possui funções matemáticas e manipulação de matrizes. Já o *Matplotlib* foi utilizado na geração de todos os gráficos para observação visual dos resultados.

4.1.3 Estudo do Modelo Matemático

4.1.3.1 Sensibilidade do Modelo

Algumas das variáveis de processo para o sistema reativo complexo em estudo não são disponíveis na literatura consultada (ENGELL; KLATT, 1993; VOJTESEK; PROKOP; DOSTAL, 2017). Para contornar isso, as vazões volumétricas e as temperaturas a princípio são definidas na proximidade da literatura consultada. Contudo esses parâmetros são motivo de estudo nesse trabalho nas próximas sessões então, por agora, servem apenas de referência fixa para verificar a sensibilidade do modelo.

São realizadas modificações suficientemente altas nas principais variáveis atreladas ao processo (Quadro 5), para que seja observada se existe modificação do perfil dinâmico do mesmo, a fim de evitar erros de modelagem.

Quadro 5 – Perturbações para análise do perfil dinâmico.

Identificação													
Variável													
Modificação													
A-01	A-02	A-03	A-04	A-05	A-06	A-07	A-08	A-09	A-10	A-11	A-12	A-13	A-14
F_v	F_v	F_{vj}	F_{vj}	T_0	T_0	T_{j0}	T_{j0}	C_{A0}	C_{A0}	C_{B0}	C_{B0}	U	U
+50%	-50%	+50%	-50%	+100K	-100K	+100K	-100K	+50%	-50%	+50%	-50%	-90%	-99%

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

4.1.3.2 Parâmetros do Sistema Reacional Complexo

Verificado que o modelo é sensível as modificações das variáveis de processo, é necessário determinar os parâmetros de trabalho. A literatura consultada não possui esses valores para operação transiente não isotérmica portanto, para não inserir erros na etapa de aprendizagem de máquina, optou-se por realizar um estudo sobre o impacto das variáveis de processo nas variáveis controladas (C_c e T_r) quando atingem o estado estacionário.

O estudo foi realizado observando dois aspectos: o primeiro deles é que o sistema deve resultar em valores estáveis sem erros numéricos, o segundo é a observação de maiores valores da concentração de C.

Com esse objetivo, isolou-se e definiu-se cada uma das variáveis (Vazões e Temperaturas) com o auxílio de tabelas e gráficos, sempre priorizando regiões sem tendências a erros numéricos.

4.1.4 Geração de Dados

4.1.4.1 Dados Para o Sensor Virtual

O tempo de amostragem implica diretamente na qualidade da representação do perfil dinâmico, então seguiu-se as recomendações do autor Meleiro (2002). Ele relata que o tempo de amostragem não deve ser muito pequeno, pois pode provocar problemas ligados ao condicionamento numérico. Por outro lado, para o tempo muito elevado, existem perdas da informação dinâmica do processo; tornando o conjunto de dados não representativo. Então para definir o tempo de amostragem o autor recomenda estudos da dinâmica do processo para diferentes entradas e perturbações.

Também se observou a recomendação de Cooper 2007 apud Silva (2014), que recomenda como uma boa prática que o tempo de amostragem não deve ser superior a 10% da constante de tempo do sistema.

Assim como no trabalho de Silva (2014) definiu-se três tempos de amostragem com o objetivo de avaliar seu impacto na predição das técnicas de aprendizagem de máquina.

Para as variáveis de entrada utilizou-se os limites estabelecidos no Quadro 6. Já para as variáveis de perturbação utilizou-se os limites estabelecidos no Quadro 7. Os limites foram escolhidos em torno do modelo de referência determinado para o sistema, dentro do limite julgado como razoável.

Quadro 6 – Limites das variáveis de entrada.

	Variáveis de Entrada		
Limites	$C_{A0}: (320: 480)$	$C_{B0}: (480: 720)$	$T_0: (453: 473)$
Unidade	mol/m^3	mol/m^3	K

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Quadro 7 – Limites das variáveis de perturbação.

	Variáveis de Perturbações		
Limites	$F_V: (0,00004975: 0,000199)$	$F_{Vj}: (0,0001: 0,01)$	$T_{j0}: (580,5: 600,5)$
Unidade	m^3/s	m^3/s	K

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Foram gerados três conjuntos de dados; um para cada tempo de amostragem. Na geração, é simulado uma operação dinâmica do sistema reacional complexo e à medida em que o tempo passa o algoritmo implementado em Python simultaneamente provoca perturbações e coleta as amostras. As perturbações são provocadas 50 vezes para cada variável individualmente com as demais constantes. Em seguida, foram provocadas 300 perturbações em todas as variáveis simultaneamente. Todas as perturbações são provocadas por modificações do tipo degrau dentro dos limites estabelecidos e de forma randômica.

4.1.4.2 Dados para Detecção e Diagnóstico De Falhas

Os dados são gerados de forma simulada por um algoritmo implementado em Python. Geraram-se apenas amostras com o tempo amostral de melhores métricas de desempenho, sendo que o algoritmo simula classes alternadas estabelecidas conforme o Quadro 8. As falhas são do tipo sensor e são escolhidas baseando-se em alguns problemas comuns para esse tipo de processo, conforme mencionado no trabalho de Oliveira (2018). Devido a capacidade de detectar e diagnosticar as falhas de forma simultânea, os dados possuem um conjunto sem alteração cuja classe é definida como “Normal” e cada uma das falhas recebe o número da falha que ocorreu.

Quadro 8 – Falhas impostas.

ID	Variável	Falha de Sensor	Estado
N-00	-	-	Normal
F-01	C_C] 0% até 100% [Falha: 01
F-02	T_r] 0% até 100% [Falha: 02
F-03	U] -99% até -90% [Falha: 03
F-04	C_{A0} e C_{B0}] 0% até 100% [Falha: 04
F-05	C_C e T_r	Simultâneas	Falha: 01 e 02
F-06	C_C, T_r, C_{A0} e C_{B0}		Falha: 01, 02 e 04
F-07	C_C, T_r e U		Falha: 01, 02 e 03
F-08	C_{A0}, C_{B0} e U		Falha: 03 e 04

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

O algoritmo foi pensado para gerar o mesmo número de amostras para cada uma das classes. Também foram consideradas falhas em apenas uma das variáveis de processo, como

também falhas em múltiplas variáveis. As falhas são simuladas no momento em que os dados são salvos, ou seja, para um conjunto de entradas a variável falha é multiplicada por um randômico que simula uma falha de sensor, ao mesmo tempo em que é estabelecida a classe “Falha” para a respectiva identificação.

4.2 Sensor Virtual

Realizou-se um tratamento prévio no conjunto de dados provenientes da etapa de geração de dados por alguns motivos que serão explanados no decorrer do texto. O sensor virtual proposto realiza predições em uma série temporal, ou seja, as variáveis são ordenadas no tempo.

Os conjuntos de dados foram modificados por um algoritmo que reordenou os pares de dados de tal modo que possibilitem o aprendizado da série temporal. Silva (2014) estudou o comportamento de predição com tempos atrasados aplicados a controladores preditivos, então realizou-se o estudo de com 1, 2 e 3 tempos atrasados objetivando observar o desempenho do sensor para o sistema reativo complexo em estudo.

As técnicas utilizadas (RNA e RF) permitem predições de apenas uma variável, ou também de múltiplas variáveis. Então, assim como nos trabalhos de Rebouças (2011) e Silva (2014), investiga-se o desempenho dos sensores virtuais para ambos os casos.

Além do pré tratamento no conjunto de dados brutos, realizou-se em seguida a separação em dois subconjuntos: um de “Treino” com 75% das amostras e um de “Teste” com 25% das amostras. Essa divisão é realizada com uma ferramenta da biblioteca *scikit-learn*, baseada em uma separação randômica das amostras, mantendo a representatividade.

A RNA necessita que os dados estejam padronizados, então executou-se para os dados em ambas as técnicas; já que não existe prejuízo para o RF. A padronização foi feita com a biblioteca *scikit-learn*, utilizando a ferramenta que torna o conjunto de dados com média zero e variância unitária.

Os Quadros 9,10 e 11 mostram a organização das variáveis para todos os casos que foram considerados para análise. Sendo as variáveis no tempo $t = k$ preditas com base nos dados atrasados nos tempos $t = (k - 1)$, $t = (k - 2)$ e $t = (k - 3)$.

Quadro 9 – Organização do conjunto de dados com 1 tempo de atraso.

Conjunto	Entrada – Atraso 1	Saída	Tipo
C1-1	$C_{A0}(k-1)$ $C_{B0}(k-1)$ $T_0(k-1)$	$C_C(k)$ $T_r(k)$	Múltipla
C1-2	$F_V(k-1)$ $F_{Vj}(k-1)$ $T_{j0}(k-1)$	$C_C(k)$	Única
C1-3	$C_C(k-1)$ $T_r(k-1)$	$T_r(k)$	Única

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Quadro 10 – Organização do conjunto de dados com 2 tempos de atraso.

Conjunto	Entrada - Atraso 2		Saída	Tipo
C2-1	$C_{A0}(k-1)$ $C_{B0}(k-1)$ $T_0(k-1)$	$C_{A0}(k-2)$ $C_{B0}(k-2)$ $T_0(k-2)$	$C_C(k)$ $T_r(k)$	Múltipla
C2-2	$F_V(k-1)$ $F_{Vj}(k-1)$ $T_{j0}(k-1)$	$F_V(k-2)$ $F_{Vj}(k-2)$ $T_{j0}(k-2)$	$C_C(k)$	Única
C2-3	$C_C(k-1)$ $T_r(k-1)$	$C_C(k-2)$ $T_r(k-2)$	$T_r(k)$	Única

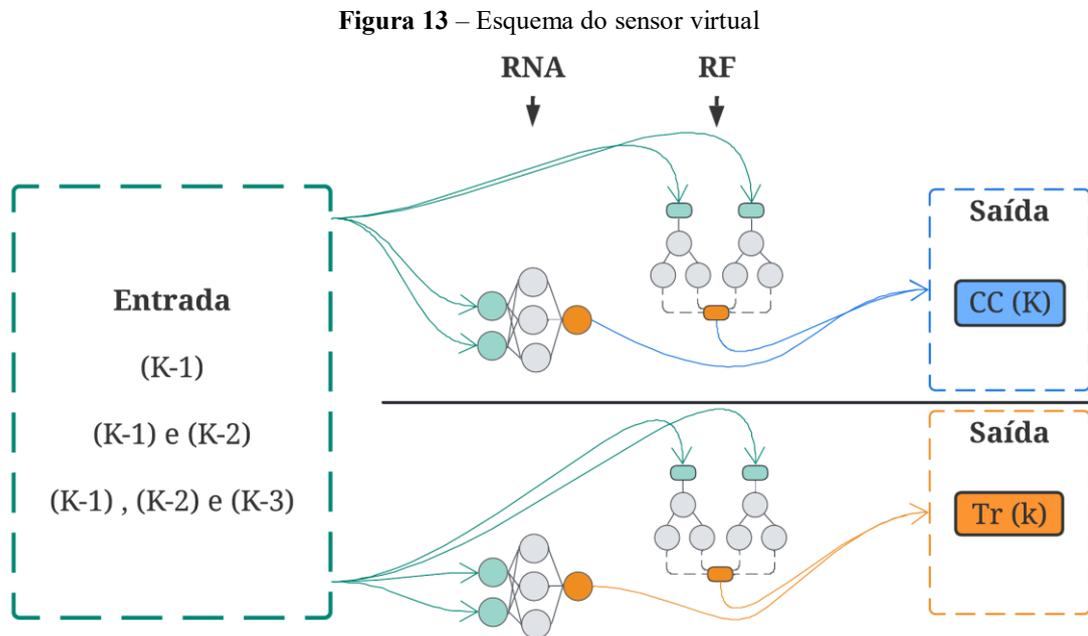
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Quadro 11 – Organização do conjunto de dados com 3 tempos de atraso

Conjunto	Entrada - Atraso 3			Saída	Tipo
C3-1	$C_{A0}(k-1)$ $C_{B0}(k-1)$ $T_0(k-1)$	$C_{A0}(k-2)$ $C_{B0}(k-2)$ $T_0(k-2)$	$C_{A0}(k-3)$ $C_{B0}(k-3)$ $T_0(k-3)$	$C_C(k)$ $T_r(k)$	Múltipla
C3-2	$F_V(k-1)$ $F_{Vj}(k-1)$ $T_{j0}(k-1)$	$F_V(k-2)$ $F_{Vj}(k-2)$ $T_{j0}(k-2)$	$F_V(k-3)$ $F_{Vj}(k-3)$ $T_{j0}(k-3)$	$C_C(k)$	Única
C3-3	$C_C(k-1)$ $T_r(k-1)$	$C_C(k-2)$ $T_r(k-2)$	$C_C(k-3)$ $T_r(k-3)$	$T_r(k)$	Única

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

O sensor virtual de saída única pode ser resumido na Figura 13, que mostra o procedimento para cada uma das técnicas utilizadas no caso a RNA e o RF. O sensor virtual com múltiplas saídas é análogo.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Para a avaliação quantitativa de desempenho do sensor virtual, utilizou-se as métricas de regressão disponíveis na biblioteca; sendo o R^2 , o erro absoluto médio (*Mean Absolute Error* – MAE) e o Erro percentual absoluto médio (*Mean Absolute Percentage Error* – MAPE).

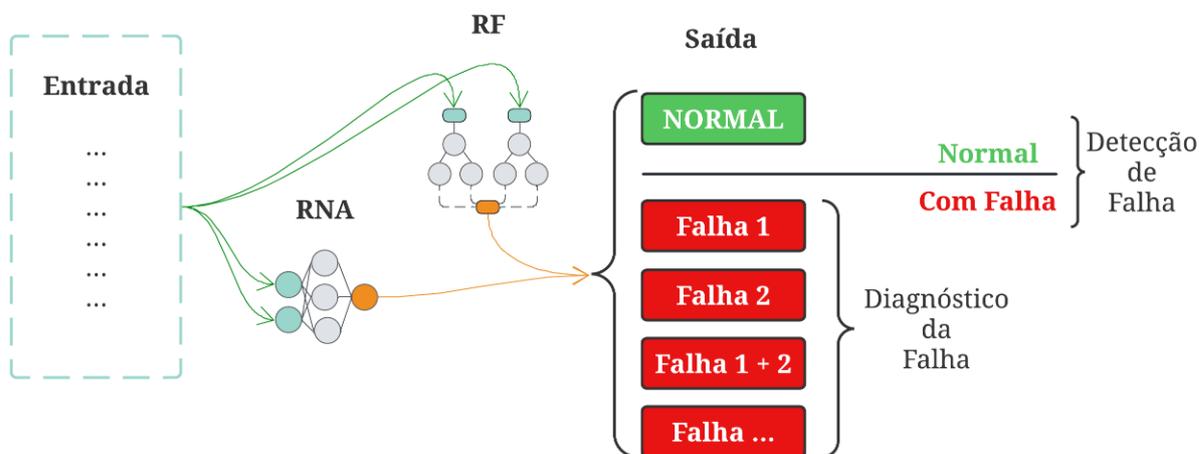
4.3 Detecção e Diagnóstico De Falhas

Diferente dos dados para o sensor virtual, realizou-se apenas a padronização dos dados, pois considerou-se que a ocorrência das falhas e a detecção acontece de forma simultânea para o mesmo instante de tempo. Os dados, portanto, não foram ordenados em série temporal, apesar da coleta dos dados ser realizado em regime dinâmico.

Realizou-se apenas a padronização dos dados de entrada, estabelecendo média zero e variância unitária. O conjunto de saída não necessitou de padronização, pois são os rótulos das classes. Assim como para o sensor virtual, utilizando o *Scikit-learn*, o conjunto de dados foi separado em dois subconjuntos: o de “Treino” com 75% das amostras e o de “Teste” com 25% das amostras.

A Figura 14 resume o procedimento de detecção e diagnóstico de falhas, trazendo também a diferenciação da detecção para o diagnóstico; que neste trabalho foi executado de forma simultânea.

Figura 14 – Esquema de detecção e diagnóstico de falhas.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Para a avaliação de desempenho, utilizou-se as métricas relativas a problemas de classificação, principalmente a matriz de confusão normalizada em relação ao número de acertos de classes preditas. Também se observa as principais métricas de desempenho que serão discutidas nos resultados.

4.4 Hiperparâmetros

O desempenho das técnicas de aprendizagem de máquina está intimamente ligado com os hiperparâmetros utilizados. Sendo assim, buscou-se os melhores hiperparâmetros para cada conjunto de dados analisados; usando como métrica de desempenho o R^2 para os regressores e a acurácia para os classificadores.

A biblioteca *Scikit-learn* permite o ajuste de vários hiperparâmetros, porém julgou-se necessário apenas modificar os hiperparâmetros listados nos Quadros 12 e 13 destacados em azul (PROBST; WRIGHT; BOULESTEIX, 2018). Os demais permaneceram padrão, com exceção do número máximo de iterações no caso da RNA que foi definido como 20000 iterações por tentativa e erro.

Os hiperparâmetros foram variados para ambos os problemas conforme o Quadro 12 para a RNA e conforme o Quadro 13 para o RF. No caso de classificação com a RNA no hiperparâmetro RNA-H1, utilizou-se apenas um dos conjuntos.

Quadro 12 – Hiperparâmetros de busca para RNA.

ID	Hiperparâmetro			
		Atraso 1 / [D. D. Falhas]	Atraso 2	Atraso 3
RNA-H1	<i>hidden_layer_sizes</i>	(8, (10, (20, (40,)	(16, (18, (36, (72,)	(24, (26, (52, (104,)
RNA-H2	<i>activation</i>	Identity; Logistic; Tanh; Relu		
RNA-H3	<i>solver</i>	Lbfgs; Sgd; Adam		
RNA-H4	<i>alpha</i>	0,0001; 0,01; 1		
RNA-H5	<i>learning_rate</i>	Constant; Invscaling; Adaptive		

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Quadro 13 – Hiperparâmetros de busca para RF.

ID	Hiperparâmetro			
		Atraso 1	Atraso 2	Atraso 3
RF-H1	<i>n_estimators</i>	50; 100; 500		
RF-H2	<i>min_samples_split</i>	2; 4; 16; 64; 256		
RF-H3	<i>min_samples_leaf</i>	1; 2; 4; 16; 64; 256		

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

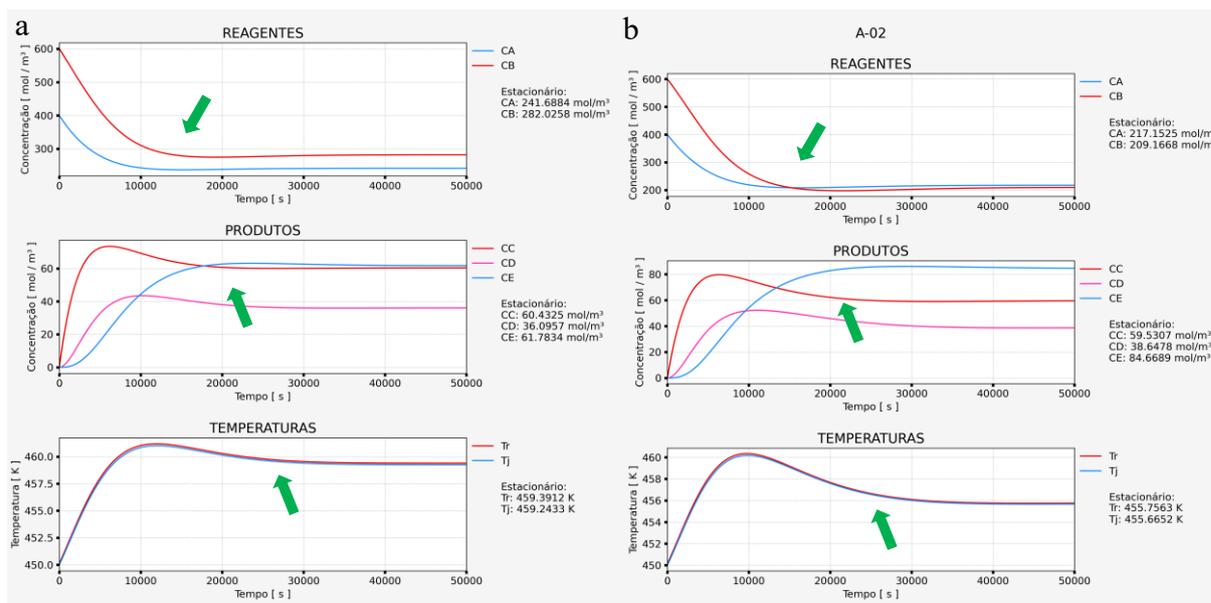
Os resultados são apresentados e comentados de forma simultânea, e estão organizados conforme a ordem de execução; formando uma linha de raciocínio e considerações interdependentes.

