

Denbigh 反應系 最適化 問題의 Discrete Maximum Principle 에 依한 再考*

南宮寔** · 孫炳鎮** · 權英秀**

Reconsideration of Denbigh's Problem by Means of Discrete Maximum Principle

Shik Namkoong*, Byung Jin Son*, Young Soo Kwon*

*Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Han Yang Univ.

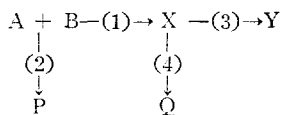
The problem of an optimum temperature sequence in stirred tank reactors was proposed by Denbigh and then discussed from the dynamic programming point of view by Aris, is here reconsidered by means of the discrete maximum principle.

The general method is given to deal with Denbigh's problems for any numerical examples by means of this principles. For the same numerical example as Aris', the solutions, not only for the case without the physical restrictions imposed on temperature and holding times, but also for the case with them, are given for single reactor, two reactor and three reactor system, and compared with Aris' solutions. The solutions are solved analytically for single reactor and two reactor system.

The comment on Aris' paper for the policies under the restrictions is given.

I. 序 言

Denbigh 는 最適化에 依하여 그 收率이 현저하게 增加하는 아래와 같은 反應系를 생각하였다.



그는 여기서 A를 매우 값비싼 原料, B를 값싼 原料, Y를 원하는 製品, X를 反應中間生成物, P와 Q를 원하지 않는 生成物이라고 各各 생각하였다. 그러므로 P, Q의 生成을 될 수 있는 대로 막아서 Y의 收率을 最大로 하는 것이 要求된다. 이렇게 하기 위하여는 i번째 反應의 活性化 energy를 E_i 라 할 때, $E_1 > E_2$,

$E_3 > E_4$ 이던 될 수 있는 한 反應溫度를 高溫으로 取하여야 하며, $E_1 < E_2$, $E_3 < E_4$ 이던 될 수 있는 한 低溫으로 取하여야 하며, $E_1 > E_2$, $E_3 < E_4$ 이던 反應初에는 高溫에서 始作하여, 反應이 進行함에 따라 점점 溫度를 낮추어야 하며, $E_1 < E_2$, $E_3 > E_4$ 이던 反應初에는 低溫에서 始作하여 反應이 進行함에 따라 점점 溫度를 높여야 한다. 그러므로 위의 4가지 경우에서 처음의 두경우는 最適化問題로서 興味없으며 興味있는것은 그나머지 경우이다. Denbigh는 各反應速度를 A, X에 對한 一次非可逆反應이라 假定하고 完全混合 攪拌槽型反應器에서 이 反應을 行할때 完全反應을 假定하여 單一反應器에서의 Y의 最大收率은 反應溫度 360°K에서의 25%인데 比해서 2段反應器에서는 第一段의 溫度를 280°K, 第二段의 溫度를 充分한 高溫으로 擇할때 Y의 最大收率が 58%로 增加함을 밝혔다. 그러나 Denbigh의 方法은 反應器溫度를 여러값으로 假定하여 直接計算하고

* 1966년 6월 14일 수리

** 漢陽大學校 化學工學科

比較하여 보는 것이었다. Aris 는 dynamic programming 을 사용하여 反應器段數가 1 段, 2 段, 3 段인 경우 反應器溫도와 滯留時間에의 속박條件이 있을 때와 없을 때에 대하여 이계의 最適條件과 Y 의 最大收率을 求하였다.

本論에서는 Pontrijagin 의 discrete maximum principle 을 사용하여 이러한 問題를 取及하는 一般的方法을 주었고 Aris 와 같은 數值例에 對하여 풀어서 Aris 의 結果와 比較하였다.

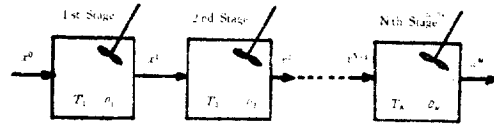


Fig. 1 Continuous stirred-tank reactors.

II. 系의 數學的 記述

物質 A, X, Y 의 濃度를 a, x, y 로, 滯留時間을 θ 로, 絕對溫도를 T 로 各各 表示하고 suffix n 으로 第 n 段에서의 값을 表示하기로 하면 Fig. 1 과 같은 連續攪拌槽形 反應器에서의 第 n 段의 物質收支는 아래와 같다.

$$\left. \begin{aligned} a_{n-1} &= a_n + \theta_n (k_{1n} + k_{2n}) a_n \\ x_{n-1} &= x_n - \theta_n k_{1n} a_n + \theta_n (k_{3n} + k_{4n}) x_n \\ y_{n-1} &= y_n - \theta_n k_{3n} x_n \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

$$n=1, 2, \dots, N$$

여기서 $k_{in} = k_i(T_n)$ 은 第 n 段反應器速度에서의 i 번 次 反應의 反應速度定數이다.

