

등온 냉각액을 활용한 plug flow reactor 내의 과열점 제어를 위한 제어모델 개발

유진욱 · 김연수*[†] · 이종민[†]

서울대학교 화학생명공학부
08826 서울시 관악구 관악로 1
*광운대학교 화학공학과
01897 서울시 노원구 광운로 20

(2020년 8월 29일 접수, 2020년 11월 11일 수정본 접수, 2020년 11월 13일 채택)

Control of Hot Spots in Plug Flow Reactors Using Constant-temperature Coolant

Jinwook Rhyu, Yeonsoo Kim*[†] and Jong Min Lee[†]

Department of Chemical and Biological Engineering, Seoul National University,
1 Gwanak-ro, Gwanak-gu, Seoul, 08826, Korea

*Department of Chemical Engineering, Kwangjuon University,
20 Kwangjuon-ro, Nowon-gu, Seoul, 01897, Korea

(Received 29 August 2020; Received in revised from 11 November 2020; Accepted 13 November 2020)

요 약

Plug flow reactor (PFR) 내의 과열점(hot spot) 온도를 조절하는 것은 생성물의 수득률 및 순도, 안전성 측면에서 중요하다. 본 연구에서는 더 현실에 가깝게 모델링 하기 위하여 PFR 내부의 냉각액 온도를 상태변수로 설정하고 방사 방향의 열 및 물질전달을 고려하였다. 모델은 반응물의 농도 및 온도와 냉각액의 온도 총 3개의 상태변수로 이루어져 있으며, 등온 냉각액의 유량을 조작변수로 가진다. 본 연구에서는 방사 방향의 열 및 물질전달을 고려한 제어식이 그렇지 않은 제어식보다 과열점의 온도를 set point 부근으로 더 효과적으로 유지한다는 것을 보였다. 본 연구에서 제안한 제어식은 냉각액의 온도가 반응물 온도의 약 0.7배 부근일 때 Sr 가 1.3 이상이고 A_c/A_r 가 2.0 이하인 조건에서 강건성을 유지하였다. 이 조건에서 반응기로 유입되는 반응물의 온도가 5% 범위에서 바뀔 때 본 연구에서 제안된 제어식을 이용하면 과열점의 온도를 set point의 1% 이내로 유지할 수 있다.

Abstract – To control hot spot in a plug flow reactor (PFR) is important for the yield and purity of products and safety. In this paper, coolant temperature is set as a state variable, and radial distributions of heat and mass are considered to model the PFR more realistic than without considering radial distributions. The model consists of three state variables, reactant concentration, reactant temperature, and the coolant temperature. The flow rate of the isothermal coolant is a manipulated variable. This paper shows that the controller considering the radial distributions of heat and mass is more effective than the controller without them. Assuming that $u_{3,0}$ is 0.7, the suggested control equation was robust when Sr is bigger than 1.3, and A_c/A_r is smaller than 2.0. Under this condition, the hot spot temperature changed within the relative error of one percent when the temperature of input altered within the range of five percent.

Key words: Hot spots, Plug flow reactors, Nonlinear control, Radial distribution

1. 서 론

반응기 내부의 온도 분포는 반응물 및 생성물의 농도, 생성물의 최종 순도 및 수득률, 부반응 등 반응기 내부의 전반적인 성질들에

영향을 미친다. 반응기 내부의 온도가 과하게 낮으면 원하는 반응의 속도가 느려져서 수득률이 감소하고, 과하게 높으면 원치 않는 부반응이 많이 일어나거나 최종 생성물의 변성 등이 발생하게 된다 [1-5]. 특히나 국소적인 공간에서 가장 높은 온도를 갖는 과열점(hot spot)에서의 온도가 지나치게 높을 경우, 반응물 유출 등의 안전상 문제를 동반하기 때문에 과열점에서의 온도가 특정 범위를 벗어나지 않도록 주의를 기울여야 한다[6,7]. 이러한 이유로 반응기 내부의 온도 분포를 파악하고, 그 온도가 적절한 값으로 유지되도록 제어하는 작업이 중요하다[8].

