

## 파라미터 추정을 이용한 산업용 회분식 반응기의 열수지 모델링 방법

이대욱 · 정찬목\* · 이광순†

서강대학교 화학공학과

\*두산기술원

(1995년 10월 26일 접수, 1996년 2월 22일 채택)

## Heat Balance Modeling for Industrial Batch Reactors Using Parameter Estimation

Dae-Wook Lee, Chan-Mok Jeong\* and Kwang-Soon Lee†

Department of Chemical Engineering, Sogang University

\*Doosan Technical Center

(Received 26 October 1995; accepted 22 February 1996)

### 요 약

자켓이 달린 산업용 회분식 반응기의 공정분석과 제어계 개선을 위한 일반적인 열수지 동특성 모델을 제시하였다. 제시한 모델은 반응기와 자켓주위의 열수지식으로 구성되어 있으며 조정 파라미터로써 현장 운전 자료를 이용하여 쉽게 추정할 수 있는 총괄 열전달 계수를 가지고 있다. 자켓내부의 흐름을 관형 흐름 모델(Plug Flow Model, PFM) 또는 N개의 혼합 반응기가 직렬로 연결된 모델(N mixed-reactors-in-series, MFM)로 근사하여 자켓내의 온도 분포를 반영하였다. 산업용 고분자 중합 반응기인 EPS(Extended PolyStyrene) 반응기의 거동을 제시한 모델을 이용하여 예측하였다. 결과적으로, 현장 자료에 의해 조율된 모델이 실제 공정 자료를 매우 잘 예측하고 있음을 알 수 있었다. 또한, 자켓 내부의 온도 분포 예측 성능은 MFM이 PFM에 비하여 매우 뛰어남을 알 수 있었다.

**Abstract**— We have proposed a generic dynamic heat balance model of industrial batch reactors with jacket for analyzing the processes and improving reactor control. The proposed model is composed of heat balances for the reactor and jacket and has one adjustable parameter, the overall heat transfer coefficient, which can be easily estimated using reactor operation data. The temperature distribution in the jacket was reflected in the model by approximating the flow phenomena as the plug flow model(PFM) or N mixed-reactors-in-series model(MFM). As an application, the model was used to predict the behaviors of an industrial EPS(Extended PolyStyrene) polymerization reactor. As a result, it was found that the model after tuning can predict the reactor behaviors very closely to the real data. And also we could find out that the prediction performance of MFM is much better than that of PFM.

**Key words:** Heat Balance Modeling, Parameter Estimation, Prediction, Error Method, Batch Reaction Control

### 1. 서 론

공정제어의 관점에서 보면, 회분식 반응기는 연속 공정과는 다른 특징을 가지고 있다. 회분식 공정은 반응이 일어나서 끝날 때까지 정상상태가 존재하지 않고 시간에 따라 계속 변한다. 따라서, 정상상태를 기준으로한 모델링 기법들을, 예를 들면 계단 응답법, 회분식 공정에는 적용할 수 없다. 이들은 모두 경험에 근거한 모델링 기법들이는데, 이런 종류의 모델링 기법을 사용할 수 없기 때문에, 이들 모델을 바탕으로 제시해 놓은 제어기 조율법들, 예를 들면, 1/4 감쇠 비 조율법, FOPDT 모델(First Order Plus Dead Time) 등, 또한 사용이 불가능하다. 게다가, 회분식 공정의 제어를 어렵게 만드는 큰 원인인 반응열이 크게 발생하면 공정은 심한 비선형성을 보이게 된다. 따라서, 현재 상업화되어 가장 널리 사용되고 있고 PID(Proportional, Integral and Derivative) 형태를 갖는 고정 이득 제어기들을 사용하면 원하는 성능을 기대하기 어렵게 된다. 또한, 산업현장에서 회분식

반응기를 위한 제어기로 일반화되어 표준제어기[1]로 사용되고 있는 다단계 제어 역시 제어 파라미터들을 적절히 계획하여 사용하지 않으면 마찬가지로 어려움을 겪게 된다.

이런 어려움을 극복하는 가장 좋은 한 가지 방법은 경험을 바탕으로 한 모델을 사용하지 않고 물리적인 반응기 모델을 사용하는 것이다. 그러나, 불행하게도 믿을 수 있을 만큼 정확한 물리적인 모델을 얻는 것은 반응 속도론에 관련된 정보가 많은 부분에서 제한되어 있어서 사실상 불가능하다. 이런 관점에서, 한 가지 차선택은 물리적인 반응기 모델과 경험에 근거한 반응기 모델을 합리적으로 조합한 반응기 주위의 열수지식만으로 구성된 반경험 모델을 구성하는 것이다. 이런 형태의 모델이 정확한 물리적인 모델에 비하여 적용 범위가 제한되어 있지만, 온도제어기를 설계하는 목적에는 적절하게 사용할 수 있다[3]. 그리고, 열수지 동특성 모델은 반응기를 분석하거나 scaleup하는데 이용될 수 있는 유용한 자료인 반응기의 열적 특성들, 예를 들면, 열전달 계수, 반응물의 물성 또는 반응열을 제공

할 수 있다[2-7].

본 연구에서는 여러 종류의 산업용 반응기의 열적 동특성을 정확하게 예측할 수 있는 일반적인 열수지 동특성 모델을 제안하였다. 산업용 회분식 반응기를 모델링하는 기존의 접근 방법에서 상대적으로 등한시 되었던 자켓쪽의 동특성을 회분식 반응기 모델에 고려하였다. 제안한 자켓 모델은 반응기 온도와 자켓 입구온도를 이용하여 자켓 출구온도를 추정하도록 구성되었다. 본 모델을 이용하여 측정된 자켓 출구온도와 추정된 자켓 출구온도의 차(예측 오차)가 최소화되도록 총괄 열전달 계수를 추정하였다. 이렇게 자켓 모델이 완성되면 반응기쪽 열수지식과 함께 반응열을 추정할 수 있게 되고, 산업용 회분식 반응기의 거동을 예측할 수 있는 완전한 모델이 구성된다.

### 1-1. 자켓의 모델링 기법

대부분의 회분식 반응기에서는 승온 또는 강온을 위하여 자켓을 설치한다. 자켓 내부의 온도분포를 최소화하거나 열전달 효과를 최대로 할 필요가 있을 때는 자켓 주위에 순환루프를 설치하고, 그렇지 않을 경우에는 설치하지 않는다. 산업용 회분식 반응기에서는 순환루프가 있는 경우와 그렇지 않은 경우 모두 자켓 입출구에는 측정될 만한 온도차가 존재한다. 이는 자켓 내부에 온도 분포가 있다는 것을 의미하기 때문에 산업용 회분식 반응기의 모사기를 개발하는데 있어서(자켓 출구의 온도를 정확히 예측하기 위하여) 간과할 수 없다.

자켓내부의 온도 분포를 수학적인 모델로 고려하는 방법은 여러 가지가 있겠지만, 간소화된 모델로 접근하는 것이 공정을 제어하고 공정을 분석하는 입장에서는 유리하다.

본 연구에서는 두 가지 경우의 열수지 모델링 기법을 고려하였다. 첫번째는, Fig. 1과 같이 환형의 경로를 따르는 관형흐름으로 취급하는 경우인데[2, 6], 이 기법은 회분식 반응기 거동의 경향을 예측하는 데는 무리가 없지만, 반응기의 자켓의 흐름을 관형흐름으로 가정하였기 때문에 자켓 입구의 온도 형태가 그대로 출구 온도에 나타난다는 단점이 있다. 두번째는, 혼합탱크 N개가 직렬로 연결되어 있는 형태로써 Fig. 3과 같다[3].

