

## 관형 촉매반응기 시스템의 동적최적화

오 민<sup>†</sup> · 문제권\*

국립대전산업대학교 화학공학과

\*한국원자력연구소

(1998년 4월 15일 접수, 1998년 8월 13일 채택)

## Dynamic Optimisation of a Catalytic Tubular Reactor System

Min Oh<sup>†</sup> and Jei Kwon Moon\*

Department of Chemical Engineering, Taejon National University of Technology

\*Korea Atomic Energy Research Institute

(Received 15 April 1998; accepted 13 August 1998)

### 요 약

o-xylene로부터 PA를 생산하는 관형 촉매반응기의 수학적 모델을 수립하고 이를 바탕으로 한 동적최적화를 수행하였다. 촉매반응기시스템의 수학적 모델은 IPDAEs로 표현되며 MOL방법을 사용하여 시간에 대하여 변화하는 DAEs으로 변환하였다. 바뀌어진 DAEs에 포함된 제어변수를 CVP 방법을 통하여 간단한 다항식으로 표현하여 유한차원의 NLP문제로 바꾸었다. 이러한 과정을 통하여 최종적으로 나타난 동적최적화 문제는 NLP와 시간적분의 외부 loop와 내부 loop를 반복적으로 계산하는 과정을 통하여 수치해를 구하였다. 여러 다른 제어전략에 대하여 동적최적화를 수행하고 결과를 비교하였다. 목적함수는 전체 시간영역을 4단계로 나눈 경우에 최대치를 얻을 수 있었으며 동적최적화를 통하지 않은 다른 여러 경우와 비교하여 목적함수가 약 3.6-235 % 가량 향상됨을 알 수 있었다.

**Abstract**—A mathematical model of a catalytic reactor system, which produces phthalic anhydride from o-xylene, is constructed. Based on the mathematical model, dynamic optimisation of the system is carried out. The mathematical statement of the system is IPDAEs and they are converted into DAEs using MOL. Within the framework of CVP, control variables can be described in terms of a weighted combination of simple polynomials, and this leads an infinite dimensional dynamic optimisation problem to a finite dimensional NLP problem. The reformulated dynamic optimisation problem using CVP can be solved with repeated calculation of the NLP outer loop and the time integration inner loop. Dynamic optimisation is carried out for various control strategies, and the results are compared. The maximum objective function is obtained for the 4 step strategy and we compare its results with intuitively chosen control cases. From the comparison, we noted that the objective function of the optimal case is improved about 3.6-235 %.

Key words: Dynamic Optimisation, CVP, Catalytic Tubular Reactor System, IPDAEs, SQP

### 1. 서 론

최적제어는 대상공정의 성능을 나타내는 여러 지수들을 최적화시키는 제어변수들(e.g. 원료의 흐름량, 탱크에서의 환류비 등)의 시간에 따른 변화를 결정하고 이에 따른 여러 공정 변수들의 동적응답을 고찰하는 작업으로 규정할 수 있다. 동적최적화의 경우는 최적제어 변수를 구하는 일 외에도 공정 설계에 관계된 시간과는 무관한 공정 파라미터(e.g. 분리탑의 지름 및 길이) 등을 함께 구할 수 있다는 면에서 최적제어와 구분될 수 있다. 이와 같은 동적최적화의 주 응용분야로는[1]: (a) 주요성분의 최대생산, (b) 오염물질의 최소화, (c) 최적의 개시운전 및 종료운전 조건의 도출, (d) 한 정상상태에서 다른 정

상상태로의 최적전환을 들 수 있다.

이와 같이 동적최적화는 많은 분야에 응용되며 이를 통하여 최적인 전전략을 수립할 수 있으나 해석적 혹은 수치적인 해를 구하는 것이 매우 어려워 실제 적용에 있어 많은 문제점을 보였다. 최근에 이르기까지 전통적인 동적최적화의 해법으로는 Pontryagin's Maximum Principle[2], Dynamic Programming[3, 4] 등의 기법이 주로 사용되어 왔다. 그러나 이와 같은 방법은 주어진 동적최적화 문제에 대해서 매우 의존적이며, 또한 한정된 범위내에서만 적용이 가능하여 풀고자 하는 문제의 크기가 클 경우 적용이 매우 어렵다는 것이다. 최근의 컴퓨터 기술의 급진적인 발전과 수치해석분야의 발전으로 풀 수 있는 수학적 크기가 점차 커짐에 따라, 대상공정의 수학적 모델링 역시 점차 상세해져 가고 있다. 따라서 풀고자 하는 문제의 크기에 제한이 있는 위의 방법으로는 최근의 경향에 적절히 대처하기가 매우 어려우며 나아

<sup>†</sup>E-mail : minoh@hyunam.tnut.ac.kr

가 산업현장에서의 적용이 불가능하다. 이에 대한 대안으로 Complete Discretisation(CD)[5, 6]와 Control Vector Parameterisation(CVP)[7, 8]에 대한 연구가 최근 활발히 진행되고 있다.

CD 방법은 대상공정의 수학적 모델식의 모든 변수들을 공간과 시간좌표에 대하여 완전히 이산화한다. 미분항의 이산화를 위하여 유한차분법[9], collocation method[10], Lagrange polynomial을 이용한 Orthogonal Collocation(OC)방법[11] 등을 사용한다. 이산화 과정을 통해 수학적 모델은 Differential Algebraic Equations(DAEs)로부터 Nonlinear Algebraic Equations(NAEs)로 변환되며 따라서 동적최적화 문제는 Nonlinear Programming(NLP) 문제로 변환된다. NLP 문제의 해법으로는 여러 가지 방법이 있으나 Reduced Gradient(RG) 방법[1]과 Successive Quadratic Programming(SQP) 방법[12, 13]이 많이 사용되고 있다. 이와 같은 CD는 수학적 모델식 전부를 이산화함으로써 동적최적화 문제의 크기가 필요 이상으로 증가하게 되어<sup>1</sup> 수치해법 시 많은 문제점을 야기한다. CP가 모델식을 모든 공정변수에 대하여 이산화시킴으로써 무한차원의 동적최적화 문제를 유한차원의 NLP로 변환시키는 방법인데 비하여, CVP는 모델식을 제어변수에 대해서만 이산화시킨다. 이산화를 통하여 형성된 수학적 모델은 DAEs로 나타나기 때문에 NLP에서 이용되는 SQP 해법을 직접 사용할 수 없게 되어 DAE 적분기와 함께 사용한다[7]. 이 방법은 전체 공정변수의 수에 비하여 극히 작은 수의 제어변수에 대하여 이산화를 수행하므로 이산화작업이 수행된 후의 문제의 크기가 원래의 것과 큰 차이를 보이지 않으며 따라서 최적화 해법과정에 큰 부담을 주지 않는 것이 장점이다. 언급된 여러 가지 동적최적화 수치해법의 문제점에 대하여, 대상공정의 변수들이 시간과 공간의 변화에 따라 변화하는 분산매개 시스템일 경우 동적최적화 작업은 더욱 더 어려워진다. 총괄매개변수공정의 수학적 모델이 DAEs의 조합으로 표현되는 반면, 분산매개변수 공정은 Integro-Partial Differential Equations(IPDAEs)로 나타난다[14]. CP를 이용하여 동적최적화를 수행할 경우 해법과정 중 IPDAEs의 시간에 따른 적분이 수행되며 따라서 이에 대한 적절한 수학적 조치가 요구된다.