5.1 Sistema Reativo Complexo

5.1.1 Sensibilidade do Modelo

Avaliando-se as repostas dinâmicas do modelo desenvolvido, observa-se que, quando comparados os perfis com (Figura 15a) e sem alteração nas variáveis de processo (Figura 15b), os novos perfis apresentaram modificações no comportamento dinâmico para todas as modificações executadas. Em particular, a modificação A-02 apresenta o perfil mostrado na Figura 15b. Os demais perfis encontram-se no Apêndice E.

Figura 15 – Perfil dinâmico sem modificação e com a modificação A-02.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Com base nos perfis observados na Figura 15, pode-se afirmar que o modelo desenvolvido apresenta estabilidade quando sofre alterações em suas variáveis de processo. Isso nos mostra que o modelo é flexível a alterações dentro dos limites abordados. Essa estabilidade é importante principalmente na etapa de geração de dados para a aprendizagem de máquina,

pois um modelo pouco estável poderia inserir erros ligados a modelagem, provocando resultados inconclusivos.

5.1.1.1 Parâmetros do Sistema Reacional Complexo

A Tabela 1 apresenta resumidamente a tendência quando se observa os pontos de maior concentração de C em função das vazões volumétricas para uma dada temperatura inicial. Nela, observa-se que a temperatura da alimentação não exerce impacto significativo na concentração de C. Por outro lado, a temperatura do fluido da jaqueta possui impacto direto.

Tabela 1 – Tendência do processo.

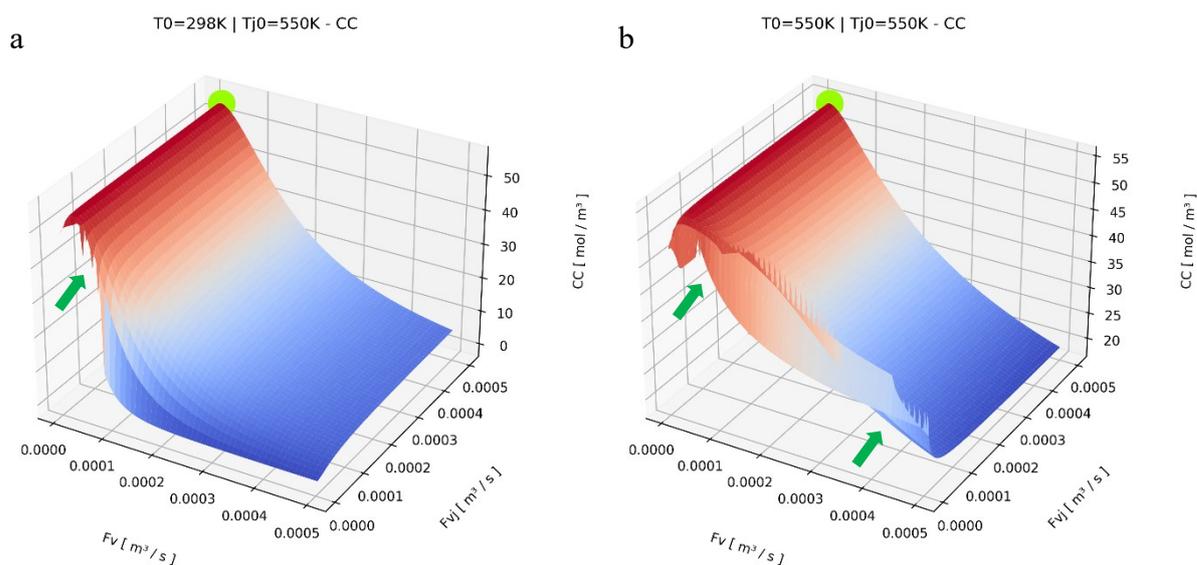
Nº	$T_0 [K]$	$T_{j0} [K]$	$F_v \left[\frac{m^3}{s} \right]$	$F_{vj} \left[\frac{m^3}{s} \right]$	$C_c \left[\frac{mol}{m^3} \right]$	$T_r [K]$
01	298	298	0,000005	0,000005	0,0069	298,0002
	298	350	0,000005	0,000500	0,4111	349,8973
	298	400	0,000005	0,000500	7,2102	399,8049
	298	450	0,000005	0,000500	40,6365	449,8686
	298	500	0,000005	0,000500	57,3388	500,4182
	298	550	0,000025	0,000500	54,2343	551,2754
02	450	298	0,000500	0,000005	0,1354	411,0005
	450	350	0,000005	0,000005	0,4906	352,5609
	450	400	0,000005	0,000005	7,8460	401,5909
	450	450	0,000005	0,000005	42,7198	452,5944
	450	500	0,000005	0,000500	57,3185	500,7446
	450	550	0,000025	0,000500	54,1572	552,9595
03	550	298	0,000500	0,000005	3,7172	493,7625
	550	350	0,000500	0,000005	5,8190	508,2289
	550	400	0,000005	0,000005	8,9779	404,5023
	550	450	0,000005	0,000005	45,0712	455,8490
	550	500	0,000005	0,000500	57,3026	500,9886
	550	550	0,000025	0,000500	54,0898	554,2170

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Observa-se também na Tabela 1 que existe a tendência de uma inflexão na curva e, aparentemente, a concentração de C de maior valor é obtida com temperaturas do reator próximas de 500 K; caindo em temperaturas inferiores e em temperaturas superiores a este ponto, dada a natureza complexa das reações.

Quando confrontamos a superfície da concentração de C em função das variações das vazões volumétricas, para T_0 a 298 K e T_0 a 550 K, e para ambos os casos T_{j0} a 550 K, observa-se que superfície praticamente não muda; possuindo diferenças significativas apenas em regiões de F_{vj} muito próximas de zero (Figura 16a e 16b). Porém, nessas regiões, observa-se instabilidade numérica. Logo não são regiões desejáveis para geração de dados.

Figura 16 – Superfícies para T_0 a 298 K e a 550K.

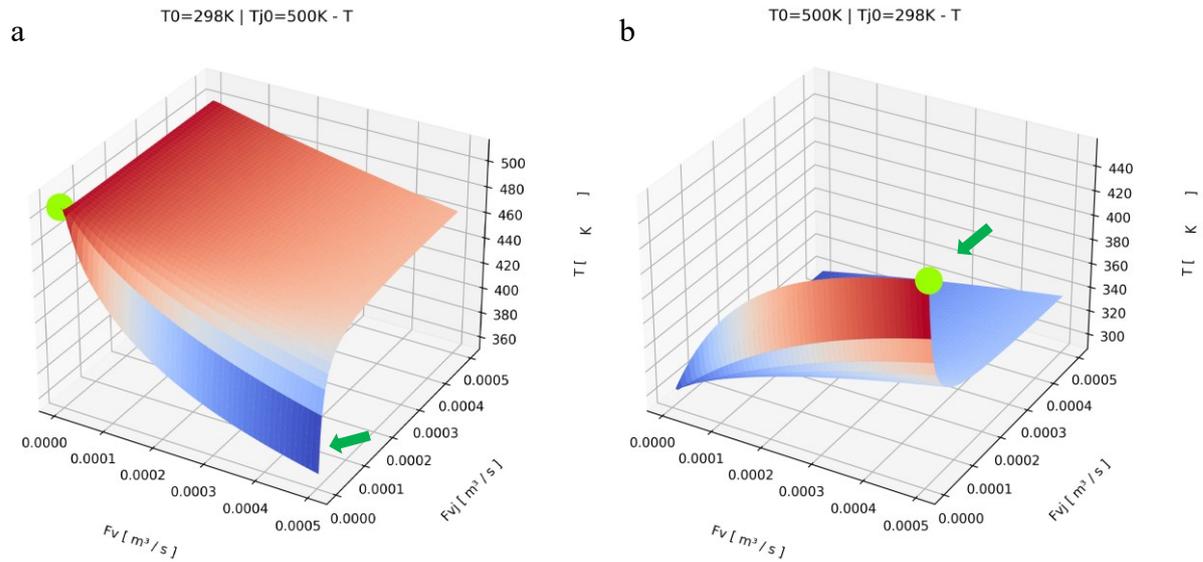


Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A Figura 17a mostra a temperatura do reator para uma temperatura elevada de T_{j0} (500 K) e uma temperatura T_0 baixa (298 K). Já a Figura 17b mostra o inverso. Então pode-se confirmar que a temperatura do reator é majoritariamente controlada pela temperatura da jaqueta térmica, somente sendo modificada quando em vazões muito pequenas de F_{vj} ou em regiões de vazões altas de F_v .

As superfícies na Figura 17 também mostram regiões que podem causar instabilidade numérica, uma vez que nesses pontos próximos de zero as curvas possuem inclinações muito agressivas, podendo causar erros no modelo.

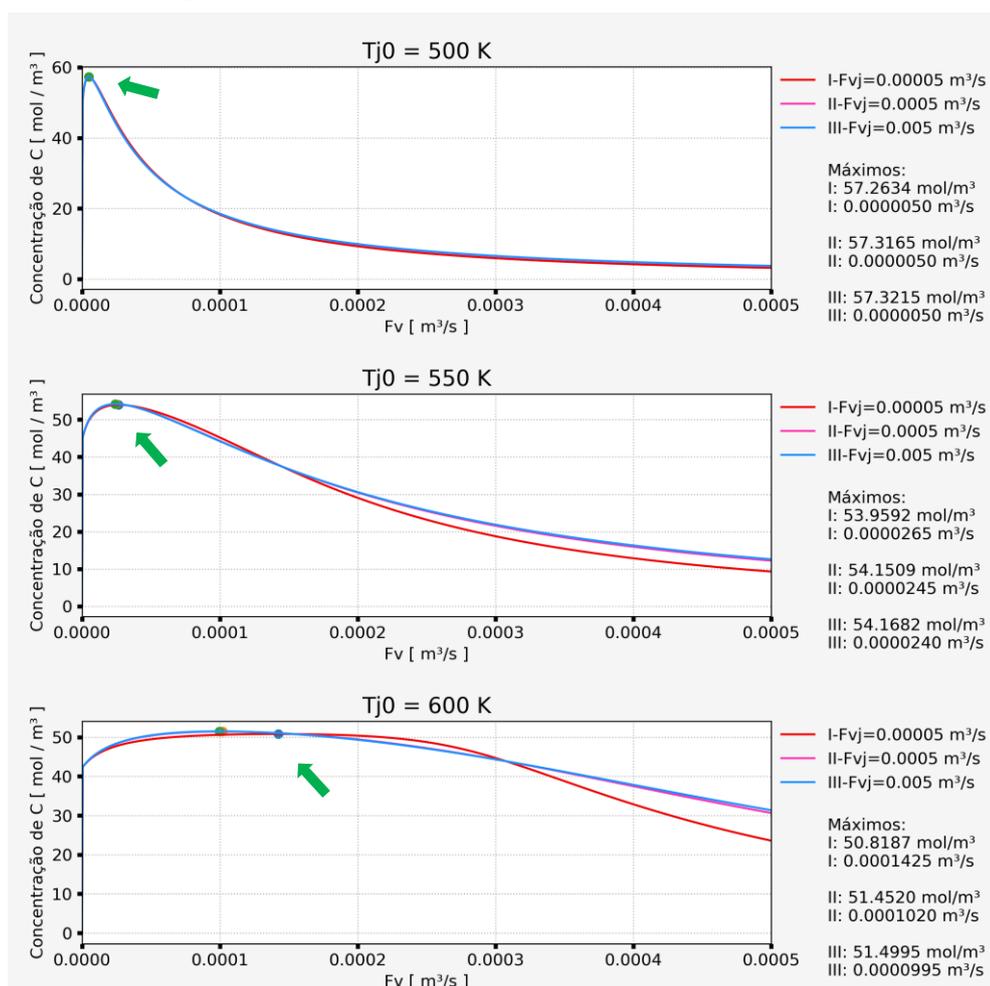
Figura 17 – Superfícies para T_r .



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A Figura 18 proporciona uma análise de maior precisão, pois avalia a concentração de C com três valores de F_{Vj} , sendo eles: $0,00005 \frac{m^3}{s}$; $0,0005 \frac{m^3}{s}$; $0,005 \frac{m^3}{s}$. E três valores de $T_{j0} = 500 K$; $550 K$; $600 K$ com a temperatura $T_0 = 463 K$; esta sendo embasada na temperatura usual do processo industrial (PRIHATIN et al., 2013), pois, como verificado nas análises anteriores, essa temperatura não traz prejuízos para o modelo.

Figura 18 – Curva de concentração de C para três temperaturas.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

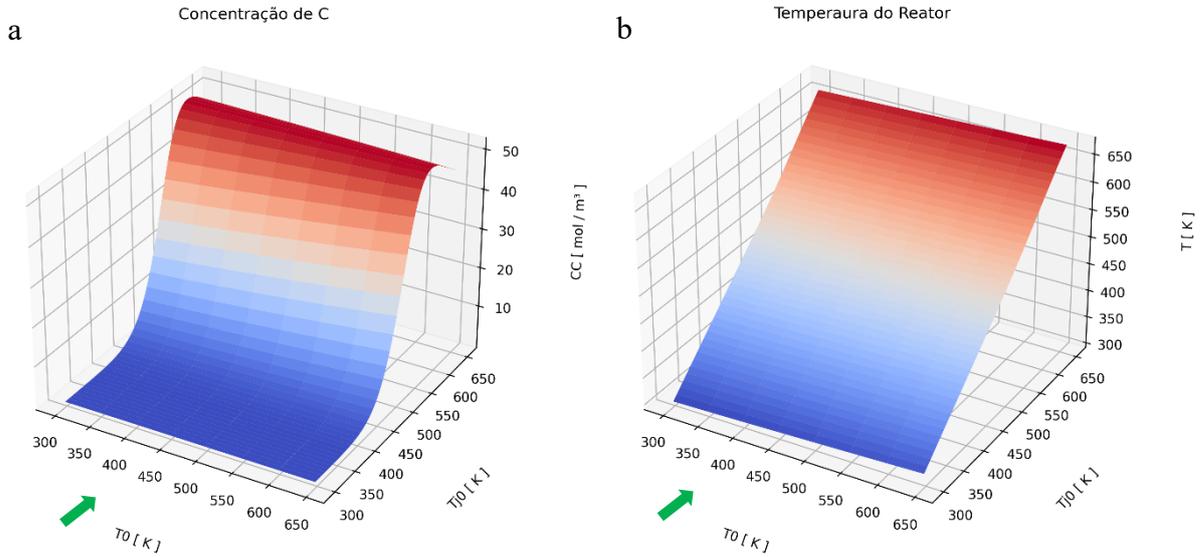
A Figura 18 mostra que as curvas se achatam a medida que a temperatura T_{j0} aumenta. Porém, em contrapartida, a concentração de C diminui. Esse comportamento é observado pois como em análises prévias, existem regiões nas superfícies de pouca influência da vazão volumétrica apresentando novas condições operacionais.

Levando em consideração que maiores vazões são benéficas ao sistema, tanto no controle de temperatura mantendo a estabilidade térmica do sistema, como também aumentando a vazão molar de C, serão adotadas as vazões volumétricas de $F_V = 0,0000995 \frac{m^3}{s}$ e $F_{Vj} = 0,005 \frac{m^3}{s}$, conforme o observado na Figura 18.

Muito mais importante que o rendimento molar é o fato que na curva de 500 K existe uma região péssima para o objetivo desse trabalho, já que pode provocar instabilidade numérica aos dados gerados; uma vez que ocorre com vazão volumétrica muito próxima de zero.

A Figura 19a mostra a concentração de C e a Figura 19b mostra a temperatura do reator em função das temperaturas iniciais, com os valores das vazões previamente definidos.

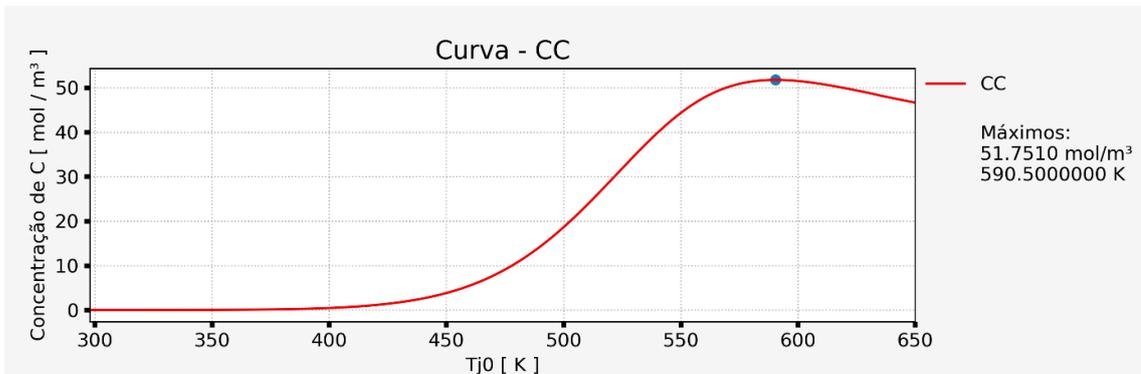
Figura 19 – Superfícies para variação de temperatura.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

As superfícies da Figura 19 mostram que é praticamente constante o efeito de T_0 , por isso optou-se por usar $T_0 = 463 K$. Para essa temperatura, a curva no plano apresenta o perfil presente na Figura 20.

Figura 20 – Curva de concentração de C em função da temperatura do fluido da jaqueta.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Com isso é finalizado a análise do modelo matemático e encontra-se o ponto para geração de dados desse trabalho. As conclusões são tidas dentro das considerações iniciais, que

consistem em, primeiramente, buscar uma região estável, e em segundo lugar direcionar o estudo com base na maior concentração de C. Sendo assim, encontra-se $T_{j0} = 590.5 K$.

Com isso definem-se os parâmetros reacionais (Tabela 2) para o estado estacionário que servirá de referência para o modelo de geração de dados.

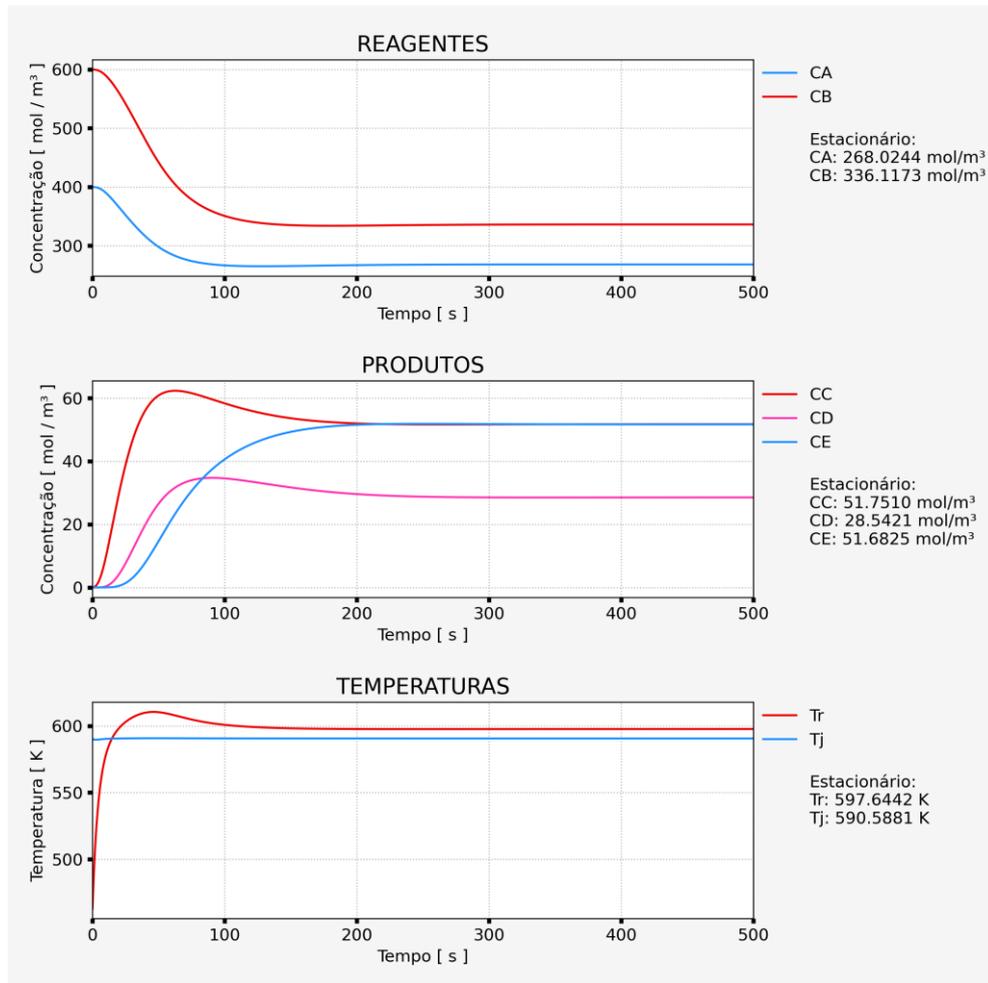
Tabela 2 – Parâmetros usados para o estado de referência.

