

Aplicando Redes Neurais no Processo de Hidrorrefino

Raissa Maria Cotta Ferreira da Silva⁽¹⁾, Joyce Stone de Souza Aires⁽¹⁾,
Luciano Villanova de Oliveira⁽¹⁾,

(1) Leopoldo A. Miguez de Mello Research Center, Petróleo Brasileiro S.A.
Cidade Universitária, Quadra 7, Ilha do Fundão, CEP:21.949.900, Rio de Janeiro, RJ, Brasil

Abstract

The use of neural network for modeling process is increasing in several kinds of chemical industries. This paper presents a brief review of applications in petroleum refining industry. Moreover, it presents some applications in Hydrotreating process of diesel oil. In this refining process, the knowledge about specific characteristics of process is very important to unit design, process optimization, product quality control and environment protection. The Neural Network technique has been used to model the behavior of the hydrogen chemical consumption, generation of light gas, the conversions of the hydrogenation of aromatic hydrocarbons (HDA), hydrodesulfurization (HDS) and hydrodenitrogenation (HDN) reactions and product physical properties. Operation conditions and some relevant feedstock properties were selected as input variables. The models were developed with experimental data, which were obtained in hydrogenation pilot plants from Brazilian Petroleum Company (PETROBRAS).

1. Introdução

No setor de refino, existe uma pressão crescente para produzir produtos de mais alta qualidade a custo mais baixo. Nesse sentido, modelagem, simulação e otimização são vistas como atividades essenciais e diferenciais competitivos entre os refinadores, na meta de alcançar os desafios produzidos pelas restrições ambientais e comerciais.

Existe uma grande variedade de ferramentas para construir modelos, usando dados coletados diretamente da unidade em tempo real ou utilizando dados obtidos de testes conduzidos cuidadosamente em unidade piloto. As técnicas de modelagem podem variar extensivamente, passando por representações detalhadas da unidade, baseada em modelos fenomenológicos, modelos híbridos ou procedimentos puramente empíricos. Normalmente, os modelos estão associados aos otimizadores, que são capazes de prever o modo operacional mais econômico, considerando as restrições comerciais para o produto e as imposições técnicas da planta.

A metodologia de Redes Neurais é uma técnica de modelagem, inspirada no conhecimento disponível sobre a potência dos sistemas biológicos, que tenta capturar a essência de um processo. Existem diversas

arquiteturas de redes ou maneiras diferentes de tentar captar essa essência fundamental. Nesse trabalho, apresenta-se a importância que essa ferramenta pode ter, como opção na modelagem de sistemas complexos da indústria de refino.

O Processo de Hidrorrefino (HDT), utilizado como exemplo de aplicação, consiste em misturar frações de petróleo com hidrogênio em presença de um catalisador específico, sob condições severas de pressão e temperatura, visando remover enxofre, nitrogênio e oxigênio e/ou hidrogenar compostos aromáticos.

Os reatores das unidades piloto de hidrogenação trabalham com escoamento “upflow”, são isotérmicos e possuem rigoroso controle de temperatura ao longo do leito catalítico, através de termopares. O sistema é aquecido com resistência elétrica para manter a temperatura nos níveis desejados. A carga (corrente de entrada da unidade) e o hidrogênio em excesso são aquecidos, de forma que a mistura é parcialmente vaporizada na entrada do reator e passa através do leito catalítico a uma dada temperatura fixa. No processo, gases leves como metano, etano, propano e butano são gerados em pequena quantidade. A carga e o produto hidrogenado do teste são analisados em laboratório, enquanto que os gases leves gerados são identificados através de cromatografia em linha. As principais variáveis operacionais são: temperatura, pressão parcial de hidrogênio e velocidade espacial do reator, que é o inverso do tempo de reação, ou seja, tempo de contato entre reagentes e catalisador.

2. Revisão das aplicações na indústria de refino

Redes neurais têm sido aplicadas com sucesso na química, para correlacionar espectros de métodos analíticos e propriedade de produtos; em catálise, para determinar as relações entre a estrutura do catalisador e sua atividade; em modelagem de processo, para prever rendimento de produtos e condições operacionais e, particularmente, em controle de processo e diagnóstico de falhas. As principais razões para a crescente popularidade da metodologia de redes neurais são o mais baixo custo comparado a outras metodologias e o fato de que essa técnica pode resolver problemas não lineares sofisticados. A alta complexidade das unidades de refino e suas faixas amplas de condições

operacionais e tipos diferentes de correntes, além da constante mudança nas especificações do produto, são forças propulsoras do crescente aumento das aplicações das redes neurais na indústria de refino.