본 논문에서는 날로 증가되는 동적최적화의 중요성을 고려하여 분산매개공정인 관형 촉매반응기의 동적최적화에 대하여 논하였다. 동적최적화의 이론적 배경과 CP의 algorithm에 대하여 설명하였으며, PA를 생산하는 관형 촉매반응기의 수학적 모델을 수립하였다. 수립된 대상공정의 수학적 모델에 목적함수와 제한조건을 도입하여 최적 제어전략을 수립하였다.

## 2. 동적최적화의 이론적 배경

### 2-1. PDAEs의 이산화

분산매개 공정의 수학적 모델은 식 (1)과 같이 편미분 방정식과 비선형 대수식의 조합으로 구성된다.

$$F[x(z, t), x_c(z, t), x_s(z, t), x_w(z, t), u(t), z, v, t]=0 \quad (1)$$

여기에서  $x_c \in \mathcal{R}^n$ 는 변수  $x$ 의 시간  $t$ 에 대한 미분이며,  $x_s, x_w \in \mathcal{R}^n$ 는 변수  $x$ 의 공간 좌표  $z$ 에 대한 1차 및 2차 미분항이다.  $u$ 는 시간의 함수로 표시되는 제어변수이며  $v$ 는 시간과 무관한 설계 파라미터이다. 식 (1)과 같은 PDAEs는 여러 가지 방법을 통하여 수치해를 구할 수 있으며, 그 중 Method Of Lines(MOL)[15, 16]은 PDAEs를 공간에 대해 이산화를 시킴으로써 DAEs로 변환시킨다. MOL에서는 공간에 대한 이산화를 위하여 유한차분법[9], 유한요소법[17], weighted

<sup>1</sup> 예를 들어 유한 차분법을 이용하여 전체 영역을  $m$ 개의 구간으로 나누어  $n$ 개의 DAEs를 이산화할 경우  $(m+1) \times n$ 개의 NAEs가 생성된다. 즉, 문제의 크기가  $(m+1) \times n$ 배 증가하게 된다.

residual 방법[12] 등이 사용된다. 이러한 방법 중 유한요소법에 기초를 둔 OC 방법(OCFEM)은 적은 수의 유한요소와 낮은 차수의 다항식을 사용하여 매우 정확한 결과를 얻을 수 있으며 화학반응 및 흡착 등이 수반된 공정의 해석에 널리 사용된다[18, 19]. OCFEM 방법은  $n$ 차의 orthogonal 다항식의 가중된 조합(weighted combination)으로 나타나며, collocation points에서 방정식이 정확하게 만족되어야 한다.  $n$ 차의 Lagrange polynomial을 사용하면, 유한요소  $l$ 에서 함수  $x(z)$ 는 식 (2)와 같이 표현된다.

$$x(z^l) \approx \sum_{j=0}^n x(\bar{z}^l) L_j^{[n]}(z^l) \quad l = 1 \cdots m \quad (2)$$

여기에서  $L_j^{[n]}$ 는  $n$ 차의 Lagrange polynomial이며  $\bar{z}$ 는 유한요소내의 규격화(normalised)된 길이방향의 위치이다. 유한요소  $l$ 의  $q$ 번째 위치에서의 1차 및 2차 미분은 다음과 같다.

$$\frac{\partial x(z_q^l)}{\partial z} \approx \frac{1}{E^l} \sum_{j=0}^n A_{jq}^{[n]} \times (z_j^l) \quad (3)$$

$$\frac{\partial^2 x(z_q^l)}{\partial z^2} \approx \left( \frac{1}{E^l} \right)^2 \sum_{j=0}^n B_{jq}^{[n]} \times (z_j^l) \quad (4)$$

여기에서  $A_{jq}^{[n]}$ 와  $B_{jq}^{[n]}$ 는 각각 식 (4)와 (5)로 나타나는  $(n+1) \times (n+1)$ 의 행렬이다[20].

$$A_{jq}^{[n]} \equiv \frac{\partial L_j^{[n]}(\bar{z}_q)}{\partial \bar{z}} \quad (5)$$

$$B_{jq}^{[n]} \equiv \frac{\partial^2 L_j^{[n]}(\bar{z}_q)}{\partial \bar{z}^2} \quad (6)$$

이와 같은 방법을 통하여 주어진 PDAEs[식 (1)]는 아래와 같은 DAE systems로 전환된다.

$$f[x(t), x(t), y(t), u(t), v, t]=0 \quad (7)$$

초기조건도 같은 방법에 의해 공간좌표에 대하여 다음과 같이 이산화된다.

$$C[x(t_0), x(t_0), y(t_0), u(t_0), v, t_0]=0 \quad (8)$$

### 2-2. 동적최적화 문제의 수학적 구성

공간의 이산화를 통하여 DAEs로 변환된 모델식과 초기조건[식 (7), (8)]에 대하여 동적최적화에서는 목적함수와 제한조건이 추가로 요구된다. 제한조건의 경우 운전의 전구간에 걸쳐 요구되는 "경로 제한조건" [식 (9)]과 주어진 점에서 요구되는 "점 제한조건" [식 (10)]으로 나뉘어진다.

$$h[x(t), \dot{x}(t), y(t), u(t), v, t] \leq 0, \forall t \in [0, \tau] \quad (9)$$

$$g[x(t_\lambda), \dot{x}(t_\lambda), y(t_\lambda), u(t_\lambda), v, t_\lambda] \leq 0, \lambda=1, 2, \dots \quad (10)$$

점 제한조건 중 가장 빈번한 경우는 만족되어야 할 시간이 종료시간과 같은 경우로 종료점 제한조건이라고 부른다.