Variável	Valor
F_v	0,0000995 m^3/s
F_{vj}	0,005 m^3/s
T_0	463 K
T_{j0}	590.5 K
C_{A0}	400 mol/m^3
C_{B0}	600 mol/m^3
U	1120 $\frac{J}{s.m^2.K}$

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A Figura 21 apresenta o perfil para os parâmetros presentes na Tabela 2. Observa-se também que, com os parâmetros definidos após a análise, houve uma redução drástica no tempo necessário para que o sistema entre em estado estacionário; saindo de aproximadamente 30000 s, como na Figura 15a, para 200 s, na Figura 21. Isso é benéfico na geração de dados porque demanda menos tempo e esforço computacional.

Figura 21 – Perfil dinâmico do modelo com os parâmetros de trabalho.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022)

Com a resolução do sistema não linear, formado pelas Equações (4, 5, 6, 7, 8, 9 e 10), encontra-se o estado estacionário referência do sistema, presente na Tabela 3.

Tabela 3 – Variáveis no estado estacionário.

Variáveis no Estado Estacionário	
C_A^S	268,02436211 mol/m ³
C_B^S	336,11725504 mol/m ³
C_C^S	51,75102964 mol/m ³
C_D^S	28,54210945 mol/m ³
C_E^S	51,68249881 mol/m ³
T_r^S	597,6441698 K
T_j^S	590,58812735 K

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

5.1.2 Geração de Dados

Para a determinação do tempo de amostragem observam-se os perfis gerados pelas perturbações nos pontos dos limites estabelecido. Construiu-se então a Tabela 4, que mostra os tempos necessários para recuperação e volta ao novo estado estacionário.

Tabela 4 – Tempos para atingir o novo estado estacionário.

Identificação	Valor	Tempo para novo E.E.
CA0-01	$C_{A0} = 320 \text{ mol/m}^3$	440,11 s
CA0-02	$C_{A0} = 480 \text{ mol/m}^3$	350,11 s
CB0-01	$C_{B0} = 480 \text{ mol/m}^3$	448,11 s
CB0-02	$C_{B0} = 720 \text{ mol/m}^3$	372,11 s
T0-01	$T_0 = 453 \text{ K}$	138,11 s
T0-02	$T_0 = 473 \text{ K}$	137,11 s
Fv-01	$F_V = 0,00004975 \text{ m}^3/\text{s}$	398,11 s
Fv-02	$F_V = 0,000199 \text{ m}^3/\text{s}$	233,11 s
Fvj-01	$F_{Vj} = 0,0001 \text{ m}^3/\text{s}$	452,11 s
Fvj-02	$F_{Vj} = 0,01 \text{ m}^3/\text{s}$	48,11 s
Tj0-01	$T_{j0} = 580,5 \text{ K}$	307,11 s
Tj0-02	$T_{j0} = 600,5 \text{ K}$	216,11 s

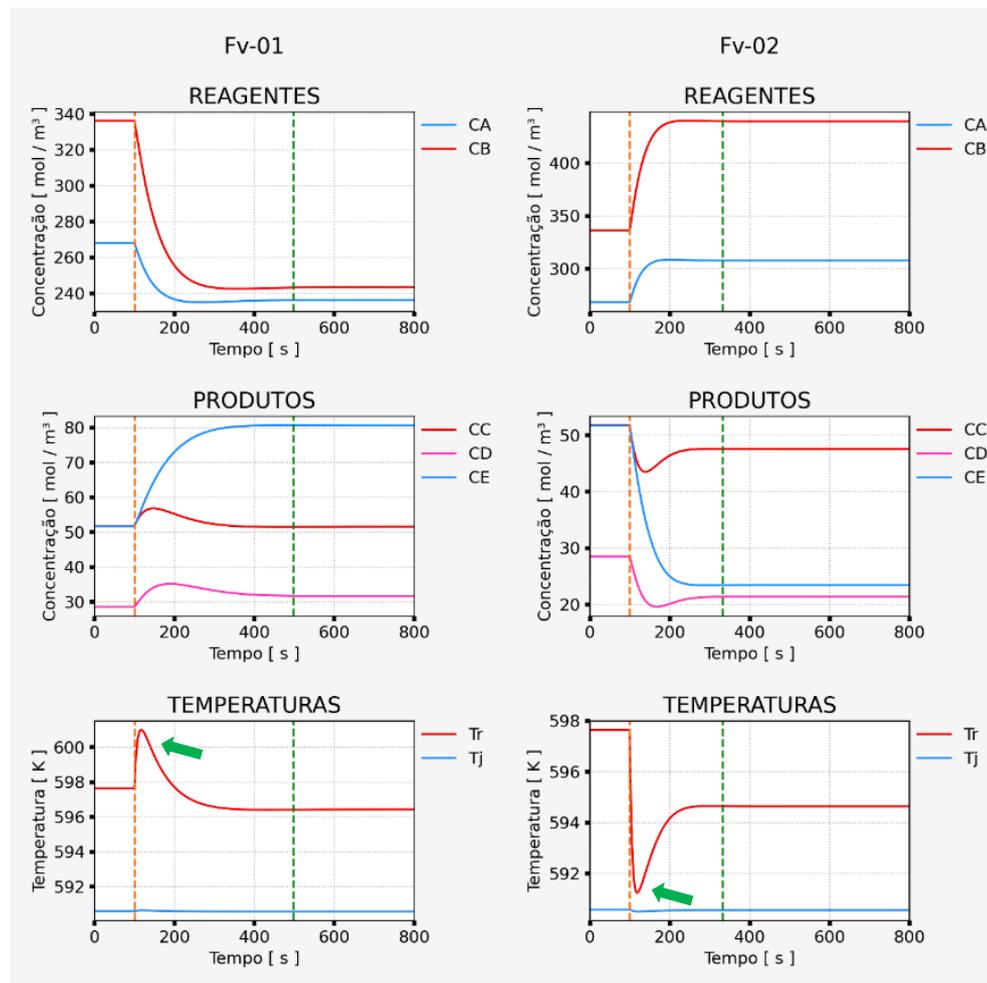
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Observa-se na Tabela 4 que existem tempos de respostas relativamente rápidos (48,11 s), e outros mais lentos (452,11 s). A princípio, a escolha mais lógica seria com base na resposta mais rápida. Porém, analisando as curvas, notou-se que as respostas muito rápidas são provocadas por variáveis que praticamente não perturbam o sistema. Logo, partindo de uma análise criteriosa em cada um dos perfis, escolheu-se o que tinha a resposta mais rápida e com perturbação expressiva, que foi a de F_v (Figura 22).

O sistema leva no máximo 452,11 s para retornar o sistema estacionário dentro das perturbações estabelecidas com resposta mais lenta.

A Figura 22 apresenta a perturbação em F_v . Os demais perfis podem ser avaliados no Apêndice F.

Figura 22 – Perturbações no estado estacionário para F_v .



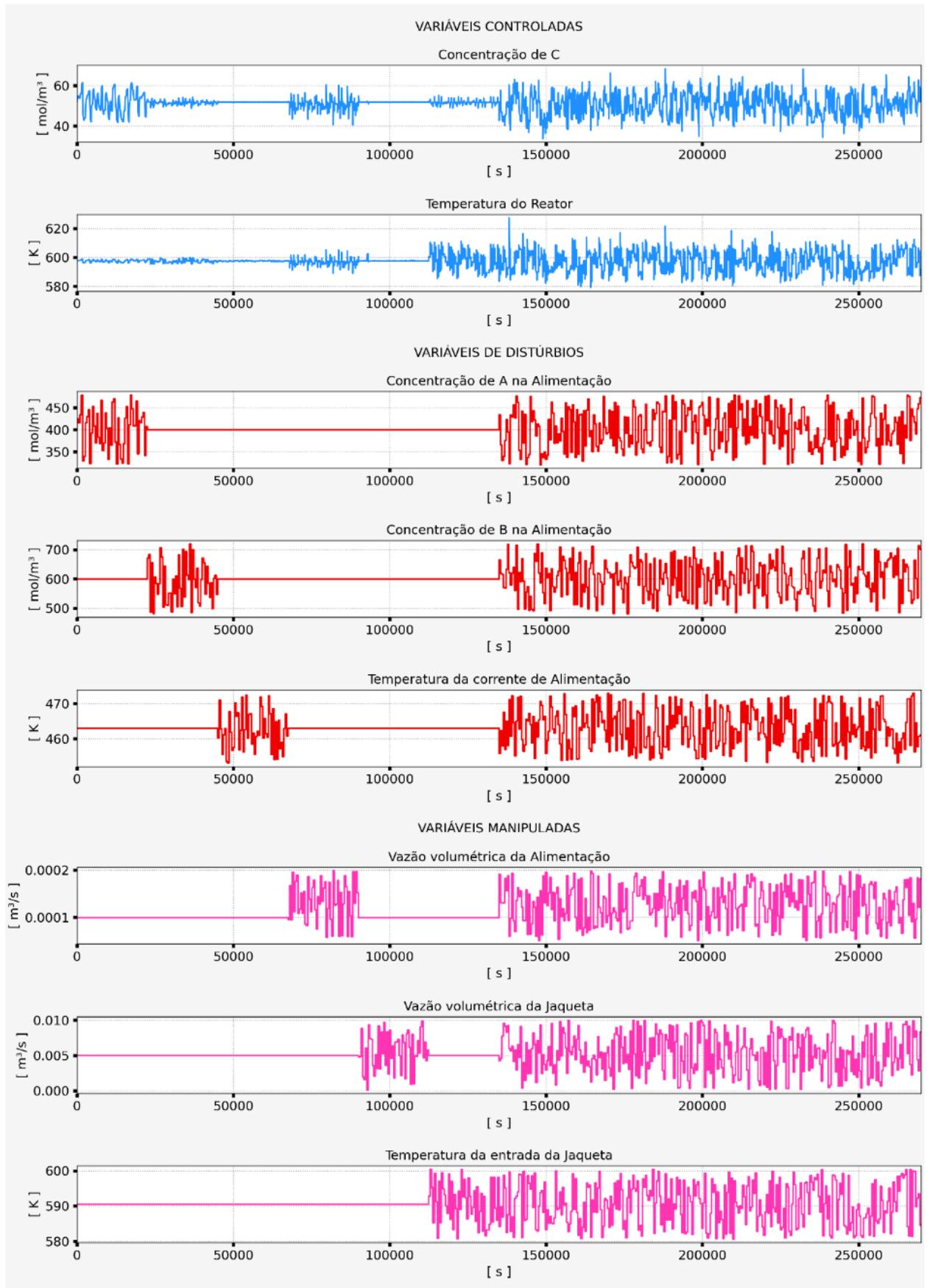
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A perturbação provoca um pico rápido na temperatura do reator. Do momento da perturbação até o pico se passam 17s. Então, para não ocorrer perdas das informações da dinâmica do processo, já que o tempo se apresenta dentro da recomendação da literatura, define-se que o tempo de amostragem não deve ser superior a 17 s.

Com base nas observações escolheu-se os tempos de 3 s, 12 s e 48 s, que estão nas proximidades de 17 s. Com esses tempos de amostragem, obteve-se 90000 amostras para 3 s; 22200 amostras para 12 s, e 5400 amostras para 48 s. A partir do número de amostras nota-se que tempos amostrais muito pequenos acarretam em um grande número de amostras; provocando um grande esforço computacional, por esse motivo evita-se tempos ainda menores.

Os perfis dos dados gerados para o tempo de amostragem de 3 s encontram-se na Figura 23, enquanto que os perfis para 12 s e 48 s encontram-se no Apêndice G. Neles podemos verificar as respostas para as perturbações impostas, onde notamos também que algumas variáveis possuem menor impacto na resposta no sistema.

Figura 23 – Perfil dos dados gerados para tempo amostral de 3 s.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

5.2 Sensor Virtual

5.2.1 Rede Neural Artificial

Para cada um dos conjuntos de dados obtiveram-se as métricas de desempenho utilizando a combinação dos hiperparâmetros que apresentaram os maiores valores de R^2 quando otimizados para as RNAs (Tabelas 5, 6 e 7).

Tabela 5 – Métricas para RNA com amostragem de 3 s.

RNA - Tempo de Amostragem: 3s				
Dados	Saída	R^2	MAE	MAPE
C1-1	CC Tr	0,998427	0,050731	0,000444
C1-2	CC	0,999077	0,050676	0,001009
C1-3	Tr	0,997524	0,064620	0,000108
C2-1	CC Tr	0,999395	0,016707	0,000111
C2-2	CC	0,999861	0,008991	0,000179
C2-3	Tr	0,998918	0,027010	0,000045
C3-1	CC Tr	0,998973	0,021147	0,000134
C3-2	CC	0,999809	0,011007	0,000220
C3-3	Tr	0,998087	0,033371	0,000056

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A Tabela 5 mostra que o conjunto de dados C2 (2 tempos de atraso) tem desempenho superior quando comparado com 1 tempo de atraso e com 3 tempos de atraso; apresentando os maiores valores R^2 . Todos os demais conjuntos possuem também baixo valor de MAE e por consequência baixo valor de MAPE. As Tabelas 6 e 7 também apresentam resultados semelhantes, evidenciado o impacto do conjunto de dados nas métricas.

Observa-se também que as RNAs com a saída para uma única variável apresentaram desempenho superior quando comparadas com o caso de múltiplas saídas. Dentre os três tempos de amostragem, observou-se que a medida que o tempo de amostragem cresce também ocorre a relativa piora das métricas de desempenho, reduzindo o R^2 e aumentando o MAE e o MAPE. Logo, dentre os tempos de amostragem em estudo, o tempo de 3 s obteve as melhores métricas.

Tabela 6 – Métricas para RNA com amostragem de 12 s.

RNA - Tempo de Amostragem: 12s				
Dados	Saída	R²	MAE	MAPE
C1-1	CC Tr	0,952875	0,263968	0,002515
C1-2	CC	0,962412	0,224332	0,004495
C1-3	Tr	0,943809	0,293701	0,000492
C2-1	CC Tr	0,955199	0,250125	0,002468
C2-2	CC	0,962277	0,197363	0,003933
C2-3	Tr	0,949271	0,276561	0,000464
C3-1	CC Tr	0,958280	0,242337	0,002449
C3-2	CC	0,961889	0,201140	0,004017
C3-3	Tr	0,955090	0,262684	0,000441

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Tabela 7 – Métricas para RNA com amostragem de 48 s.

RNA - Tempo de Amostragem: 48s				
Dados	Saída	R²	MAE	MAPE
C1-1	CC Tr	0,811437	0,899458	0,009003
C1-2	CC	0,816872	0,721644	0,014634
C1-3	Tr	0,809160	0,988882	0,001656
C2-1	CC Tr	0,796413	0,821732	0,008023
C2-2	CC	0,815904	0,743306	0,015035
C2-3	Tr	0,785365	1,007767	0,001688
C3-1	CC Tr	0,749203	1,021694	0,010034
C3-2	CC	0,793017	0,904072	0,018189
C3-3	Tr	0,707078	1,158320	0,001942

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Baseando-se nas métricas de desempenho apresentadas na Tabelas 5, 6 e 7, observou-se que a RNA com saída individual e com tempo de amostragem de 3 s e com 2 tempos de

atraso apresentou valores de R^2 maiores se comparado com os demais conjuntos; assim o sensor virtual apresentado foi construído com os hiperparâmetros presente no Quadro 14.

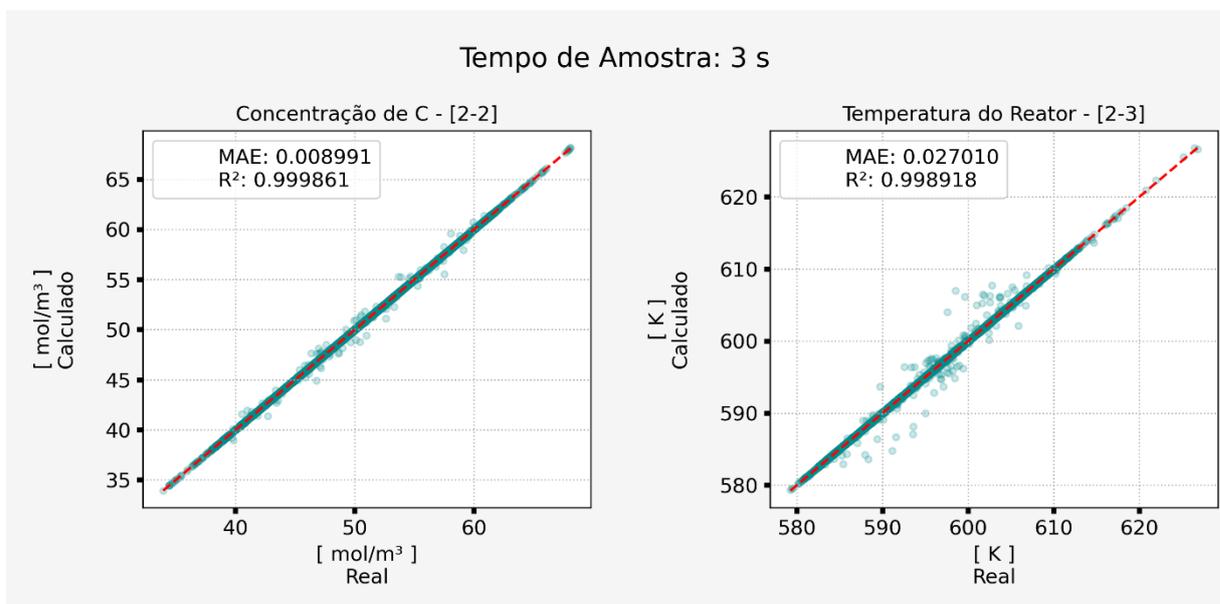
Quadro 14 – Melhores hiperparâmetros para RNA para regressão.

RNA		Hiperparâmetros
C2-2	C_C	{'activation': 'identity', 'alpha': 0.0001, 'hidden_layer_sizes': (36,), 'learning_rate': 'constant', 'max_iter': 20000, 'solver': 'lbfgs'}
C2-3	T_r	{'activation': 'relu', 'alpha': 1, 'hidden_layer_sizes': (16,), 'learning_rate': 'constant', 'max_iter': 20000, 'solver': 'lbfgs'}

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Os ajustes com os dados de teste são apresentados na Figura 24. Nela, observa-se um ótimo desempenho dentro do contexto das técnicas utilizadas, apresentando R^2 próximo de 1,00. Contudo, também é possível observar que o desempenho é significativamente melhor na predição da concentração de C com R^2 de 0,999861 do que na predição da temperatura do reator com R^2 de 0,998918. Tal fato é denotado também pela maior presença de alguns pontos fora do ajuste no caso da temperatura do reator. Porém os pontos ocorrem em quantidade suficientemente pequenas, por isso o MAE continua relativamente baixo.

Figura 24 – Gráfico do ajuste do sensor virtual a RNA de melhor resultado.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A Tabela 8 apresenta o tempo necessário para o aprendizado da RNA e o tempo para predição do conjunto de teste; esses valores serão importantes em comparação com o RF.