Denbigh 와 같이 反應速度定數比를 使用하여 變數의 數를 줄이기 위해

$$\gamma_n = \frac{k_{2n}}{k_{1n}}, \quad S_n = \theta_n k_{1n} \quad (2)$$

로써 새 操作變數 γ_n, S_n 을 定하였다. γ_n 은 T_n 만의 一價函數이므로 各反應器溫度役割을, S_n 은 T_n 와 θ_n 의 函數이나 T_n 이 定해지면 滯留時間 役割을 할수 있

$$\left. \begin{aligned} X_1^n &= \frac{1}{1+S_n(1+\gamma_n)} X_1^{n-1} \\ X_2^n &= \frac{\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \xi^{n-1} + S_n}{\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \{1+S_n \cdot p_3 \gamma_n^{q_3} (1+p_4 \gamma_n^{q_4})\}} X_1^{n-1} \\ X_3^n &= X_3^{n-1} + \frac{S_n \cdot p_3 \gamma_n^{q_3} [\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \xi^{n-1} + S_n]}{\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \{1+S_n \cdot p_3 \gamma_n^{q_3} (1+p_4 \gamma_n^{q_4})\}} X_1^{n-1} \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

$$(n=1, 2, 3, \dots, N)$$

여기서 ξ^n 은 $\xi^n = X_2^n / X_1^n = x_n / a_n$ 이며, (6)의 初期條件은 $y_0=0$ 로 生覺하여 아래와 같다.

$$X_1^0=1, \quad X_2^0=\xi^0=x_0/a_0, \quad X_3^0=0 \quad (7)$$

末段의 y_n 을 最大로 하려 하므로 目的函數는 X_3^N 이다. 卽 (6), (7)의 關係가 最大의 X_3^N 을 주도록 各段에 對한 γ_n 와 S_n 을 定하려는 것이다. 이후부터는 이러한 γ_n, S_n 을 그 段에 對한 最適條件이라 하겠다. 最適條件이 求해지면 最適反應器溫도와 最適滯留時間

으므로 γ_n, S_n 을 새로운 溫度變數, 滯留時間變數로 各各 生覺하였다.

k_{in} 에 對해서 Arrhenius' law

$$k_{in} = k_i^* \exp(-E_i/RT_n) \quad (3)$$

이 成立한다고 하면, 다른 速度比 $\gamma_{3n} = \frac{k_{3n}}{k_{1n}}, \gamma_{4n} = \frac{k_{4n}}{k_{3n}}$ 는 $\gamma_{in} = P_i \gamma_n^{q_i}$ 의 形態로 表示되며 여기서 P_i, q_i 는 아래와 같이 주어지는 常數이다.

$$\left. \begin{aligned} q_3 &= (E_3 - E_1)/(E_2 - E_1) \\ p_3 &= \frac{k_2^*}{k_1^*} \left(\frac{k_2^*}{k_1^*} \right)^{-q_3} \\ q_4 &= (E_4 - E_3)/(E_2 - E_1), \quad p_4 = \frac{k_4^*}{k_3^*} \left(\frac{k_2^*}{k_1^*} \right)^{-q_4} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

또 第 n 段에서의 各 物質의 濃度를 無次元濃度

$$X_1^n = \frac{a_n}{a_0}, \quad X_2^n = \frac{x_n}{a_0}, \quad X_3^n = \frac{y_n}{a_0} \quad (5)$$

로 表示하였다.

(1)을 (2)~(5)에 依해 整理하면 아래와 같다.

은 다음에 依하여 求하여진다.

$$\left. \begin{aligned} T_n &= (E_2 - E_1) / R \ln(k_2^* / \gamma_n k_1^*) \\ \theta_n &= S_n (\gamma_n^{-E_1 k_1^* - E_2 k_2^* E_2})^{1/(E_2 - E_1)} \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

III. Discrete Maximum Principle

Discrete maximum principle 에 의하면

$$X_i^n = F_i(X^{n-1}, \gamma_n, S_n) \quad (i=1, 2, 3, \dots, n=1, 2, \dots)$$

.....N)

로 記述되는 系에서 末段의 狀態變數의 하나인 X_3^N 을 最大로 하기 爲하여는 各段에 對해 Hamiltonian

$$H^n = \sum_{i=1}^3 Z_i^n \cdot F_i \cdot (X^{n-1}, \gamma_n, S_n) \quad n=1, 2, \dots, N \quad (9)$$

을 단들어 이 各段의 H^n 이 最大가 되도록 γ_n, S_n 을

定하면 된다. 여기서 Z_i^n 은 아래와 같다.

$$\left. \begin{aligned} Z_i^{n-1} &= \frac{\partial H^n}{\partial X_i^{n-1}} \\ Z_i^N &= \delta_i^i \\ i &= 1, 2, 3 \quad n=1, 2, \dots, N \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

따라서 目的函數가 X_3^N 임을 考慮하고 (10), (11)에 (6)을 代入하고 整理하면 아래와 같이 된다.

$$H_n = X_3^{n-1} + X_1^{n-1} \left[\frac{Z_1^n}{1+S_n(1+\gamma_n)} + \frac{(Z_2^n + S_n p_3 \gamma_n^{q_3}) [\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \xi^{n-1} + S_n]}{\{1+S_n p_3 \gamma_n^{q_3} (1+P_4 \gamma_n^{q_4})\} \{1+S_n(1-\gamma_n)\}} \right] \quad (12)$$

$$\left. \begin{aligned} Z_1^{n-1} &= \frac{\partial H^n}{\partial X_1^{n-1}} = \frac{Z_1^n}{1+S_n(1+\gamma_n)} + \frac{(Z_2^n + S_n p_3 \gamma_n^{q_3}) [\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \xi^{n-1} + S_n]}{\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \{1+S_n p_3 \gamma_n^{q_3} (1+P_4 \gamma_n^{q_4})\}} \\ Z_2^{n-1} &= \frac{\partial H^n}{\partial X_2^{n-1}} = \frac{Z_2^n + S_n p_3 \gamma_n^{q_3}}{1+S_n p_3 \gamma_n^{q_3} (1+P_4 \gamma_n^{q_4})} \\ Z_3^{n-1} &= 1 \\ Z_1^N &= 0, \quad Z_2^N = 0, \quad Z_3^N = 1 \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