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: kimy3@kw.ac.kr, jongmin@snu.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

PFR 반응기에서는 온도가 시간 뿐 아니라 위치의 함수이기도 하다[1,9]. 예를 들어, 흐름이 진행함에 따라 반응물의 농도가 점점 감소하게 되고, 이로 인해 위치에 따라서 흐름의 조성이 다르게 된다. 이는 곧 위치에 따른 흐름의 열용량, 반응속도, 반응열 등을 좌우하게 된다. 따라서 강건(robust)한 온도 제어를 위해서는 실시간으로 모든 위치에서의 온도를 파악해야 할 것이다. 하지만 유체의 특성 및 기술적인 한계로 인해 모든 위치에서의 온도를 실시간으로 측정한다는 것은 불가능에 가깝다[1,10]. 따라서 유한 개수의 측정값들을 이용하여 과열점의 온도를 제어할 수 있는 알고리즘을 개발해야 한다.

이러한 방법 중 하나로는 모든 위치에서의 온도를 대표할 수 있는 하나의 대표값을 정의한 뒤, 그 값에 따라 온도를 제어하는 방법이 있다. 예를 들어, Karafyllis는 과열점에서의 온도를 대표값이라고 간주하였고, 과열점의 온도에 따라 냉각액의 온도를 조절하는 알고리즘을 개발하였다[1]. 과열점에서의 온도가 사전에 설정된 값 y_{sp} 를 넘어가면 냉각액의 온도를 낮춤으로써 과열점에서의 온도가 상계인 Y 를 넘지 않도록 조절하였다. 여기서 온도 제어가 제대로 작용하기 위해서는 y_{sp} 가 Y 보다 작은 값으로 설정되어야 한다.

한편 Karafyllis가 개발한 알고리즘이 실제 온도 제어에 적용되기 위해서는 냉각액의 온도를 조절해주는 과정이 별도로 필요하다[1]. 또한, 설사 냉각액의 온도를 조절하는 과정이 있다 하더라도, 주입되는 냉각액의 온도를 사용자가 원하는 값으로 실시간으로 조작하는 것은 어렵다. 따라서 본 연구에서는 주입되는 냉각액의 온도가 일정하다고 가정하고, 과열점의 온도에 따라 냉각액의 유량을 조절함으로써 과열점의 온도가 Y 를 넘지 않도록 제어하려 한다.

2. PFR 모델

본 연구에서 사용된 parameter들과 무차원수들의 명명법들을 각각 Table 1과 Table 2에 나타내었다. 본 연구에서는 크게 두 가지의 PFR 모델을 이용하였으며, 그 모식도를 Fig. 1에 나타내었다. 첫 번째 PFR 모델 A는 방사 방향의 열 및 물질전달을 고려하지 않은 경우로, Karafyllis가 사용한 모델에 냉각액의 온도를 상태변수로 추가한 것이다. 즉, Fig. 1에서 r 에 따른 파라미터 값이 동일한 경우이다. 모델 A를 Table 3에 나타내었다.

Table 3의 모델 A는 3개의 상태변수로 구성되어 있다. 3개의 상태변수는 각각 1) u_1 : 반응물의 농도, 2) u_2 : 반응물의 온도, 3) u_3 : 냉각액의 온도이며 모두 무차원수이다. 각각 반응속도와 반응열에 해당하는 (A-1), (A-2) 식은 Karafyllis가 사용한 모델을 그대로 사용하였다[1].

두 번째 PFR 모델 B는 방사 방향의 열 및 물질전달을 고려한 경우로, 방사 방향의 위치에 따라 다른 편미분방정식(PDE)들을 이용하여 계산하였다. 모델 B를 Table 4에 나타내었다.

Table 4에 있는 N_r 은 방사 방향 측정점의 개수이며 h_r 은 그것의 역수이다. 즉 $N_r h_r = 1$ 관계가 성립한다. 방사 방향 좌표 r 에 따라 (B-f₁⁰, B-f₂⁰), (B-f₁¹, B-f₂¹), (B-f₁², B-f₂²) PDE 쌍 중에서 하나를 사용한다. Table 3의 (A-f₃)에 있는 u_2 항이 Table 4의 (B-f₃)에서는 $r = 1$ 에서의 온도인 $u_2(1)$ 로 바뀌게 된다.