목적함수는 일반적으로 운전의 종료시간  $\tau$ 에서 공정변수와 시간에 무관한 설계매개변수의 함수로 표현된다.

$$\min. \Psi[x(\tau), \dot{x}(\tau), y(\tau), u(\tau), v, \tau] \quad (11)$$

목적함수는 때때로 공정운전의 전시간에 걸친 적분의 함수로 표현될 수 있다. 예를 들어 반응기에서 전 운전시간에 대하여 미 반응물 회수를 최대화하는 것으로 목적함수를 설정하였을 경우 식 (12)와 같이 목적함수에 전 운전시간에 대한 적분항이 나타난다.

$$\int_0^{\tau} \Psi[x(t), \dot{x}(t), y(t), u(t), v, t] dt \quad (12)$$

이러한 경우 식 (13)과 같이 추가적인 시간에 대한 미분식을 도입함으로써 적분항을 제거하여 일반적인 동적최적화 문제와 같이 만들 수 있다.

$$\begin{aligned} \min. \quad & \Pi \\ \frac{d\Pi}{dt} = & \Psi[x(t), \dot{x}(t), y(t), u(t), v, t] \\ \Pi(0) = & 0 \end{aligned} \quad (13)$$

최종적으로 동적최적화는 대상공정의 수학적 모델[식 (7)], 초기조건[식 (8)], 제한조건[식 (9), (10)]과 목적함수[식 (11)]를 바탕으로 하여 다음의 변수들을 결정짓는다.

- \* 전체 공정운전시간,  $\tau$
- \* 시간에 무관한 설계변수,  $v$
- \* 제어변수,  $u(t), \forall t \in [0, \tau]$

### 2-3. 수치 해법의 알고리즘

식 (7)-(11)로 표현되는 동적최적화 문제는 공정변수  $[x(t), y(t)]$ 와 제어변수  $u(t)$ 가 시간의 함수이므로, 주어진 시간 영역  $(t \in [0, \tau])$ 에 대해 무한차원(infinite dimension)의 문제로 나타난다. 이를 유한차원(finite dimension)의 문제로 mapping하기 위하여 시간영역  $\tau$ 를  $n$ 개의 부분 시간구간으로 나눈다.

$$\tau = \sum_{k=1}^{NE} \delta_k, \quad \delta_k \geq \varepsilon \quad (14)$$

CVP에서 제어변수  $u(t)$ 는 각 부분 시간영역에서 아래와 같은 다항식으로 표현될 수 있다.

$$u(t) = \omega(t, \alpha, \delta), \quad t \in [0, \tau] \quad (15)$$

여기에서  $\alpha$ 는 다항식의 상수들,  $\delta$ 는 부분시간 영역이며 최적화를 통하여 구할 수 있다. 다항식의 형태는 수학적 면에서 보다 공정의 특성과 제어기의 구현에 따라 결정되는 것이 일반적이며 이러한 면에서 주로 상수, 1차 혹은 2차 다항식과 같은 단순한 형태의 다항식으로 표현된다(Fig. 1). 단순한 형태의 제어변수는 수치해법 과정에 있어 계산시간을 크게 줄일 수 있다는 장점도 아울러 가지고 있다.

제어변수의 다항식  $\omega(t, \alpha, \delta)$ 의 정확한 형태는 사용자에 의해 결정되므로 최적화 과정을 통해  $\alpha$ 와  $\delta$ 를 구하며 이는 자동적으로 최적  $u(t)$ 를 구하는 일이 된다. 부분시간 영역에서 간단한 다항식으로 표현된 제어변수와 이와 관련된 상수들을 사용하여 동적최적화 문제를 재구성하면 다음과 같다.

$$\text{Min. } \Phi[x(\tau), \dot{x}(\tau), y(\tau), \omega(\tau, \alpha, \delta), v, \tau] \equiv \Phi(\alpha, \delta, v, \tau) \quad (16a)$$

subject to

$$g_i(\alpha, \delta, v, \tau) \geq 0 \quad (16b)$$

$$\alpha^{\min}(v) \leq \alpha \leq \alpha^{\max}(v) \quad (16c)$$

$$v^{\min} \leq v \leq v^{\max} \quad (16d)$$

$$\tau^{\min} \leq \tau \leq \tau^{\max} \quad (16e)$$

$$\tau = \sum_{k=1}^{NE} \delta_k, \quad \delta_k \geq \varepsilon \quad (16f)$$

모델식과 초기조건 또한 아래와 같이 표현된다.

$$f[x(t), \dot{x}(t), y(t), \omega(t, \alpha, \delta), v, t] = 0 \quad \forall t \in [0, \tau] \quad (17)$$

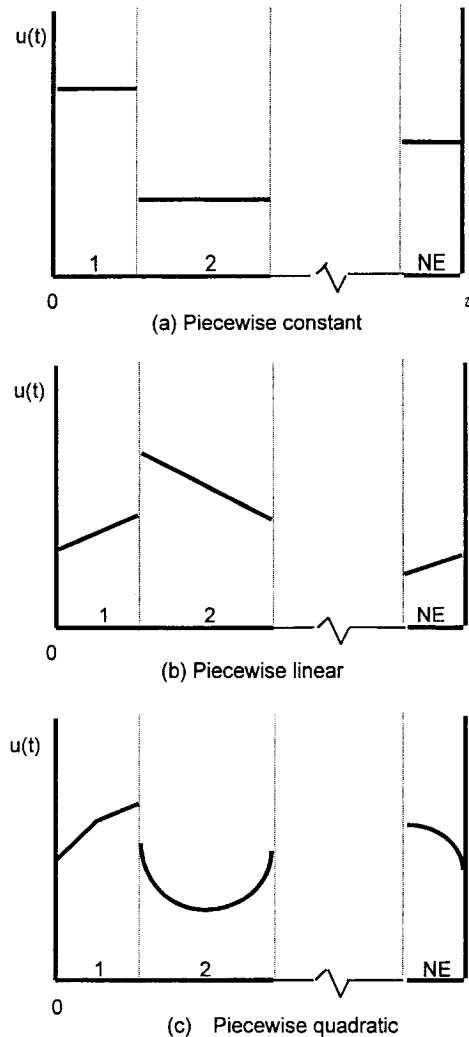


Fig. 1. Control variable parameterisation.

