

비선형 예측제어 알고리즘을 이용한 회분식 중합 반응기의 온도제어

Temperature Control of a Batch Polymerization Reactor Using Nonlinear Predictive Control Algorithm

· 나 상 섭, 노 형 준, 이 현 구

서울대학교 화학공학과 (Tel : (02)880-7405; Fax: (02)888-7295; E-mail: hkrhee@plaza.snu.ac.kr)

Abstract Nonlinear unified predictive control(UPC) algorithm was applied to the temperature control of a batch polymerization reactor for polymethylmethacrylate(PMMA). Before the polymerization reaction is initiated, the parameters of the process model are determined by the recursive least squares(RLS) method. During the reaction, nonlinearities due to generation of heat of reaction and variation of heat transfer coefficients are predicted through the nonlinear model developed. These nonlinearities are added to the process output from the linear process model. And then, the predicted process output is used to calculate the control output sequence. The performance of nonlinear control algorithm was verified by simulation and compared with that of the linear unified predictive control algorithm. In the experiment of a batch PMMA polymerization, nonlinear unified predictive control was implemented to regulate the temperature of the reactor, and the validity of the nonlinear model was verified through the experimental results. The performance of the nonlinear controller turned out to be superior to that of the linear controller for tracking abrupt changes in setpoint.

Keywords Unified predictive control, PMMA, Batch polymerization experiment, Recursive least squares method, Nonlinear

1. 서론

원하는 고분자의 물성을 얻기 위해서는 중합반응기의 온도 제어가 필수적이다. 그러나 회분식 중합반응계의 경우 열전달 계수의 시간변이성 및 반응열의 발생으로 인한 비선형성이 존재하고 대부분의 화학공정에서와 같이 예측된 모델에 불확실성이 존재하여 모델에 근거한 제어기의 설계에 어려움이 따르게 된다.

예측제어기들 역시 모델에 근거한 제어기이기 때문에 공정 모델의 정확성에 제어성능이 많이 좌우되지만 최근에 이러한 문제점을 극복하기 위하여 많은 예측제어 알고리즘이 제안되어 왔다. 통합예측제어기(UPC)는 제안된 많은 제어알고리즘의 장점을 취하여 효과적인 제어를 할 수 있도록 설계되었다 (Soeterboek, 1992). 그러나 비선형공정에 대한 적용은 아직까지 활발하지 못한 실정이다.

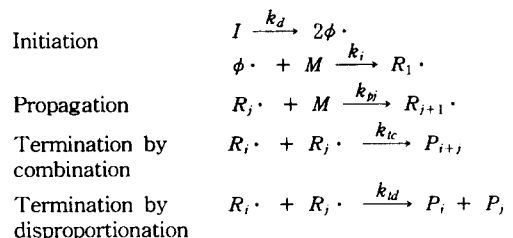
앞에서 언급한 바와 같이 회분식 중합반응계는 열전달계수의 시간변이성 및 반응열의 발생으로 인한 비선형성이 존재하여 효과적인 온도제어를 위해서는 비선형 통합예측제어기의 설계가 필요하다. 이를 위해서는 예측범위(prediction horizon)내에 존재하는 비선형적 효과를 고려하여야 하며 또한 정확한 비선형모델이 필요하게 된다. 중합 반응이 개시되기 전에는 반응열이 존재하지 않고 열전달계수의 시간변이성이 거의 발생하지 않는다. 따라서 공정을 선형모델로 생각할 수 있고 이 구간에서 재귀최소자승법(RLS)에 의하여 공정모델의 파라미터들을 계산하면 선형모델을 구할 수 있다. 반응이 개시되고 난 후에 선형모델로부터 예측된

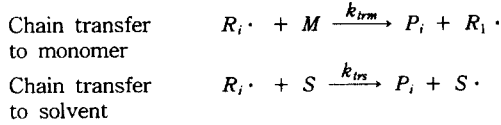
공정출력값에 비선형모델을 통하여 예측된 값을 더하면 비선형 공정의 출력값을 예측할 수 있게 되고 이 예측값은 통합예측 제어기에 전달되어 최적의 제어출력을 발생시키게 된다.