### 1-2. 총괄 열전달 계수의 추정

회분식 반응기의 설계에서 가장 중요하다고 할 수 있는 설계 항목은 열전달 능력을 대표하는 열전달 계수이다. 방 등[6]의 모델에서는 총괄 열전달 계수를 알 수 있는 것으로 취급하였는데 실제로 열전달 계수는 반응의 진행, 온도 변화, 유량 변화 등에 따라 변하기 때문에 특별한 경우를 제외하고는 일반적인 모델링 방법이라고 할 수 없다. 이 등[2]은 총괄 열전달 계수를 1차원 탐색법을 이용하여 구하였는데 추정 파라미터에 대한 검증과정이 없어서 파라미터의 일관성(consistency)을 보장할 수 없다.

본 논문에서는 조업 동안에 계속 변하는 총괄 열전달 계수를 파라미터로 취급하였고, 파라미터의 일관성이 보장된 파라미터 추정 기법을 이용하여 현장 조업 자료(자켓 출구온도)를 잘 예측할 수 있도록 총괄 열전달 계수를 추정하였다.

### 1-3. 반응열의 추정

1-2의 열전달 계수와 함께 회분식 반응기의 열적 동특성에 가장 큰 영향을 미치는 것은 반응열이라고 할 수 있다. 특히 산업용 회분식 반응기에서는 그 부피가 큰 관계로, 예를 들어 EPS는 100m<sup>3</sup>, 제열 능력에 한계가 있어서 반응기를 설계하거나 scaleup하는데 반응열 자료는 매우 중요한 정보이다. 그리고, 현장에서 운전되고 있는 회분식 반응기의 반응온도를 바꾸는 등의 recipe 변경을 시도할 경

우에도 반응열은 반응온도의 함수이기 때문에 임의로 반응온도를, 반응시간을 줄인다는 이유로, 높일 수 없다는 어려움이 있다.

현장에서 실제로 벌어지는 여러 가지 운전상의 어려움, 반응기 설계와 scaleup 등의 문제를 회분식 반응기의 열적 동특성에 대한 기초 자료 확보와 반응열 추정이라는 관점에서 해결하기 위해 진행된 연구가 DTA(Dynamic Thermal Analyzer)라고 불리는 반응열 측정 장치이다[4, 5, 7].

Bovin 등[4]과 Karlson 등[5]은 CIBA-Geigy사의 반응열 측정 장치를 대상으로 열수지 모델을 만들었고, 감도 분석과 파라미터 추정 기법 등을 통해 반응물의 물성인 열용량, 반응기 쪽의 개별 열전달 계수, 또는 반응열을 추정하였다. 그렇지만, 반응열 측정 장치는 현장과 같은 반응기 온도 형태를 소형 반응기에서 재현하여 발생하는 반응열을 추정하는 방법이기 때문에 실제 반응기에서 발생하는 반응열의 발생 경향을 예측할 수는 있지만 산업용 회분식 반응기의 열적 동특성을 표현하기에는 무리가 있다. 따라서, 산업용 회분식 반응기의 공정 분석이나 온도 제어계의 성능을 개선하기 위한 목적으로는 적합하지 못하다.

방 등[6]의 모델에서는 Laplace 변환을 이용하여 반응열을 구하였는데 산업 현장에서는 승온이나 반응개시 등이 계가 relax되어 있는 상태에서 시작되는 것이 아니므로 이 모델을 적용하는데 있어서 많은 제약이 따른다.

결과적으로, 산업 현장의 운전 조건에 관계없이 반응기의 열적 동특성을 잘 표현하여 반응기의 거동을 정확히 예측해 낼 수 있는 일반적인 모사기의 개발이 필요하게 된다.

## 2. 회분식 반응기의 모델링

### 2-1. 자켓쪽의 모델링

#### 2-1-1. 관형 흐름 자켓(PFM)

자켓의 PFM에 대한 개략도를 Fig. 1에 나타내었고 모델링을 위한 대상 부피는 Fig. 2에 나타내었다. 반응기 주위의 열수지식을 세우기에 앞서 다음과 같은 가정을 도입한다.

(1) 반응기 내부의 온도는 균일하다.

(2) 자켓내의 냉각수는 일정한 경로를 따라 이동하는 관형흐름으로 가정하여 자켓내의 온도분포를 자켓 벽면 축의 함수로 가정한다.

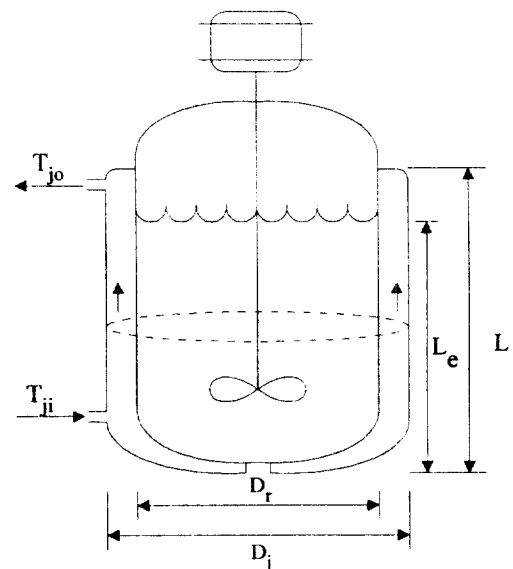


Fig. 1. Schematic diagram for PFM.

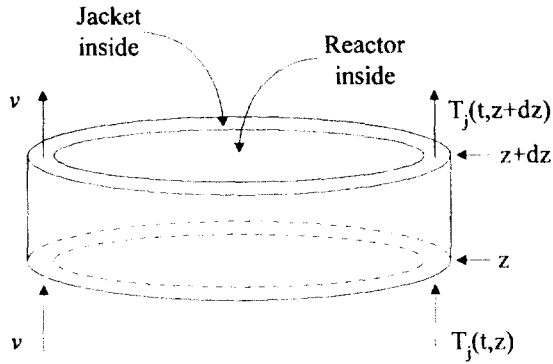


Fig. 2. Control volume for PFM.

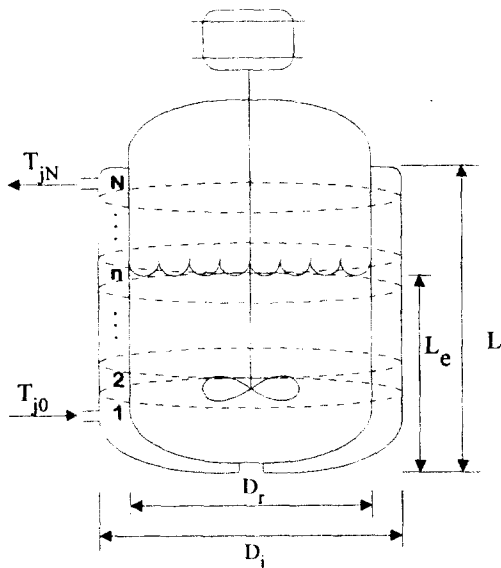


Fig. 3. Schematic diagram for MFM.

- (3) 자켓 외벽을 통한 열손실은 없다.
- (4) 반응기 내벽의 반응기 쪽에서 내용물이 닿지 않는 부분은 단열되었다고 가정한다.
- (5) 대상 부피내의 온도는 균일하다(Fig. 2).
- (6) 반응 도중에 다른 물질의 투입은 없다.
- (7) 반응기 내용물의 물성은 변하지 않거나, 알 수 있는 정보가 있다.
- (8) 반응기 내벽의 동특성은 무시할 수 있다.