Table 3과 Table 4에 있는 모델을 numerical하게 계산하기 위해서 axial 방향으로 finite difference method (FDM)을 적용하였다. Table 3과 Table 4에 나오는 편미분항들에 FDM을 적용한 결과를 Table 5에 나타내었다. Time 방향으로는 Karafyllis가 사용했던

Table 1. Nomenclature

Parameter	Name	Unit
A	Cross sectional area of the reactor	m ²
A_c	Cross sectional area of the coolant	m ²
C	Concentration of the reactant	mol/m ³
C_p	Specific heat of the reactant	J/Kg K
$C_{p,c}$	Specific heat of the coolant	J/Kg K
H	Heat of the reaction ($-\Delta H$)	J/mol
K	Controller gain	-
K_I	Integral mode gain	1/s
L	Length of the reactor	m
$-r_A$	Rate of the reaction	mol/m ³ s
R	Radius of the reactor	m
S	Circumference of the reactor	m
T	Temperature of the reactant	K
T_c	Temperature of the coolant	K
T_{sp}	Set point of the reactant temperature	K
U	Overall heat transfer coefficient	W/m ² K
v	Velocity of the reactant	m/s
v_c	Velocity of the coolant	m/s
x	Axial position	m
α_C	Diffusivity of the reactant	m ² /s
α_T	Thermal diffusivity of the reactant	m ² /s
γ	Radial position	m
ρ	Density of the reactant	kg/m ³
ρ_c	Density of the coolant	kg/m ³
τ	Elapsed time	s

Table 2. Dimensionless numbers

Parameter	Name	Equation
D_C	Diffusivity of the reactant	$D_C = \frac{\alpha_C L}{vR^2}$
D_T	Thermal diffusivity of the reactant	$D_T = \frac{\alpha_T L}{vR^2}$
g	Reaction rates	$g(u_1, u_2) = \frac{-L(-r_A)}{vC_0}$
q	Rate of heat production	$q(u_1, u_2) = \frac{LH(-r_A)}{\rho C_p v T_0}$
r	Radial position	$r = \frac{\gamma}{R}$
St	Stanton number	$St = \frac{USL}{v\rho C_p A}$
t	Time	$t = \frac{v\tau}{L}$
u_1	Concentration of the reactant	$u_1 = \frac{C}{C_0}$
u_2	Temperature of the reactant	$u_2 = \frac{T}{T_0}$
u_3	Temperature of the coolant	$u_3 = \frac{T_c}{T_0}$
y	Hot spot temperature	$y(t) = \max_{z \in [0,1]} u_2(t, z)$
y_{sp}	Set point of hot spot temperature	$y_{sp} = \frac{T_{sp}}{T_0}$
z	Axial position	$z = \frac{x}{L}$
z_m	Axial position of hot spot	$z_m(t) = \operatorname{argmax}_{z \in [0,1]} u_2(t, z)$

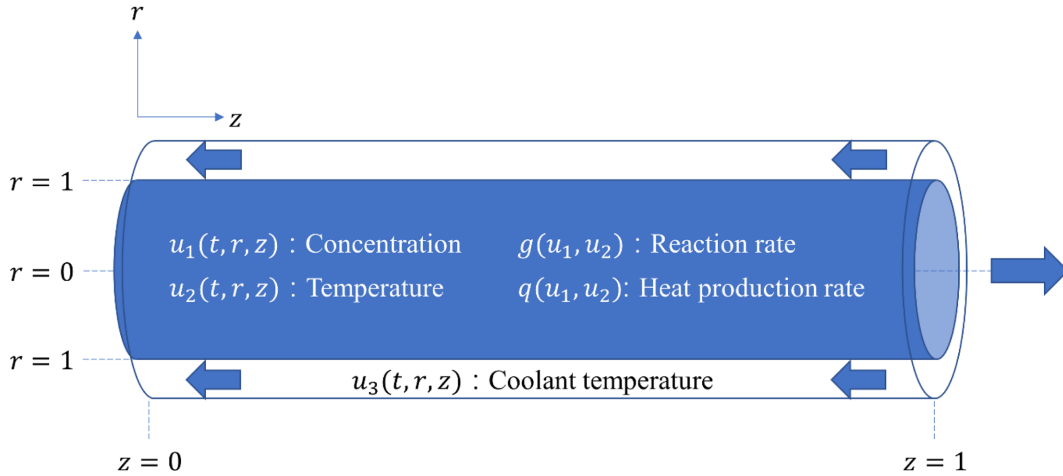


Fig. 1. PFR model and dimensionless numbers used in this study.