또한 $H^N = X_3^N$ 이므로 H^N 을 目的函數로 生覺할 수 있다. 그러므로 (6), (13)에 依하여 求해지는 X_i^{n-1} , Z_i^n 에 對하여 (12)의 H^n 이 最大가 되도록 γ_n, S_n 을 求하면 이것이 最適條件이다. 그러나 各段의 γ_n, S_n 이 定하여 지지않는限 X_i^{n-1} , Z_i^{n-1} 이 定하여 지지않으므로 이 問題는 주어진 X_i^{n-1} , Z_i^n 下에서 (12)의 H^n 이 最大가 되도록 γ_n, S_n 을 定하는것이 아니라 (6), (12), (13)의 7N個의 聯立方程式을 滿足시키며 H^n 을 各各 最大로하는 γ_n, S_n 을 求하는 問題이다. 그러나 問題는 다음과 같은 逐次近似法을 用하면 Digital Computer 에 依해 比較의 쉽게 풀수있다.

(1) 各段에 對한 γ_n, S_n 을 假定한다.

(2) 이 假定值를 (6), (13)에 代入하여 X^{n-1} 과 Z^n 을 求한다.

(3) 求해진 X^{n-1} , Z^n 下에서 H^n 이 最大가 되도록 γ_n, S_n 을 求한다.

(4) 이렇게 求한 γ_n, S_n 을 다시 假定值로 使用해서 (1)~(3)의 過程을 假定值和 結果值가 同一하게 될때 까지 反復한다.

Discrete maximum principle 을 使用하고 위와 같은 方法으로 計算하는 것은 一般的으로 dynamic programming 보다 計算時間과 勞力을 덜 들게 하고 dynamic programming 의 큰 缺點인 interpolation 에 依한 誤差를 避할수 있음으로 널리 使用되는 方法이다. 그러나 本論에서는 第N段과 第N-1段의 最適條件은 解析的으로 求하고 第N-2段에 對해서 위의 方法을 解用하였다. 計算은 slide rule 과 tiger counter 로 하였다.

IV. Aris 의 數值例에 對한 풀이

(6), (12), (13)에 Aris 의 數值 $p_3=10^{-2}$, $p_4=1$, $q_3=0$, $q_4=-1$ 을 各各 代入하여 다음式을 얻었다.

$$\left. \begin{aligned} X_1^n &= \frac{1}{1+S_n(1+\gamma_n)} X_1^{n-1} \\ X_2^n &= \frac{100\gamma_n(\xi^{n-1}+S_n)}{\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \{100\gamma_n+S_n(1+\gamma_n)\}} X_1^{n-1} \\ X_3^n &= X_3^{n-1} + \frac{\gamma_n S_n(\xi^{n-1}+S_n)}{\{(1+S_n(1+\gamma_n)\} \{100\gamma_n+S_n(1+\gamma_n)\}} X_1^{n-1} \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

$$\left. \begin{aligned} Z_1^{n-1} &= \frac{Z_1^n}{1+S_n(1+\gamma_n)} + \frac{S_n \gamma_n (100Z_2^n + S_n)}{\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \{100\gamma_n+S_n(1+\gamma_n)\}} \\ Z_2^{n-1} &= \frac{\gamma_n (100Z_2^n + S_n)}{100\gamma_n + S_n(1+\gamma_n)} \\ Z_3^{n-1} &= Z_3^n = Z_3^N = 1, \quad Z_1^N = 0, \quad Z_2^N = 0 \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

$$H^n = X_3^{n-1} + X_1^{n-1} \left[\frac{Z_1^n}{1+S_n(1+\gamma_n)} + \frac{\gamma_n (100Z_2^n + S_n) [\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \xi^{n-1} + S_n]}{\{1+S_n(1+\gamma_n)\} \{100\gamma_n+S_n(1+\gamma_n)\}} \right] \quad (16)$$

操作變數, γ_n, S_n 의 變域에의 制限 卽 不等號 束縛條件이 없을 경우나 있어도 γ_n, S_n 의 最適值가 그들의 變域內에 存在할 경우에는 γ_n, S_n 의 最適值는 H^n 을 極大로 하여야 하기 때문에 다음의 두 式을 滿足시

킨다.

$$\frac{\partial H^n}{\partial \gamma_n} = 0 \text{ 을 整理한}$$

$$\xi^{n-1} = \frac{S_n(100Z_2^n + S_n)\{(100 + S_n)\gamma_n^2 - (1 + S_n)\} + Z_1^n\{100\gamma_n - S_n(1 + \gamma_n)\}^2}{(100Z_2^n + S_n)\{1 + S_n(1 + \gamma_n)\}^2} \quad (17)$$