개발된 비선형 모델의 정확성과 통합예측제어기의 성능을 검증하기 위하여 수치모사를 수행하였으며, 회분식 PMMA 중합반응기에서 실험을 행하였다. 수치모사에서는 목표값의 계단변화에 대한 선형 통합예측제어기와 비선형 통합예측제어기의 목표값 추적 및 외란제거성능을 비교하였다. 실험에서는 개시제로서 benzoylperoxide(BPO)를 사용하였고 용매로는 ethylacetate(EA)를 사용하여 methylmethacrylate의 중합반응의 온도제어를 실행하였다.

2. 중합반응계

자유라디칼 PMMA 용액중합반응의 반응기구는 아래와 같다.





위에서 R_j 는 사슬길이가 j 인 활성고분자이고 P_j 는 비활성고분자이다.

반응기의 온도를 일정하게 제어하기 위하여 냉수와 온수의 유량을 제어밸브를 통하여 제어하며 밸브를 통과한 냉수와 온수는 관내에서 혼합되어 펌프에 의하여 자켓으로 공급된다. 반응기내의 교반에 의하여 발생하는 열은 무시되며 자켓입구와 출구 그리고 반응기안의 온도가 측정된다.

자켓의 온도를 입구와 출구온도의 산술평균으로 계산할 때 반응기와 자켓에 대한 에너지 수지식은 아래와 같다.

$$\begin{aligned} \frac{d(\rho C_p V_r T_r)}{dt} &= (-\Delta H_p) k_p M G_0 V_r - UA(T_r - T_j) \\ \frac{d(\rho_c C_{pc} V_j T_j)}{dt} &= 2\rho_c C_{pc} q_c (T_{j,in} - T_j) + UA(T_r - T_j) \\ &\quad - U_\infty A_\infty (T_j - T_\infty) \end{aligned} \quad (1)$$

위에서 ΔH_p 는 성장반응의 반응열이고 U 는 총괄 열전달 계수이며 A 는 열전달 면적을 나타낸다. 아래첨자 r, j, ∞ 는 각각 반응기와 자켓, 그리고 반응기 외부조건(대기)을 의미한다.

위의 반응기구로부터 중합반응에 관여하는 각 물질에 대한 물질수지식이 아래와 같이 유도된다.

$$\frac{1}{V} \frac{d(IV)}{dt} = -k_d I \quad (2)$$

$$\frac{1}{V} \frac{d(MV)}{dt} = -2fk_d I - k_p M G_0 - k_{irm} M G_0 \quad (3)$$

$$\frac{1}{V} \frac{d(SV)}{dt} = -k_{irs} S G_0 \quad (4)$$

$$\frac{1}{V} \frac{d(G_0 V)}{dt} = 2fk_d I - k_t G_0^2 \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{V} \frac{d(G_1 V)}{dt} &= 2fk_d I + k_p M G_0 - k_t G_0 G_1 \\ &\quad + k_{irm} M (G_0 - G_1) + k_{irs} S (G_0 - G_1) \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{V} \frac{d(G_2 V)}{dt} &= 2fk_d I + k_p M (G_0 + 2G_1) - k_t G_0 G_2 \\ &\quad + k_{irm} M (G_0 - G_2) + k_{irs} S (G_0 - G_2) \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{V} \frac{d(F_0 V)}{dt} &= \frac{I}{2} k_t G_0^2 + \frac{1}{2} k_{td} G_0^2 + k_{irm} M G_0 \\ &\quad + k_{irs} S G_0 \end{aligned} \quad (8)$$

$$\frac{1}{V} \frac{d(F_1 V)}{dt} = k_t G_0 G_1 + k_{irm} M G_1 - k_{irs} S G_1 \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{V} \frac{d(F_2 V)}{dt} &= k_{td} (G_0 G_2 + G_1^2) + k_{td} G_0 G_2 \\ &\quad + k_{irm} M G_2 + k_{irs} S G_2 \end{aligned} \quad (10)$$

여기서 I, M, S 는 각각 개시제, 단량체, 용매의 농도이다. 또한 G_k, F_k 는 활성고분자와 비활성고분자 농도의 k 번째 모멘트를 의미한다.

젤 효과는 자유라디칼 중합반응에서 단량체의 전환율이 높을 때 발생하는 중요한 현상인데, 본 연구에서는 Schmidt와 Ray(1981)가 제안한 gel and glass effect에 관한 관계식을 이용하여 온도제어에 적용하였다.