McGreavy e outros^[1] aplicaram redes neurais *backpropagation* no Processo de Craqueamento Catalítico Fluido (FCC) para prever os parâmetros hidrodinâmicos do reator de leito fluidizado e para estimar a distribuição dos produtos do processo de FCC. Essa última rede foi desenvolvida usando as condições operacionais e as propriedades da carga e do catalisador como variáveis de entrada. A possibilidade de usar dados prontamente disponíveis em rotina operacional e de trabalhar com um nível menos complexo de caracterização da carga, usando técnicas analíticas de mais baixo custo, motivaram a utilização da metodologia de redes neurais. A metodologia *backpropagation* tem sido usada por outros pesquisadores para prever o rendimento dos produtos do processo de FCC, a partir das propriedades da carga e condições operacionais. (Michalopoulos e outros^[2], Al-Enezi e Elkamel^[3]).

Elkamel e outros^[4] aplicaram redes neurais *backpropagation* na modelagem da unidade de Hidrocraqueamento de gasóleo de vácuo de petróleo Árabe Leve, considerando os dois módulos de operação para maximização de querosene de aviação e destilados médios. As redes foram construídas para prever a qualidade e o rendimento de todos os produtos, utilizando dados obtidos de unidade industrial. As propriedades da carga e o consumo de hidrogênio são usados como variáveis de entrada e os rendimentos e propriedades dos produtos são usados como variáveis de saída.

Outro processo de refino bastante sofisticado e de tecnologia pouco conhecida, que tem sido objeto de aplicação da metodologia de redes neurais é o Processo H-Oil. Kam e outros^[5] desenvolveram modelos neurais para prover informações sobre o comportamento hidrodinâmico do leito expandido do processo H-oil e a distribuição de produtos.

Do ponto de vista de performance e segurança, a modelagem eficiente dos processos químicos está relacionada com uma predição confiável e rápida do comportamento do reator. Normalmente a determinação das cinéticas das reações é uma tarefa difícil, particularmente para sistemas com reações complexas com multicomponentes e sistemas multifásicos, tais como as reações catalíticas, onde o mecanismo exato não é conhecido, como resultado da dificuldade de identificação e determinação quantitativa dos compostos intermediários. Pesquisadores têm investigado a utilização de redes neurais, para modelar as taxas de conversão de reações químicas, especialmente com a arquitetura *backpropagation* (Molga e outros^[6], Sasaki e outros^[7]).

O objetivo do desenvolvimento de um catalisador é encontrar o sistema catalítico mais adequado para uma reação em particular. Arai^[8] publicou um resumo dos avanços recentes na química computacional focada em

desenvolvimento e pesquisa de catalisador. O autor recomenda a expansão do uso de redes neurais em catálise. Alguns pesquisadores têm aplicado redes neurais para estimar a relação das propriedades dos catalisadores com a sua seletividade e sua atividade (Hou e outros^[9]).

A tecnologia de redes neurais tem se mostrado uma alternativa poderosa na modelagem de produtos. Yang e outros^[10] usaram rede neural *backpropagation* para estimar o número de cetano de óleo diesel a partir de suas propriedades físicas. Em outra aplicação, Yang e outros^[11] usaram redes neurais para correlacionar o número de cetano com sua composição química, que foi determinada por cromatografia líquida e cromatografia gasosa. Leeuwen e outros^[12] aplicaram redes *backpropagation* para modelar a relação entre os grupos de famílias químicas (parafinas, isoparafinas, aromáticos, naftênicos, olefinas) e a octanagem da gasolina.

3. Descrição da aplicação no processo de HDT

O banco de dados de Hidrotratamento (HDT) de frações de petróleos contém resultados de diversos estudos realizados nas plantas piloto do Centro de Pesquisas e Desenvolvimento Leopoldo A. Miguez de Mello (CENPES), Petróleo Brasileiro S.A. (PETROBRAS S.A.). Para o desenvolvimento das redes neurais, foram utilizados os dados de hidrogenação de 17 tipos diferentes de carga na faixa de destilação do óleo diesel, com geração de 90 produtos hidrogenados, obtidos com um catalisador comercial de Ni-Mo/ γ -Al₂O₃, variando as condições operacionais de temperatura de reação, pressão parcial de hidrogênio e velocidade espacial do reator. Nessa fase dos estudos não foi considerado o efeito de diferentes catalisadores.