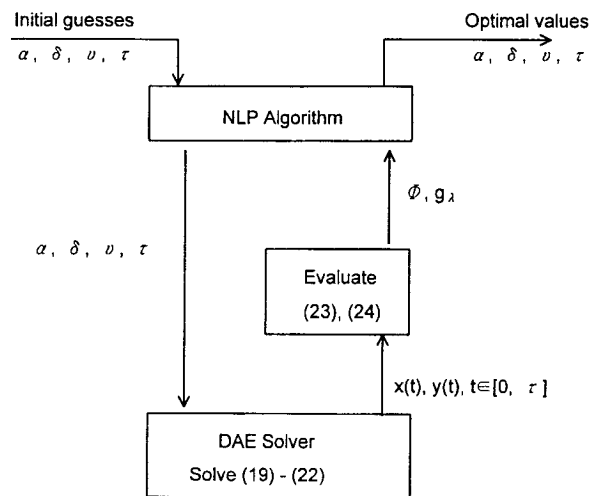


Fig. 2. Computational scheme for solution of dynamic optimisation problems.

$$C[x(t_0), \dot{x}(t_0), y(t_0), \omega(0, \alpha, \delta), u(t_0), v, t_0] = 0 \quad (18)$$

식 (16)은 비선형 목적함수를 제한조건 하에서 최소화시키는 NLP

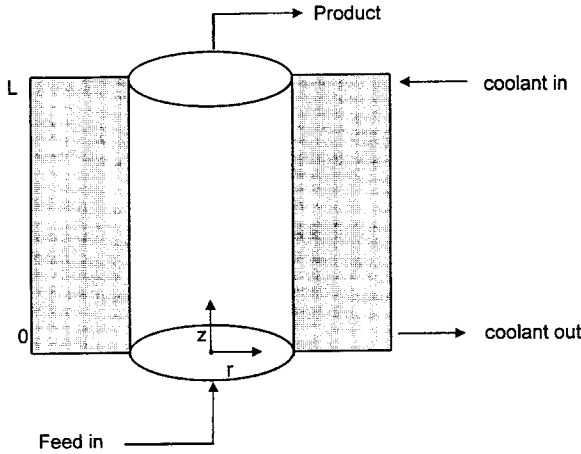


Fig. 3. Fixed bed catalytic reactor system.

문제로 볼 수 있으며 SQP 알고리즘 등을 통하여  $\{\alpha, \delta, v\}$ 가 계산된다.  $\{\alpha, \delta, v\}$ 가 결정되면 식 (17)과 (18)의 시간적분을 통하여  $\{x(t), y(t)\}$ 가 유일하게 결정할 수 있다. 이와 같이 계산된 값을 바탕으로 하여 목적함수와 제한조건을 계산할 수 있으며 이와 같은 과정은 시간의 종료점까지 계속 반복된다. CVP방법에서 동적최적화 문제는  $\{\alpha, \delta, v\}$ 를 구하는 NLP의 해법을 외부 loop로 하고 이를 통하여 구하여진 값을 바탕으로  $\{x(t), y(t)\}$ 를 구하는 모델식의 시간적분의 내부 loop로 구성되어 있다. 이러한 해법과정을 Fig. 2에 도식화하였다.

### 3. 촉매반응기 시스템의 동적최적화 문제구성

본 연구의 대상공정은 o-xylene의 산화반응을 통하여 Phthalic Anhydride(PA)를 생성하는 관형 촉매반응기 시스템이다[21]. o-xylene의 산화는 발열반응이므로 반응열을 냉각시키기 위해 반응기의 주변을 molten salt를 냉매로 사용하는 냉각탱크가 싸고 있다(Fig. 3).

#### 3-1. 대상공정의 수학적 모델

촉매반응기의 수학적 모델을 위해 사용된 가정은 다음과 같다.

- \* 공정변수는 축 방향과 길이 방향의 2차원 공간과 시간의 변화에 대하여 특성치가 변화한다.
- \* 반응기내의 물성치는 시간과 공간 방향에 대하여 무관한 상수로 표시된다.
- \* 가상의 균일모델(pseudo homogeneous)로 가정하였다.
- \* 반응기내의 유속은 일정하다.

#### 관형 촉매반응기

성분 i에 대한 물질 수지 :

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z} (v_z c_i) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \varepsilon D_z \frac{\partial c_i}{\partial z} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \varepsilon D_r r \frac{\partial c_i}{\partial r} \right) + v_i \eta_p \quad \forall z \in (0, L), r \in (0, R) \quad (19a)$$

경계 조건 :

$$-\varepsilon D_z \frac{\partial c_i}{\partial z} = v_z (c_{i,0} - c_i) \quad \forall z=0, r \in [0, R] \quad (19b)$$

$$\frac{\partial c_i}{\partial z} = 0 \quad \forall z=L, r \in [0, R] \quad (19c)$$

$$\frac{\partial c_i}{\partial r} = 0 \quad \forall r=0, z \in (0, L) \quad (19d)$$

$$\frac{\partial c_i}{\partial r} = 0 \quad \forall r=R, z \in (0, L) \quad (19e)$$

에너지 수지 :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_f c_{pf} T) = & -\frac{\partial}{\partial z} (v_z \rho_f c_{pf} T) + \frac{\partial}{\partial z} \left( k_z \frac{\partial T}{\partial z} \right) \\ & + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( k_r r \frac{\partial T}{\partial r} \right) \eta_p (-\Delta H) \end{aligned} \quad \forall z \in (0, L), r \in (0, R) \quad (20a)$$

경계 조건 :

$$-k_z \frac{\partial T}{\partial z} = \rho_f c_{pf} v_z (c_{i,0} - c_i) \quad \forall z=0, r \in [0, R] \quad (20b)$$

$$\frac{\partial T}{\partial z} = 0 \quad \forall z=L, r \in [0, R] \quad (20c)$$

$$\frac{\partial T}{\partial r} = 0 \quad \forall r=0, z \in (0, L) \quad (20d)$$

$$-k_r \frac{\partial T}{\partial r} = h_w (T - T_w) \quad \forall r=R, z \in (0, L) \quad (20e)$$

반응식 :

$$\gamma_A = k P_A P_B \quad (21a)$$

$$k = \text{EXP} \left( \alpha - \frac{\beta}{T} \right) \quad (21b)$$

#### 냉각탱크

$$\rho_w V_w c_{pw} \frac{dT_{cw}}{dt} = f_w c_{pw} (T_{ci} - T_{cw}) + h_w A \int_0^L [T(z, R) - T_{cw}] dz \quad (22)$$