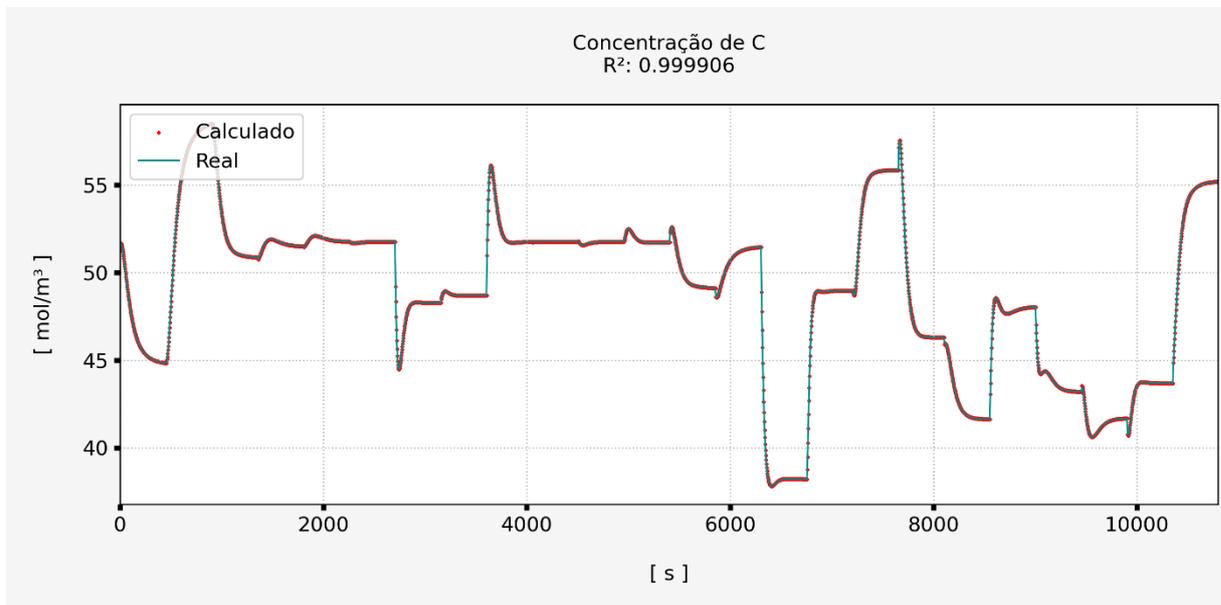
Tabela 8 – Desempenho RNA para regressão.

	Pontuação (R^2)	Tempo	
		Treino	Teste
C_c	0,999861	8,67 s	0,01 s
T_r	0,998918	22,08 s	0,01 s

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

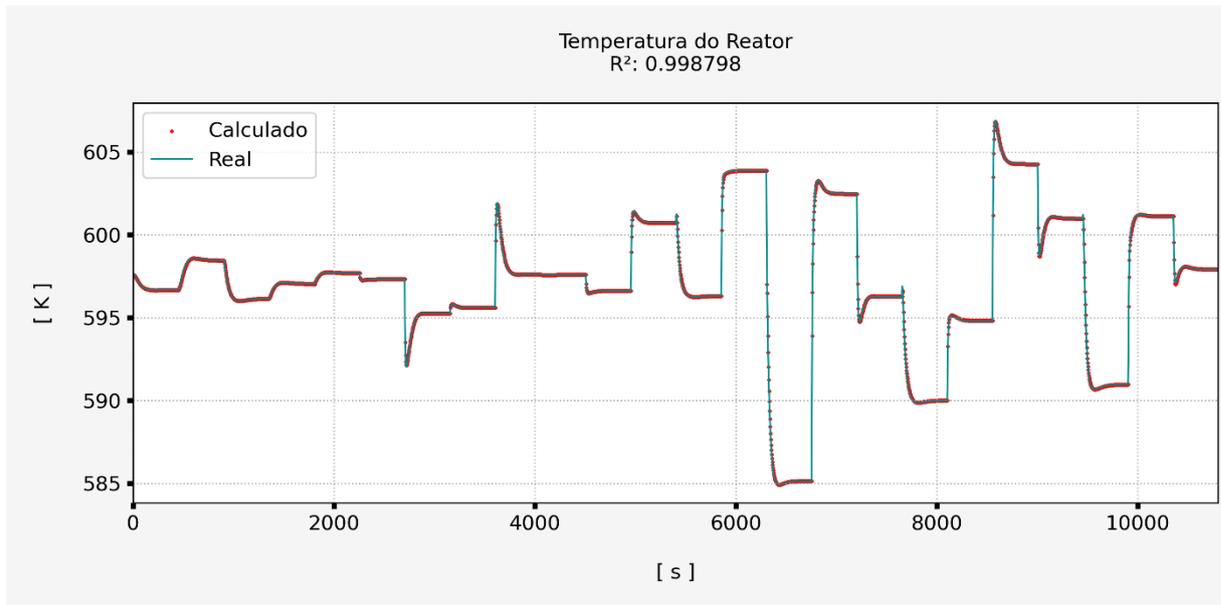
A Figura 25 e a Figura 26 apresentam os perfis ordenados no tempo, com o objetivo de simular a execução da RNA em uma rotina dinâmica durante a operação do sistema. Esse novo conjunto é menor e desconhecido da RNA. O perfil dos dados gerados pode ser observado no Apêndice G.

Figura 25 – Perfil predição dinâmica para concentração de C com RNA.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Na Figura 25 observa-se de forma qualitativa (Perfil) e quantitativa (R^2) que o ajuste na predição da concentração de C é praticamente sem erros; não sendo possível observar pontos distantes e fora do ajuste.

Figura 26 – Perfil predição dinâmica para temperatura do reator com RNA.

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Assim como a Figura 25, a Figura 26 apresenta excelente ajuste na predição da temperatura do reator, com R^2 próximo do 1,00. E novamente não é possível observar pontos fora do ajuste.

Os resultados mostram que a RNA, desde que com os hiperparâmetros corretos e com um bom conjunto de treino, é uma excelente técnica no desenvolvimento do sensor virtual aplicado no sistema reativo complexo em estudo; sendo capaz de prever as variáveis controladas com excelente precisão.

5.2.2 Florestas Aleatórias

Para cada conjunto de dados, obtiveram-se as métricas de desempenho utilizando a combinação dos hiperparâmetros que apresentaram maiores valores de R^2 para o RF (Tabelas 9, 10, 11).

Tabela 9 – Métricas para RF com amostragem de 3 s.

RF - Tempo de Amostragem: 3s				
Dados	Saída	R^2	MAE	MAPE
C1-1	CC Tr	0,997547	0,058888	0,000505
C1-2	CC	0,999051	0,043476	0,000864
C1-3	Tr	0,996670	0,066098	0,000111
C2-1	CC Tr	0,997775	0,056861	0,000493
C2-2	CC	0,999723	0,017393	0,000349
C2-3	Tr	0,998263	0,037709	0,000063
C3-1	CC Tr	0,997550	0,056778	0,000491
C3-2	CC	0,999692	0,016955	0,000340
C3-3	Tr	0,997595	0,039481	0,000066

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Assim como no caso das RNAs, o RF apresentou desempenho superior com o conjunto de dados C2; confirmando que, para o sistema reativo complexo em estudo, 2 tempos de atraso possui melhores métricas e são suficientes na representatividade do sistema.

Quando confrontado os três tempos de amostragem observa-se o mesmo comportamento visto na RNA, ou seja, as métricas de desempenho do RF pioram a medida que o tempo de amostragem aumenta. Isso já era esperado em ambas as técnicas já que, com a amostragem deficiente, ocorre perda de informações da dinâmica do processo. A predição não possui, portanto, representatividade o suficiente do processo; provocando predições inconsistentes que não representam o processo que originou os dados uma vez que as amostras podem não ser suficientemente representativas. Outro aspecto é que de modo geral as métricas do RF são levemente inferiores as métricas das RNAs, indicando que nesse estudo a RNA apresentou desempenho levemente superior nos problemas de regressão (Sensor Virtual).

Da mesma forma que as RNAs, o RF apresenta métricas que indicam melhor resultado para predições de uma única variável por vez. Tal fato permite se concluir que nesse estudo o comportamento se repete em ambas as técnicas, independente da natureza delas. Como observado na literatura, ambas as técnicas são robustas apenas diferenciando-se em suas particularidades de construção.

Tabela 10 – Métricas para RF com amostragem de 12 s.

RF - Tempo de Amostragem: 12s				
Dados	Saída	R²	MAE	MAPE
C1-1	CC Tr	0,948947	0,319633	0,003119
C1-2	CC	0,958995	0,247546	0,004967
C1-3	Tr	0,942214	0,312361	0,000523
C2-1	CC Tr	0,950846	0,312951	0,003047
C2-2	CC	0,959306	0,219835	0,004404
C2-3	Tr	0,947171	0,298624	0,000500
C3-1	CC Tr	0,954012	0,308277	0,003002
C3-2	CC	0,959156	0,224049	0,004496
C3-3	Tr	0,953136	0,295067	0,000495

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Tabela 11 – Métricas para RF com amostragem de 48 s.

RF - Tempo de Amostragem: 48s				
Dados	Saída	R²	MAE	MAPE
C1-1	CC Tr	0,791647	0,976651	0,009561
C1-2	CC	0,794925	0,820804	0,016529
C1-3	Tr	0,799024	1,020612	0,001709
C2-1	CC Tr	0,772158	1,021981	0,009803
C2-2	CC	0,803725	0,810029	0,016291
C2-3	Tr	0,764605	1,093417	0,001829
C3-1	CC Tr	0,728983	1,098893	0,010381
C3-2	CC	0,785179	0,863038	0,017337
C3-3	Tr	0,687493	1,207258	0,002023

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Baseando-se nas métricas de desempenho apresentadas na Tabelas 9, 10 e 11, observou-se que o RF possui comportamento semelhante ao da RNA, ou seja, o RF com saída individual e com tempo de amostragem de 3 s, e com 2 tempos de atraso apresentou as métricas mais satisfatórias. Assim, o sensor virtual apresentado foi construído com os hiperparâmetros presentes no Quadro 15.

Quadro 15 – Melhores hiperparâmetros para RF para regressão.

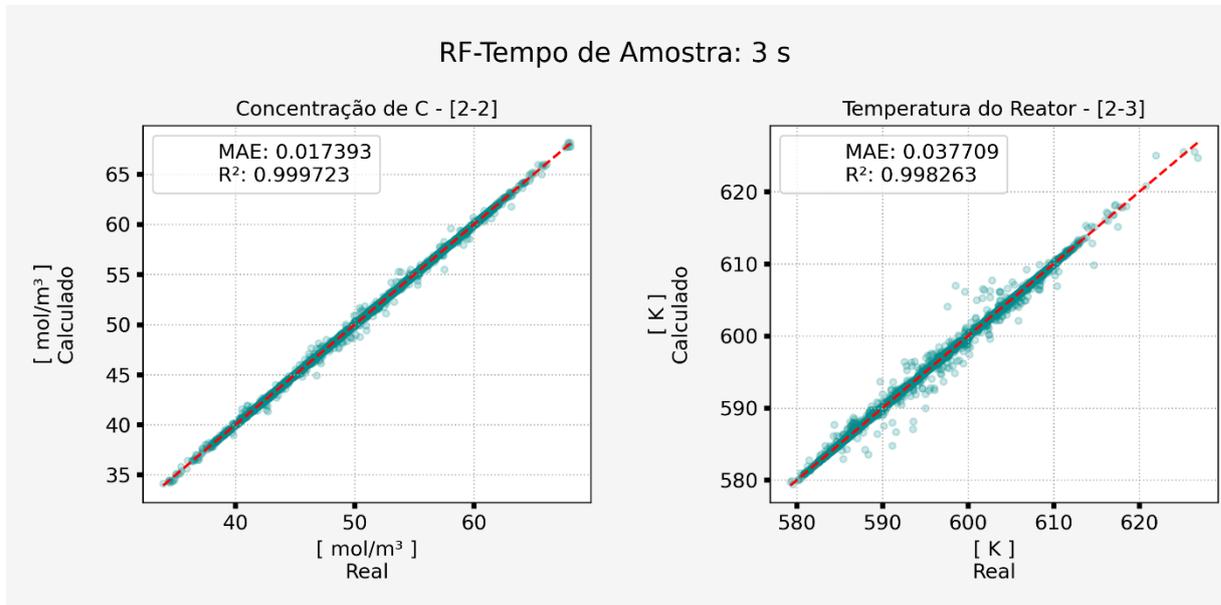
RF		Hiperparâmetros
C2-2	C_C	{'min_samples_leaf': 2, 'min_samples_split': 2, 'n_estimators': 100}
C2-3	T_r	{'min_samples_leaf': 2, 'min_samples_split': 2, 'n_estimators': 100}

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A Figura 27 mostra um bom ajuste do conjunto de dados de teste, apresentando R^2 próximo de 1,00. O desempenho das Florestas Aleatórias utilizada para regressão, porém, é inferior ao desempenho das RNAs; mesmo que por uma margem muito pequena. Essa diferença pode ser justificada por conta da construção das técnicas, pois o RF apresenta a média das predições; diferente das RNAs que apresentam apenas um valor predito. Mas os dados apresentam uma dispersão maior no RF e, novamente, com métricas pioradas na temperatura

do reator. Os erros, contudo, são suficientemente pequenos; e o resultado continua satisfatório, dentro do esperado e no contexto desse trabalho.

Figura 27 – Gráfico do ajuste do sensor virtual o RF de melhor resultado.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A Tabela 12 apresenta o tempo necessário para o aprendizado do RF e o tempo para predição do conjunto de teste.

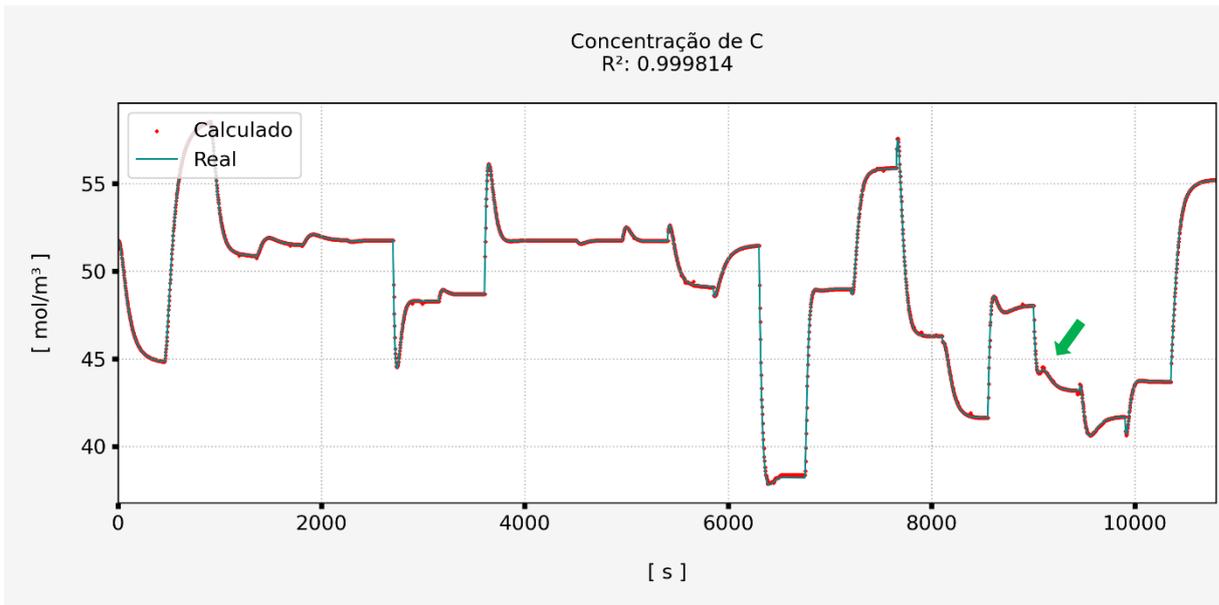
Tabela 12 – Desempenho RF para regressão.

	Pontuação (R^2)	Tempo	
		Treino	Teste
C_C	0,999723	34,92 s	0,39 s
T_r	0,998263	28,68 s	0,43 s

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

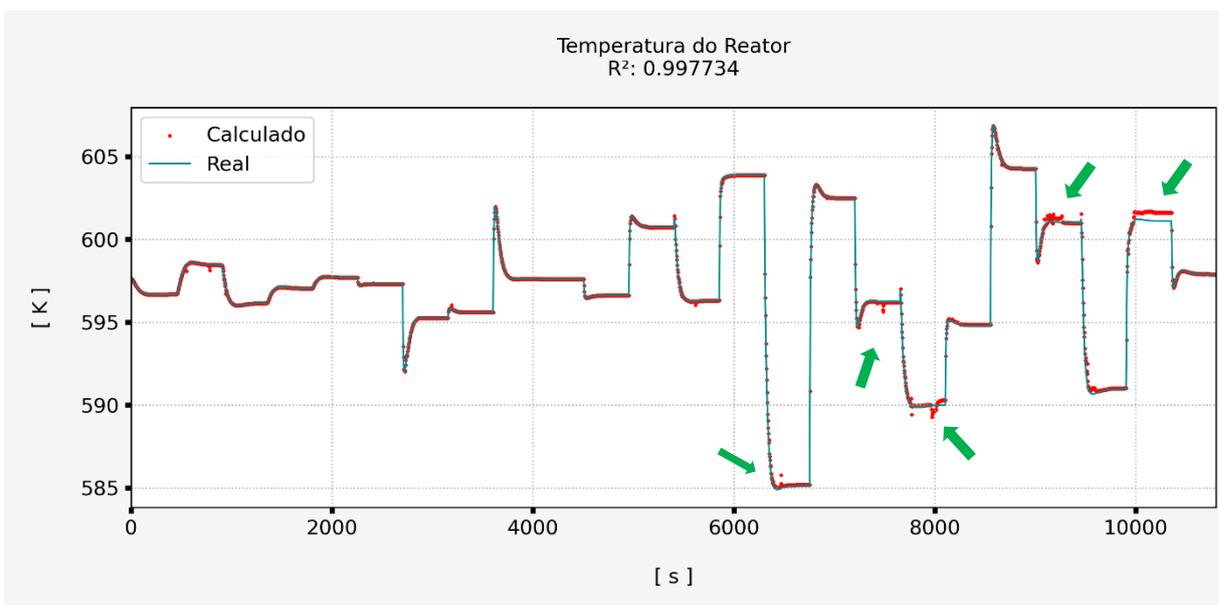
Confrontando os tempos de treino da RNA e do RF, percebe-se que a RNA possui execução mais rápida; sendo a etapa de aprendizado (Treino) executada até 4 vezes mais rápida que o RF. Na etapa de predição do conjunto de teste a diferença é muito baixa, porém ainda assim a RNA possui execução mais rápida.

A Figura 28 e a Figura 29 mostra o perfil para o novo conjunto de teste que está ordenado no tempo e é desconhecido para o RF.

Figura 28 – Perfil predição dinâmica para concentração de C com RF.

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Na Figura 28, assim como no caso da RNA, o ajuste é satisfatório no contexto desse trabalho; sendo uma boa capacidade de predição para o RF, com R^2 de 0,999814. Qualitativamente é visível uns poucos pontos levemente fora da curva, entretanto; o que indica um desempenho levemente inferior para o caso de predição da concentração de C se comparado com o resultado da RNA, apresentando assim significativa falha de predição.

Figura 29 – Perfil predição dinâmica para temperatura do reator com RF.

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Na Figura 29, para a predição da temperatura do reator, o R^2 de 0,997734 é reduzido em comparação com o R^2 observado na predição da concentração de C, porém ainda está próximo de 1,00. Contudo, diferente da RNA que obteve um ajuste onde praticamente não é possível identificar pontos fora da curva em uma análise visual, o RF apresentou pontos afastados da curva real; que apesar de possuir baixas amplitudes em torno de 2 K de desvio, não deixa de ser uma falha de predição considerável quando em comparação com a RNA. Corroborando mais uma vez para o desempenho levemente inferior do RF no desenvolvimento do sensor virtual para o sistema reativo complexo em estudo.

5.3 Detecção e Diagnóstico de Falha

5.3.1 Rede Neural Artificial

De forma semelhante ao desenvolvimento dos sensores virtuais, utilizou-se a combinação dos hiperparâmetros que apresentaram a maior acurácia na classificação com as RNAs (Quadro 16).

Quadro 16 – Melhores hiperparâmetros para RNA para classificação.