도입된 가정을 이용하여 Fig. 2의 대상부피에 관한 열수지식을 세우면 다음과 같다.

$$\rho_j C_{pj} S \frac{\partial T_j(t, z)}{\partial t} + \rho_j C_{pj} S v \frac{\partial T_j(t, z)}{\partial z} = \beta(t)[T_r(t) - T_j(t, z)] \quad (1)$$

### 2-1-2. N개의 혼합 반응기가 직렬로 연결된 자켓(MFM)

MFM 모델링 개념을 Fig. 3에 나타내었다. 2-1-1에서 사용된 가정들 중에 (2), (5), (8)을 다음과 같이 바꾼다

(2) 자켓내부는 N개의 혼합 반응기가 직렬로 연결되어 있다고 가정한다.

(5) 나누어진 혼합 반응기내의 온도는 균일하다.

(8) 반응기 내벽의 동특성은 무시할 수 있거나, 나누어진 자켓의 동특성에 포함될 수 있다.

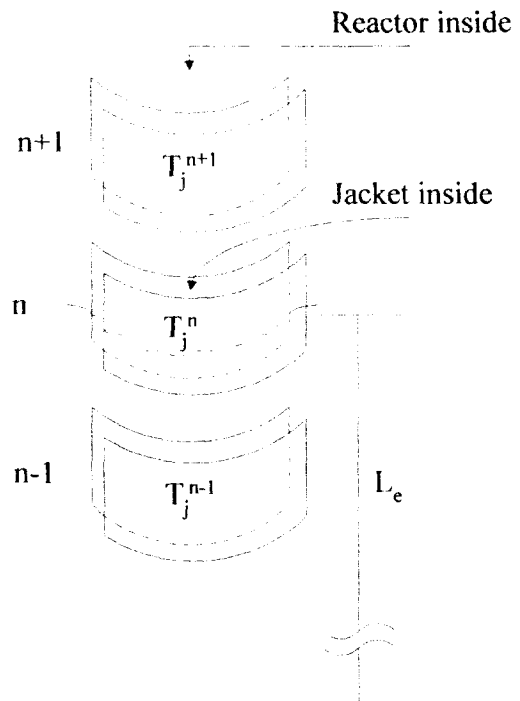


Fig. 4. Detailed sketch of jacket for MFM.

도입된 가정들을 근거로 Fig. 4에 대해 열수지식을 세우면 다음과 같다.

$$< i = 1 \cdots n >$$

$$\rho_j V_s C_{pj} \frac{dT_j^i(t)}{dt} = AU(t)[T_r(t) - T_j^i(t)] + \dot{V}_j \rho_j^{i-1} C_{pj}^{i-1} T_j^{i-1}(t) - \dot{V}_j \rho_j^i C_{pj}^i T_j^i(t) \quad (2)$$

$$< i = n+1 \cdots N >$$

$$\rho_j V_s C_{pj} \frac{dT_j^i(t)}{dt} = \dot{V}_j \rho_j^{i-1} C_{pj}^{i-1} T_j^{i-1}(t) - \dot{V}_j \rho_j^i C_{pj}^i T_j^i(t) \quad (3)$$

산업용 회분식 반응기의 내부는 커다란 부피 때문에 온도 분포가 심할 것으로 생각되지만 현장 조업자들에 의하면 실제로는 혼합이 잘 되어(적어도, 본 연구 대상공정인 EPS 반응기에서는) 완전혼합으로 가정해도 무리가 없다고 한다. 따라서 가정 (1)은 합당한 가정이라고 볼 수 있다. 가정 (2)와 (5)는 각 모델을 나타내는 기본 가정이며, 가정 (3), (4), (6), (7)은 현장 운전 조건을 고려한 가정들이다. 가정 (8)은 3-3-2의 전산모사를 통하여 합당한 가정이라는 것을 알 수 있는데 N의 갯수가 줄어들수록 실제 자켓 출구 온도에 매우 가깝게 근접하여 벽의 동특성을 포함하지 않아도 실제 공정을 잘 예측하고 있다.

### 2-2. 반응기 내부의 모델링

반응기 내부의 열수지식은 가정 (4)에 따라 반응물의 높이,  $L_e$ 까지만 열전달이 된다고 보고 구성하였다.

#### 2-2-1. 관형 흐름 자켓

$$M_r C_{pr} \frac{dT_r(t)}{dt} = \pi D_r U(t) \int_0^{L_e} T_j(t, z) - T_r(t) dz + Q_r(t) + Q_{add}(t) \quad (4)$$

#### 2-2-2. N개의 혼합 반응기가 직렬로 연결된 자켓

Fig. 5를 이용하여 다음과 같이 모델링한다.

$$M, C_p \frac{dT_r(t)}{dt} = U(t) \left[ \sum_{i=1}^n A_i \{T_i(t) - T_r(t)\} \right] + Q_c(t) + Q_{add}(t) \quad (5)$$

### 2-3. 최종 모델 및 해법

#### 2-3-1. 관형 흐름 자켓

2-1-1의 (1)식과 2-2-1의 (4)식으로 관형 흐름 자켓 회분식 반응기의 최종모델을 구성할 수 있다. 식 (1)은 hyperbolic 형태의 편미분 방정식으로 식 (6)과 같은 특성선(characteristic curve)을 따라 해가 존재한다[9]. 따라서, 식 (1)의 해는 식 (6)을 따라 수치적분함으로써 얻을 수 있다[8, 10].

$$\frac{dt}{dz} = \frac{1}{v} \quad (6)$$

식 (1)은 모델인식을 위한 예측오차 구성에 사용되며 식 (4)는 추정된 파라미터인 총괄 열전달 계수를 이용하여 반응열을 추정하는 곳에 사용된다.

#### 2-3-2. N개의 혼합 반응기가 직렬로 연결된 자켓

2-2-1의 식 (2), (3)과 2-2-2의 식 (5)는 혼합 반응기 N개의 직렬연결로 표현되는 자켓을 가진 회분식 반응기의 최종 모델이 된다. 식 (2)와 (3)을 상태공간 모델로 다시 표현하면 식 (7)과 같다.

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{x}}(t) &= \mathbf{F}[t, \theta(t)] \mathbf{x}(t) + \mathbf{G}[t, \theta(t)] \mathbf{u}(t) + \mathbf{v}(t) \\ \mathbf{y}(t) &= \mathbf{C}\mathbf{x}(t) + \mathbf{e}(t) \end{aligned} \quad (7)$$

식 (7)에서 선형 상태공간 모델에서의 최적 상태 예측기로 잘 알려진 Kalman 필터를 사용하면 상태 벡터를 예측할 수 있다. 식 (7)에서 상태 벡터  $\mathbf{x} = [T_1^T \cdots T_N^T]^T$ , 모델 입력  $\mathbf{u} = [T_r, T_r]^T$ ,  $\mathbf{y} = T_r^N$ 이다. 그리고 행렬  $\mathbf{F}[t, \theta(t)]$ ,  $\mathbf{G}[t, \theta(t)]$ ,  $\mathbf{C}$ 는 각각 다음과 같은 구조를 가진다.

$$\mathbf{F} = \begin{bmatrix} \mathbf{x} & & & \\ \mathbf{x} & \mathbf{x} & & \\ & & \ddots & \\ & & & \mathbf{x} & \mathbf{x} \\ & & & & \ddots \\ & & & & & \mathbf{x} & \mathbf{x} \end{bmatrix}, \quad \mathbf{G} = \begin{bmatrix} \mathbf{x} & \mathbf{x} \\ \mathbf{x} & \\ & \ddots \\ & & \mathbf{x} \end{bmatrix}, \quad \mathbf{C} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}^T$$

### 2-4. 모델인식

모델인식은 모델구조의 선정 및 모델의 파라미터화, 파라미터 추정, 모델검증의 세단계를 총괄하는 작업으로 각각의 과정을 2-4-1에서 2-4-3에 간략하게 나타내었다.