Na construção das redes neurais, utilizaram-se dois pacotes comerciais, são eles: Professional/II Plus e NeuralSim, licenciados pela NeuralWare. O primeiro estudo foi desenvolvido com a rede *backpropagation* e com o método de otimização do gradiente descendente do pacote Professional/II Plus. O segundo estudo foi elaborado com a arquitetura *cascade correlation*^[13] com o método de otimização do gradiente descendente provida pelo pacote NeuralSim.

No primeiro trabalho de modelagem, as variáveis de entrada foram escolhidas a partir do conhecimento prévio sobre o processo, associado às técnicas estatísticas de análise de principais componentes. Um elemento chave capaz de aumentar os benefícios da área de modelagem para as unidades industriais é escolher um número reduzido de variáveis, que possam ser facilmente medidas na unidade.

No segundo estudo, consideraram-se também transformações para as variáveis de entrada e saída. Além disso, usou-se a opção de seleção de variáveis disponível no pacote NeuralSim, que utiliza um algoritmo genético junto com a técnica de regressão

logística, para a procura dos conjuntos mais adequados de variáveis de entrada.

Usando as arquiteturas *backpropagation* e *cascade correlation*, foram obtidas redes neurais de previsão do consumo de hidrogênio, das conversões de HDA, HDS e HDN e dos deltas de propriedades em função das principais características da carga e das três condições operacionais. Os deltas são definidos como propriedade da carga menos propriedade do produto, onde as propriedades são: a densidade 20/4°C, as temperaturas da destilação simulada D-2887 (10%, 30%, 50%, 70% e 90%) e as viscosidades a 20 e a 50°C.

Adicionalmente, usando a técnica *cascade correlation*, realizou-se a construção de uma rede para previsão da geração de leves da unidade, a saber: metano (C1), etano (C2), propano (C3) e butano (C4).

Nesse trabalho, construiu-se uma rede para cada uma das variáveis de saída, exceto no caso dos deltas de temperaturas da destilação simulada D-2887 (10%, 30%, 50%, 70% e 90%), para os quais foi obtida uma única rede. A tabela 1 mostra um resumo dos procedimentos usados, de acordo com o tipo de pacote comercial utilizado.

Tabela 1 – Resumo dos principais procedimentos usados na construção das redes neurais

Pacote Comercial	Principais Procedimentos Utilizados				
	Transformação de Variáveis	Seleção de Variáveis	Divisão do Conjunto de Dados		
			Treinamento	Teste	Validação
<i>Backpropagation</i> Professional/II Plus	Não	Não	Dados fixos e aleatorizados, 80% do total	Dados fixos e aleatorizados, 20% do total	Não
<i>Cascade Correlation</i> NeuralSim	Sim	Sim	Variação e aleatorização dos dados, 70% do total	Variação e aleatorização dos dados, 20% do total	Variação e aleatorização dos dados, 10% do total

Durante o procedimento de construção das redes, várias estatísticas foram avaliadas, com o objetivo de acompanhar o desempenho do modelo. As principais medidas de performance usadas são o coeficiente de correlação linear entre os valores experimentais e os valores calculados (R^2), o erro absoluto médio entre os resultados experimentais e os resultados estimados e o erro quadrático médio. As medidas foram calculadas para cada um dos conjuntos de dados utilizados, bem como para o conjunto de dados completo.

4. Análise da performance das redes neurais

O acompanhamento da performance das redes neurais foi realizado com um conjunto de dados obtido com 26 testes de hidrogenação de 5 cargas diferentes, usando um catalisador comercial de Ni-Mo/Al₂O₃ semelhante ao utilizado no banco de dados de treinamento.