$\frac{\partial H}{\partial S_n} = 0$ 를 整理한

$$\xi^{n-1} = \frac{\gamma_n(100Z_2^n + S_n)\{100\gamma_n - (1 + \gamma_n)^2 S_n^2\} + \gamma_n S_n\{1 + S_n(1 + \gamma_n)\}\{100\gamma_n + S_n(1 + \gamma_n)\}}{100\gamma_n\{(1 + \gamma_n)Z_2^n - \gamma_n\}\{1 + S_n(1 + \gamma_n)\}^2} - \frac{(1 + \gamma_n)\{100\gamma_n + S_n(1 + \gamma_n)\}^2 Z_1^n}{100\gamma_n\{(1 + \gamma_n)Z_2^n - \gamma_n\}\{1 + S_n(1 + \gamma_n)\}^2} \quad (18)$$

그러므로 (17), (18)을 주어진 ξ^{n-1} , Z_1^n , Z_2^n 에 대해 聯立으로 풀므로서 γ_n , S_n 의 最適値를 求할 수 있다.

1. 第 N 段의 最適條件

末段($n=N$)에 對하여는 $Z_1^N = Z_2^N = 0$ 이므로 (16), (17), (18)은 아래와 같이 된다.

$$H^{n-1} = X_3^{n-1} + X_1^{n-1} - \frac{\gamma_n S_n\{1 + S_n(1 + \gamma_n)\}\xi^{n-1} + S_n}{\{1 + S_n(1 + \gamma_n)\}\{100\gamma_n + S_n(1 + \gamma_n)\}} \quad (19)$$

$\frac{\partial H^N}{\partial \gamma_N} = 0$ 에서

$$\xi^{N-1} = S_N \frac{(100 + S_N)\gamma_N^2 - (1 + S_N)}{\{1 + S_N(1 + \gamma_N)\}^2} \quad (20)$$

$\frac{\partial H^N}{\partial S_N} = 0$ 에서

$$\xi^{N-1} = -S_N \frac{200\gamma_N + (100\gamma_N + 1)(1 + \gamma_N)S_N}{100\gamma_N + \{1 + S_N(1 + \gamma_N)\}^2} \quad (21)$$

그러나 ξ^{N-1} , γ_N , S_N 은 모두 陽數이므로 (21)은 成立될 수 없다. 그 理由는 $\frac{\partial H^N}{\partial S_N}$ 이 恒常 $-\frac{\partial H^N}{\partial S_N} > 0$ 인 事實에 있다. 卽 H^N 은 S_N 의 單調增加函數이다. 그러므로 S_N 의 最適値는 $S_N = \infty$ 로써 이것은 完全反應을 뜻한다. Fig. 2에 여러 ξ^{N-1} 의 값에 對한 (20)의 曲

線群을 表示하였다. 이 그림에서 알수 있듯이 $\xi^{N-1} < 1$ 인 ξ^{N-1} 에 對한 曲線은 垂直한 漸近線 $\gamma_N = \frac{1 + \xi^{N-1}}{1 - \xi^{N-1}}$ 을, $\xi^{N-1} > 1$ 인 ξ^{N-1} 에 對한 曲線은 水平한 漸近線을 갖는다. 以上の 結果로서 末段의 最適條件은 아래와 같다.

$S_N = \infty$

$$\left. \begin{aligned} \xi^{N-1} \leq 1 \text{ 일때, } \gamma_N &= \frac{1 + \xi^{N-1}}{1 - \xi^{N-1}}, \quad H^N = X_3^{N-1} + X_1^{N-1} \cdot \frac{1}{4}(1 + \xi^{N-1})^2 \\ \xi^{N-1} > 1 \text{ 일때, } \gamma_N &= \infty, \quad H^N = X_3^{N-1} + X_1^{N-1} \cdot \xi^{N-1} \end{aligned} \right\} \quad (22)$$

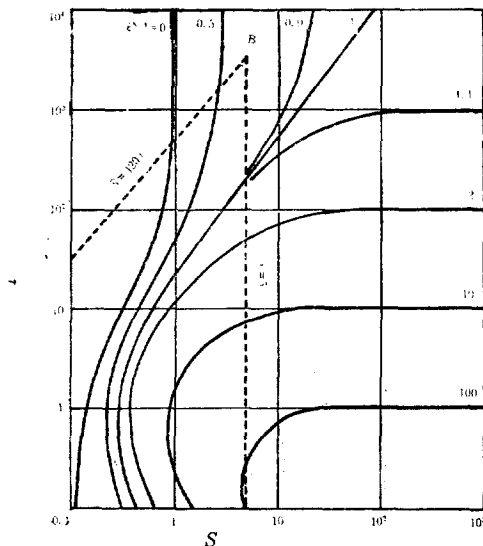


Fig. 2 Locus of $\frac{\partial H^N}{\partial \gamma_N} = 0$

Fig. 3에 ξ^{N-1} 에 對해서 γ_N 의 最適値를 表示하였다. 그러나 實際로 γ_N 은 無限大 일수는 없으며 $T_n \rightarrow$