#### 2-4-1. 모델의 선정

모델의 선정은 우선 모델 구조를 선정하고 모델 구조 중의 특정한 모델을 선택하는 모델의 파라미터화로 이루어진다. 선정된 모델이 대상 공정을 잘 표현할 수 있으려면 무엇보다도 모델의 구조가 대상 공정을 표현할 수 있어야 한다. 모델 구조,  $\mathbf{M}$ ,는 식 (8)과 같이 정의할 수 있다[11].

$$\mathbf{M}: D_M \ni \theta \rightarrow \mathbf{M}(\theta) \in M' \quad (8)$$

물리적인 모델링이 불가능한 경우 ARMAX 모델로 대표되는 블랙박스 모델 구조를 주로 사용하며 본 연구의 대상 공정같이 물리적인 모델링이 가능한 경우에는 식 (7)과 같이 미분방정식으로 표현되는 상태공간 모델 구조를 주로 사용한다.

#### 2-4-2. 파라미터 추정

파라미터 추정방법은 선정된 모델 구조에서 실제 자료를 가장 잘 표현하는 파라미터를 찾아내는 방법이라고 할 수 있다. 파라미터 추정은 식 (9)와 같이 정의한다.

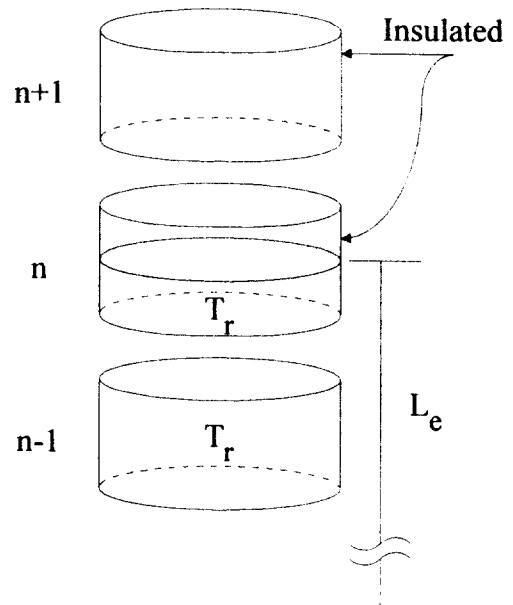


Fig. 5. Detailed sketch of the reactor inside for MFM.

$$\mathbf{Z}^{D_N} \rightarrow \hat{\theta}_{D_N} \in D_M \quad (9)$$

여기서,

$$\mathbf{Z}^{D_N} = [y(1), u(1), y(2), u(2), \dots, y(D_N), u(D_N)]$$

$\hat{\theta}_{D_N} = \mathbf{Z}^{D_N}$ 을 이용하여 추정된 파라미터

본 연구에서는 미분 방정식으로 표현되는 상태공간 모델 구조에 적용성이 뛰어난 Kalman 필터를 예측기로 사용하였고 선형 모델 구조에서 수렴성(convergence)과 일관성(consistency)이 보장되어 있는 PEM(Prediction Error Method)을 사용하였다[12, 16].

#### 2-4-3. 모델 검증

파라미터 추정은 선택한 모델구조에서 실제 자료를 가장 잘 표현하는 모델을 찾는 과정이다. 그렇지만, 그 모델이 과연 충분히 좋은 모델인지 검증하는 작업이 필요하다. 위의 문제를 해결하는 과정을 모델 검증이라고 하는데, 가장 중요한 점은 “모델이 측정된 자료를 잘 표현할 수 있는가”하는 것이다.

모델 검증은 모사를 통하여 실제 공정 자료를 잘 표현하는가는 확인하는 방법과 예측오차의 통계적 분석으로 확인하는 오차분석이 있는데 물리적인 모델이 있는 경우는 공정 모사를 이용하는 것이 일반적이기 때문에 본 연구에서도 공정 모사를 통하여 모델 검증을 시도하였다[11].

### 2-5. 파라미터 추정 기법

#### 2-5-1. 예측오차법(Prediction Error Method, PEM)

예측오차법은 공정출력에 관한 예측오차로 구성된 목적함수를 이용하여 파라미터를 추정하는 모든 기법의 총칭이다. 예측오차법은 Fig. 6과 같이 최적으로 공정출력을 예측하는 부분과 목적함수를 최소화 하는 파라미터를 찾는 최적화 부분으로 크게 나눌 수 있다. 예측오차법의 일반적인 목적함수는 식 (10)과 같다. 여기서, 하첨자  $D_N$ 은 자료의 갯수를 나타낸다.

$$\begin{aligned} V_{D_N}(\theta) &= h[R_{D_N}(\theta)] \\ R_{D_N}(\theta) &= \frac{1}{D_N} \sum_{i=1}^{D_N} \epsilon(t, \theta) \epsilon^T(t, \theta) \end{aligned} \quad (10)$$

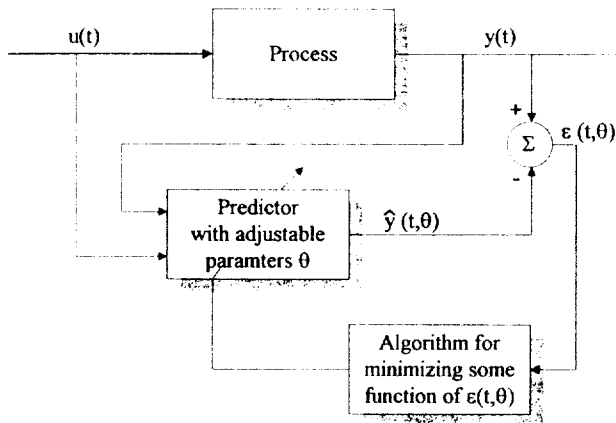


Fig. 6. Block diagram of prediction error method.

### 2-5-2. 최적 예측기

예측오차법을 사용하기 위해서는 선택한 모델 구조에서 예측오차를 구해야 한다. 측정된 공정출력과 예측기를 이용하여 예측된 공정출력의 차가 예측오차이다. 식 (7)과 같은 선형 상태공간 모델 구조에서 최적 예측기는 Kalman 필터이다[12]. Kalman 필터는 최소분산(minimum variance)을 갖는 상태(state)를 추정하는 방법으로 미지의 난수들이 정규분포되어 있다고 가정한다. Kalman 필터의 목적함수는 식 (11)과 같고 이 목적함수를 최소화하는 상태 추정값은 조건평균(conditional mean),  $\hat{x}(t+1|t) = E\{x(t+1)|x(t)|t-1, P(t|t-1), y(t)\}$  이다[13,14].  $\hat{\cdot}$ 는 오른쪽 조건하에서 구한  $x(t+1)$ 의 조건평균이고, P는 상태 추정 오차의 공분산을 각각 나타낸다.

$$E\{[x(t+1) - \hat{x}(t+1|t)][x(t+1) - \hat{x}(t+1|t)]^T\} \quad (11)$$

Kalman 필터는 다음과 같이 예측과 보정의 두 부분으로 나눌 수 있다[14].