3. 제어기 설계

반응개시전의 선형공정모델에서 파라미터들은 재귀최소자승법에 의하여 계산된다.

반응개시후 나타나는 비선형효과는 모델에 의해서 예측되며 앞에서 구한 선형모델로부터의 예측값과 더해져 비선형공정의 출력예측값을 계산할 수 있다. Fig. 1.은 제어시스템의 구조를 나타내는 블록선도이다.

본 연구에서 사용된 공정모델은 아래와 같이 표현된다.

$$y(k) = \frac{q^{-d} B(q^{-1})}{A(q^{-1})} u(k-1) + \xi(k) \quad (11)$$

q^{-1} 은 backward shift operator이고 d 는 공정의 시간지연을 나타낸다. 그리고 다항식 A 와 B 의 차수는 각각 2차와 1차이다. 식(11)의 오른쪽 마지막 항은 비선형모델에서 계산되는 값과 외란의 합으로서 표현된다.

$$\xi(k) = \xi^{nl}(k) + \xi^{ext}(k) \quad (12)$$

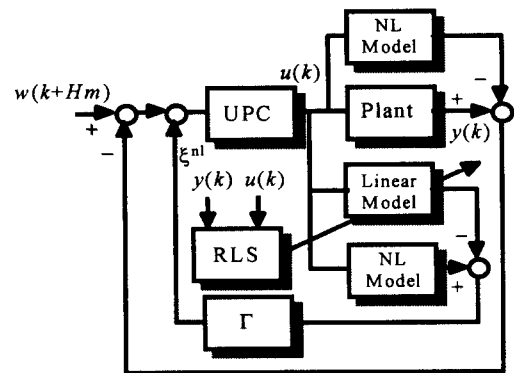


Fig. 1. Block diagram of the linear and nonlinear UPC.

통합예측제어기에서 현재시간으로부터 i 번째 샘플링 시간의 공정출력 예측값은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} P\hat{y}(k+i) &= G_i u(k+i-d-1) \\ &\quad + \frac{H_i}{A} u(k-1) + \frac{F_i}{T} [y(k) - \hat{y}(k)] \end{aligned} \quad (13)$$

다항식 $P(q^{-1})$ 의 근은 단진루프의 폴(pole)들이 되며 서보(servo)기능을 조정하는데 필수적이다. 다항식 G_i, H_i, F_i 는 Diophantine식으로부터 구하여진다(Soeterboek, 1992).

$$\begin{aligned} \frac{\hat{C}P}{\hat{D}} &= E_i + q^{-1} \frac{F_i}{\hat{D}} \\ \frac{\hat{B}P}{\hat{A}} &= G_i + q^{-i+d} \frac{H_i}{\hat{A}} \end{aligned} \quad (14)$$

식(13)의 마지막항의 $\hat{y}(k)$ 는 공정모델에서 $\xi^{ext} = 0$ 일 때 구하여지며 다음과 같이 유도된다.

$$\hat{y}(k) = \frac{q^{-d} \hat{B}}{\hat{A}} u(k-1) + \xi^{nl}(k+H_m) \quad (15)$$

통합예측제어기에서는 기준함수에 추적오차와 제어출력을 포함 시키는데 제어출력에는 가중치를 부가한다.

$$J = \sum_{i=H_m}^{H_1} [P\hat{y}(k+i) - P(1)u(k+i)]^2 + \rho \sum_{i=1}^{H_2-d} \left[\frac{Q_d}{\rho} u(k+i-1) \right]^2 \quad (16)$$

기준함수를 최소화하는 제어출력은 아래와 같은 제약조건 아래에서 계산된다.

$$\phi Pu(k+i-1) = 0 \quad 1 \leq H_c < i \leq H_p - \hat{d} \quad (17)$$

윗식에서 ρ 는 가중치이며 H_m , H_p , H_c 는 각각 최소비용범위, 예측범위, 제어범위를 나타낸다. 그리고 w 는 제어 목표값 혹은 설정궤도를 의미한다.