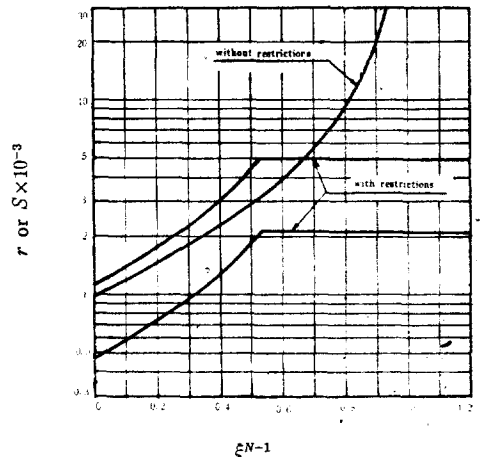


Fig. 3 Optimal Policy of Nth Stage

∞ 일때 그의 極限值는 k_2^*/k_1^* 이나, Denbigh 例에서와 같이 이 값이 매우 큰것으로 生覺하였다. k_2^*/k_1^* 의 값이 先分히 크지 않을 경우는 $\gamma_n < k_2^*/k_1^*$ 인 束縛條件이 있는 경우에 該當한다.

2. 束縛條件이 있는 경우

操作變數 T_n, θ_n 에 $T_* \leq T_n \leq T^*, \theta_n \leq \theta^*$ 인 束縛條件이 주어지던 저 操作變數 γ_n, S_n 에 對하여는 아래와 같은 束縛條件이 주어지게 된다.

$$\begin{aligned} \gamma_* &\leq \gamma_n \leq \gamma^* \\ S_n &\leq \theta^* k_{1n} = S^* \gamma_n q \end{aligned} \quad (23)$$

$$\text{여기서 } \gamma_* = \gamma(T_*), \gamma^* = \gamma(T^*), q = \frac{E_2}{E_2 - E_1}$$

$$S^* = \theta^* \{k_1^* E_2 k_2^* - E_1\}^{1/(E_2 - E_1)} \text{이다.}$$

Fig. 2 와 같은 γ_n, S_n 平面을 生覺할때 H^n 의 極大點이 束縛條件 (23)의 許用範圍內에 存在할 경우에는 $\frac{\partial H^n}{\partial \gamma_n} = 0, \frac{\partial H^n}{\partial S_n} = 0$ 을 聯立으로 풀이 最適條件을 다할 수 있으나 그렇지 않은 경우에는 最適點이 境界線上에 存在함으로 먼저 $\frac{\partial H^n}{\partial \gamma_n} = 0, \frac{\partial H^n}{\partial S_n} = 0$ 을 풀이 보아 이 解가 許用範圍內의 點이던 이것이 最適條件이고 그

$$\xi^{N-1} = \frac{S^* \gamma_N [S^{*2} \gamma_N (\gamma_N - 1) - S^* \{10(\gamma_N + 2) - 200\}]}{(S^* + 100) \{1 + S^* \gamma_N (1 + \gamma_N)\}^2}$$

$$S_N = S^* \gamma_N$$

$$\text{但 } S^* = 420, \gamma_N \leq \gamma^* = 5$$

그러나 (28)의 解일지라도 $\gamma_N > 5$ 일때는 이 解는 最適條件이 아니며 두 境界線의 交點(Fig. 2의 點 B)이 最適點이 되어 最適値는 $\gamma_N = 5, S_N = 2100$ 이다. Fig. 3 에 束縛條件下의 末段의 最適條件을 表示하였다. 이 그림에서 알 수 있듯이 $\xi^{N-1} > 0.534$ 인 ξ^{N-1} 에 對한 最適値는 一定하다. 實際로 反應器段數가 2 이상이던 $\xi^{N-1} > 1$ 이므로 末段의 最適條件은 feed composition 에 無關하게 束縛條件이 없을 때는, (22)에서 $\gamma_N = \infty, S_N = \infty$ 束縛條件이 있을 때는 $\gamma_N = 5, S_N = 2100$ 으로 一定하다. 따라서 (15)에서 Z_1^{N-1}, Z_2^{N-1} 도 feed composition 에 無關하게 一定하므로, 第 $N-1$ 段의 最適條件의 解析의 解法이 可能하다.

3. Aris의 論文에 對한 註

Aris 는 γ_n 을 反應器 溫度變數 $\alpha_n = \gamma_n (1 + S_n)$ 을 滯留時間變數로 取하여 dynamic programming method 로 이 問題를 다루었다. 그는 single reactor 에 代하여 目的函數 X_3^1 을 $\gamma_1 \alpha_1$ 으로 偏微分하여 아래의 式을 얻었다.

$$\frac{\partial X_3^1}{\partial \gamma_1} = 0 \text{에서}$$

렇지 않으면 Lagrange 未定係數法으로 境界線상의 最適條件을 求한다. Aris의 數値에 따라 $q = 1, S^* = 420, \gamma_* = 0, \gamma^* = 5$, 인 束縛條件을 生覺하였다. 따라서 束縛條件 (23)은

$$0 \leq \gamma_n \leq 5, S_n \leq 420 \gamma_n \quad (24)$$

이 되고 그의 境界線은 $\gamma_n = 5, S_n = 420 \gamma_n$ 이다. Fig. 2 에 이 境界線을 點線으로 表示하였다. 그러므로 H^n 의 極大點이 許用範圍內에 存在하지 않을 경우에는 Lagrange 未定係數法에 依해

境界線 $\gamma_n = 5$ 上에서는

$$H^n = H^n + \lambda(\gamma_n - 5) \quad (25)$$

境界線 $S_n = 420 \gamma_n$ 上에서는

$$H^n = H^n + \lambda(S_n - 420 \gamma_n) \quad (26)$$

로 定義된 各 境界線에 對한 H^n 에 關하여

$$\frac{\partial H^n}{\partial \gamma_n} = 0, \frac{\partial H^n}{\partial S_n} = 0, \frac{\partial H^n}{\partial \lambda} = 0 \quad (27)$$

을 풀이 그 解들을 比較하여 最適條件을 求하였다.