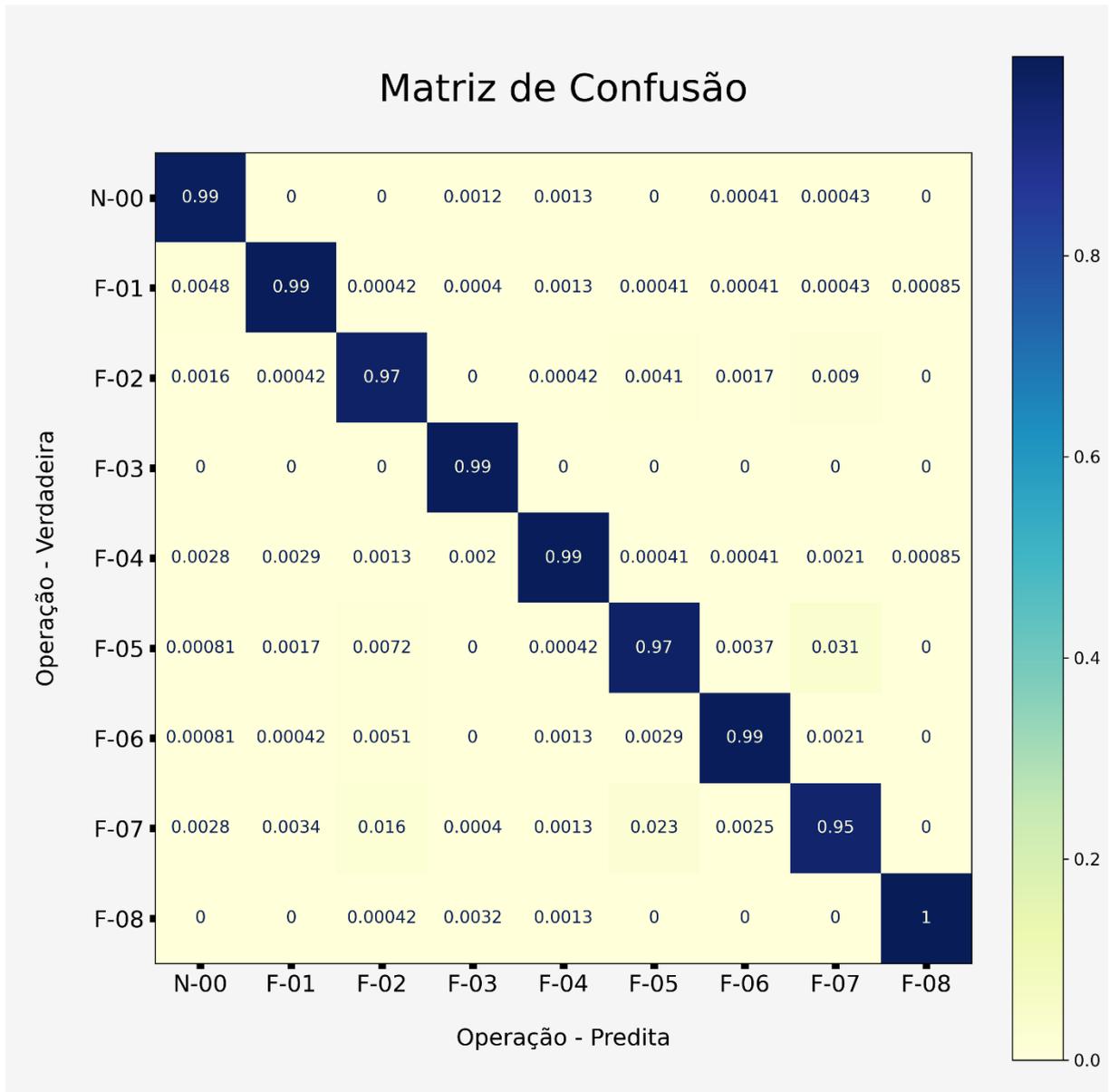
Hiperparâmetros
{'activation': 'tanh', 'alpha': 0.0001, 'hidden_layer_sizes': (40,), 'learning_rate': 'constant', 'solver': 'lbfgs'}

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A Figura 30 apresenta a matriz de confusão gerada com as predições de classes da RNA. A matriz foi normalizada para apresentar a precisão com base no resultado predito.

Para o entendimento da matriz de confusão deve-se considerar que as linhas são as classes verdadeiras, ao passo em que as colunas são as classes preditas; então a intersecção determina o número de vezes que a predição foi igual a classe verdadeira. Caso ocorra intersecção de uma classe predita diferente da verdadeira, isso significará que a RNA fez uma predição errada. A diagonal principal indica que a classe predita é igual a classe verdadeira. Sendo assim, quanto mais próximo de 1,00 a diagonal principal e quanto mais próximo de zero o restante da matriz, melhor o desempenho da detecção e diagnóstico de falhas.

Figura 30 – Matriz de confusão para RNA.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A matriz de confusão (Figura 30) mostra de forma qualitativa e quantitativa o desempenho da RNA na detecção e classificação das falhas, apresentando poucos erros de predição com todas as classes superando 95% de precisão. A diagonal na cor azul escuro indica que a pontuação atingiu valores próximos ao máximo possível.

A Tabela 13 mostra a acurácia média da RNA, assim como os tempos de execução das etapas de treino e de teste. Já a Tabela 14 reúne as principais métricas de problemas de classificação, mostrando detalhadamente o desempenho individual de cada classe, assim como o desempenho global. Para interpretação das métricas define-se os Verdadeiros Positivos – VP, Verdadeiros Negativos – VN, Falsos Positivos – FP e Falsos Negativos – FN.

Tabela 13 – Desempenho RNA para classificação.

Pontuação (Acurácia)	Tempo	
	Treino	Teste
0,982917	1911,65 s	0,04 s

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Tabela 14 – Principais métricas de desempenho na classificação usando RNA.

	Precisão (P) $\left(\frac{VP}{VP + FP}\right)$	Revocação (R) $\left(\frac{VP}{VP + FN}\right)$	Medida-F $\left(\frac{2 \cdot P \cdot R}{P + R}\right)$	Suporte
N-00	0,986263	0,996733	0,991470	2449
F-01	0,991154	0,990737	0,990945	2375
F-02	0,969504	0,982403	0,975911	2330
F-03	0,992757	1,000000	0,996365	2467
F-04	0,992863	0,987062	0,989954	2396
F-05	0,968944	0,956664	0,962765	2446
F-06	0,990898	0,987629	0,989261	2425
F-07	0,954643	0,949362	0,951995	2350
F-08	0,998301	0,994922	0,996609	2363
Acurácia $\left(\frac{VP + VN}{VP + VN + FP + FN}\right)$			0,982917	21601
Média Aritmética	0,982814	0,982835	0,982808	21601
Média Ponderada	0,982903	0,982917	0,982894	21601

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Com as métricas da Tabela 14, principalmente observando a coluna de precisão e a acurácia, podemos concluir que a RNA obteve valores próximos de 1,00; indicando um resultado com bom desempenho global quando avaliada na definição das métricas.

5.3.2 Florestas Aleatórias

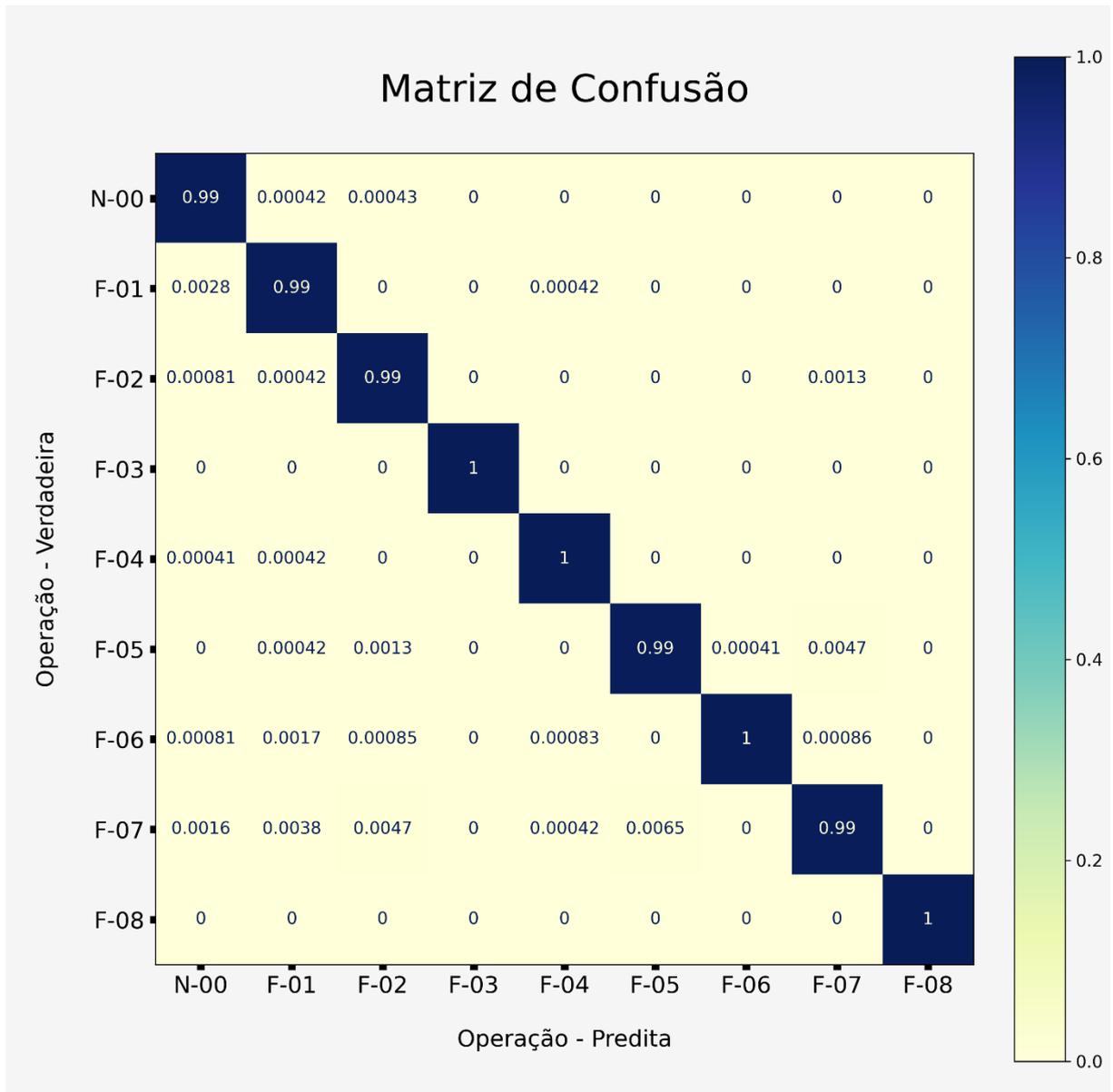
Os hiperparâmetros que apresentaram melhores desempenho para o RF são apresentados no Quadro 17. Com eles o RF apresentou a matriz de confusão na Figura 31.

Quadro 17 – Melhores hiperparâmetros para RF para classificação.

Hiperparâmetros
{'min_samples_leaf': 1, 'min_samples_split': 2, 'n_estimators': 500}

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura 31 – Matriz de confusão para RF.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

A matriz de confusão (Figura 31) mostra que o desempenho do RF na classificação das falhas foi superior ao da RNA, apresentando métricas mais satisfatórias com valores considerados como melhores. A matriz de confusão (Figura 31) apresenta mais intersecções

com as classes verdadeiras, apresentando assim maior precisão com valores próximos de 1,00 na diagonal principal e zero no restante da matriz.

A Tabela 15 mostra que a acurácia média do RF é superior que a acurácia média da RNA, sendo 0,995972 do RF contra 0,982917 da RNA; que expressa uma diferença significativa quando comparadas.

Tabela 15 – Desempenho RF para classificação.

Pontuação (Acurácia)	Tempo	
	Treino	Teste
0,995972	21,34 s	1,11 s

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022)

Outro ponto observado na Tabela 15 é que o tempo para a etapa de treino do RF é 89 vezes mais rápido que o tempo da RNA, um valor consideravelmente alto e expressivo; indicando maior agilidade para o treino do RF no conjunto de dados de estudo e para as considerações e hiperparâmetros utilizados.

A Tabela 16 apresenta as métricas mais detalhadas para o RF.

Tabela 16 – Principais métricas de desempenho na classificação usando RF.

	Precisão	Revocação	Medida-F	Suporte
N-00	0,993504	0,999183	0,996336	2449
F-01	0,992869	0,996632	0,994747	2375
F-02	0,992738	0,997425	0,995076	2330
F-03	1,000000	1,000000	1,000000	2467
F-04	0,998332	0,999165	0,998748	2396
F-05	0,993459	0,993459	0,993459	2446
F-06	0,999586	0,995052	0,997313	2425
F-07	0,993118	0,982553	0,987807	2350
F-08	1,000000	1,000000	1,000000	2363
Acurácia			0,995972	21601
Média Aritmética	0,995956	0,995941	0,995943	21601
Média Ponderada	0,995975	0,995972	0,995968	21601

Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Assim como na RNA, as métricas presentes na Tabela 16 indicam que o RF possui um bom desempenho global; apresentando precisão e acurácia com valores próximos de 1,00.

Com os resultados observa-se que, na detecção e diagnóstico de falhas, o RF apresenta resultados melhores que a RNA. Contudo ainda assim ambos são excelentes técnicas utilizadas para este fim. Mesmo a RNA levando mais tempo na execução da etapa de aprendizado, sua etapa de predição para o conjunto de teste é tão rápida quanto a do RF. Esse resultado pode ser justificado dado ao critério de escolhas dos hiperparâmetros e da característica do conjunto de dados que buscaram maior acurácia, não ponderando o prejuízo no tempo computacional.

6 CONCLUSÃO

Com base nos resultados obtidos, pode-se afirmar que o trabalho atingiu os objetivos desejados; com resultados satisfatórios e significativos dentro do escopo do trabalho. Através da aplicação do conhecimento adquirido na graduação pode-se construir um modelo matemático robusto e versátil que simula um sistema reativo complexo em um CSTR, e a partir dele originar dados para a aprendizagem de máquina; abordando as técnicas de Rede Neural Artificial e de Florestas Aleatórias. Ambas as técnicas são aplicadas ao desenvolvimento de sensores virtuais e na detecção de falhas e diagnóstico de falhas, com modelos e as técnicas apresentando boas métricas de desempenho.

A respeito da modelagem matemática, ficou claro que é de fundamental importância o conhecimento de balanço de massa e de balanço de energia no escopo da engenharia química, sendo necessário no desenvolvimento do modelo matemático do sistema; cuja robustez está atrelada a modelagem com variáveis não isotérmicas, incluindo a necessidade de métodos numéricos para sua resolução.

O estudo do modelo dinâmico desenvolvido foi crucial neste trabalho, já que sem ele os dados poderiam ser produzidos em regiões de instabilidade numérica. Sem essa etapa não seria possível garantir a estabilidade dos dados, assim como não seria possível determinar regiões de melhor eficiência numérica.

Com base nas métricas de desempenho do sensor virtual, observou-se que quanto menor o tempo de amostragem melhor a predição do sensor; contudo, o número de amostras aumenta de forma exorbitante provocando custo computacional. Outra observação relevante é que o sensor virtual apresentou melhor desempenho com dois tempos atrasados e que três tempos de atraso provocaram queda no desempenho do sensor. Isso provavelmente ocorre porque dados muito atrasados provocam ambiguidade na predição.

Na detecção e diagnóstico de falhas, observou-se que as métricas demonstraram resultados excelentes, com alta capacidade de diagnóstico; mesmo considerando várias falhas ocorrendo simultaneamente e em várias amplitudes.

Comparando as técnicas de aprendizagem de máquina, conclui-se que nos sensores virtuais o desempenho da RNA foi levemente superior, com melhores métricas. Contudo o resultado é justamente o oposto na detecção e diagnóstico de falhas, pois o RF apresentou melhores métricas. Esse resultado provavelmente é observado por conta da arquitetura das técnicas, onde naturalmente as árvores de decisão são utilizadas como classificadores e, conseqüentemente, o RF herda essa qualidade.

Para os trabalhos futuros, recomenda-se tornar o modelo matemático do sistema reacional complexo mais robusto, otimizando o sistema reacional e construindo uma malha de controle completa. Também recomenda-se explorar novos tipos de falhas.

A linguagem Python mostrou-se extremamente robusta na implementação das técnicas de aprendizagem de máquina. Todo o trabalho foi executado dentro das possibilidades da linguagem, e em nenhum momento surgiu a necessidade do uso de um software externo.

Com isso podemos concluir que de fato a aprendizagem de máquina é uma ferramenta robusta e importante na formação do engenheiro químico, pois a indústria 4.0 está cada vez mais difundida. Essas ferramentas possibilitam fazer previsões importantes a respeito de um processo de forma contínua e em tempo real com custos de implementação próximos de zero, desde que bem treinadas.

Por fim, possibilitou-se o aprendizado e o aperfeiçoamento em técnicas e conceitos que normalmente não são trabalhados de forma detalhada na graduação. Possibilitando explorar balanço de massa em conjunto com balanço de energia no estado transiente, assim como as técnicas de aprendizagem de máquina. Assim, pôde-se explorar tópicos correlacionados com as disciplinas de modelagem e simulação, métodos numéricos, cinética de reatores, e uma gama de outras disciplinas que tiveram sua parcela de contribuição.

REFERÊNCIAS

- ALLENDE-CID, H. MACHINE LEARNING: CATALISADOR DA CIÊNCIA. **Revista da Sociedade Brasileira de Computação - Computação Brasil**, p. 15-18, 2019.
- ALLOGHANI, M. et al. A Systematic Review on Supervised and Unsupervised Machine Learning Algorithms for Data Science. In: BERRY, M. W.; MOHAMED, A.; YAP, B. W. **Supervised and Unsupervised Learning for Data Science: Unsupervised and Semi-Supervised Learning**: Springer, 2020.
- ALTIOKKA, M. R.; AKYALÇIN, S. Kinetics of the Hydration of Ethylene Oxide in the Presence of Heterogeneous. **Industrial & Engineering Chemistry Research**, v. 48, n. 24, p. 10840-10844, 2009.
- BRAGA, A. D. P.; LUDERMIR, T. B.; CARVALHO, A. C. P. D. L. F. **Redes Neurais Artificiais: Teoria e aplicações**. Rio de Janeiro: LTC - Livros Técnicos e Científicos Editora, 2000.
- BRANDÃO, M. M. S. L. **Detecção e diagnóstico de falhas de processo químico dinâmico por redes neuronais multicamadas e mapas auto-organizáveis**. Dissertação - Universidade Federal do Rio de Janeiro. Rio de Janeiro. 2010.
- BREIMAN, L. Random Forests. **Machine Learning** 45, p. 5–32, 2001.
- BUSKIRK, T. D. Surveying the Forests and Sampling the Trees: An overview of Classification and Regression Trees and Random Forests with applications in Survey Research. **Survey Practice**, v. 11, p. 1-13, 2018.
- CACCAVALE, F. et al. An integrated approach to fault diagnosis for a class of chemical batch processes. **Journal of Process Control**, v. 19, p. 827-841, 2009.
- CARBONNELLE, P. PYPL PopularitY of Programming Language. **PYPL index**, 2022. Disponível em: <<https://pypl.github.io/PYPL.html>>. Acesso em: 28 maio 2022.
- CAVALCANTE, R. D. S. **Aritmética com Python**. Dissertação - Universidade Federal de Goiás, Instituto de Matemática e Estatística. Goiânia. 2018.
- CHEN, J.; PATTON, R. J. **Robust Model-Based Fault Diagnosis For Dynamic Systems**: Springer Science+Business Media New York, 1999.
- COKER, A. K. **Ludwig's Applied process Design for chemical and petrochemical**. 4^a. ed: Gulf Professional Publishing, v. 1, 2007.
- DIETTERICH, T. G. Ensemble Methods in Machine Learning. In: **Multiple Classifier Systems**: Springer Berlin Heidelberg, 2000. p. 1-15.
- EL-NAQA, I.; MURPHY, M. J. What Is Machine Learning? In: NAQA, I. E.; LI, R.; MURPHY, M. J. **Machine Learning in Radiation Oncology: Theory and Applications**: Springer International Publishing, 2015. p. 3-11.

ENGELL, S.; KLATT, K.-U. Nonlinear Control of a Non-Minimum-Phase CSTR. **1993 American Control Conference**, p. 2941-2945, 1993.

FOGLER, H. S. **Elementos de Engenharia das Reações Químicas**. 4ª. ed. Rio de Janeiro: LTC, 2009.

GONZAGA, J. C. B. et al. ANN-based soft-sensor for real-time process monitoring and control of an industrial polymerization process. **Computers and Chemical Engineering**, v. 33, p. 43-49, 2009.

GOOGLE TRENDS. **Pesquisar**. Disponível em: < <https://trends.google.com.br/trends/?geo=BR> >. Acesso em: 28 maio 2022.

GRANZOTTO, M. H. **Inteligência artificial aplicada à detecção e diagnóstico de falhas em processos químicos**. Tese - Universidade Federal de Uberlândia. Uberlândia. 2020.

GREEN, D. W.; PERRY, R. H. **Perry's chemical engineers' HANDBOOK**. 8ª. ed.: McGraw-Hill, 2007.

GUEDES, É. V. D. O. **Aplicação de soft sensor baseado em redes neurais artificiais e random forest para predição em tempo real do teor de ferro no concentrado da flotação de minério de ferro**. Universidade Federal de Ouro Preto e Instituto Tecnológico Vale. Ouro Preto. 2020.

HAN, T. et al. Comparison of random forest, artificial neural networks and support vector machine for intelligent diagnosis of rotating machinery. **Transactions of the Institute of Measurement and Control**, p. 2681–2693, 2017.