식(17)의 조건을 만족시키며 식(16)을 최소화시키는 ($\partial J/\partial u = 0$) 제어출력을 계산한 뒤 최종적으로 제어기에서 사용하는 다항식 R, S, T를 유도하면 다음과 같다.

$$Ru(k) = -Sy(k) + Tw(k+H_m) + \Gamma \xi^{n_i}(k+H_m) \quad (18)$$

$$R = \hat{A}TQ_d + q^{-1}(HTQ_d + \hat{A}TQ_dV_2 + \rho \hat{A}TZ + \rho \hat{A}TQ_dZ_2 - q^{-d}BFQ_d) \quad (19)$$

$$S = \hat{A}FQ_d \quad (20)$$

$$T = \hat{A}P(1)TQ_dV \quad (21)$$

식(18)에서 Γ 는 비선형모델에서 예측된 값이 제어출력에서 차지하는 비중을 결정하는 가중치이다.

4. 수치모사

비선형 통합예측제어기의 타당성을 검토하기 위하여 최빈식 PMMA 중합반응계에 대하여 수치모사를 행하였다.

수치모사를 행할 때 공정에서 시간지연은 발생하지 않는 것으로 가정하였으며 온도측정시 일정범위내의 잡음이 불규칙하게 발생하는 것으로 가정하였다.

수치모사에 사용된 파라미터 값들을 Table 1.에 나타내었으며 예측범위는 15, 최소비용범위는 1, 제어범위는 2로 하였고 가중치(ρ)는 0.001로 하였다.

4.1 목표값의 추적

목표값이 계단변화를 할 때의 선형 통합예측제어기와 비선형 통합예측제어기의 성능을 Fig. 2.에 비교하였다.

Fig. 2.의 (a)와 (b)에는 각각 선형 통합예측제어기와 비선형 통합예측제어기의 추적성능을 나타내었는데 두 제어기가 비슷한 성능을 보이지만 반응후반부에서는 비선형 통합예측제어기의 경우에 offset이 완전히 제거되어 더 우수한 성능을 보이고 있다. 그 이유는 반응후반부에서 열전달계수가 감소할 때 비선형모델은 이를 예측하고 제어를 행하기 때문이다. Fig. 2(c)는 공정에서 나타나는 비선형성(Q_g/UA)과 전환율을 나타낸 것이다. 이 수치모사에서는 온도측정시 $\pm 0.05^\circ\text{C}$ 의 잡음이 불규칙하게 발생하는 것으로 가정하였으며 식(19)의 Γ 를 -0.04로 하였다.

4.2 제어기의 강인성

Fig. 3(a)는 반응중간에 30분간 자켓으로의 열매체공급이 차단되었다고 가정하였을 때 비선형 통합예측제어기의 거동을 나타내었다. 열매체의 공급이 재개되었을 때 반응기의 온도는 다시 목표값에 근접되어 제어가 된다. Fig. 3(b)는 외란발생에 의한 비선형성의 변화와 전환율을 보이고 있다. 이 수치모사에서는 온도측정시 $\pm 0.05^\circ\text{C}$ 의 불규칙한 잡음이 발생하는 것으로 가정하였고 Γ 를 -0.04로 하였다.

Table 1. Kinetic Parameters and Design and Operating Variables

k_d	$1.25 \times 10^{18} \exp(-35,473/RT)$	s^{-1}
k_p	$2.94 \times 10^6 \exp(-5656/RT) * g_p^{a1}$	$\text{l/mol} \cdot \text{s}$
k_t	$5.20 \times 10^8 \exp(-1394/RT) * g_t^{a1}$	$\text{l/mol} \cdot \text{s}$
k_{trm}	$8.92 \times 10^{-4} \exp(-13971/RT) * k_p$	$\text{l/mol} \cdot \text{s}$
k_{trs}	$8.29 \times 10^{-5} \exp(-42.6/RT) * k_p$	$\text{l/mol} \cdot \text{s}$
k_{td}	$1.83 \times 10^{27} \exp(-44467/RT) * k_t$	$\text{l/mol} \cdot \text{s}$
initiator efficiency, f	0.5	
monomer volume	800	ml
solvent volume	800	ml
initiator charge	8	g
reactor temperature	70	$^\circ\text{C}$
jacket flowrate	11.0	l/min
reactor diameter	13.4	cm
jacket volume	1.074	l

a) gel-effect factors from Schmidt and Ray correlation(1981)