#### 3-2. 목적함수 및 제한조건

PA의 순도는 공정의 운전조건과 이윤을 결정짓는 주요한 변수이다. 따라서 본 연구에서는 PA의 순도를 목적 함수로 정하고 이를 최대화하는 것을 목적으로 공정의 운전전략을 수립하였다.

$$\text{Max. } y_{PA} \quad u(t) \quad (23)$$

공정운전의 관점에서 볼 때, 반응기내의 온도는 주어진 범위에서 운전되어야 한다. 예를 들어 공정운전 시 반응기의 온도가 일정한 범위를 넘어갈 경우, run-away point에 이르게 되면 촉매와 반응기에 심한 손상을 일으킨다. 이와 반대로 온도가 낮을 경우에는 반응의 정도가 미미할 수 있으며 심한 경우에는 반응자체가 일어나지 않을 수도 있다. 냉각탱크의 냉매로는 molten salt가 사용되며 냉매의 온도 또한 주어진 범위내에서 운전된다. 이와 같은 조건으로부터 다음과 같은 제한조건을 구성할 수 있다.

$$T_{min} < T(t) < T_{max} \quad \forall t \in [0, t_f] \quad (24a)$$

$$T_{cw, min} < T_{ci}(t) < T_{cw, max} \quad \forall t \in [0, t_f] \quad (24b)$$

냉매의 유량은 냉각탱크의 크기와 제어밸브의 용량에 따라 규정된다. 따라서 이에 대한 제한조건은 식 (24c)와 같다.

$$f_{ci} \leq f_{max} \quad \forall t \in [0, t_f] \quad (24c)$$

Table 1. Summary of the dynamic optimisation problem

Summary of dynamic optimisation problem	
Objective function	: Eq. (23)
Process model	: Eqs. (19)-(22)
Constraints	: Eqs. (24)

Table 1에 관형 촉매반응기의 동적최적화 문제를 요약하였다.

#### 4. 결과 및 고찰

제어변수는 대상공정의 주어진 목적을 이루기 위해 운전의 전 시간에 걸쳐 제어되어야 할 변수로서 이에 대한 최적 profile을 구하는 것이 본 연구의 목적이다. 목적함수를 최대화시키며 정상 상태에 이르는 운전 시간에 대한 결정 또한 동적최적화 문제의 범위에 포함된다. 많은 제어 가능한 변수들 중에 반응기 원료의 유입압력이 PA 순도에 가장 큰 영향을 미친다. 따라서 본 연구에서는 반응기의 원료 유입압력을 제어변수로 선택하여 전 운전시간을 몇 개의 구간으로 나누고 이에 대한 최적profile을 구하였다. 본 연구에서 다른 제어전략의 수립에 따른 영향을 비교하기 위하여, 전체 운전시간을 각기 1, 2, 3, 4, 8, 10구간으로 나누어 각 경우에 대하여 동적최적화를 수행하고 이때의 목적함수의 최대값을 구하였다. 구간의 수를 수학적으로 결정하는 것은 Mixed Integer Nonlinear Programming(MINLP)문제로 본 연구의 범위에서 제외하였다. 제어변수는 각 구간에서 일정한 값을 가지며 다음 구간에서 비연속적으로 변화하는 piece-wise constant(Fig. 1-a)를 기본 형태로 취하였다. 본 연구에 사용된 물성치와 파라미터의 값은 Table 2에 나타내었다.

IPDAEs의 공간에 대한 이산화를 위하여 3차의 OCFEM 방법이 사용되었으며 축 방향으로는 7개, 반경 방향으로는 1개의 유한요소가 사용되었다. 이산화된 DAEs의 수는 578개였으며 수치해법을 위하여 CVP 방법에서 외부 loop를 구성하는 NLP solver로 SQP에 기초를 둔 SRQPD[22], 내부 loop를 구성하는 모델식 DAEs의 시간적분을 위해 DASOLV[23]가 사용되었다. 모사를 위한 오차의 범위는  $10^{-6}$ , 최적화를 위한 오차는  $10^{-6}$ 이며, 하드웨어는 주 메모리가 256 MB인 DEC Alpha work station이 사용되었다.

Table 3에 관형 촉매반응기에 대한 동적모사의 결과를 정리하였다. 목적함수는 운전시간을 4 구간으로 나누었을 때 가장 큰 값(0.973266)을 나타냈으나, 값의 차이는 매우 미미하였다. 따라서 PA의 순도를 높이기 위한 제어전략의 변화는 커다란 의미를 지니지 못한다고 결론지을 수 있다. 제어구간이 10 구간일 때 정상상태에 이르는 시간이 가장 적게 나타났으며(91.795 sec), 2개의 구간일 때 정상 상태에 이르는 시간이 434.955 sec로 가장 크게 나타났다.

Table 2. Physical properties and parameter values

Variable	Value	Variable	Value
$C_{pf}$	992.0 J/kg-K	$\alpha$	19.837
$C_{pw}$	4200 J/kg-K	$\beta$	13636.0
$D_r$	$10^{-3}$ m <sup>2</sup> /s	$\Delta H$	$-1.284 \times 10^6$ J/mol
$D_z$	$10^{-4}$ m <sup>2</sup> /s	$\epsilon$	0.35
$k_r$	$5 \times 10^{-1}$ J/m-K-s	$\rho_b$	1300 kg/m <sup>3</sup>
$k_z$	$5 \times 10^{-2}$ J/m-K-s	$\rho_f$	1.293 kg/m <sup>3</sup>
$L$	1.0 m	$v_i$	[-1, -3, 1]
$U$	96.0 J/m <sup>2</sup> -K-s		

Table 3. Results of the dynamic optimisation

No. of intervals	Objective function	Time horizon [sec]	CPU time
1	0.973108	133.713	57.2
2	0.973136	434.955	64.7
3	0.969566	115.837	118.0
4	0.973266	123.574	237.2
8	0.973015	96.191	357.8
10	0.973097	91.795	272.0