HARRIS, C. R. et al. Array programming with NumPy. **Nature**, v. 585, p. 357-362, 2020.

HAYKIN, S. **Redes Neurais, Princípios e Prática**. 2ª. ed. Porto Alegre: Bookman, 2001.

HUNTER, J. D. Matplotlib: A 2D graphics environment. **Computing in Science & Engineering**, v. 9, n. 3, p. 90-95, 2007.

INGHAM, J. et al. **Chemical Engineering Dynamics: An Introduction to Modelling and Computer Simulation**. 3ª. ed.: WIKEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2007.

KANSE, N. G.; DHANKE, P. B.; THOMBARE., A. Modeling and Simulation Study of the CSTR for Complex Reaction by Using Polymath. **Research Journal of Chemical Sciences**, v. 2(4), p. 79-85, 2012.

KEGERMANN, H.; WAHLSTER, W.; HELBIG, J. **Recommendations for implementing the strategic initiative INDUSTRIE 4.0**. Acatech - National Academy of Science and Engineering. 2013.

LOTUFO, F. A.; GARCIA, C. SENSORES VIRTUAIS OU SOFT SENSORS: UMA INTRODUÇÃO. **7th Brazilian Conference on Dynamics, Control and Applications**, São Paulo, 2008.

LUTZ, M.; ASCHER, D. **Aprendendo Python**. 2ª. ed. Porto Alegre: Bookman, 2007.

MELEIRO, L. A. D. C. **Projeto e Aplicação de Controladores Baseados em Modelos Lineares, Neurais e Nebulosos**. Tese - Universidade Estadual de Campinas. Campinas. 2002.

MURRUGARRA-LLERENA, N. E. **Ensembles na classificação relacional**. Universidade de São Paulo. São Carlos. 2011.

NOSHAD, Z. et al. Fault detection in wireless sensor networks through the random forest classifier. **Sensors**, p. 1568, 2019.

OLIVEIRA, J. C. M. **Detecção e Diagnóstico de falhas em processos dinâmicos com redes neurais sem pesos**. Tese - Universidade Federal da Bahia. Salvador. 2018.

PEDREGOSA, F. et al. Scikit-learn: Machine Learning in Python. **Journal of Machine Learning Research**, v. 12, p. 2825-2830, 2011.

PIATETSKY, G. Python leads the 11 top Data Science, Machine Learning platforms: Trends and Analysis. **KDnuggets**, 2019. Disponível em: <<https://www.kdnuggets.com/2019/05/poll-top-data-science-machine-learning-platforms.html>>. Acesso em: 28 maio 2022.

PRIHATIN, T. et al. Synthesis of Optimum Water Polygeneration System in Ethylene Glycol Production. **Industrial & Engineering Chemistry Research**, v. 52, n. 22, p. 7066-7073, 2013.

PROBST, P.; WRIGHT, M. N.; BOULESTEIX, A.-L. Hyperparameters and tuning strategies for random forest. **Wiley**, 2018.

RASAMOELINA, A. D.; ADJAILIA, F.; SINC~AK, P. A Review of Activation Function for Artificial. **2020 IEEE 18th World Symposium on Applied Machine Intelligence and Informatics (SAMI)**, p. 281-286, 2020.

REBOUÇAS, D. L. **Utilização de redes neurais artificiais para detecção e diagnóstico de falhas**. Dissertação - Universidade Federal do Rio Grande do Norte. Natal. 2011.

SHVETS, V. F. et al. The Model of Catalytic Reactor of Ethylene Glycol Production. **Organic Process Research & Development**, v. 9, p. 768-773, 2005.

SILVA, G. D. C. **Estudo de um controlador preditivo não linear multivariável baseado em redes neuronais**. Dissertação - Universidade Federal do Rio de Janeiro. Rio de Janeiro. 2014.

SILVA, I. N. D.; SPATTI, D. H.; FLAUZINO, R. A. **Redes Neurais Artificiais: Para engenharia e ciências aplicadas**. 2ª. ed. São Paulo: Artiber, 2016.

SUN, F. et al. Research on industrial modeling of ethylene oxide hydration reactor. In: **2011 International Symposium on Advanced Control of Industrial Processes (ADCONIP)**. 2011. p. 456-460.

THIENEN, S. V. et al. **Industry 4.0 and the chemicals industry: Catalyzing transformation through operations improvement and business growth**. Deloitte University Press. 2016.

VAIDYA, S.; AMBAD, P.; BHOSLE, S. Industry 4.0 - A Glimpse. **Procedia Manufacturing**, n. 20, p. 233-238, 2018.

VIRTANEN, P. et al. SciPy 1.0: fundamental algorithms for scientific computing in Python. **Nature Methods**, v. 17, p. 261-272, 2020.

VOJTESEK, J.; PROKOP, R.; DOSTAL, P. Two Degrees-of-Freedom Hybrid Adaptive Approach with Pole-placement Method Used for Control of Isothermal Chemical Reactor. **Chemical Engineering Transactions**, v. 61, p. 1855-1860, 2017.

YANG, B.-S.; DI, X.; HAN, T. Random forests classifier for machine fault diagnosis. **Journal of Mechanical Science and Technology**, v. 22, p. 1716-1725, 2008.

YAWS, C. L. **Yaws' Handbook of Thermodynamic and Physical Properties of Chemical Compounds: Physical, Thermodynamic and Transport Properties for 5,000 Organic Chemical Compounds**. Norwich, N.Y.: Knovel, 2003.

ZELINKA, I.; VOJTESEK, J.; OPLATKOVA, Z. Simulation Study Of The CSTR Reactor For Control Purposes. **20th European Conference on Modelling and Simulation ECMS 2006**, 2006.

APÊNDICE A – Propriedade dos Compostos

As propriedades dos compostos não isotérmicos são fundamentais na determinação precisa das propriedades em diferentes temperaturas. Então abaixo encontram-se as principais propriedades dos compostos utilizados nesse trabalho.

Calor específico

Para o cálculo do calor específico dos compostos B,C,D e E utilizam-se as correlações fornecidas pelo autor Yaws (2003) , já para o composto A utilizam-se os dados do autor Coker (2007) . As correlações são com base na equação (A.1):

$$C_p \left[\frac{J}{mol \cdot K} \right] = X + Y \cdot T + Z \cdot T^2 + W \cdot T^3 \quad (A.1)$$

Onde os parâmetros estão presentes na Tabela A-1.

Tabela A - 1 – Parâmetros para determinação do calor específico.

Composto	X	Y	Z	W	$T_{min} - T_{max}$ (K)
A	92,053	-3,9953E-02	-2,1103E-04	5,3469E-07	273-615
B	34,570	4,2908E-01	-1,5473E-03	2,4071E-06	162-422
C	75,878	6,4182E-01	-1,6493E-03	1,693E-06	261-581
D	126,618	8,5587E-01	-1,9468E-03	1,8724E-06	264-670
E	160,250	1,2070E+00	-3,0636E-03	3,2418E-06	276-626

Fonte: Adaptado de Yaws (2003) e Coker (2007).

Entalpias de Reação

Para as entalpias de reação, primeiro obtiveram-se as entalpias de formação para os compostos no estado gasoso, fornecidas por Yaws (2003) na Tabela A-2. A correlação é conforme a equação (A.2).

$$\Delta H_f^\circ \left[\frac{kJ}{mol} \right] = X + Y \cdot T + Z \cdot T^2 \quad (A.2)$$

Tabela A - 2 – Parâmetros para determinação da entalpia de formação gás.

Composto	X	Y	Z	$T_{min} - T_{max}$
A	-238,41	-0,012256	2,7656E-06	298,15-1000
B	-3,8303E+01	-5,6576E-02	2,8924E-05	298,15-1000
C	-3,7631E+02	-4,4634E-02	2,3855E-05	298,15-1000
D	-5,7311E+02	-1,1121E-01	5,7027E-05	298,15-1000
E	-6,8707E+02	-1,5148E-01	8,0337E-05	298,15-1000

Fonte: Adaptado de Yaws (2003).

Porém, por hipótese, o reator opera com os reagentes e produtos no estado líquido; então calculam-se também as entalpias de vaporização, conforme equação (A.3).

$$\Delta H_{f(l)} = \Delta H_{f(g)} - \Delta H_v(l) \quad (\text{A.3})$$

Sendo as entalpias de vaporização dos compostos A,B e C fornecidas por Green e Perry (2007), calculadas conforme a equação (A.4).

$$\Delta H_v \left[\frac{J}{kmol} \right] = X \left(1 - \frac{T}{T_c} \right)^{Y+Z\left(\frac{T}{T_c}\right)+W\left(\frac{T}{T_c}\right)^2} \quad (\text{A.4})$$

Os parâmetros encontram-se na Tabela A-3.

Tabela A - 3 – Parâmetros para determinação da entalpia de vaporização 1.

Composto	X	Y	Z	W	Tc	$T_{min} - T_{max}$
A	5,2053E+07	0,3199	-0,212	0,25795	647,096	273,16-647,10
B	3,6652E+07	0,37878	-	-	469.15	160,65-469,15
C	8,3518E+07	0,42625	-	-	720	260,15-720,00

Fonte: Adaptado de Green e Perry (2007).

Já para as substâncias D e E são fornecidas por (YAWS, 2003), conforme a equação (A.5).

$$\Delta H_v \left[\frac{J}{kmol} \right] = X \left(1 - \frac{T}{T_c} \right)^n \quad (\text{A.5})$$

A Tabela A-4 traz os parâmetros utilizados.

Tabela A - 4 – Parâmetros para determinação da entalpia de vaporização 2.

Composto	X	T _c	n	T _{min} – T _{max}
D	94,746	744,6	0,431	262,7-744,6
E	130,88	700	0,46	265,79-551

Fonte: Adaptado de Yaws (2003).

Massa Específica

O autor Coker (2007) fornece a massa específica da água que será utilizada como fluido de arrefecimento do reator, calculada pela equação (A.6).

$$\rho \left[\frac{g}{cm^3} \right] = XY^{-\left(\left(1 - \frac{T}{T_c} \right)^n \right)} \quad (A.6)$$

Cujos parâmetros encontram-se na Tabela A-5.

Tabela A - 5 – Parâmetros para determinação da massa específica.

Fórmula	X	Y	n	T _c	T _{min} – T _{max}
H ₂ O	0,34710	0,27400	0,28571	647,13	273,16-647,13

Fonte: : Adaptado de Coker (2007).

APÊNDICE B – Dedução Balanço de Massa

Baseado no sistema reativo complexo estudado, é possível construir o balanço de Massa para o sistema, utilizando a metodologia de Fogler (2009).

Para um reator CSTR o balanço de massa é definido pela expressão abaixo, que pode ser reescrita na equação (B.1):

$$\textit{Entrada} - \textit{Saída} + \textit{Geração} = \textit{Acúmulo}$$

$$\left[\begin{array}{c} \textit{Taxa de } j \\ \textit{Entrando no Sistema} \\ \left(\frac{\textit{mols}}{\textit{tempo}} \right) \end{array} \right] - \left[\begin{array}{c} \textit{Taxa de } j \\ \textit{Saindo do Sistema} \\ \left(\frac{\textit{mols}}{\textit{tempo}} \right) \end{array} \right] + \left[\begin{array}{c} \textit{Taxa de } j \\ \textit{Gerado pelo Sistema} \\ \left(\frac{\textit{mols}}{\textit{tempo}} \right) \end{array} \right] = \left[\begin{array}{c} \textit{Taxa de } j \\ \textit{Acumulado} \\ \left(\frac{\textit{mols}}{\textit{tempo}} \right) \end{array} \right]$$

$$F_{j0} - F_j + G_j = \frac{dN_j}{dt} \quad (\text{B.1})$$

Assumindo que não existe variações espaciais na velocidade de reação, ou seja, que apresente mistura perfeita em todo o volume do reator, podemos escrever o termo geração como a equação (B.2):

$$G_j = V \cdot r_j \quad (\text{B.2})$$

Substituindo as variáveis e reorganizando, pode-se reescrever o balanço em função da concentração do reagente j , assumindo que o volume do reator seja constante no tempo como na equação (B.3).

$$\frac{F_v}{V} (C_{j0} - C_j) + r_j = \frac{dC_j}{dt} \quad (\text{B.3})$$

Em particular, para o sistema reativo complexo deste trabalho, temos o balanço por componente sendo:

$$\frac{dC_A}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{A0} - C_A) + r_1 \quad (\text{B.4})$$

$$\frac{dC_B}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{B0} - C_B) + r_1 + r_2 + r_3 \quad (\text{B.5})$$

$$\frac{dC_C}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{C0} - C_C) - r_1 + r_2 \quad (\text{B.6})$$

$$\frac{dC_D}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{D0} - C_D) - r_2 + r_3 \quad (\text{B.7})$$

$$\frac{dC_E}{dt} = \frac{F_v}{V} (C_{E0} - C_E) - r_3 \quad (\text{B.8})$$

Onde:

$$r_1 = -C_A \cdot C_B \cdot k_1 \quad (\text{B.9})$$

$$r_2 = -C_C \cdot C_B \cdot k_2 \quad (\text{B.10})$$

$$r_3 = -C_D \cdot C_B \cdot k_3 \quad (\text{B.11})$$

APÊNDICE C – Dedução Balanço de Energia para o Reator

O balanço de energia leva em consideração as principais variáveis com dependência da temperatura. Por questão de organização a expressão $y = f(T)$ será substituída pela expressão $y = f$; isso para todas as variáveis mencionadas nessa seção. A dedução foi realizada baseando-se na metodologia de Fogler (2009).

Partindo da primeira lei da termodinâmica para um sistema aberto, ou seja, existe fluxo de massa através da fronteira do sistema, admitindo que o conteúdo do volume do sistema esteja bem misturado o balanço para n espécies, e considerando nulo a taxa de trabalho realizada pelo sistema sobre as vizinhanças, o balanço de energia pode ser representado pela expressão abaixo:

$$\left[\begin{array}{c} \text{Taxa de} \\ \text{energia} \\ \text{adicionada} \\ \text{ao sistema} \\ \text{pela massa que} \\ \text{escoa para} \\ \text{dentro do sistema} \\ \left(\frac{J}{s}\right) \end{array} \right] - \left[\begin{array}{c} \text{Taxa de} \\ \text{Energia que} \\ \text{sai do sistema} \\ \text{devido ao} \\ \text{escoamento da} \\ \text{massa para} \\ \text{fora do sistema} \\ \left(\frac{J}{s}\right) \end{array} \right] + \left[\begin{array}{c} \text{Taxa de} \\ \text{energia} \\ \text{Transferida} \\ \text{para o sistema} \\ \text{a partir das} \\ \text{vizinhanças} \\ \left(\frac{J}{s}\right) \end{array} \right] = \left[\begin{array}{c} \text{Taxa de} \\ \text{acúmulo} \\ \text{de energia} \\ \text{dentro do} \\ \text{sistema} \\ \left(\frac{J}{s}\right) \end{array} \right]$$

Rescrevendo temos a equação (C.1).

$$\sum_i^n H_i F_i \Big|_{\text{Entrada}} - \sum_i^n H_i F_i \Big|_{\text{Saída}} + \dot{Q} = \frac{d\hat{E}_{\text{sistema}}}{dt} \quad (\text{C.1})$$

Sabendo que a energia é a soma da energia interna (U), da energia cinética ($v^2/2$) e da energia potencial (gz), como na equação (C.2).

$$E = U + \frac{v^2}{2} + gz \quad (\text{C.2})$$

Analisando o termo da variação da energia do sistema, e expressando em função da energia interna U e em termos de entalpia H , desprezando a energia potencial e cinética, temos a equação (C.3).

$$E_i = U_i = H_i - P V_i \quad (C.3)$$

Então, rescrevendo o termo da equação (C.1) com as devidas alterações, chegamos na equação (C.4).

$$\hat{E}_{sistema} = \sum_i^n N_i E_i = \sum_i^n N_i U_i = \left[\sum_i^n N_i (H_i - P V_i) \right]_{sistema} = \sum_i^n N_i H_i - P \cdot \sum_i^n N_i F \tilde{V}_i \quad (C.4)$$

Note que o segundo termo pode ser simplificado na equação (C.5).

$$P \cdot \sum_i^n N_i F \tilde{V}_i = P V \quad (C.5)$$

Para o sistema em questão, admite-se que não existe variação com o espaço das variáveis no volume de controle do sistema. Também não existe variação temporal do produto da pressão total do sistema pelo volume total. Logo, podemos diferenciar no tempo, resultando na equação (6).

$$\frac{d\hat{E}_{sistema}}{dt} = \left[\sum_i^n N_i \frac{dH_i}{dt} + \sum_i^n H_i \frac{dN_i}{dt} \right]_{sistema} \quad (C.6)$$

Por definição temos a equação (C.7).

$$dH_i = C_{p_i} dT \quad (C.7)$$

Integrando a equação (C.7) obtemos a equação (C.8), que pode ser reescrita como a equação (C.9).

$$\int_{H_i(T_*)}^{H_i(T)} dH = \int_{T_*}^T C_{p_i} dT \quad (C.8)$$

$$H_i(T) - H_i(T_*) = \int_{T_*}^T C_{p_i} dT \quad (C.9)$$

Diferenciando a equação (C.7) em relação ao tempo temos a equação (C.10).

$$\frac{dH_i}{dt} = C_{pi} \frac{dT}{dt} \quad (\text{C.10})$$

Então substituindo a equação (C.10) na equação (C.6), obtemos a equação (C.11).

$$\frac{d\hat{E}_{\text{Sistema}}}{dt} = \sum_i^n N_i C_{pi} \frac{dT}{dt} + \sum_i^n H_i \frac{dN_i}{dt} \quad (\text{C.11})$$

O balanço molar é definido pela equação (C.12).

$$\frac{dN_i}{dt} = F_{i0} - F_i + r_i V \quad (\text{C.12})$$

Para o caso de múltiplas reações (j) da espécie (i), podemos rescrever a velocidade da reação na forma da equação (C.13).

$$r_i = \sum_j^q r_{ji} \quad , \quad \text{sendo } q \text{ o número de reações.} \quad (\text{C.13})$$

Para uma dada reação genérica na forma da equação (C.14).



Temos a relação entre os coeficientes estequiométricos e as velocidades da reação como na equação (C.15), sendo j o índice da reação.

$$\frac{-r_{jA}}{a_j} = \frac{-r_{jB}}{b_j} = \frac{r_{jC}}{c_j} = \frac{r_{jD}}{d_j} \quad (\text{C.15})$$

Então as relações podem ser rescritas para cada reação individualmente. Dessa forma podemos rescrever em função de um determinado composto, no caso de A o balanço de material fica conforme a equação (C.16).

$$\frac{dN_i}{dt} = F_{i0} - F_i + \sum_j^q v_{ji} r_{jA} V \quad (\text{C.16})$$

$v_{ji} \rightarrow$ coeficiente estequiométrico da substância i na reação j

Para a reação genérica expressa na equação (C.17).