O desempenho das redes neurais é avaliado comparando os resultados experimentais com os resultados estimados. Os valores de intercepto, inclinação e coeficiente de correlação (R^2) são usados como medida de qualidade do ajuste. Se os valores previstos então em perfeito ajuste com os valores experimentais o valor do intercepto é zero, a inclinação é 1 e R^2 é 1. As Tabelas 2 e 3 apresentam as medidas de performance para as redes, usando os pacotes Professional/II Plus e NeuralSim, respectivamente. Os resultados com o pacote NeuralSim para a conversão de hidrodessulfurização (HDS) e a temperatura de destilação simulada a 70% em massa recuperados (T70), bem como os resultados com o pacote Professional/II Plus para as temperaturas de destilação simulada a 10 e 50% em massa recuperados (T10, T50), mostram uma forte tendência, identificada pelo elevado desvio no valor de intercepto. Os coeficientes de correlação mais baixos foram obtidos com os resultados de viscosidades a 20 e 50 °C (VISC 20°C, VISC 50°C) usando o pacote Professional/II Plus.

Tabela 2 – Performance das redes neurais *Backpropagation* (Professional/II Plus)

	HDS	HDN	HDA	H ₂ Cons.	VISC 20°C	VISC 50°C
Intercepto	-19,3	-6,9	-4,8	-6,2	-1,8	-0,35
Inclinação	1,17	1,02	0,99	0,95	1,03	1,00
R^2	0,73	0,69	0,78	0,94	0,56	0,69
	Densidade	T10	T30	T50	T70	T90
Intercepto	-0,06	-50,2	-12,5	32,0	-6,5	-11,1
Inclinação	1,07	1,23	1,04	0,90	1,02	1,03
R^2	0,95	0,92	0,95	0,95	0,97	0,99

Tabela 3 – Performance das redes neurais *Cascade Correlation* (NeuralSim)

	HDS	HDN	HDA	H ₂ Cons.	C1	C2	C3	C4	Densidade
Intercepto	-44,3	-3,9	-4,2	-1,9	0,003	0,001	0,004	0,006	0,05
Inclinação	1,43	1,04	1,03	0,95	0,99	0,96	0,89	0,88	0,94
R ²	0,71	0,60	0,75	0,97	0,96	0,95	0,96	0,94	0,97
	T10	T30	T50	T70	T90	VISC 20°C	VISC 50°C		
Intercepto	-12,7	-21,6	11,6	52,9	3,4	-3,7	-0,44		
Inclinação	1,06	1,08	0,97	0,86	0,99	1,33	1,08		
R ²	0,95	0,98	0,97	0,98	0,99	0,86	0,94		

A tabela 4 mostra os resultados da planta piloto e das redes neurais com duas cargas diferentes (FEED 1 e FEED 2), sendo que ambas foram hidrogenadas em diferentes condições. Observa-se que o desempenho das redes neurais para a carga FEED 1 é melhor do que para a carga FEED 2 com ambas metodologias empregadas *Backpropagation* - Professional/II Plus (NET 1) e *Cascade Correlation* - NeuralSim (NET 2).

A capacidade preditiva de cada uma das redes neurais para uma nova carga, depende fortemente da similaridade dessa nova carga com o banco de dados usado na modelagem com redes neurais. Dessa forma, um método de agrupamento hierárquico de dados foi aplicado ao banco de dados com a nova carga, usando a distância de Manhattan como medida de similaridade e a regra de agrupamento conhecida por *unweighted pair-group average*, visando avaliar o nível de segurança das predições dos modelos.

Na maioria das aplicações de análise de agrupamento, o investigador tem que conhecer suficientemente sobre o problema para selecionar uma configuração final apropriada. Nesse trabalho, as variáveis selecionadas como entrada das redes neurais treinadas foram usadas como variáveis de entrada da análise de agrupamentos. De fato, as variáveis de entrada das redes tem impactos diferentes em cada modelo na estimação das variáveis de saída. Entretanto, as variáveis da análise de agrupamento foram utilizadas na forma não ponderadas, devido à dificuldade de estipular seus pesos para o cálculo da medida de similaridade.

A Figura 1 apresenta os diagramas de agrupamento para as 17 cargas do banco de dados com cada uma das novas cargas a serem simuladas (FEED 1 e FEED 2). Verifica-se que a carga FEED 1 é mais similar do que a carga FEED 2, usando a metodologia mencionada.