Table 3. PFR model A without considering radial distribution

$g(u_1, u_2) = -18.742e^{-2/u_2} u_1$	(A-1)
$q(u_1, u_2) = 8.0478e^{-2/u_2} u_1$	(A-2)
$\frac{\partial u_1}{\partial t} = -\frac{\partial u_1}{\partial z} + g(u_1, u_2)$	(A-f ₁)
$\frac{\partial u_2}{\partial t} = -\frac{\partial u_2}{\partial z} + q(u_1, u_2) + St(u_3 - u_2)$	(A-f ₂)
$\frac{\partial u_3}{\partial t} = \frac{v_c}{v} \frac{\partial u_3}{\partial z} + \frac{\rho C_p A}{\rho_c C_{p,c} A_c} St(u_2 - u_3)$	(A-f ₃)

third-order Runge-Kutta method를 이용했다[1].

Fig. 2를 통해 PFR 모델 A와 모델 B의 타당성을 검증해보았다. 모델 B에서 방사 방향의 열 및 물질전달이 매우 활발해지면 방사 방향으로의 농도 및 온도 gradient가 발생하지 않아 결과적으로 모델 A와 동일한 결과를 나타내게 된다. 이는 Fig. 2의 (a)와 (c)가 유사하다는 것으로 검증할 수 있다.

Table 4. PFR model B with considering radial distribution.

$g(u_1, u_2) = -18.742e^{-2/u_2} u_1$	(B-1)	
$q(u_1, u_2) = 8.0478e^{-2/u_2} u_1$	(B-2)	
$r = 0$	$\frac{\partial u_1}{\partial t} = -\frac{\partial u_1}{\partial z} + \frac{4D_C}{h_r} \frac{\partial u_1}{\partial r} \Big _{r=h_r} + g(u_1, u_2)$	(B-f ₁ ⁰)
	$\frac{\partial u_2}{\partial t} = -\frac{\partial u_2}{\partial z} + \frac{4D_T}{h_r} \frac{\partial u_2}{\partial r} \Big _{r=h_r} + q(u_1, u_2)$	(B-f ₂ ⁰)
$r = jh_r$	$\frac{\partial u_1}{\partial t} = -\frac{\partial u_1}{\partial z} + \frac{D_C}{jh_r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_1}{\partial r} \right) \Big _{r=jh_r} + g(u_1, u_2)$	(B-f ₁ ^j)
	$\frac{\partial u_2}{\partial t} = -\frac{\partial u_2}{\partial z} + \frac{D_T}{jh_r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_2}{\partial r} \right) \Big _{r=jh_r} + q(u_1, u_2)$	(B-f ₂ ^j)
$r = 1$	$\frac{\partial u_1}{\partial t} = -\frac{\partial u_1}{\partial z} + \frac{2D_C}{h_r} \frac{\partial u_1}{\partial r} \Big _{r=1} \frac{N_r - 0.5}{N_r - 0.25} + g(u_1, u_2)$	(B-f ₁ ¹)
	$\frac{\partial u_2}{\partial t} = -\frac{\partial u_2}{\partial z} + \frac{2D_T}{h_r} \frac{\partial u_2}{\partial r} \Big _{r=1} \frac{N_r - 0.5}{N_r - 0.25} + q(u_1, u_2) - \frac{StN_r^2(u_2 - u_3)}{N_r^2 - (N_r - 0.5)^2}$	(B-f ₂ ¹)
	$\frac{\partial u_3}{\partial t} = \frac{v_c}{v} \frac{\partial u_3}{\partial z} + \frac{\rho C_p A}{\rho_c C_{p,c} A_c} St(u_2(1) - u_3)$	(B-f ₃)