O coeficiente estequiométrico é definido como $v_A = -1; v_B = -\frac{b}{a}; v_C = \frac{c}{a}; v_D = \frac{d}{a}$. Partindo disso, fazendo as devidas substituições, podemos afirmar que o somatório da equação (38) é equivalente a entalpia de reação.

$$\sum_i^n v_i H_i = -H_A - \frac{b}{a}H_B + \frac{c}{a}H_C + \frac{d}{a}H_D = \Delta H_{rx} \quad (\text{C.18})$$

Podemos finalmente rescrever o segundo termo da equação (C.6) na forma da equação (C.19).

$$\sum_i^n H_i \frac{dN_i}{dt} = \sum_i^n H_i F_{i0} - \sum_i^n H_i F_i + V \sum_j^q \Delta H_{rj} (-r_j) \quad (\text{C.19})$$

Para o caso particular desse trabalho, adota-se como referência a substância B; então as velocidades são escritas da forma da equação (C.20), (C.21) e C.22). Para facilitar, estas serão chamadas de velocidade da reação 1,2 e 3.

$$-r_{1B} = -r_1 = C_A \cdot C_B \cdot k_1 \quad (\text{C.20})$$

$$-r_{2B} = -r_2 = C_C \cdot C_B \cdot k_2 \quad (\text{C.21})$$

$$-r_{3B} = -r_3 = C_D \cdot C_B \cdot k_3 \quad (\text{C.22})$$

Também, para o caso em particular, $v_{1A} = v_{1B} = v_{2C} = v_{2B} = v_{3D} = v_{3E} = -1$ e $v_{1C} = v_{2D} = v_{3E} = +1$

Substituindo a equação (C.19) na equação (C.11), temos a equação (C.23).

$$\frac{d\hat{E}_{Sistema}}{dt} = \sum_i^n N_i C_{p_i} \frac{dT}{dt} + \sum_i^n H_i F_{i0} - \sum_i^n H_i F_i + V \sum_j^q \Delta H_{r_j} (-r_j) \quad (\text{C.23})$$

Continuando, podemos montar a expressão geral do balanço de energia igualando a equação (C.1) com a equação (C.23), obtendo assim a equação (C.24).

$$\sum_i^n H_i F_i \Big|_{Entrada} - \sum_i^n H_i F_i \Big|_{Saída} + \dot{Q} = \sum_i^n N_i C_{p_i} \frac{dT}{dt} + \sum_i^n H_i F_{i0} - \sum_i^n H_i F_i + V \sum_j^3 \Delta H_{r_j} (-r_j) \quad (\text{C.24})$$

Reescrevendo a equação (C.24) na equação (C.25) e simplificando, obtemos a equação (C.26).

$$\sum_i^n H_{i0} F_{i0} + Q - \sum_i^n H_i F_{i0} + V \sum_j^q \Delta H_{r_j} (-r_j) = \sum_i^n N_i C_{p_i} \frac{dT}{dt} \quad (\text{C.25})$$

$$\sum_{i=1}^n F_{i0} (H_{i0} - H_i) + Q + V \sum_j^3 \Delta H_{r_j} (-r_j) = \sum_i^n N_i C_{p_i} \frac{dT}{dt} \quad (\text{C.26})$$

Por fim, substituindo a equação (C.9) na equação (C.26), obtemos o balanço de energia do reator, equação (C.27).

$$\frac{-\sum_i^n \left[F_{i0} \left(\int_{T_0}^T C_{p_i} dT \right) \right] + Q + V \sum_j^3 [\Delta H_{r_j} (-r_j)]}{\sum_i^n [N_i C_{p_i}]} = \frac{dT}{dt} \quad (\text{C.27})$$

Por comodidade, preferiu-se substituir a vazão molar F pela vazão volumétrica Fv adicionando o termo da concentração das espécies, como na equação (C.28).

$$\frac{dT_r}{dt} = \frac{-Fv \sum_i^n [C_{i0} \left(\int_{T_0}^T C_{p_i} dT \right)] + Q + v \sum_j^3 [\Delta H_{rj} (-r_j)]}{v \sum_i^n [C_i C_{p_i}]} \quad (\text{C.28})$$

APÊNDICE D - Dedução Balanço de Energia Para a Jaqueta Térmica

O reator em trabalho possui jaqueta térmica responsável pelo controle de temperatura do reator. Por hipótese assume-se que a jaqueta opera em regime transiente juntamente com o reator.

Partindo do mesmo balanço realizado para o reator, apenas desconsiderando os termos referentes as reações, podemos escrever a seguinte expressão na forma da equação (D.1):

$$\left[\begin{array}{c} \text{Taxa de} \\ \text{energia} \\ \text{adicionada} \\ \text{ao sistema} \\ \text{pela massa que} \\ \text{escoa para} \\ \text{dentro do sistema} \\ \left(\frac{J}{s}\right) \end{array} \right] - \left[\begin{array}{c} \text{Taxa de} \\ \text{Energia que} \\ \text{sai do sistema} \\ \text{devido ao} \\ \text{escoamento da} \\ \text{massa para} \\ \text{fora do sistema} \\ \left(\frac{J}{s}\right) \end{array} \right] + \left[\begin{array}{c} \text{Taxa de} \\ \text{energia} \\ \text{Transferida} \\ \text{para o sistema} \\ \text{a partir das} \\ \text{vizinhanças} \\ \left(\frac{J}{s}\right) \end{array} \right] = \left[\begin{array}{c} \text{Taxa de} \\ \text{acúmulo} \\ \text{de energia} \\ \text{dentro do} \\ \text{sistema} \\ \left(\frac{J}{s}\right) \end{array} \right]$$

$$H_0 F_0 - HF + \dot{Q} = \frac{d\hat{E}_{\text{sistema}}}{dt} \quad (\text{D.1})$$

Simplificando a equação (D.1), obtemos a equação (D.2), que é equivalente a equação (3).

$$H_0 F_0 - HF + \dot{Q} = N \frac{dH}{dt} + H \frac{dN}{dt} \quad (\text{D.2})$$

$$H_0 F_0 - HF + \dot{Q} = N C_p \frac{dT_j}{dt} \quad (\text{D.3})$$

Por fim, reorganizando a equação (D.3) obtemos a equação (D.4).

$$\frac{H_0 F_0 - HF + \dot{Q}}{N C_p} = \frac{dT_j}{dt} \quad (\text{D.4})$$

Como $F_0 = F$, e fazendo a substituição da entalpia por calor específico na equação (D.4), obtemos a equação (D.5).

$$\frac{-F_0 \left(\int_{T_0}^{T_j} C_p dT \right) + \dot{Q}}{N C_p} = \frac{dT_j}{dt} \quad (\text{D.5})$$

Para o modelo em questão é conhecida a vazão volumétrica do fluido e a massa, então são necessárias algumas manipulações; obtendo assim a equação (D.6):

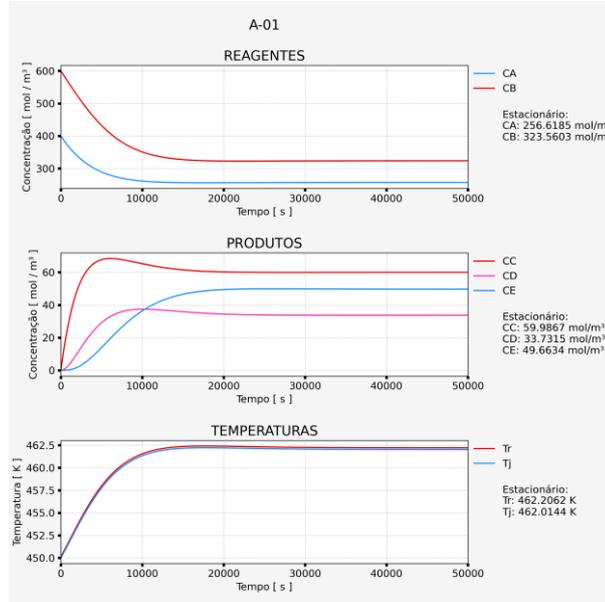
$$\frac{dT_j}{dt} = \frac{-\rho F_{vj} \frac{1}{MM} \left(\int_{T_{j0}}^{T_j} C_p dT \right) + \dot{Q}}{m_j \frac{1}{MM} C_p} \quad (\text{D.6})$$

Onde:

$$\dot{Q} = U \cdot A_r (T_j - T_r) \quad (\text{D.7})$$

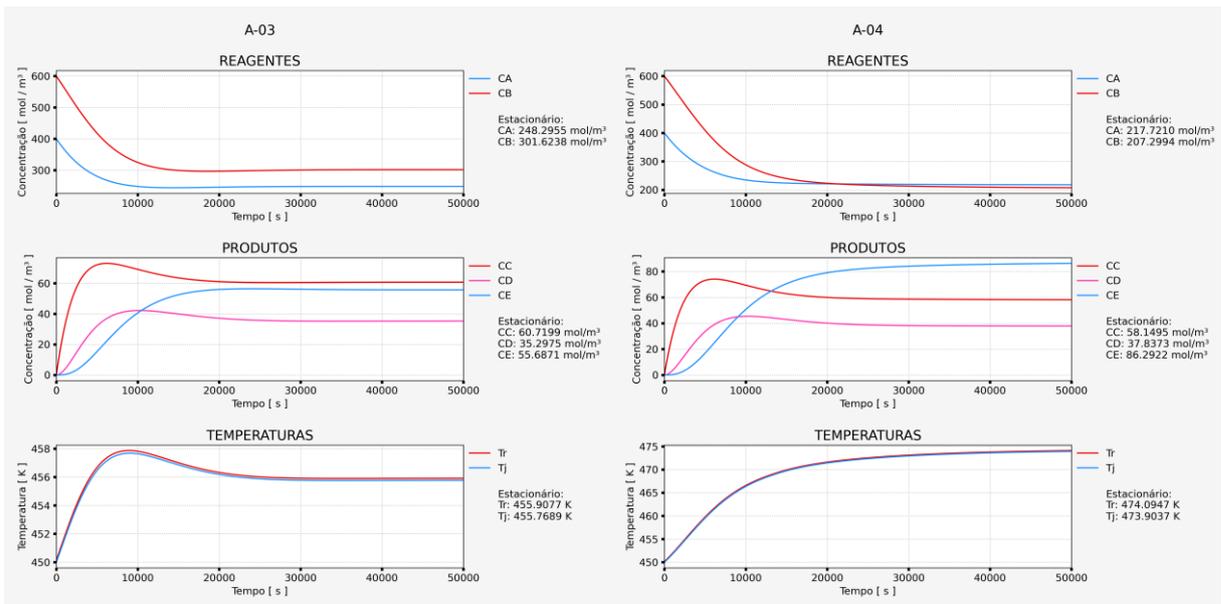
APÊNDICE E – Perfis de Sensibilidade Dinâmica

Figura E - 1 – Caso A-01.



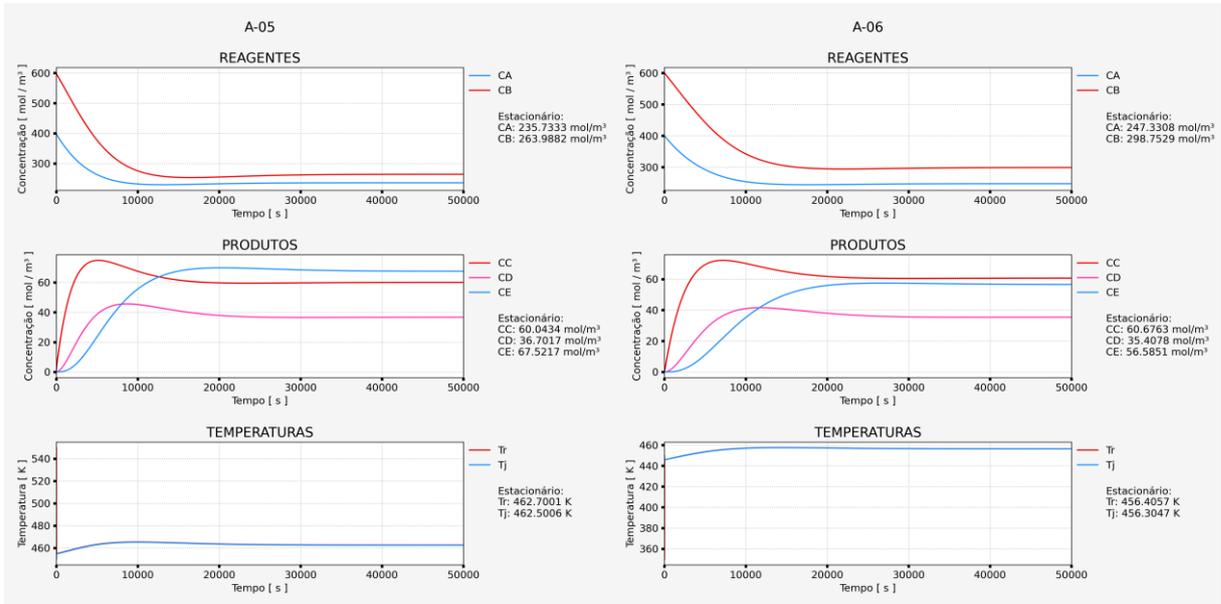
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura E - 2 – Caso A-03 e A-04.



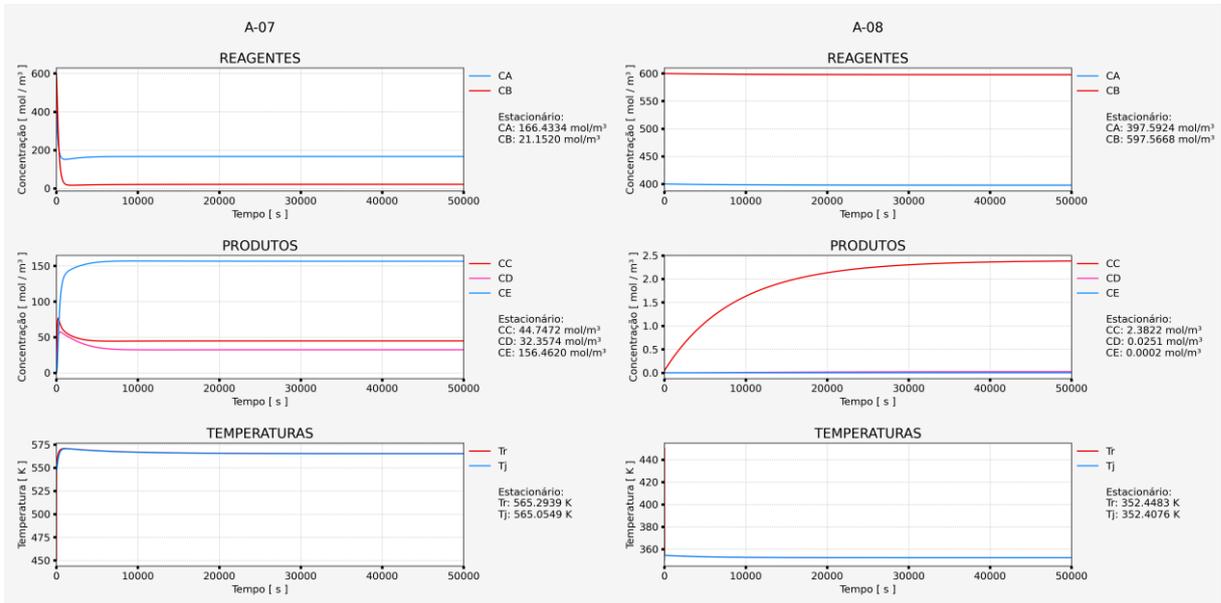
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura E - 3 – Caso A-05 e A-06.



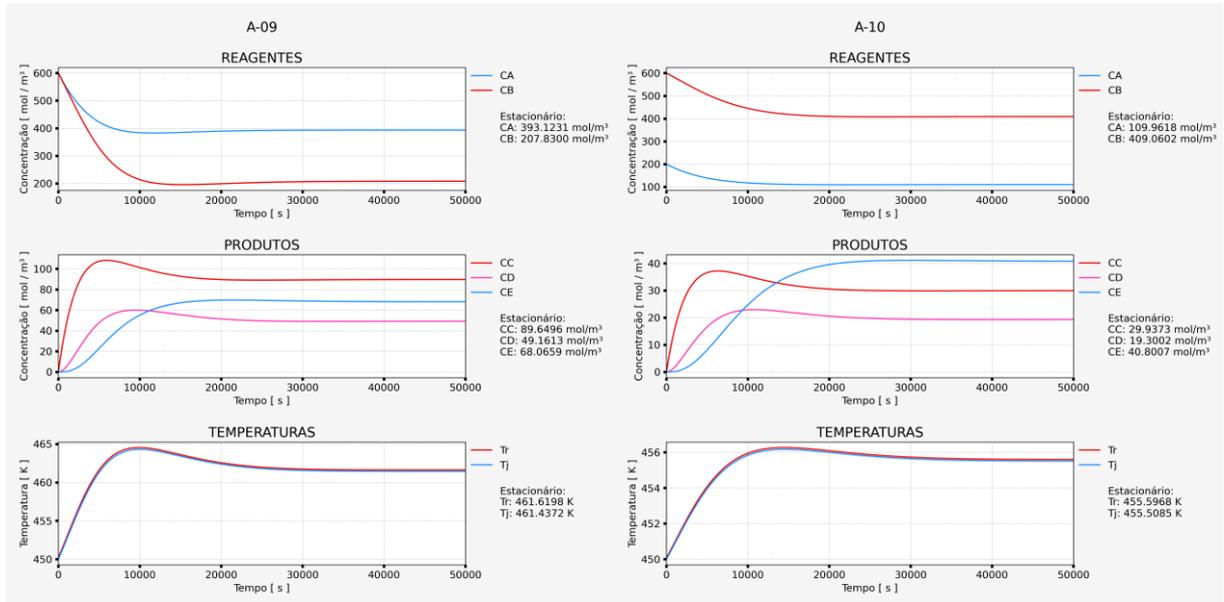
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura E - 4 – Caso A-07 e A-08.



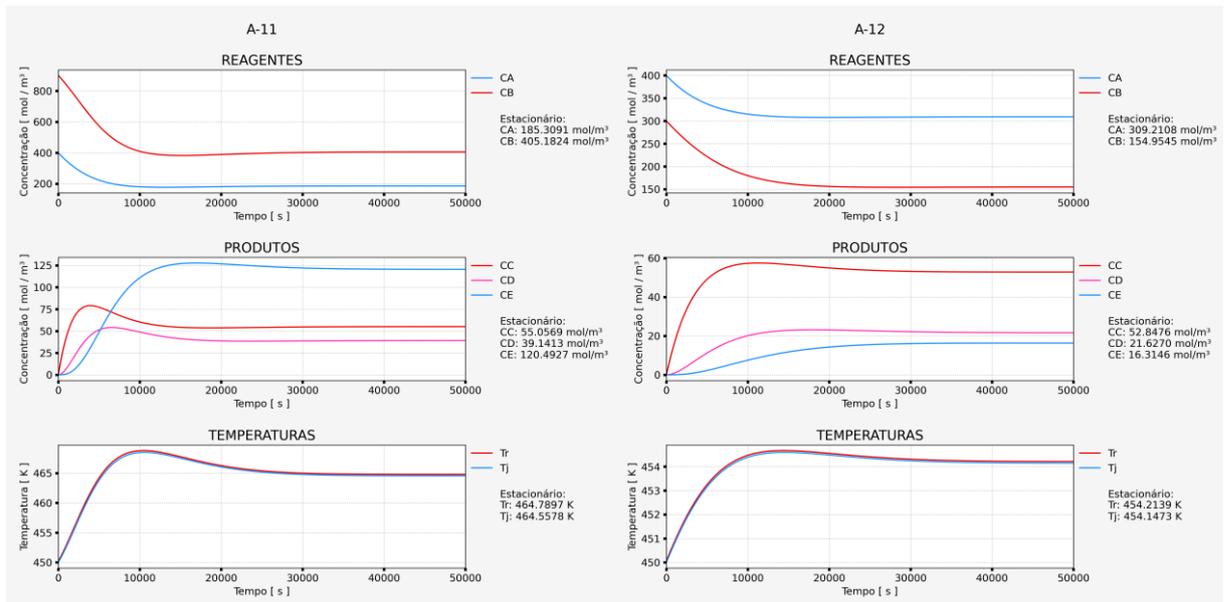
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura E - 5 – Caso A-09 e A-10.