Tabela 4 – Comparação entre os resultados da planta piloto e resultados das redes neurais

Condições/Propriedades	FEED 1	Produto 1_1				FEED 2	Produto 2_1			
PPH ₂ , bar	---	46,8				---	62,0			
WABT, °C	---	379,7				---	350,5			
LHSV, h ⁻¹	---	2,0				---	1,0			
	EXP.	EXP.	NET1	NET2	EXP.	EXP.	NET1	NET2		
Densidade 20/4°C	0,8854	0,8730	0,8726	0,8731	0,9132	0,8934	0,8949	0,8922		
Viscosidade @ 20°C, cSt	13,93	10,95	10,17	11,01	17,93	14,59	12,19	15,67		
Viscosidade @ 50°C, cSt	5,39	4,70	4,21	4,67	6,240	5,50	5,02	5,60		
T ASTM D2887, °C										
10 %m	249,0	234,0	239,5	236,5	247,0	234,0	234,8	234,8		
30 %m	297,0	287,0	287,6	290,4	298,0	283,0	285,5	288,0		
50 %m	327,0	319,0	323,8	321,1	350,0	341,0	340,7	342,2		
70 %m	361,0	353,0	356,1	356,2	383,0	377,0	374,7	377,1		
90 %m	418,0	408,0	410,6	410,5	421,0	416,0	414,8	416,1		
Conversão HDA, %m	---	22,3	21,1	23,1	---	35,2	27,3	26,7		
Conversão HDN, %m	---	81,2	73,9	78,2	---	77,9	66,4	72,1		
Conversão HDS, %m	---	99,9	97,6	97,7	---	98,1	95,1	96,6		
Consumo H ₂ , Nl/λ	---	46	39	45	---	100	82	89		

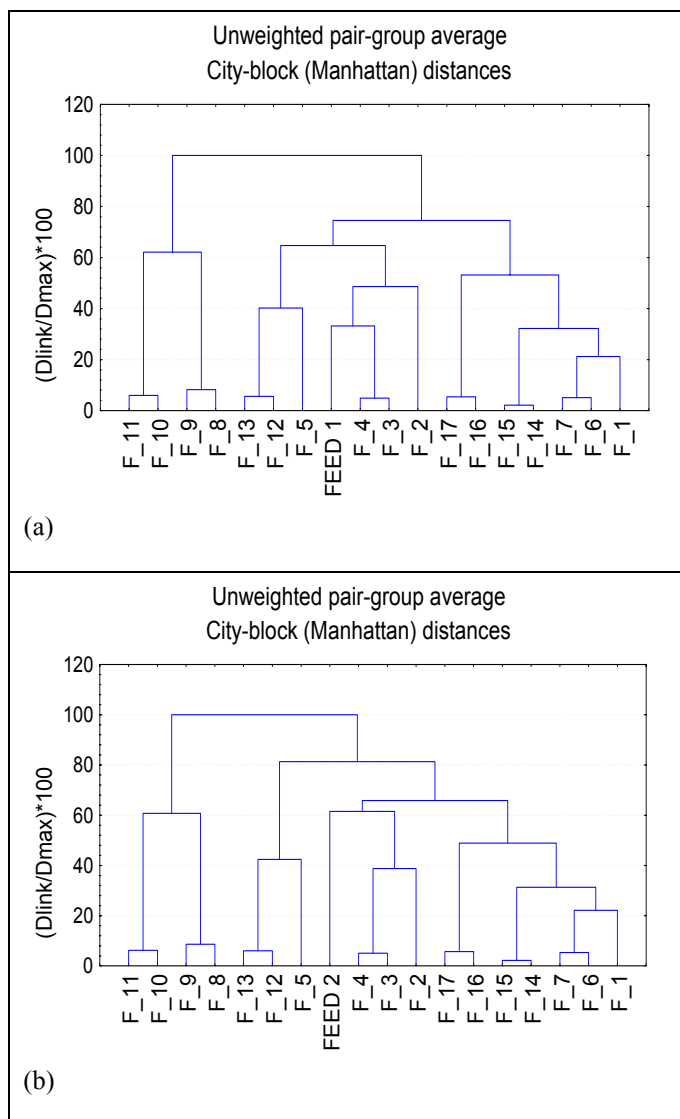


Figura 1. Diagrama de Agrupamento de cargas do banco de dados com as cargas
(a) FEED 1 e (b) FEED 2

5. Conclusões

A técnica de Redes Neurais é uma ferramenta poderosa na modelagem de processo químico, especialmente na área de refino, onde a complexidade do sistema dificulta a sua equacionalização. Essa metodologia tem sido aplicada com sucesso na área de hidrotratamento de frações de petróleo para a estimação de consumo químico de hidrogênio, das conversões das reações de HDA, HDS e HDN, bem como das propriedades do produto hidrogenado. Os modelos neurais tem sido utilizados no projeto de novas unidades de HDT e planejamento de operação para ajustar as plantas industriais às flutuações de matéria-prima. A disponibilidade desses modelos para aplicações em processos com tecnologia já dominada, leva a uma redução dos testes em planta piloto para tais aplicações, com liberação das unidades para trabalhos mais inovadores.