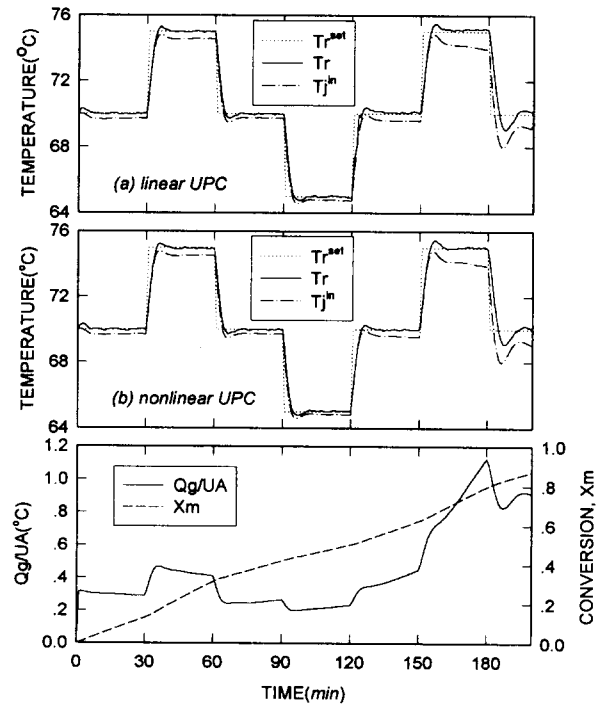


Fig. 2. Simulation results for tracking stepwise changes in setpoint for the reaction temperature by (a)the linear UPC (b)the nonlinear UPC and (c)nonlinearity and monomer conversion.

5. 중합반응 실험

Fig. 4.는 중합반응 실험장치의 P&ID를 나타내었다. 반응기의 온도는 70°C 로 설정하였고 반응조건은 수치모사에서 사용한 조건과 동일하다. Fig. 5(a)에는 비선형 통합예측제어기의 온도 제어 결과를 나타내었는데 반응후반에 발생하는 열전달계수의 감소에도 불구하고 만족할만한 제어가 이루어졌다. Fig. 5(b)에는

반응열의 변화 및 전환율의 수치모사결과와 함께 실험치를 나타내었으며 두 결과가 부합하였다. 또한 Fig. 5(c)에서도 수평균분자량과 중량평균분자량의 예측치와 실험치가 잘 부합함을 관찰할 수 있다. 이러한 결과는 본 연구에서 제안한 비선형모델의 타당성을 입증하는 것으로 이해할 수 있다.

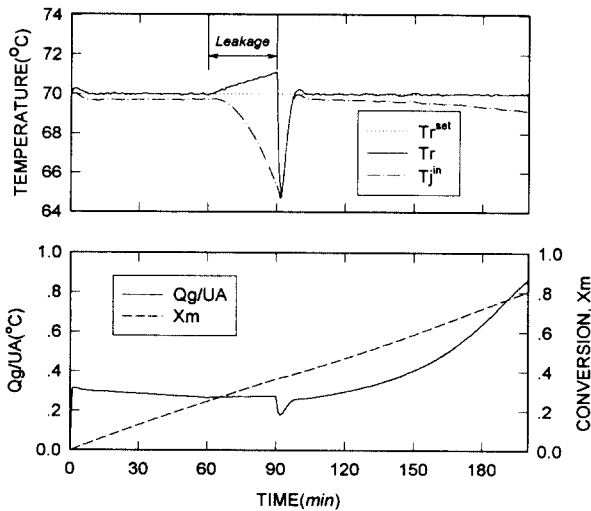


Fig. 3. Simulation results when the cooling water is cutoff from 60 min. till 90 min. : (a) the nonlinear UPC and (b) nonlinearity and monomer conversion.