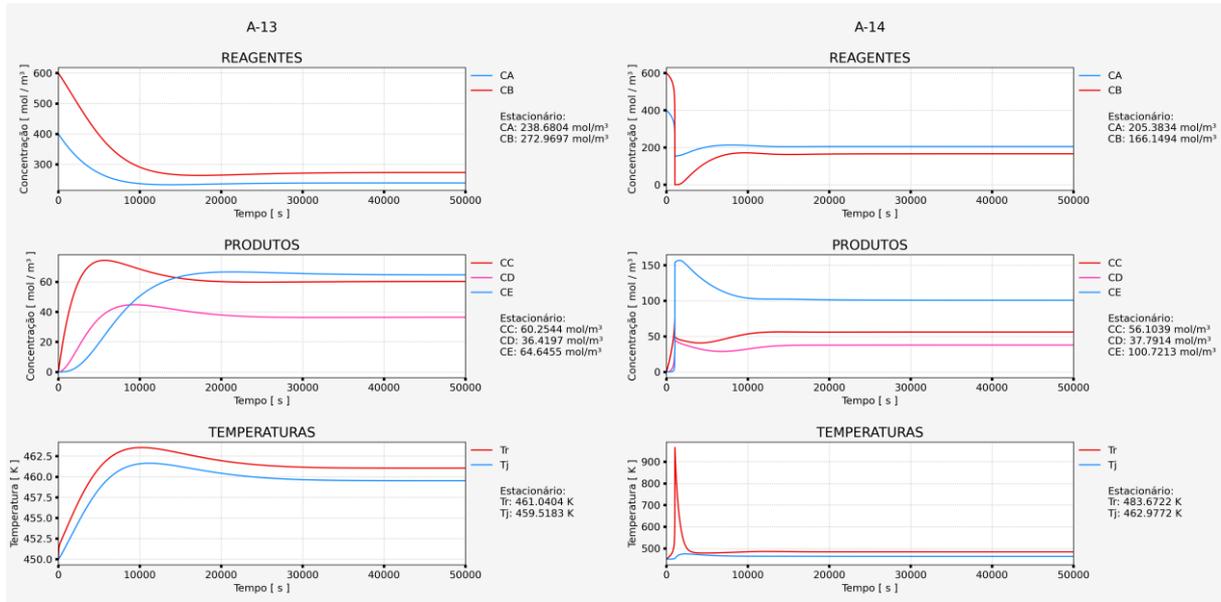
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura E - 6 – Caso A-11 e A-12.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

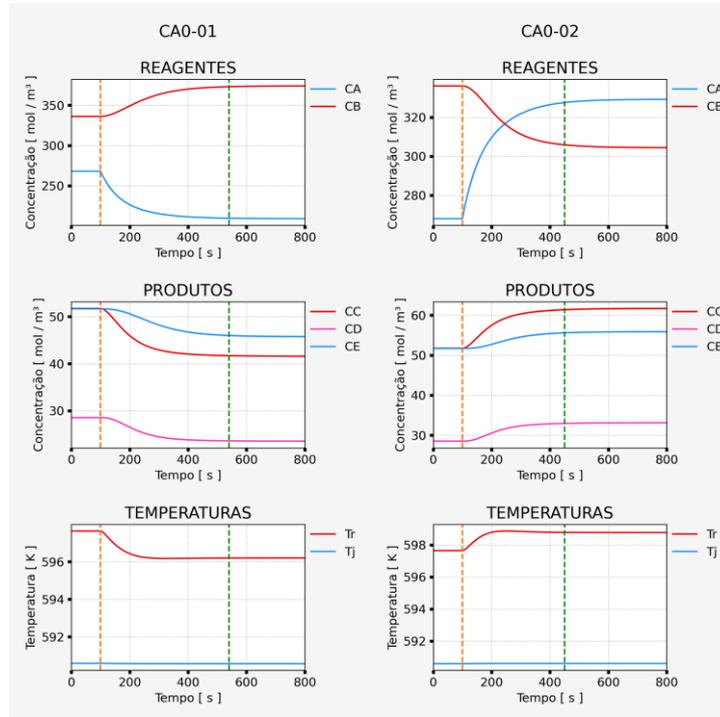
Figura E - 7 – Caso A-13 e A-14.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

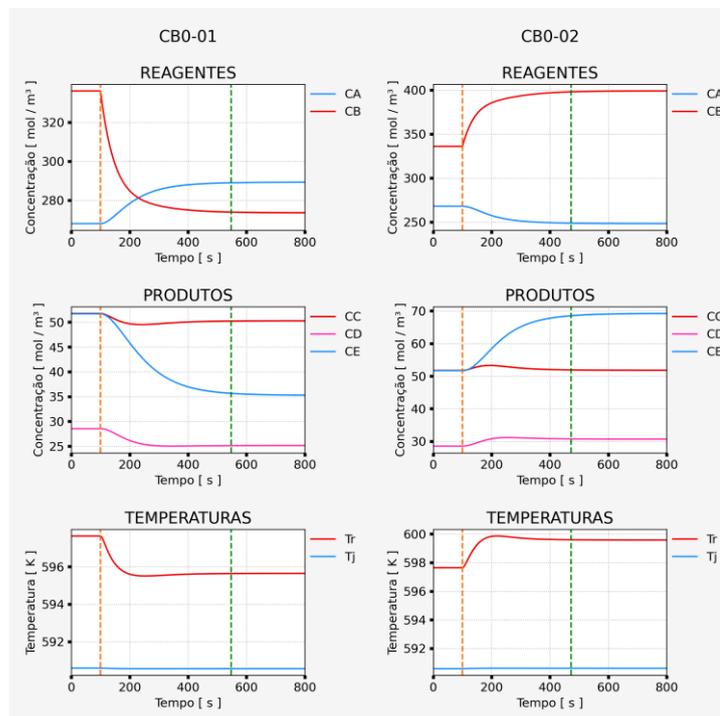
APÊNDICE F – Perfis Após Perturbação

Figura F - 1 – Perturbação em CA₀.



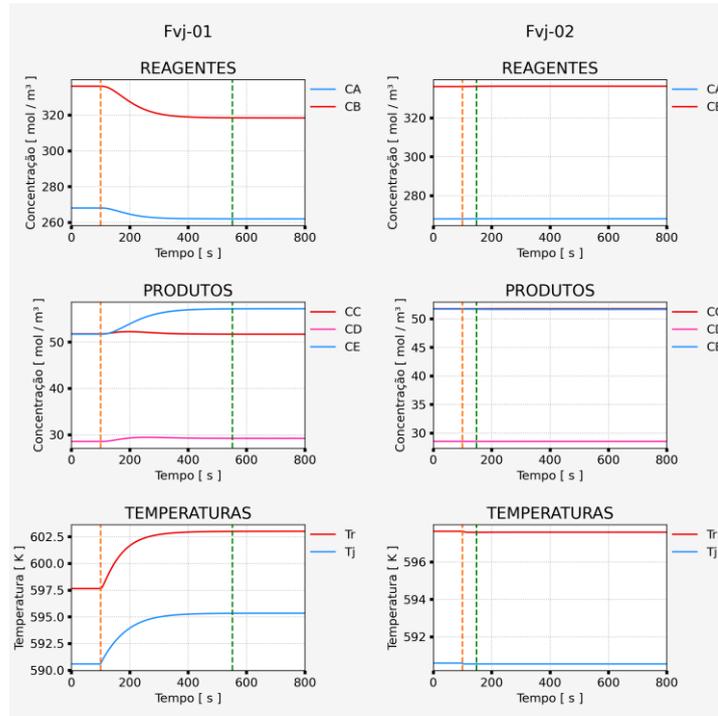
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura F - 2 – Perturbação em CB₀.



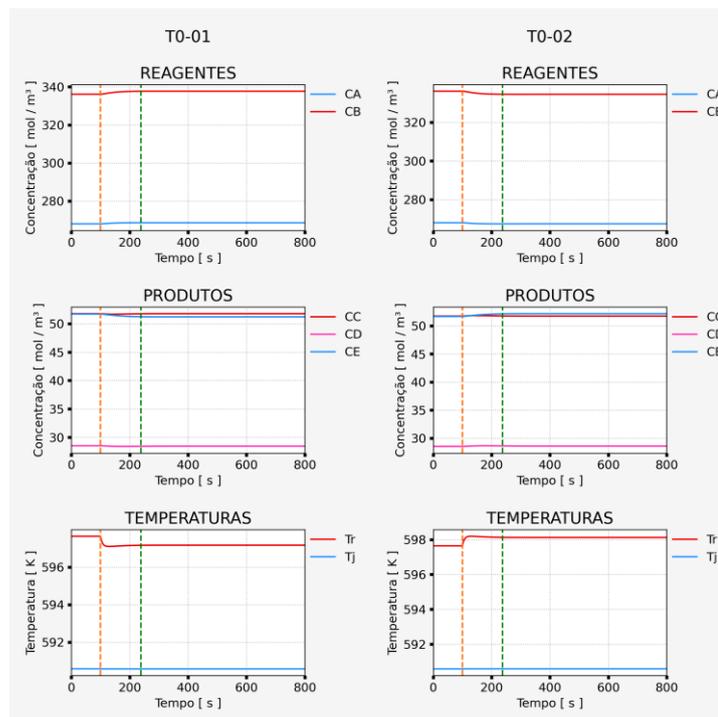
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura F - 3 – Perturbação em F_{Vj} .



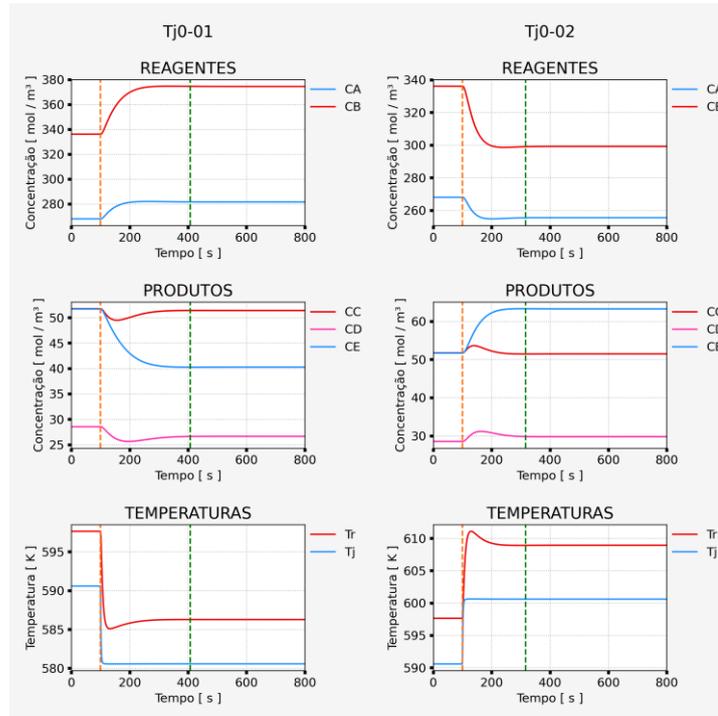
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura F - 4 – Perturbação em T_0 .



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

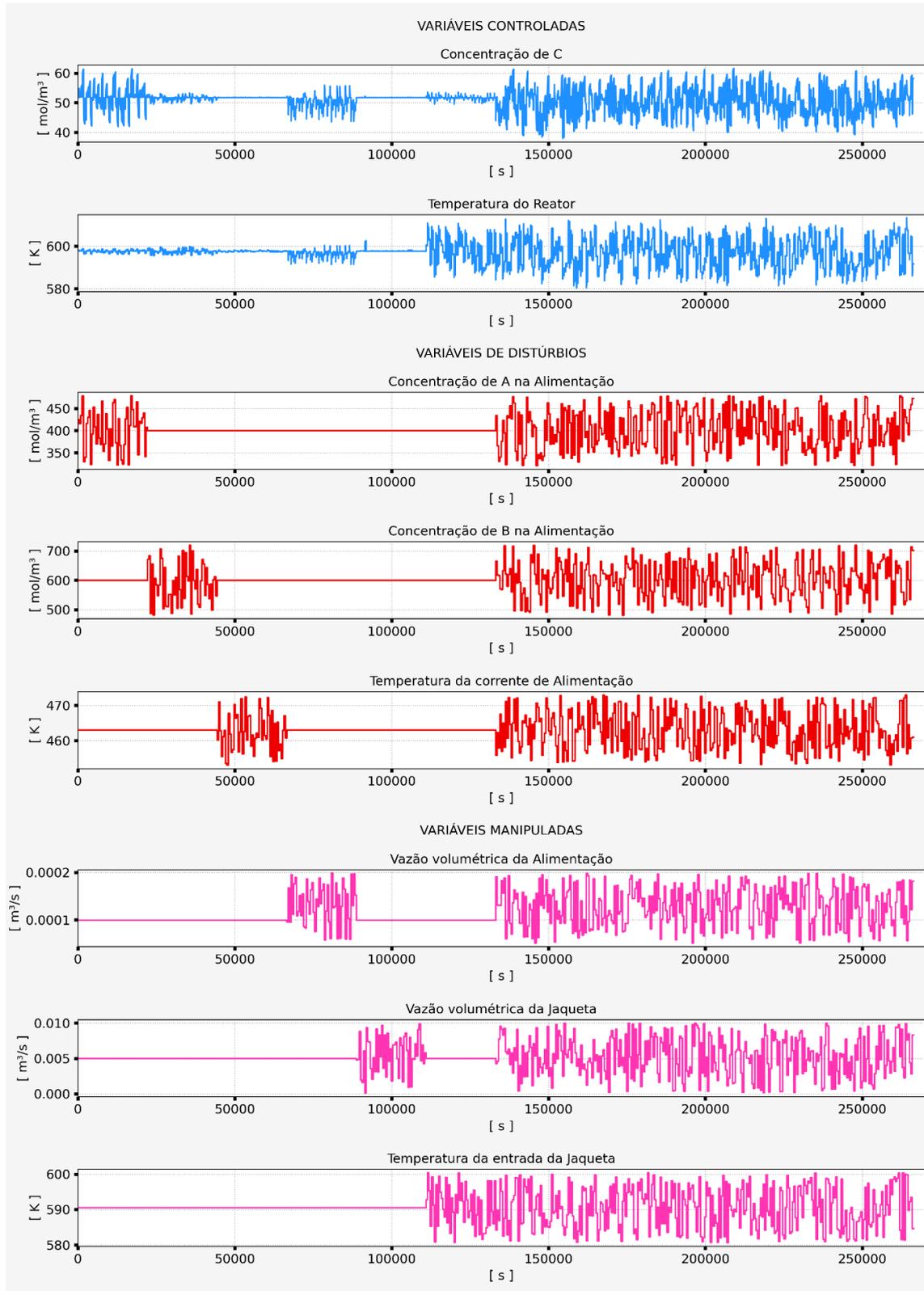
Figura F - 5 – Perturbação em T_{j0} .



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

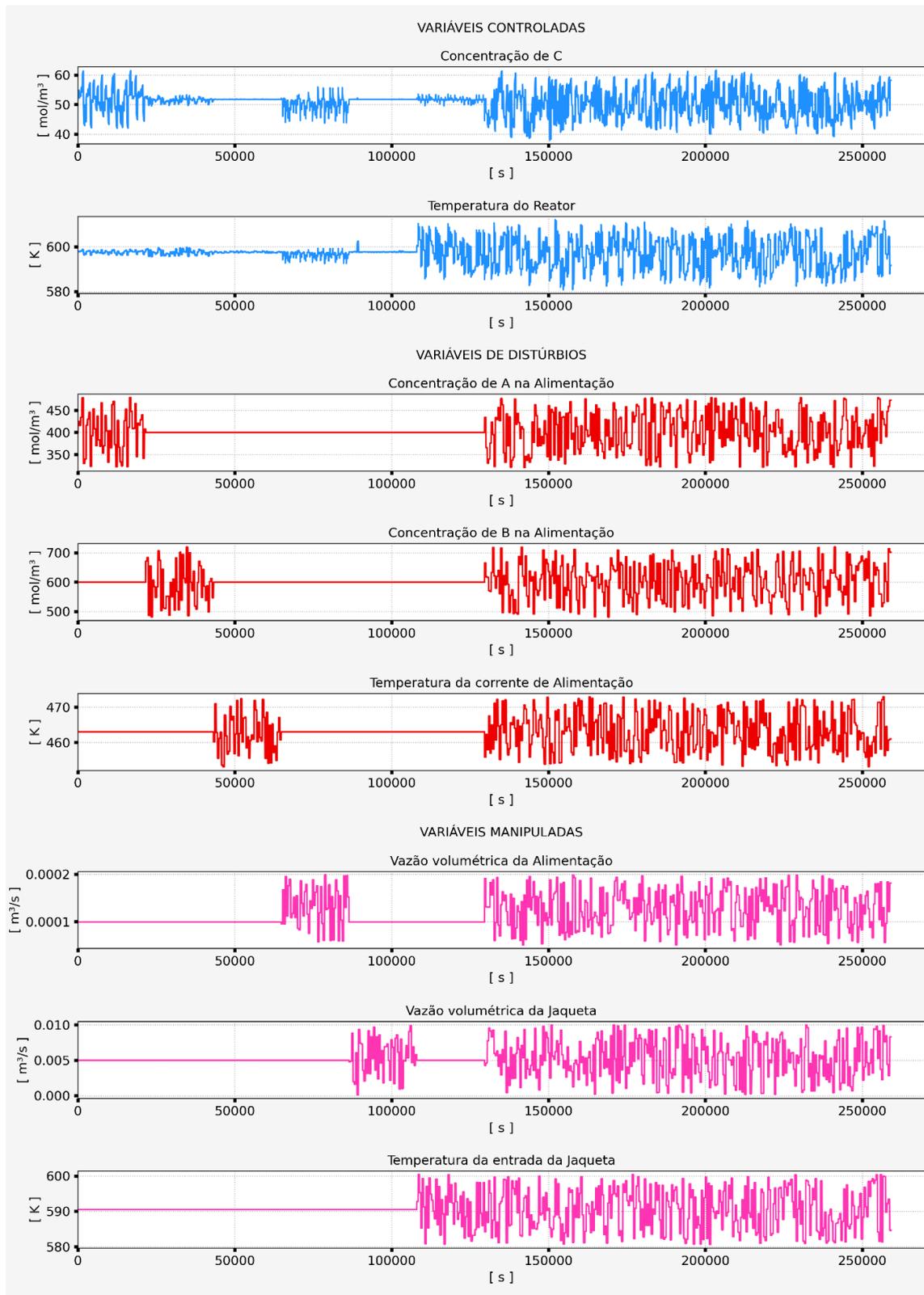
APÊNDICE G – Perfil dos Dados Gerados

Figura G - 1 – Perfil de dados 12 s.



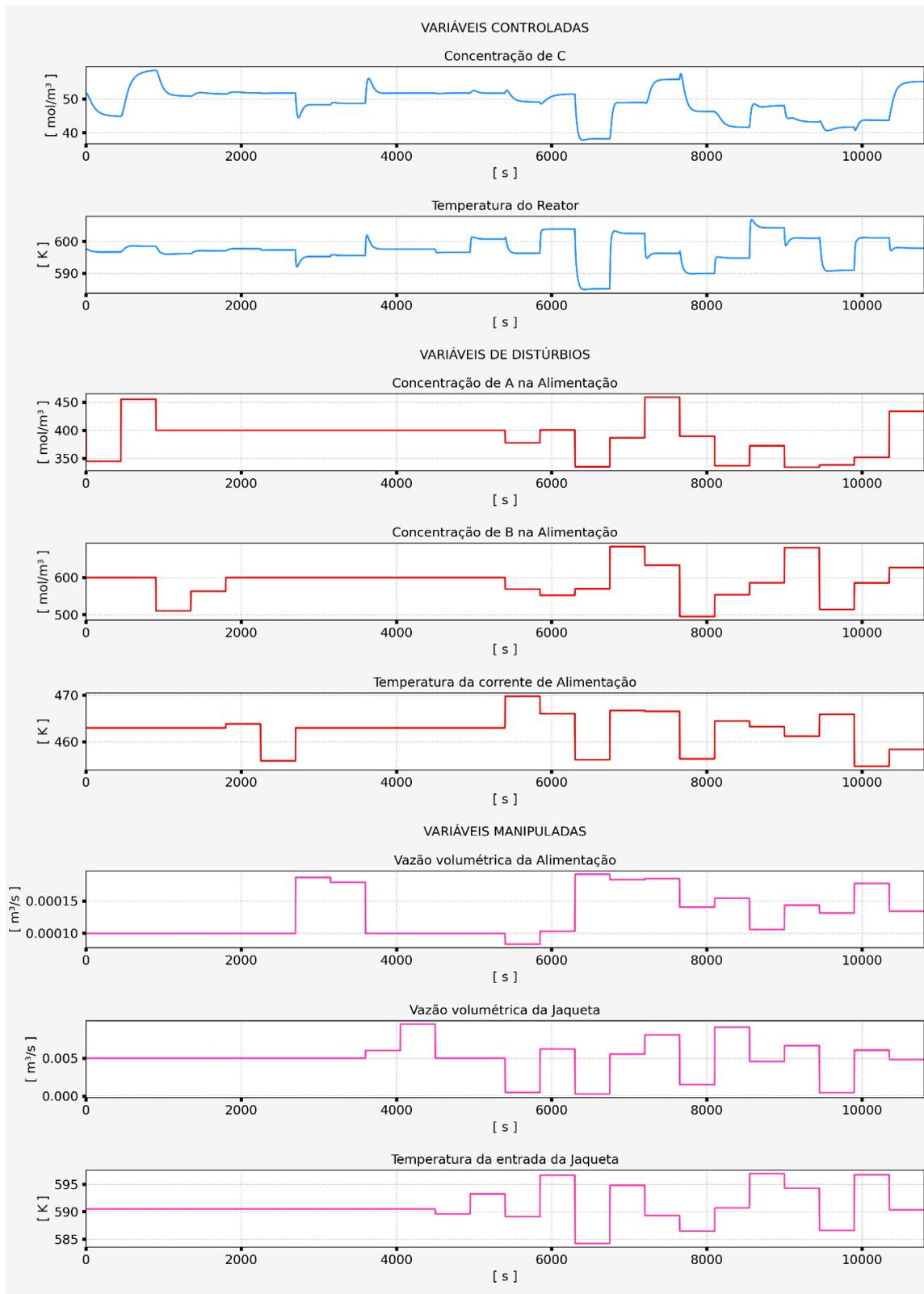
Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura G - 2 – Perfil de dados 48 s



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).

Figura G - 3 – Perfil de dados novo conjunto de teste.



Fonte: Elaborado pelo Autor (2022).