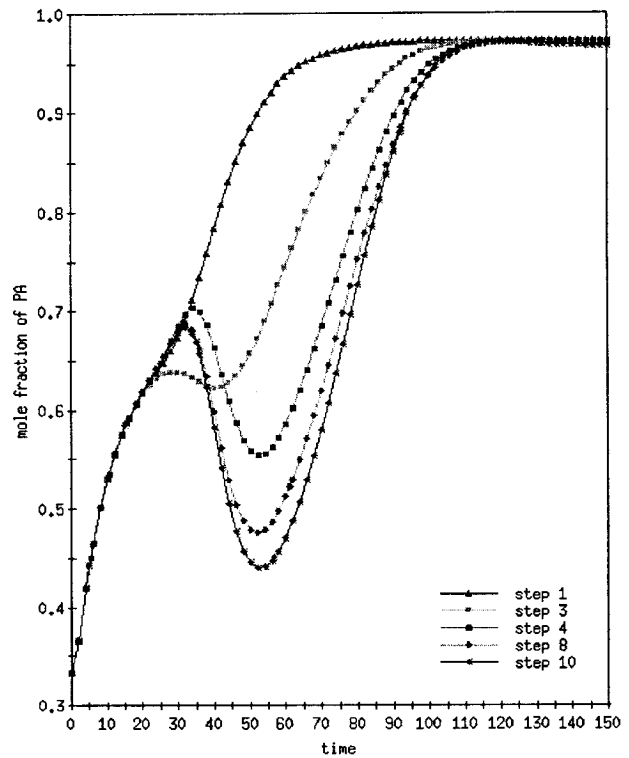


Fig. 4. Time transient mole fraction of PA with different optimal control strategies of oxygen.  
(x axis : time[sec], y axis : mole fraction of PA[-])

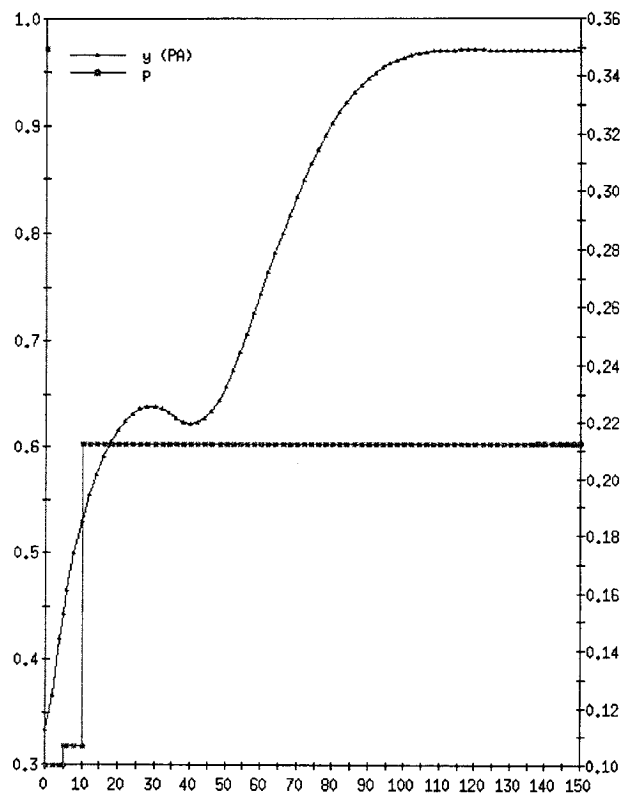


Fig. 5.3 step optimal control of O<sub>2</sub> inlet pressure and mole fraction profile of PA.  
(x axis : time[sec], y axis : y ; mole fraction of PA[-], P ; inlet pressure[bar])

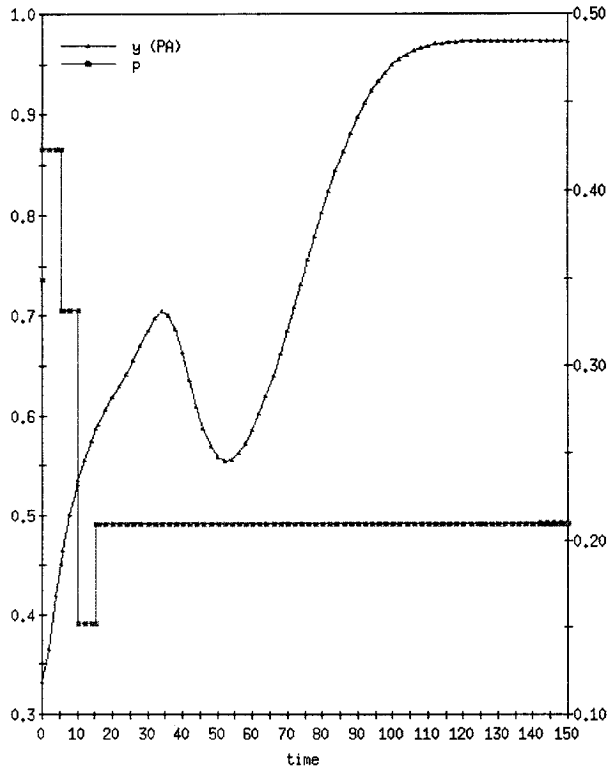


Fig. 6. 4 step optimal control of O<sub>2</sub> inlet pressure and mole fraction profile of PA.  
(x axis: time[sec], y axis: y; mole fraction of PA[-], P; inlet pressure[bar])

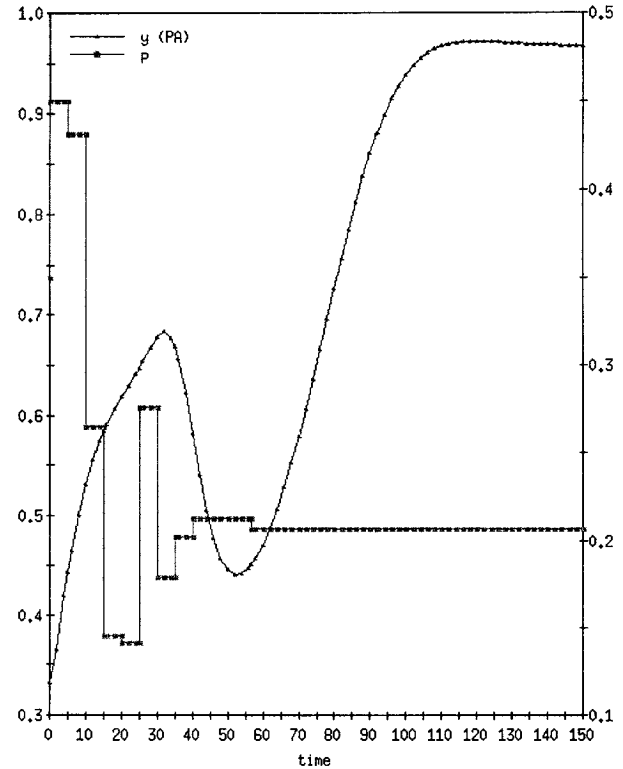


Fig. 8. 10 step optimal control of O<sub>2</sub> inlet pressure and mole fraction profile of PA.  
(x axis: time[sec], y axis: y; mole fraction of PA[-], P; inlet pressure[bar])