第 N 段의 束縛條件이 있을때의 最適條件은 (22)의 界에 依해 境界線上에 存在함이 分明하므로 (19)를 (25), (26)에 代入하고 (27)을 풀었으나 $\frac{\partial H^N}{\partial S^N} > 0$ 이므로 (25)의 解는 없고 (26)의 解는 아래와 같다.

$$\left. \begin{aligned} \xi^{N-1} &= \frac{S^* \gamma_N [S^{*2} \gamma_N (\gamma_N - 1) - S^* \{10(\gamma_N + 2) - 200\}]}{(S^* + 100) \{1 + S^* \gamma_N (1 + \gamma_N)\}^2} \\ S_N &= S^* \gamma_N \\ \text{但 } S^* &= 420, \gamma_N \leq \gamma^* = 5 \end{aligned} \right\} \quad (28)$$

$$\xi^0 = \frac{\alpha_1}{1 + \alpha_1} \cdot \frac{200 \gamma_1^2 - \alpha_1 (1 - \gamma_1)}{(\alpha_1 - 100 \gamma_1^2) (1 + \gamma_1)} \quad (29)$$

$$\frac{\partial X_3^1}{\partial \alpha_1} > 0 \quad (30)$$

(30)에 依하여 X_3^1 은 α_1 의 單調增加函數 이므로 α_1 의 最適値는 束縛條件이 없을때 $\alpha_1 = \infty$ 로 두어 (22)에 該當하는 같은 結果를 얻었다. Fig. 5 는 Aris 가 몇개의 ξ^0 값에 對한 (29)의 曲線과 束縛條件

$$\gamma_n < 5, \alpha_1 < 420 \gamma_1 (1 + \gamma_1) \quad (31)$$

의 境界線를 表示한 것을 引用한 것이다. 그는 束縛條件이 있을 경우에 對하여 다음과 같이 말하였다.

"Indeed since we know that α_1 should be made as large as possible the optimum conditions for given ξ^0 must lie at the intersection of curve corresponding to the given ξ^0 and the upper part of the boundary, ABC. As drawn here there is a value ξ_B^0 of ξ^0 for which the curve goes through the point B. For $\xi^0 \leq \xi_B^0$ the curves will intersect the arc AB, meaning that the restriction on holding time is the controlling one. For $\xi^0 \geq \xi_B^0$ the curves intersect on BC, where the temperature is the controlling rest-

riation."

그러나 $\xi^0=0$ 인 경우를 생각해 보자. 그리고 Fig. 4에
表示한 바와같이 目的函數 X_3^1 에 對한 몇개의 contour

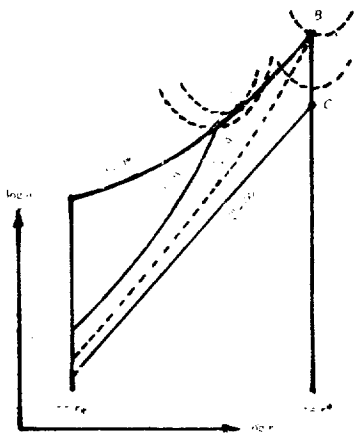


Fig. 4 Nature of the Restrictions on the Policy

$$H^{N-1} = X_3^{N-2} + X_1^{N-2} \frac{\gamma_{N-1}(100 + S_{N-1}) \{ (1 + S_{N-1}(1 + \gamma_{N-1})) \xi^{N-2} + S_{N-1} \}}{\{ 1 + S_{N-1}(1 + \gamma_{N-1}) \} \{ 100\gamma_{N-1} + S_{N-1}(1 + \gamma_{N-1}) \}} \quad (32)$$

$$\frac{\partial H^{N-1}}{\partial \gamma_{N-1}} = 0 \text{ 에서}$$

$$\xi^{N-2} = S_{N-1} \frac{(100 + S_{N-1})\gamma_{N-1}^2 - (1 + S_{N-1})}{\{ 1 + S_{N-1}(1 + \gamma_{N-1}) \}^2} \quad (33)$$

$$\frac{\partial H^{N-1}}{\partial S_{N-1}} = 0 \text{ 에서}$$

$$\xi^{N-2} = \frac{\gamma_{N-1}(100 + 2S_{N-1}) - 0.99S_{N-1}^2(1 + \gamma_{N-1})}{\{ 1 + S_{N-1}(1 + \gamma_{N-1}) \}^2} \quad (34)$$