Em certas aplicações, como por exemplo, processo com reações catalíticas, as relações funcionais entre as variáveis de entrada e de saída podem mudar se a janela operacional for muito ampla. Ao construir as redes neurais, pode ser necessário avaliar o intervalo de variação das variáveis de entrada e a possibilidade de dividir o banco de dados.

A performance das redes neurais depende fortemente da similaridade da nova carga com as cargas do banco de dados usado na construção dos modelos. Nesse sentido, a técnica de análise de agrupamento de dados pode ser usada para aumentar a confiabilidade dos modelos de predição.

O acompanhamento do desempenho das redes neurais deve ser realizado junto aos usuários, com o objetivo de identificar a necessidade de manutenção no sistema ou ampliação do banco de dados. O monitoramento da faixa de aplicação deve assegurar que os modelos não sejam extrapolados.

Referências Bibliográficas

- [1] McGREAVY, C., LU, M. L., WANG, X. Z., KAM, E. K. T. – Characterization of the behavior and product distribution in fluid catalytic cracking using neural networks, *Chemical Engineering Science*, 49 (24A): 4717-4724, 1994.
- [2] MICHALOPOULOS, J., PAPADOKONSTADAKIS, S., ARAMPATZIS, G., LYGEROS, A. – Modeling of an Industrial Fluid Catalytic Cracking Unit Using Neural Networks, *Trans IchemE*, 79(A):137-142, 2001.
- [3] AL-ENEZI, G., ELKAMEL, A. – Predicting the effect of feedstock on product yields and properties of the FCC process, *Petroleum Science and Technology*, 18 (3&4):407-428, 2000.
- [4] ELKAMEL, A., AL-AJMI, A., FAHIM, M. – Modeling the hydrocracking process using artificial neural networks, *Petroleum Science and Technology*, 17(9&10):931-954, 1999.
- [5] KAM, E. K. T., AL-MASHAN, M. M., DASHTI, H. – Bed Expansion and Product Slate predictions of H-Oil Process via Neural Network Modeling, *Catalysis in Petroleum Refining and Petrochemical Industries*, 283-292, 1996.
- [6] MOLGA, E. J., VAN WOEZIK, B. A. A., WESTERTEP, K. R. – Neural networks for modeling of chemical reaction systems with complex kinetics: oxidation of 2-octanol with nitric acid, *Chemical Engineering and Processing*, 39, 323-334, 2000.
- [7] SASAKI, M., HAMADA, H., KINTAICHI, Y., ITO T. – Application of a neural network to the analysis of catalytic reactions. Analysis of NO decomposition over Cu/ZSM-5 zeolite, *Applied Catalysis A: General*, 132, 261-270, 1995.
- [8] ARAI, Y. – Computational chemistry on catalyst technology and international collaboration, *Catalysis Today*, 23, 439-448, 1995.
- [9] HOU, Z.-Y., DAI Q., WU X.-Q., CHEN, G.-T. – Artificial neural network aided design of catalyst for propane ammoxidation, *Applied Catalysis A: General*, 161, 183-190, 1997.

- [10] YANG, H., RING, Z., BRIKER, Y., MCLEAN, N., FRIESEN, W., FAIRBRIDGE, C. – Neural Network Prediction of Cetane Number and Density of Diesel Fuel from its Chemical Composition Determined by LC and GC-MS, *Fuel*, 81, 65-74, 2002.
- [11] YANG, H., FAIRBRIDGE, C., ZING, Z. – Neural Network Prediction of Cetane Number for Isoparaffins and Diesel Fuel, *Petroleum Science and Technology*, 19(5&6), 573-586, 2001.
- [12] VAN LEEUWEN, J. A., JONKER, R. J., GILL, R., Octane number prediction based on gas chromatographic analysis with non-linear regression techniques, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 25, 325-340, 1994.
- [13] FAHLMAN, S. E., LEBIERE, C. – The cascade-correlation learning architecture, *Advances in Neural Information Processing Systems* 2, Morgan Kaufmann, 1988.