예측

$$\hat{x}(t+1|t) = E\{x(t+1)|t\} = F[\hat{\theta}(t)] \hat{x}(t|t) + G[\hat{\theta}(t)] u(t)$$

$$P(t+1|t) = F[\hat{\theta}(t)] P(t|t) F[\hat{\theta}(t)]^T + R_1[\hat{\theta}(t)]$$

보정

$$\hat{x}(t|t) = \hat{x}(t|t-1) + K(t)\{y(t) - C[\hat{\theta}(t)] \hat{x}(t|t-1)\}$$

$$P(t|t) = P(t|t-1) - K(t) C[\hat{\theta}(t)] P(t|t-1)$$

$$K(t) = P(t|t-1) C^T[\hat{\theta}(t)] [C[\hat{\theta}(t)] P(t|t-1) C^T[\hat{\theta}(t)] + R_2[\hat{\theta}(t)]]^{-1}$$

### 2-5-3. 최적화

거의 모든 경우에  $V_{D_N}(\theta)$ 의 최소값을 수식으로 나타낼 수가 없다. 그래서, 수치적인 방법을 쓰게 되는데, 가장 일반적으로 쓰이는 방법이 식 (12)와 같은 형태의 Newton-Raphson 알고리즘이다.

$$\hat{\theta}^{(k+1)} = \hat{\theta}^{(k)} - \alpha^{(k)} [V_{D_N}''(\hat{\theta}^{(k)})]^{-1} V_{D_N}'(\hat{\theta}^{(k)})^T \quad (12)$$

#### (1) Newton-Raphson 알고리즘

식 (12)를 계산하기 위해서는  $V_{D_N}'(\hat{\theta}^{(k)})$ 와  $V_{D_N}''(\hat{\theta}^{(k)})$ 의 구체적인 표현이 필요하다. 목적함수,  $h(Q) = \text{tr}Q$ 로 선택하면  $V_{D_N}(\theta)$ 는 식 (13)과 같이 쓸 수 있다.

$$V_{D_N}(\theta) = \frac{1}{D_N} \sum_{i=1}^{D_N} \epsilon^T(t, \theta) \epsilon(t, \theta) \quad (13)$$

그러면,  $V_{D_N}'(\theta)$ 와  $V_{D_N}''(\theta)$ 는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$V_{D_N}'(\theta) = -\frac{2}{D_N} \sum_{i=1}^{D_N} \epsilon^T(t, \theta) \Psi^T(t, \theta)$$

$$V_{D_N}''(\theta) = \frac{2}{D_N} \sum_{i=1}^{D_N} \Psi(t, \theta) \Psi^T(t, \theta) - \frac{2}{D_N} \sum_{i=1}^{D_N} \epsilon^T(t, \theta) [\Psi^T(t, \theta)]' \quad (14)$$

여기서,

$$\Psi(t, \theta) = -\left( \frac{d\epsilon(t, \theta)}{d\theta} \right)^T = \left( \frac{d\hat{y}(t|\theta)}{d\theta} \right)^T$$

#### (2) Gauss-Newton 알고리즘

전역 최소값에서는  $\epsilon(t, \theta)$ 가 점근적으로 백색잡음이 되기 때문에  $\Psi(t, \theta)$ 와 독립적이 된다. 따라서, 식 (14)의 두번째 항을 무시할 수 있어서 탐색 알고리즘을 식 (15)와 같이 Gauss-Newton 알고리즘으로 바꾸어 쓸 수 있다. 이런 가정을 도입하는 이유는 근사된  $V_{D_N}''(\theta)$ 를 positive definite로 만들 수 있어서 매번 반복될 때마다 목적함수를 줄여나갈 수 있다는 것과, 식 (12)보다 계산이 간편하다는 것이다.  $D_N$ 이 충분히 클 때, 목적함수의 최소값 근처에 도달하면 두 알고리즘은 거의 비슷하게 움직인다.

$$\hat{\theta}^{(k+1)} = \hat{\theta}^{(k)} + \alpha^{(k)} \left[ \sum_{i=1}^{D_N} \Psi(t, \hat{\theta}^{(k)}) \Psi^T(t, \hat{\theta}^{(k)}) \right]^{-1} \left[ \sum_{i=1}^{D_N} \Psi(t, \hat{\theta}^{(k)}) \epsilon(t, \hat{\theta}^{(k)}) \right] \quad (15)$$

## 3. 응용

### 3-1. 대상 공정

본 연구에서 개발한 모델링 방법을 (주)제일모직 여천공장의 EPS 반응기 모델링에 적용하였다. EPS 반응기는 크기가 100 m<sup>3</sup>이고 순환 루프가 구성되어 있으며 순환 유량은 200 m<sup>3</sup>/hr이고 열전달 매체로는 찬물과 뜨거운 물을 사용한다. EPS 반응기에서의 반응은 초기 승온에서부터 이루어지며 중간이후부터는 가스를 투입하여 반응을 종료시킨다. EPS 반응기의 개략도를 Fig. 7에 나타내었다.

### 3-2. 파라미터 추정

#### 3-2-1. 파라미터 추정 방법

파라미터 추정 방법은 다음과 같다.

(1) PFM: 자켓 높이를 적당한 간격으로 나눈다. 식 (1)의 해는 특성식 (6)을 만족해야 하기 때문에 등간격으로 해야 한다.

MFM: 혼합 반응기의 갯수 N을 정한다.

- 최적화를 위한 window 크기(자료갯수),  $D_N$ 을 정한다.

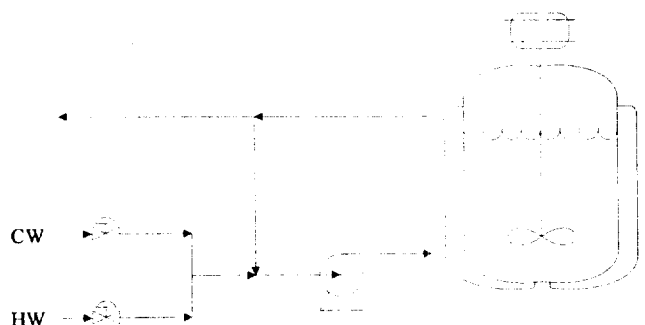


Fig. 7. Schematic diagram of EPS reactor.

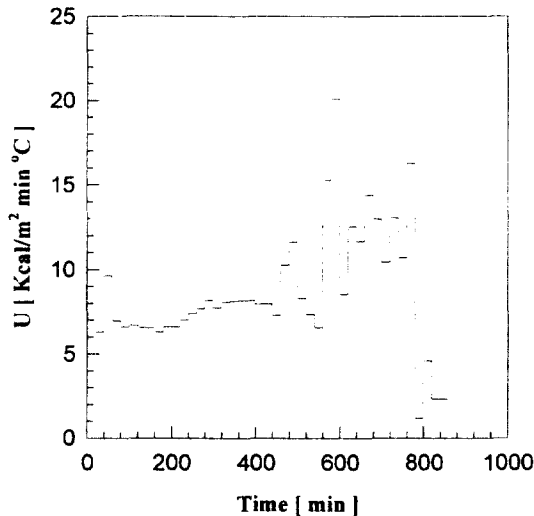


Fig. 8. Estimation result of U(PFM).