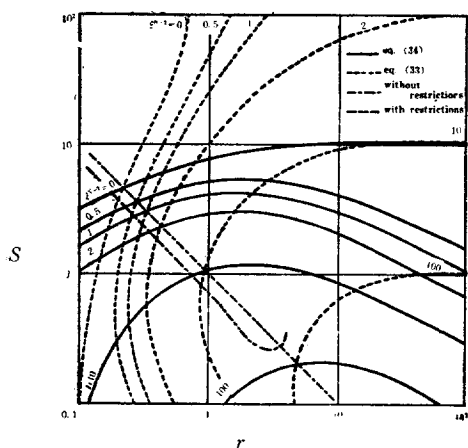


Fig. 5 Locus of $\frac{\partial H^{N-1}}{\partial \gamma_{N-1}} = 0$ and $\frac{\partial H^{N-1}}{\partial S_{N-1}} = 0$

를 그려보자. (29)의 曲線은 $\frac{\partial X_3^1}{\partial \gamma_1} = 0$ 의 軌跡이므로 이 曲線과 이 contour 와의 交點에서의 contour 의 slope 는 0 이므로 點 A 를 지나는 contour 는 境界線 AB 의 點 A 에서의 slope 가 0 ((31)에 依하여 零일 수 없다) 이 아닌 以上 境界線 AB 와 接할 수 없다. 따라서 더 큰 값의 X_3^1 을 取하는 다른 contour 가 境界線 AB 와 接하는 點 A' 가 存在할 것이며 이 點이 最適點일 것이다. 또한 $\xi^0 > \xi_B$ 인 ξ^0 값에 對한 X_3^1 의 Contour 를 그려보자. $\frac{\partial X_3^1}{\partial \alpha_1} > 0$ 이므로 이들 contour 는 境界線 BC 와 接하지 않으므로 曲線과 BC 와의 交點 보다는 點 B 가 항상 더 큰 X_3^1 값을 줄을 알수있다. 以上으로 보아 앞에 引用한 Aris 의 觀點은 틀린 것으로 생각한 다.

4. 第 $N-1$ 段의 最適條件

IV-2의 끝에서 말한바와 같이 反應器段數가 2 段 以上이던 第 N 段의 最適條件은 feed composition 에 無關하게 定하여져 束縛條件이 없을 때는 $\gamma_N = \infty$, $S_N = \infty$ 이므로 (15)에 依해 $Z_1^{N-1} = 0$, $Z_2^{N-1} = 1$ 이다. 따라서 (16), (17), (18)은 아래와 같이 된다.

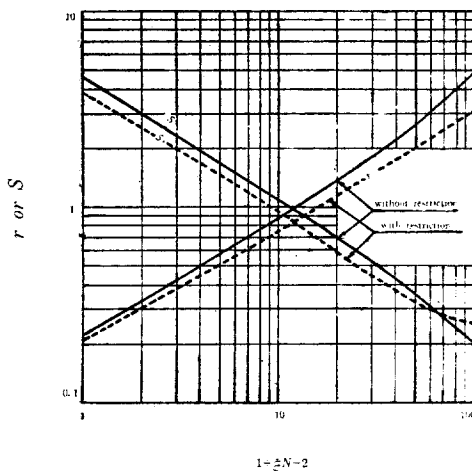


Fig. 6 Optimal Policy of $N-1$ th Stage

그러므로 第 $N-1$ 段의 最適條件은 (33), (34)의 聯立解이다. (33)은 (20)과 꼭 같은 形이므로 Fig. 2의 結果를 利用할 수 있다. Fig. 5에 몇개의 ξ^{N-2} 의 값에 對해 (33)의 曲線을 實線으로, (34)의 曲線을 點線으로 各各 表示하였고 이들의 交點의 軌跡도 表示하였다. Fig. 6은 이 軌跡을 ξ^{N-2} 에 對해서 γ_{N-1} 과 S_{N-1} 의 最適值를 表示한 것이다.

같은 方法으로 束縛條件이 있을 경우에는 $\gamma_N=5$, $S_N=2100$ 이므로 (15)에 依해서 $X_1^{N-1}=0.1335$, $Z_2^{N-2}=0.802$ 이다. 이값을 (17), (18)에 代入하여 表한 結果도 Fig. 5, Fig. 6에 같이 表示하였다.

5. 3段反應器의 경우

第 N 段의 最適條件은 一定하고 第 $N-1$ 段의 最適條件은 Fig. 6에 表示되었으므로 3段反應器에서 第一段의 最適條件만 求하면 다음 段들의 것은 곧 알 수 있다.

그러나 第2段의 最適條件이 먼저 定하여 지기 前에는 Z_1^1 , Z_2^1 을 알 수 없으므로 다음과 같은 逐次近似法을 使用하였다.

- (1) 第1段의 γ_1 , S_1 을 假定한다.
- (2) 이 假定值에 依해 (14)에서 $\xi^1 = \frac{X_2^1}{X_1^1}$ 을 計算한다.
- (3) Fig. 6에서 γ_2 , S_2 를 求한다.
- (4) (15)에서 Z_1^1 , Z_2^1 을 計算한다.
- (5) 이 Z_1^1 , Z_2^1 을 (17), (18)에 代入하여 이를 聯立으로 풀어 γ_1 , S_1 을 求한다.
- (6) 이렇게 求한 γ_1 , S_1 을 다시 假定值로 使用해서 (1)~(5)의 過程을 假定值와 結果值가 충분히 近似하게 될 때까지 反復하면 γ_1 , S_1 은 其의 最適值에 達한다.