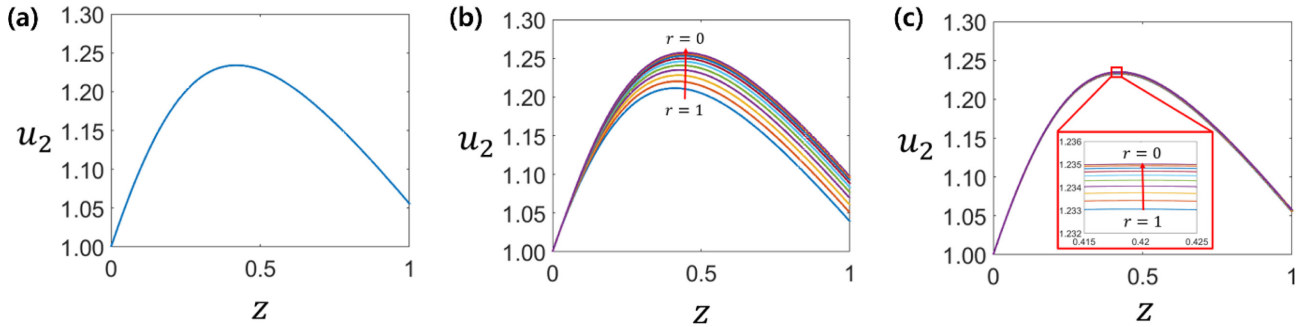
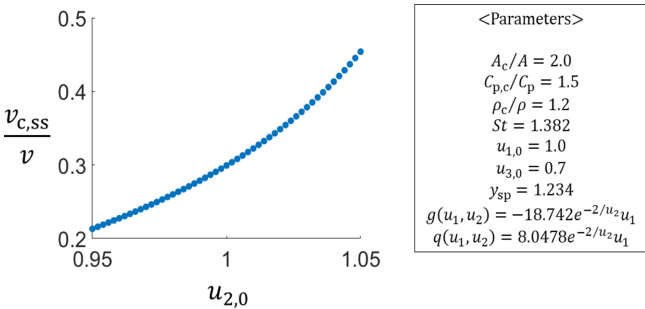
3. 온도 제어식 설계

반응기로 들어오는 반응물의 온도 $u_{2,0}$ 가 변하는 상황에서 controlled variable (CV) $y(t)$ 를 사전에 정의된 y_{sp} 로 유지시키는 것이 본 연구의 목적이다. 이를 달성하기 위해서는 시간에 따라 v_c/v 의 값을 적절하게 조절해주어야 한다. 본 파트에서는 $y(t)$ 를 y_{sp} 부근으로 유지시키는 적절한 제어식을 도출해본다.

PFR 모델 A에서 적용할 수 있는 가장 간단한 제어식으로 선형 제어(linear control)를 생각해볼 수 있다. $u_{2,0}$ 가 1.00±0.05범위 이내에서 변화한다고 가정할 때, 각 $u_{2,0}$ 에 대응하는 steady-state solution $v_{c,ss}/v$ 를 구할 수 있다. 여기서 아랫첨자 c는 coolant를 의미하며, ss는 steady-state를 의미한다. Fig. 3은 주어진 parameter 조건 하에서 $u_{2,0}$ 에 따른 $v_{c,ss}/v$ 를 보여준다. 단순 feedforward control은 PFR 입구에서의 반응물 온도 $u_{2,0}$ 가 변함에 따라 그에 해당하는 $v_{c,ss}/v$ 값으로 즉각 바뀌주는 방식이다. 이를 표현한 것이 식 (1)이다.

Table 5. FDM-applied partial difference terms in Table 3 and Table 4.