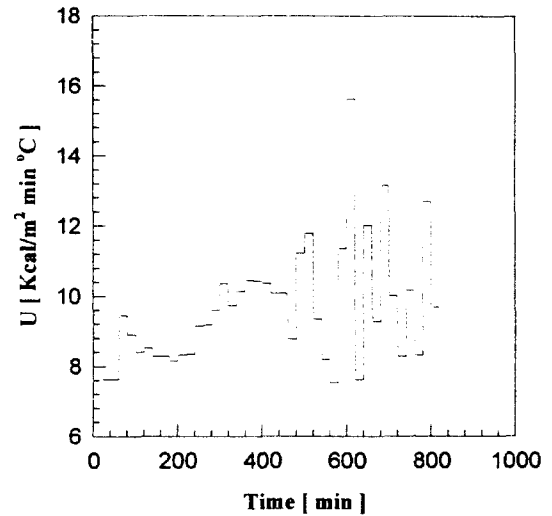


Fig. 10. Estimation result of U(MFM).

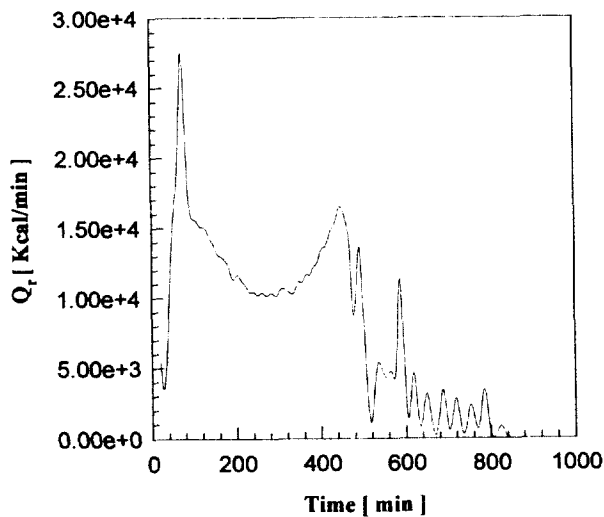


Fig. 9. Estimation result of Qr(PFM).

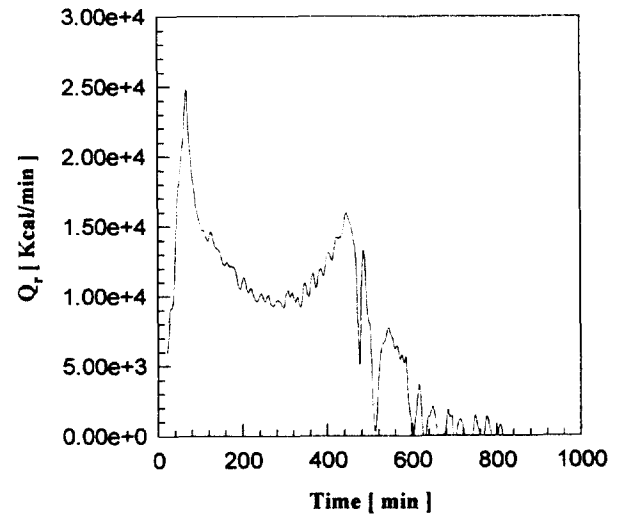


Fig. 11. Estimation result of Qr(MFM).

(2) PFM : 식 (1)에 특성식을 따라 수치적분하여 예측오차를 구한다.

MFM : 식 (2), (3)에 Kalman 필터를 적용하여 예측오차를 구한다.

(3) 식 (15)를 이용하여 목적함수를 최소화하는 파라미터를 구한다.

(4) Window를 옮기면서 총 자료갯수에 도달할 때까지 (2), (3)을 반복한다.

최적화 구간  $D_n$ 의 결정에는 체계화된 방법이 없다. 경험적인 방법으로는 반응이 급속하게 진행되거나 반응물 또는 자켓의 온도 변화가 심하면 열전달 계수의 변화가 있을 것으로 생각되기 때문에 한 구간 내에 이런 현상들이 포함되지 않도록 구간 크기를 결정하는 것이다.

본 논문에서는 PFM과 MFM 모두 최적화구간으로 20분을 사용하였다. 대상 공정인 EPS 반응기의 경우는 반응기 내벽에 축적되는 물질이 거의 없고 승온 구간을 제외하고는 온도가 심하게 변하지 않기 때문에 구간 크기에 큰 영향을 받지 않았다.

### 3-2-2. 파라미터 추정 결과

Fig. 8-11에 EPS 반응기의 열전달 계수와 반응열 추정 결과를 PFM과 MFM에 대하여 각각 나타내었다. 두 모델에서 추정된 열전

달 계수와 반응열이 거의 유사한 경향을 보이고 있다.

추정된 열전달 계수는 반응기의 설계값과 유사하였고, 추정된 반응열을 반응 전환율로 고쳤을 때, 그 경향이 현장 엔지니어들의 견해와 일치하였다.

### 3-3. 모델 검증

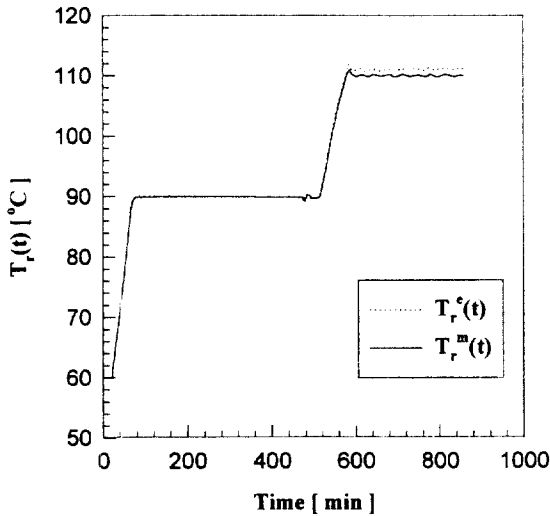
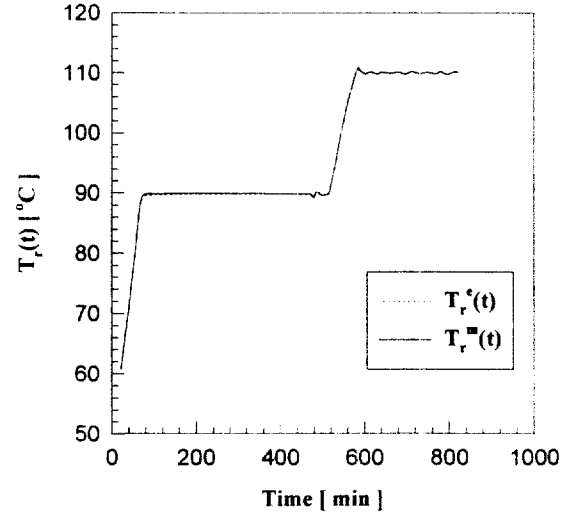
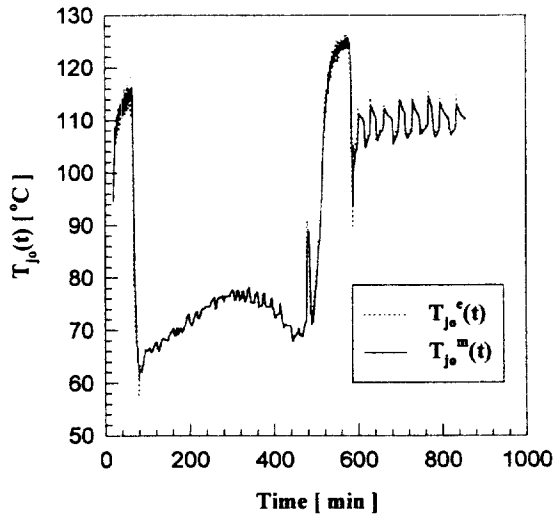
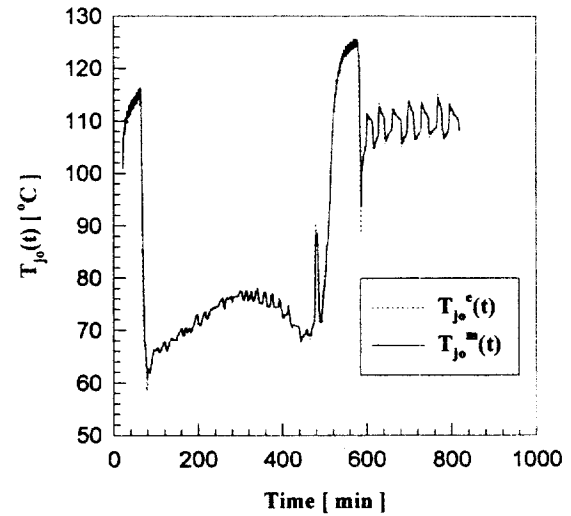
본 연구에서는 3-2에서 추정한 파라미터의 검증을 위하여 구해진 파라미터를 이용, 실제 공정의 거동을 모사해 보았다.