이 方法은 收斂性이 좋아 2, 3회의 反復으로 滿足할 만한 結果를 얻을 수 있었다. Table 1은 $\xi^0=0$ 이며 束縛條件이 없는 경우의 計算例이며 3회의 反復으로 充分함을 보여준다.

Table 2는 $\xi^0=0$ 인 경우에 對하여 反應器段數가 1段, 2段, 3段인 때에 對한 計算結果이며 ()속의 數字는 Aris의 結果이다.

Table. 1 Calculation of first stage policy, $\xi^0=0$, $N=3$, without restrictions. First guessing $\gamma_1=0.2$ $S_1=2.0$

RUN NO.	γ_1	S_1	ξ^1	γ_2	S_2	Z_1^1	Z_2^1	H^3
1	0.2	2.0	1.787	0.4	2.5	0.524	0.943	0.660
2	0.148	1.68	1.49	0.38	2.6	0.530	0.936	0.665
3	0.144	1.62	1.43	0.38	2.6	0.530	0.936	0.666

Table 2. Optimal policies when $\xi^0=0$

	N	Temperatures(°K)			Holding Times			Yield (%)
		T_1	T_2	T_3	S_1	S_2	S_3	
without restrictions	1	326 (326)	—	—	∞ (∞)	—	—	25.0 (25.0)
	2	280 (280)	∞ (∞)	—	4.6 (4.0)	∞ (∞)	—	58.1 (57.4)
	3	270 (270)	295 (320)	∞ (∞)	1.62 (1.6)	2.64 (0.8)	∞ (∞)	66.6 (66.3)
with restrictions	1	330 (318)	—	—	470.4 (340)	—	—	22.3 (22.1)
	2	279 (276)	394 (394)	—	3.8 (2.82)	2100 (2100)	—	49.1 (45.1)
	3	270 (260)	292 (288)	394 (394)	1.67 (1.4)	2.27 (1.3)	2100 (2100)	54.9 (49.5)

이 表에서 滯留時間을 θ 로 表示하는 것은 k_1^* 의 값이 주어지지 않아 不可能하였다. 束縛條件이 있을 때의 3段反應器의 경우에 各 反應器의 滯留時間比는 $\theta_1:\theta_2:\theta_3=11.25:6.77:420$ 이다.

V. 結 語

Table 2의 計算結果가 Aris의 것과 多少 相異한 것은 dynamic programming의 interpolation에 依한 誤差로 인하여 Aris가 求한 最適值가 덜 正確한 것으로 생각되며 特히 束縛條件이 있는 경우에 差異가 더 심한 것은 이 경우에서의 其의 方法이 妥當한 方法이 아니기 때문인 것으로 생각한다.

本方法은 工業적으로 興味가 있는 3段 反應器에 對한 計算에 便利하다. 이 경우에 第3段의 最適條件은 feed composition에 無關하게 定해지며 第2段의 最適條件에 對한 Fig. 6에 該當하는 曲線만 求하면 第一段의 것은 간단한 逐次近似法에 依하여 곧 求하여진다. Fig. 6 外의 圖表는 만들 必要가 없다.

以上에서 分明하듯이 本方法은 dynamic programming보다 더 正確하고 쉽게 最適條件을 준다.

記 號

- a : concentration of A
- E_i : activation energy of i^{th} reaction
- H^n : the Hamiltonian function of n^{th} stage
- \bar{H}^n : function defined by eq (25) or (26)
- k_i : reaction rate of i^{th} reaction.
= $k_i^* \exp(-E_i/RT)$
- k_i^* : constant introduced in eq (3)
- n : number of stage (as suffix)

N : total number of stages, last stage (as suffix)
 p_i : constant defined by eq (4)
 q_i : constant defined by eq. (4)
 q : constant defined by eq. (23)
 R : gas constant
 γ : Operating variable taken for temperature

$$= \frac{k_2(T)}{k_1(T)}$$
 γ^* : upper bound on γ
 γ_* : lower bound on γ
 S : operating variable taken for holding time $= k_1 \theta$
 S^* : constant defined by eq (23)
 T : absolute temperature
 T^* : upper bound on temperature
 T_* : lower bound on temperature
 X^n : state variable, demensionless concentration defined by eq (5)
 x : concentration of X
 y : concentration of Y
 Z^n : variable introduced in the basic algorithm eq (10)(11)

$\alpha = S(1 + \gamma)$
 θ : holding time
 θ^* : upper bound on holding time

$$\xi^n = \frac{X_2^n}{X_1^n} = \frac{x_n}{a_n}$$

参 考 文 献

- (1) Denbigh, K.G. "Optimum temperature sequences in reactors." Chem. Eng. Sci. 8, 125-131. (1958)
- (2) Aris, R. "On Denbigh's optimum temperature sequences." Chem. Eng. Sci. 12, 56-64. (1960 a)
- (3) Aris, R. "The optimum design of chemical reactors." Academic Press. Newyork, London. (1961)
- (4) Katz, S. "A discrete version of Pontrijagin's maximum principle" (1962)
- (5) Fan, L. T. and Wan, C.G. "An application of the discrete maximum principle to a stagewise biochemical reacton system." Biotechnology and bioengineering. Vol. V, 201-209. (1963)