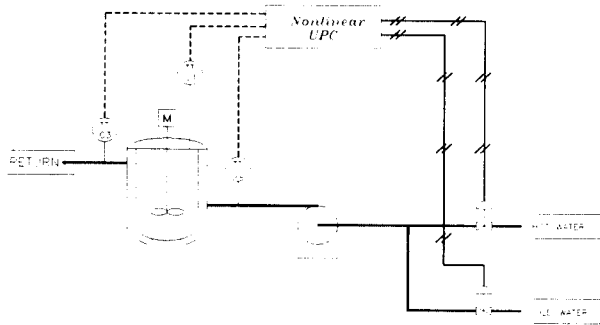


Fig. 4. P&ID of the experimental set for temperature control.

6. 결론

본 연구에서 제안한 비선형통합예측제어기는 희분식 PMMA 중합반응계에서 온도제어를 행할 때 반응열의 발생과 열전달계수의 시간변이성으로 인한 비선형성에도 불구하고 반응기 온도를 효과적으로 제어하였다. 제어성능을 수치모사와 실험을 통하여 검증하였는데 비선형모델은 중합반응계를 잘 예측하였고 통합예측제어기는 돌발적인 외란에 대해서 공정을 강건하게 유지시켰다.

감사

본 연구는 공정산업의 지능자동화 연구센터(ARC)를 통한 한국과학재단의 지원에 의하여 수행되었으며 이에 대하여 심심한 감사의 뜻을 표합니다.

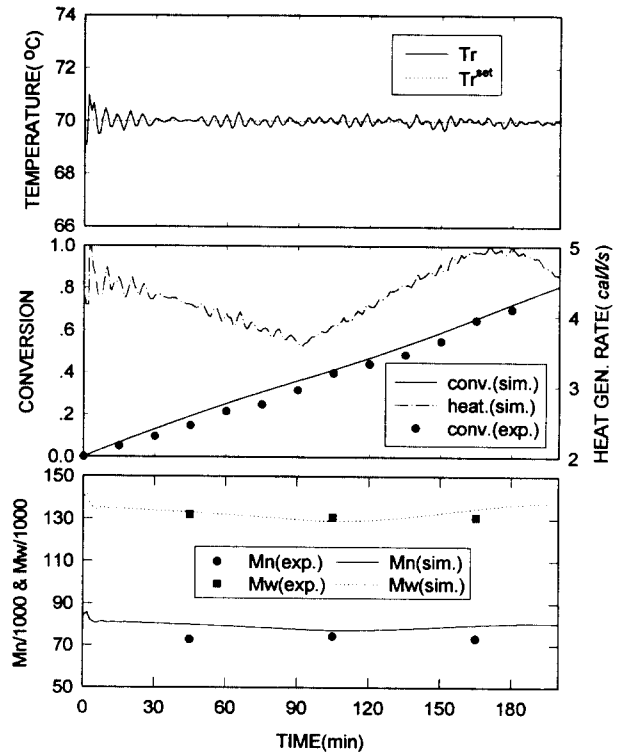


Fig. 5. Experimental results for constant reactor temperature control : (a) regulation performance, (b) monomer conversion and heat of reaction, and (c) number- and weight- average molecular weights.

참고문헌

- [1] T. Peterson, E. Hernandez, Y. Arkun and F. J. Schork, A nonlinear DMC algorithm and its application to a semibatch polymerization reactor, *Chem. Eng. Sci.*, **47**(4), 737-753, 1992
- [2] A.R.M Soeterboek, *Predictive Control - A Unified Approach*, Prentice Hall, 1992
- [3] C. Kiparissides, E. Sidiropoulou, S. Voutetakis and C. Frousakis, Control of molecular weight in a batch polymerization reactor using long-range predictive control methods, *Chem. Eng. Comm.*, **92**(1), 1990
- [4] A. D. Schmidt and W. H. Ray, The dynamic behavior of continuous polymerization reactors-I," *Chem. Eng. Sci.*, **36**, 1401, 1981
- [5] S. R. Ponnuswamy, S. L. Shah and C. A. Kipparissides, Computer optimal control of batch polymerization reactor, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **26**, 2229, 1987
- [6] S. M. Ahn, I. S. Kim and H.-K. Rhee, A study on the optimal temperature trajectory for the batch polymerization reactors, *Proceedings of the 9th KACC II*, 1432, 1994
- [7] Y. J. Huh, S. M. Ahn, H.-K. Rhee, Temperature control of a batch PMMA polymerization reactor using adaptive predictive control algorithm, *Proceedings of the 10th KACC*, 51, 1995