Model A	$\frac{\partial u_i(t,z)}{\partial z} = \frac{u_i(t,z) - u_i(t,z-h_z)}{h_z}$	(F-1)
	$\frac{\partial u_i(t,r,z)}{\partial z} = \frac{u_i(t,r,z) - u_i(t,r,z-h_z)}{h_z}$	(F-2)
Model B	$\frac{\partial u_i(t,r,z)}{\partial r} = \frac{u_i(t,r,z) - u_i(t,r-h_r,z)}{h_r}$	(F-3)
	$\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_i(t,jh_r,z)}{\partial r} \right) = (j+0.5) \frac{u_i(t,(j+1)h_r,z) - u_i(t,jh_r,z)}{h_r} - (j-0.5) \frac{u_i(t,jh_r,z) - u_i(t,(j-1)h_r,z)}{h_r}$	(F-4)

Fig. 2. u_2 corresponding to z when using (a) model A, (b) model B with $D_T=2$, $D_C=0.02$, and (c) model B with $D_T=50$, $D_C=0.5$ when v_c/v is fixed to 0.2992.Fig. 3. Steady-state solution of v_c/v under given parameters.

$$\frac{v_c(t)}{v} = \frac{v_{c,ss}}{v} \quad (1)$$

식 (1)에 P control을 도입한 것이 식 (2)이다.

$$\frac{v_c(t)}{v} = \frac{v_{c,ss}}{v} + K(y(t) - y_{sp}) \quad (2)$$

한편, 식 (3)으로부터 비선형 제어식(nonlinear control)을 유도할 수 있다. 여기서 z_m 이 PFR의 내부일 경우(i.e., $0 < z_m < 1$) 두 번째 항은 0이 된다.

$$\frac{dy}{dt} = \frac{\partial u_2(t, z_m)}{\partial t} + \frac{\partial u_2(t, z_m)}{\partial z} \frac{dz_m}{dt} = \frac{\partial u_2(t, z_m)}{\partial t} \quad (3)$$

식 (3)과 Table 3의 식 (A-f₂)을 연립하면 식 (4)를 얻게 된다. 앞과 동일한 이유로 식 (A-f₂) 우변의 첫 번째 항 또한 0이 된다.

$$\frac{dy}{dt} = q(u_1(z_m), u_2(z_m)) + St(u_3(z_m) - u_2(z_m)) \quad (4)$$

$dy/dt = -K(y - y_{sp})$ 을 달성하기 위하여 $u_3(z_m)$ 을 식 (5)와 같이 설

계한다.

$$u_3(z_m) = \frac{1}{St} [-K(u_2(z_m) - y_{sp}) - q(u_1(z_m), u_2(z_m)) + St u_2(z_m)] \quad (5)$$

이 식에 Table 3의 식 (A-2)를 대입한 뒤, z 로 편미분하면 식 (6)을 얻게 된다. 편의상 이 뒤로 상수 8.0478을 Q 로 표기한다.

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_3(z_m)}{\partial t} &= \frac{1}{St} [-Q e^{-2/u_2(z_m)}] \frac{\partial u_1(z_m)}{\partial t} \\ &+ \frac{1}{St} [-K - 2Q \frac{u_1(z_m)}{u_2^2(z_m)} e^{-2/u_2(z_m)} + St] \frac{\partial u_2(z_m)}{\partial t} \end{aligned} \quad (6)$$

식 (6)과 Table 3의 식 (A-f₃)을 연립한 뒤 FDM을 적용하면 식 (7)을 얻게 된다. 이 때 z_m 에서 u_3 가 극대 또는 극소점이 아니므로 $\partial u_3(z_m)/\partial z \neq 0$ 이다.

$$\begin{aligned} \frac{v_c}{v} &= \left(\frac{\partial u_3(z_m)}{\partial z} \right)^{-1} \left[\frac{1}{St} [-K - 2Q \frac{u_1(z_m)}{u_2^2(z_m)} e^{-2/u_2(z_m)} + St] \frac{\partial u_2(z_m)}{\partial t} \right. \\ &+ \left. \frac{1}{St} [-Q e^{-2/u_2(z_m)}] \frac{\partial u_1(z_m)}{\partial t} - \frac{\rho C_p A}{\rho_c C_{p,c} A_c} St (u_2(z_m) - u_3(z_m)) \right] \end{aligned} \quad (7)$$

I control을 추가하여 $dy/dt = -K(y - y_{sp}) - K_I \int (y - y_{sp}) dt$ 가 만족 되도록 제어 입력을 식 (8)로 설계한다.