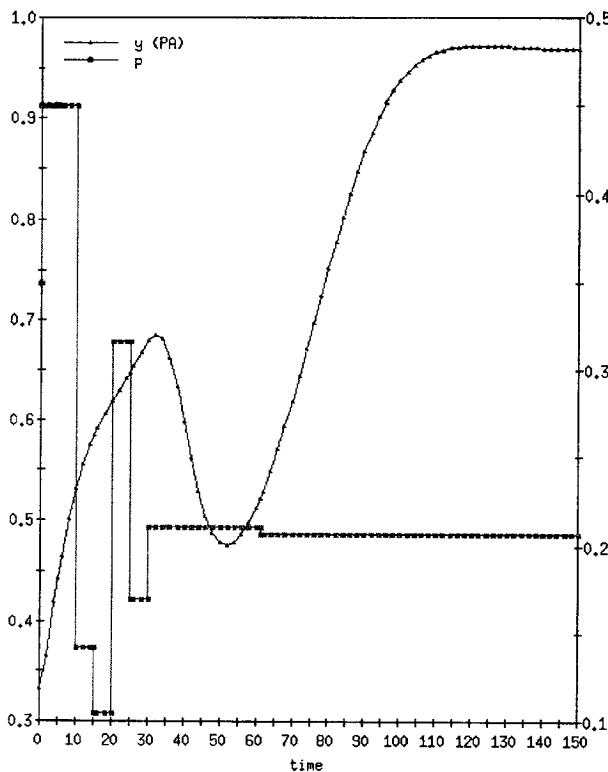


Fig. 7. 8 step optimal control of O<sub>2</sub> inlet pressure and mole fraction profile of PA.  
(x axis: time[sec], y axis: y; mole fraction of PA[-], P; inlet pressure[bar])

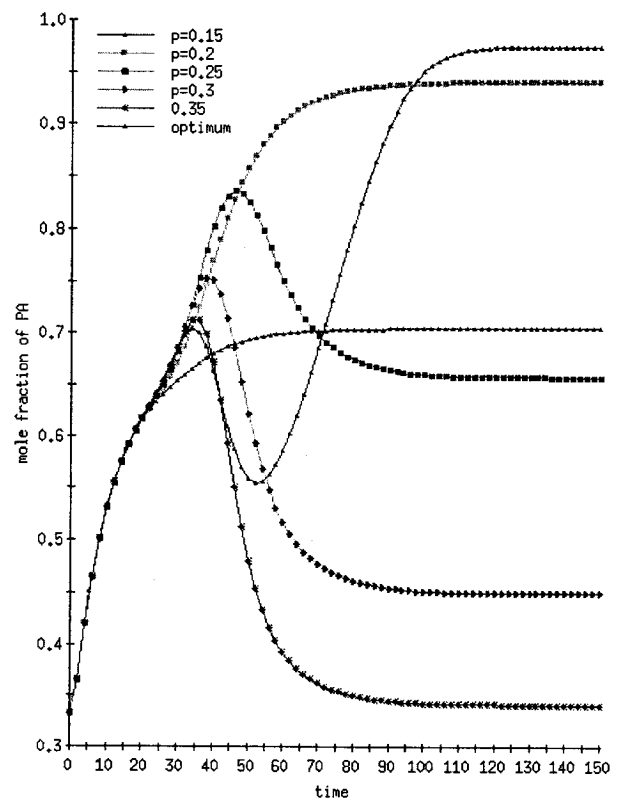


Fig. 9. Time transient mole fraction of PA with different O<sub>2</sub> inlet pressure.  
(x axis: time[sec] y axis: P; inlet pressure[bar])

Table 4. Values of the objective function of PA at steady state

Inlet pressure of oxygen	Mole fraction of PA
0.15	0.740422
0.20	0.938626
0.25	0.657419
0.30	0.449388
0.35	0.341357
<b>optimum</b>	<b>0.973266</b>

여러 다른 제어전략 하에서 시간에 따른 PA 물분율의 변화를 Fig. 4에 나타내었다. 부분 시간영역의 수가 증가함에 따라 정상상태에 이르기 전까지의 시간에 따른 PA의 물분율 profile이 크게 진동하며 정상상태에 이르게 되면 거의 일정한 값을 갖는다. 이는 구간의 수가 증가함에 따라 제어변수의 제어 또한 복잡해지며 각 구간에서의 비연속적인 제어변수의 잦은 변화가 전체 시스템의 안정성에 영향을 미친 것으로 해석할 수 있다. Fig. 5-8에서는 제어변수와 물분율의 시간에 따른 변화를 보여준다. 예를 들어 Fig. 4에서 산소의 유입 압력이  $t=10$  sec에서 0.71 bar로부터 0.38 bar로 급격히 감소하며  $t=15$  sec에서 0.49 bar로 증가한다. 이와 같이 유입압력의 잦은 변화는 가스의 속도에 의한 시간지연이 경과한 후, PA의 물분율 profile에 영향을 미친다.

계산된 여러 제어전략 중 4 step 전략이 목적함수를 최대화시키며 이에 이르는 시간 역시 비교적 적음으로, 이를 기준으로 하여 최적화 방법에 의거하지 않은 여러 다른 운전전략과 비교하였다. Fig. 9는 유입압력이 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.35 bar로 일정하게 제어되는 경우와, 동적최적화에 의해 구해진 4 step 운전전략의 경우를 비교하였다. 예상된 바와 같이 최적화 4 step 운전전략이 다른 경우에 비하여 목적함수인 PA의 물분율이 월등히 높음을 알 수 있다. 정상상태에 이르렀을 경우의 목적함수의 값을 Table 4에 나타내었다. 최적화에 의하지 않은 방법의 경우 중 유입압력이 0.20 bar일 때, 목적함수가 0.9386으로 가장 큰 값을 나타냈고 0.35 bar일 때 0.3414로 가장 적은 값을 나타내었다. 최적제어 전략의 경우 목적함수가 0.9732인 것을 고려할 때, 최적화의 경우가 약 3.6-23% 가량 성능이 향상되는 것을 알 수 있다. 이와 같이 동적최적화에 의한 최적제어 전략의 수립은 엔지니어의 경험이나 여러 조건에 의한 경우에 비하여 대량공정의 성능을 월등히 향상시키며 이에 대한 적극적 응용이 매우 중요함을 알 수 있다.