#### 3-3-1. 회분식 반응기 모사기의 구성

추정모델을 이용하여 추정된 파라미터를 검증하고 공정분석 및 제어에 개선을 위한 목적으로 사용되는 반응기 모사기는 다음과 같이 구성된다.

$$\begin{aligned}\dot{\mathbf{x}}(t) &= \mathbf{F}[t, \boldsymbol{\theta}(t)]\mathbf{x}(t) + \mathbf{G}[t, \boldsymbol{\theta}(t)]\mathbf{u}(t) \\ \mathbf{y}(t) &= \mathbf{C}\mathbf{x}(t)\end{aligned}\quad (16)$$

여기서, 상태 벡터  $\mathbf{x}=[T, T_1^1 \cdots T_1^n]^T$ , 모사기 입력  $\mathbf{u}=[Q, T_1]^T$  그리고 모사 출력  $\mathbf{y}=[T, T_1^n]^T$ 이다. 행렬  $\mathbf{F}[t, \boldsymbol{\theta}(t)]$ ,  $\mathbf{G}[t, \boldsymbol{\theta}(t)]$ ,  $\mathbf{C}$ 는 각각 다음과 같은 구조를 가지고 있다.


 Fig. 12. Model validation: PFM:  $T_r^m(t)$  vs.  $T_r^e(t)$ .

 Fig. 14. Model validation: MFM:  $T_r^m(t)$  vs.  $T_r^e(t)$ .

 Fig. 13. Model validation: PFM:  $T_{jo}^m(t)$  vs.  $T_{jo}^e(t)$ .

 Fig. 15. Model validation: MFM:  $T_{jo}^m(t)$  vs.  $T_{jo}^e(t)$ .

$$F = \begin{bmatrix} x & \cdot & \cdot & x \\ x & x & & \\ \cdot & \cdot & \cdot & \\ x & \cdot & x & x \\ & & & x & x \end{bmatrix} \quad G = \begin{bmatrix} x \\ x \end{bmatrix} \quad C = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix}^T$$

### 3-3-2. 공정 모사를 통한 검증

Fig. 12-15에 모델 검증을 위한 공정 모사 결과를 두 가지 자켓 모델에 관하여 각각 나타내었다. Fig. 12-15에서 알 수 있는 것처럼 두 가지 자켓 모델 모두 다 반응기 온도와 자켓 출구온도를 실제 공정에 가깝게 모사해 내고 있다. 이것은 본 연구에서 개발한 자켓 모델이 자켓 내의 온도 분포를 잘 표현하고 있음을 나타낸다. Fig. 12의 중간 이후로 예측된 반응온도가 측정된 반응온도에서 벗어나고 있는 것은 반응이 종료되어 파라미터에 대한 자켓 출구온도의 민감도가 거의 없기 때문이다. 그 구간에서 추정된 파라미터들은 사실상의 의미없다고 할 수 있다. Fig. 14에서는 그 구간에서도 실제 반응온도를 잘 예측하고 있지만 역시 의미없는 값이다.

Fig. 16의 (a)와 (b)는 PFM과 MFM의 모사 성능을 비교한 것인데

툰니 모양으로 움직이는 자켓 출구온도를 MFM이 보다 실제 공정에 가깝게 모사해 내고 있다. PFM의 모사 결과는 입구 온도의 형태가 그대로 출구에 나타난다는 PFM의 특성을 반영하는 것이며, MFM의 경우는 자켓의 동특성을 N개의 혼합 탱크 반응기가 비교적 잘 표현하고 있음을 나타낸다.

혼합 반응기 갯수에 따른 모사 성능 변화를 Fig. 16의 (b), (c), (d)에 나타내었다.

마지막 부분(N=1인 경우에 파라미터가 수렴하지 못한 부분) 제외하면 N=1인 경우가 공정을 가장 잘 표현하였다. 각 경우에 예측된 온도의 위상이 실측온도의 위상보다 앞서 있는 것은 벽의 동특성의 영향이 포함되어 있지 않기 때문이라고 생각된다. 온도 변화가 아주 심한 구간을 제외하면  $\pm 0.5$  이내로 반응기 내부 온도와 자켓 출구온도를 예측하고 있다.