$$\begin{aligned} \frac{v_c}{v} &= \left(\frac{\partial u_3(z_m)}{\partial z} \right)^{-1} \left[\frac{1}{St} [-K - 2Q \frac{u_1(z_m)}{u_2^2(z_m)} e^{-2/u_2(z_m)} + St] \frac{\partial u_2(z_m)}{\partial t} \right. \\ &+ \left. \frac{1}{St} [-Q e^{-2/u_2(z_m)}] \frac{\partial u_1(z_m)}{\partial t} - \frac{\rho C_p A}{\rho_c C_{p,c} A_c} St (u_2(z_m) - u_3(z_m)) \right. \\ &\left. - \frac{K_I}{St} (u_2(z_m) - y_{sp}) \right] \end{aligned} \quad (8)$$

PFR 모델 B에서의 제어식은 식 (8)에서부터 시작된다. 방사방향의 열전달을 고려할 경우, coolant $u_3(z)$ 와 열 교환이 일어나는 곳은 반응기 내의 테두리 부근인 $u_2(1, z)$ 이다. 이를 고려하여 식 (8)을 수정하면 식 (9)를 얻게 된다. 여기서도 z_m 에서 u_3 가 극대 또는 극소 점이 아니므로 $\partial u_3(z_m)/\partial z \neq 0$ 이다.

$$\begin{aligned} \frac{v_c}{v} = & \left(\frac{\partial u_3(z_m)}{\partial z} \right)^{-1} \times \left[\frac{1}{St} \left[-K - 2Q \frac{u_1(z_m)}{u_2^2(z_m)} e^{-2/u_2(z_m)} + St \right] \frac{\partial u_2(z_m)}{\partial t} \right. \\ & + \frac{1}{St} [-Qe^{-2/u_2(z_m)}] \frac{\partial u_1(z_m)}{\partial t} - \frac{\rho C_p A}{\rho_c C_{p,c} A_c} St (u_2(1, z_m) - u_3(z_m)) \\ & \left. - \frac{K_f}{St} (u_2(z_m) - y_{sp}) \right]. \end{aligned} \quad (9)$$

식 (9)의 $(u_2(1, z_m) - u_3(z_m))$ 항을 계산하기 위해 Table 4의 식 (f_2^0)와 식 (f_2^j)을 각각 식 (10)과 식 (11)로 변환할 수 있다.

$$u_2(h_r, z_m) - u_2(0, z_m) = -\frac{h_r^2}{4D_T} \left[-\frac{\partial u_2(0, z_m)}{\partial t} + q(u_1(0, z_m), u_2(0, z_m)) \right] \quad (10)$$

$$\begin{aligned} u_2((j+1)h_r, z_m) - u_2(jh_r, z_m) = \\ \left[\frac{j h_r^2}{D_T} \left(-\frac{\partial u_2(jh_r, z_m)}{\partial t} + q(u_1(jh_r, z_m), u_2(jh_r, z_m)) \right) + (j-0.5) \right. \\ \left. (u_2(jh_r, z_m) - u_2((j-1)h_r, z_m)) \right] \frac{1}{j+0.5}. \end{aligned} \quad (11)$$

식을 변환하는 과정에서 우리는 “과열점의 축 방향 좌표에 해당하는 z_m 이 방사 방향 좌표에 관계없이 동일하다”라는 첫 번째 가정을 사용하게 된다. 즉, $r=0, h_r, \dots, 1$ 에서의 z_m 이 동일하다는 것이다. 이 가정을 이용하면 Table 4의 식 (f_2^0)와 식 (f_2^j)에 있는 $\partial u_2(z_m)/\partial z$ 항을 제거할 수 있다. 가정 1의 타당성은 Fig. 2의 (b)와 (c)에서 r 값에 따른 극대점의 z 좌표가 유사하다는 것으로 확인할 수 있다.