## 5. 결 론

o-xylene의 산화반응을 통하여 PA를 생산하는 관형 촉매반응기 시스템에 대한 수학적 모델링과 이를 바탕으로 한 동적최적화를 수행하였다. 관형 촉매반응기는 분산매개공정으로 수학적 모델은 축 방향과 반경방향의 2차원공간과 시간에 의존하는 PDAEs로 표현된다. 냉각탱크의 경우, 반응열 제거를 위해 반응기와의 열 전달현상과 냉매의 입출력으로 인한 동 특성으로 수학적 모델이 IDAEs로 나타난다. 총괄적으로 촉매반응기와 냉각탱크로 이루어진 반응기 시스템의 수학적 모델식은 IPDAEs로 현재까지 알려진 동적최적화 수치해법으로 이를 직접 다루는 것이 매우 힘들다. 따라서 본 연구에서는 공간좌표에 대한 이산화화를 통하여 IPDAEs를 DAEs로 바꾸는 MOL을 사용하였으며, 이때에 OCFEM 방법이 사용되었다. 바뀌어진 DAEs는 시간영역에 대해 무한차원으로 표시되는 제어변수를 포함하게 되는데, 이는 CVP 방법을 통하여 간단한 다항식으로 표현되며 결론적으로 유한차원의 NLP문제로 환원된다. 공간이산화와 CVP 방법을 사용하여 최종적으로 나타난 동적최적화 문제는 NLP를 푸는 외부 loop와 시간에 대한 적분을 수행하는 내부 loop의 계산과정을 통

하여 수치적 해를 구할 수 있다.

이 같은 방법에 의해 여러 제어전략에 대하여 동적최적화를 수행하고 그 결과를 비교하였다. 종료시간에서 목적함수는 전체 시간영역을 4단계로 나눈 경우에 최대치를 얻을 수 있었으며 다른 여러 제어전략과 비교하였다. 비교결과 동적최적화에 의한 제어전략이 공정의 성능을 약 3.6-23% 가량 향상시킴을 알 수 있었다. 이와 같은 연구 결과로부터 화학공정에 대한 동적최적화기법의 적용은 운전성능을 크게 향상시키며, 따라서 이에 대한 적극적인 연구와 여타 공정에 대한 추가적인 적용이 바람직하다고 사료된다. 이에 더하여 반응기의 길이, 지름, 냉각기의 용량과 같은 설계변수를 최적의 제어변수와 함께 구하는 문제는 본 연구에 나타난 최적화문제에 약간의 변형을 가하여 해결될 수 있으며 이에 대한 연구를 계속 진행할 예정이다.

## 사용기호

- A : area of the tube in contact with the cooling medium
- $c_i$  : molar concentration of component i
- $c_{i0}$  : inlet molar concentration of component i
- $c_{pf}$  : fluid specific heat capacity
- $c_{pw}$  : specific heat capacity of cooling water
- $D_r$  : radial diffusivity
- $D_z$  : axial diffusivity
- $f_w$  : mass flow rate of coolant
- $h_w$  : wall heat transfer coefficient
- i : component i
- $k_r$  : radial thermal conductivity
- $k_z$  : axial thermal conductivity
- L : reactor length
- P : pressure
- R : reactor radius
- r : radial coordinate
- T : temperature of the reactor
- $T_{ci}$  : inlet temperature of coolant
- $T_{cw}$  : temperature of coolant in cooling jacket
- $T_w$  : wall temperature
- t : time coordinate
- $t_f$  : final time
- U : overall heat transfer coefficient
- $v_z$  : axial velocity
- z : axial coordinate

## 그리스 문자

- $\alpha$  : constant
- $\beta$  : constant
- $\Delta H$  : heat of reaction
- $\epsilon$  : voidage fraction
- $\rho_b$  : bulk density
- $\rho_f$  : fluid density
- $\gamma$  : rate of reaction
- $\nu_i$  : stoichiometric coefficient of component i

## 참고문헌

1. Edgar, T.F. and Himmelblau, D.M.: "Optimization of Chemical Processes", McGraw Hill(1988).

2. Anderson, B.D.O. and Moore, J.B.: "Optimal Control", Prentice-Hall International, New Jersey(1989).
3. Luus, R.: *Int. J. Control*, **51**(5), 995(1990).
4. Luus, R. and Rosen, O.: *Ind. Eng. Chem. Res.*, **30**(7), 1525(1991).
5. Cuthrell, J.E. and Biegler, L.T.: *AIChE J.*, **33**(8), 1257(1987).
6. Logsdon, J.S. and Biegler, L.T.: *Chem. Eng. Sci.*, **47**(4), 851(1992).
7. Vassiliadis, V.S., Pantelides, C.C. and Sargent, R.W.H.: *Ind. Eng. Chem. Res.*, **33**, 2111(1994).
8. Vassiliadis, V.S., Pantelides, C.C. and Sargent, R.W.H.: *Ind. Eng. Chem. Res.*, **33**, 2123(1994).
9. Ames, W.F.: "Numerical Methods for Partial Differential Equations", Academic Press, New York(1992).
10. Finlayson, B.A.: "Nonlinear Analysis in Chemical Engineering", McGraw-Hill, New York(1980).
11. Logsdon, J.S. and Biegler, L.T.: *Ind. Eng. Chem. Res.*, **32**, 692(1993).
12. Fletcher, R.: "Practical Methods of Optimization", John Wiley & Sons(1991).
13. Luenberger, D.G.: "Introduction to Dynamic Systems", Wiley(1979).
14. Oh, M., Jang, E.J. and Moon, J.K.: *HWAHAK KONGHAK*, **36**, 109(1998).
15. Carver, M.B. and Hinds, H.W.: *Simulation*, **August**, 59(1978).
16. Schiesser, W.E.: "The Numerical Method of Lines", Academic Press, New York(1993).
17. Zienkiewicz, O.C. and Morgan, K.: "Finite Elements and Approximation", John Wiley & Sons, New York(1983).
18. Finlayson, B.A.: *Chem. Engng. Sci.*, **26**, 1081(1971).
19. Ferguson, N.B. and Finlayson, B.A.: *Chem. Engng. J.*, **1**, 327(1970).
20. Oh, M.: Ph.D. Dissertation, Imperial College, UK(1995).
21. Froment, G.F. and Bischoff, K.B.: "Chemical Reactor Analysis and Design", John Wiley & Sons, New York(1990).
22. Chen, C.L. and Macchieto, S.: Technical Report, Centre for Process Systems Engineering, Imperial College, London(1989).
23. Jarvis, R.B. and Pantelides, C.C.: Technical Report, Centre for Process Systems Engineering, Imperial College, London(1992).