## 3. 결 론

자켓이 달린 산업용 회분식 반응기의 공정을 분석하고 제어계 개선을 위한 모사기를 개발하였다. 개발된 모사기는 반응기 주위의 열

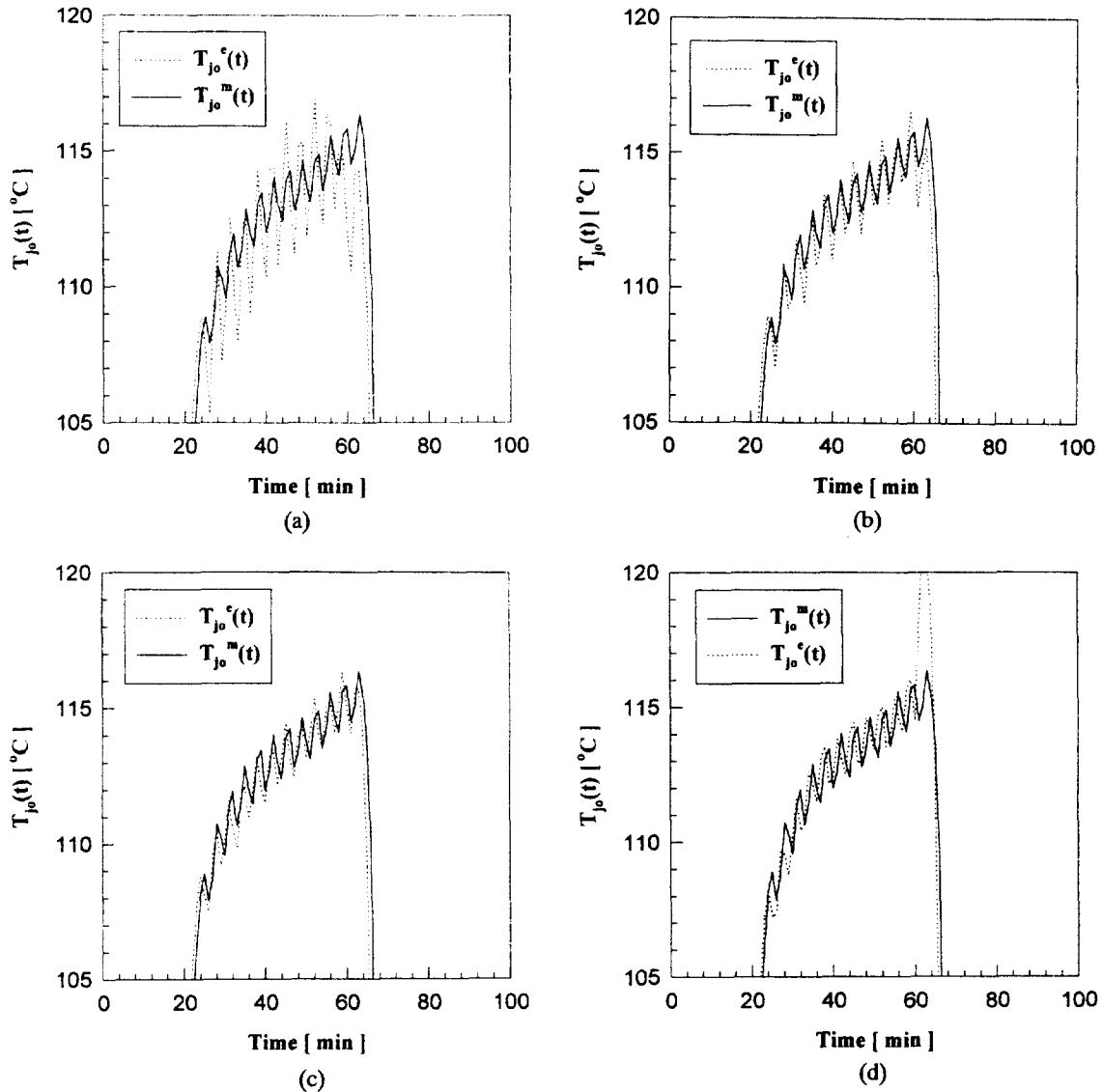


Fig. 16. Process simulation performance: (a) PFM, (b) MFM :  $N=4$ , (c)  $N=2$ , (d)  $N=1$ .

수지식으로 구성되었으며 산업현장의 제한된 측정변수와 운전조건만을 이용한다. 모사기는 자켓 내부의 흐름을 표현할 수 있는 자켓 모델을 포함하고 있어서 산업용 회분식 반응기에서 반드시 존재하는 자켓 내부의 온도분포를 효과적으로 나타낼 수 있다. 자켓 내부의 흐름을 크게 두 가지로, 관형흐름 모델(Plug Flow Model)과  $N$ 개의 혼합 반응기가 직렬로 연결된 모델( $N$  mixed-reactor-in-series model)로, 나누어 모사기를 구성하였고 두 모델의 공정 모사능력을 전산모사를 통하여 비교하였다.

개발된 모사기는 총괄 열전달 계수와 반응열을 파라미터로 갖고 있다. 열전달 계수는 현장 운전조건과 운전자료를 이용하여 파라미터 추정기법인 예측오차방법(Prediction Error Method)을 통해 구하였고 반응열은 추정된 열전달 계수와 반응물의 열수지식을 이용하여 추정하였다.

산업용 회분식 반응기인 EPS 공정의 모사기 개발에 적용하였다. 현장자료를 이용하여 조율된 모사기는 EPS 반응기의 거동을 매우 잘 예측하였다. 자켓 모델에 따른 성능은  $N$ 개의 혼합 반응기가 직렬로 연결된 모델이 더 우수하였다.

결과적으로, 새로운 모델링 기법이 산업용 회분식 반응기의 거동을 잘 예측할 수 있어서 모사기를 이용한 공정분석은 물론 제어제 개선에 유용하게 사용될 수 있다고 생각된다.

## 사용기호

$A$	: total heat transfer area
$C$	: output transition matrix
$C_j$	: heat capacity of jacket content
$C_r$	: heat capacity of reactor content
$D_M$	: set of values over which $\theta$ ranges in a model structure
$D_N$	: number of data
$D_j, D_r$	: jacket and reactor diameter
$e$	: measurement noise, $\sim N(0, R_2)$
$F$	: state transition matrix
$G$	: input transition matrix
$K$	: Kalman gain



$L_c$  : effective length of jacket  
 $M$  : model structure  
 $M_r$  : mass of reactor content  
 $M'$  : set of models  
 $M(\theta)$  : particular model corresponding to the parameter value  $\theta$   
 $n$  : the section in which the reactor content exists  
 $N$  : number of sections  
 $P$  : covariance matrix of state estimation errors  
 $Q_r$  : heat of reaction  
 $Q_{add}$  : additional heat effects  
 $R_1, R_2$  : covariance matrix of  $v$  and  $e$ , respectively  
 $R_{D_N}$  : sample covariance matrix  
 $S$  : cross-sectional area of jacket  
 $T_j, T_r$  : temperature of jacket and reactor content  
 $U$  : overall heat transfer coefficient  
 $v$  : linear velocity  
 $\hat{v}$  : process noise  
 $V_{D_N}$  : criterion function to be minimized  
 $\dot{V}_j$  : circulation flowrate  
 $V_j$  : section volume of jacket  
 $x$  : state vector  
 $y$  : measurement value

#### 그리스 문자

$\alpha$  : step length  
 $\beta$  :  $4UD_r/\rho_j C_{pj}(D_j^2 - D_r^2)$   
 $\epsilon$  : prediction error  
 $\theta$  : parameter  
 $\rho$  : density

#### 상첨자

$i$  : i-th section  
 $\hat{\phantom{x}}$  : estimate  
 $k$  : k-th iteration

$\prime, \prime\prime$  : first and second derivative by  $\theta$

#### 참고문헌

1. Shinskey, F.G.: "Process Control Systems", 3rd ed., McGraw Hill, 1988.
2. 방성호, 이대옥, 이광순, 이석호, 손종성, 윤상철 : "산업용 회분식 반응기에서의 반응열 추정", KACC, 595, 1993.
3. 정찬목, 이대옥, 이광순, 이석호, 손종성, 윤상철 : "산업용 회분식 반응기의 동특성 열수지 모델의 개발과 그 응용", KACC, 708, 1994.
4. Bovin, D., DE Valliere, P. and Rippin, D.W.: *Chem. Eng. Sci.*, **42**, 1153(1989).
5. Karlson, L. G. and Villadsen, J.: *Chem. Eng. Sci.*, **42**, 1153 (1987).
6. 방성호, 이용수, 이광순, 이석호 : "산업용 회분식 반응기에서의 반응열 측정과 응용에 관한 연구", KACC, 931, 1992.
7. 이기형, 이대옥, 이광순, 정상태 : "회분식 반응열 분석 시스템의 개발과 응용", KACC, 947, 1992.
8. Davis, M.E.: "Numerical Methods and Modeling for Chemical Engineers", John Wiley Sons, 1982.
9. Farlow, S.J.: "Partial Differential Equations for Scientists Engineers", John Wiley & Sons, 1982.
10. Smith, G.D.: "Numerical Solution of PDE", FDM, 2nd Ed. Oxford, 1978.
11. Ljung, L.: "System Identification: Theory for the User", Prentice Hall Inc., 1987.
12. Söderström, T. and Stoica, P.: "System Identification", Prentice Hall Inc., 1989.
13. Meditch, J.S.: "Stochastic Optimal Linear Estimation and Control", McGraw-Hill, 1969.
14. Jazwinski, A.H.: "Stochastic Process and Filtering Theory", Academic Press, 1970.
15. Åström, K.J. and Wittenmark, B.: "Computer Controlled Systems: Theory and Design", Prentice Hall, 1984.