식 (10)과 식 (11)의 $\partial u_2(z_m)/\partial t$ 항을 계산하기 위해 두 번째 가정을 사용한다. 두 번째 가정은 u_2 의 시간 편미분 항이 원기둥 껍질의 단면적에 반비례한다는 것이다. 원기둥 껍질의 부피가 클수록 그 온도가 시간에 따라 덜 변하게 되고, 원기둥 껍질의 부피는 단면적에 비례한다는 점에서 나오게 되었다. 식 (3)과 $dy/dt = -K(y - y_{sp}) - K_f \int (y - y_{sp}) dt$ 을 연립하면 $\partial u_2(0, z_m)/\partial t = -K(y - y_{sp}) - K_f \int (y - y_{sp}) dt$ 식을 얻게 된다. 여기에 두 번째 가정을 도입하면 $j=1, 2, \dots, N_r-1$ 에 대해서 식 (12)를 얻게 된다.

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_2(jh_r, z_m)}{\partial t} = & \frac{0.25}{(j+0.5)^2 - (j-0.5)^2} \left(-\frac{\partial u_2(0, z_m)}{\partial t} \right) \\ = & \frac{0.25}{(j+0.5)^2 - (j-0.5)^2} [K(y - y_{sp}) + K_f \int (y - y_{sp}) dt]. \end{aligned} \quad (12)$$

편의상 $A(i) \equiv u_2(ih_r, z_m) - u_2((i-1)h_r, z_m)$ 로 정의하면 식 (12)를 식 (10)과 식 (11)에 대입하여 식 (13)과 식 (14)를 구할 수 있다. 이때 식 (14)에 들어가는 j 의 범위는 $1, 2, \dots, N_r-1$ 이다.

$$A(1) = -\frac{h_r^2}{4D_T} [K(y - y_{sp}) + K_f \int (y - y_{sp}) dt + q(u_1(0, z_m), u_2(0, z_m))]. \quad (13)$$

$$\begin{aligned} A(j+1) = & \left[-\frac{j h_r^2}{D_T} \left(\frac{0.25}{(j+0.5)^2 - (j-0.5)^2} (K(y - y_{sp}) + K_f \int (y - y_{sp}) dt) \right) \right. \\ & \left. + q(u_1(jh_r, z_m), u_2(jh_r, z_m)) \right] + (j-0.5)A(j) \frac{1}{j+0.5}. \end{aligned} \quad (14)$$

식 (13)과 식 (14)를 이용하여 $A(1), \dots, A(N_r)$ 을 계산할 수 있게 되고, 이들을 다 더하면 $\sum_j A(j) = u_2(1, z_m) - u_2(0, z_m)$ 을 구할 수 있다. 하지만 식 (14)를 그대로 사용할 경우, q 항을 계산하기 위해 각 r 에서의 u_1 과 u_2 값을 측정해야 한다. 이 편의를 줄이기 위해 세 번째 가정을 사용하게 된다. 세 번째 가정은 방사 방향에서의 u_1, u_2 차이는 축 방향에서의 u_1, u_2 차이에 비해 무시할 수 있다는 것이다. 이 가정의 타당성은 추후 파트 4에서 보일 것이다. 이 것을 식으로 나타내면 식 (15)와 같다.

$$u_i(jh_r, z_m) \approx u_i(0, z_m) \quad \text{for } i=1, 2 \text{ and } j=1, 2, \dots, N_r. \quad (15)$$

이 관계를 이용하여 식 (14)를 식 (16)으로 변환할 수 있다.

$$\begin{aligned} A(j+1) = & \left[\frac{j h_r^2}{D_T} \left(\frac{0.25}{(j+0.5)^2 - (j-0.5)^2} (K(y - y_{sp}) + K_f \int (y - y_{sp}) dt) \right) \right. \\ & \left. + q(u_1(0, z_m), u_2(0, z_m)) \right] + (j-0.5)A(j) \frac{1}{j+0.5}. \end{aligned} \quad (16)$$

식 (13)과 식 (16)을 이용하여 $A(1), \dots, A(N_r)$ 을 계산하게 되면 $r=0$ 에서의 u_1, u_2 값만을 이용하기 때문에 필요로 하는 측정값의 수를 줄일 수 있다. 앞에서 구한 $A(j)$ 들을 식 (17)에 대입하면 $(u_2(1, z_m) - u_3(z_m))$ 항을 계산할 수 있다.

$$\begin{aligned} u_2(1, z_m) - u_3(z_m) = & u_2(0, z_m) + \sum_j A(j) - u_3(z_m) \\ = & y + \sum_j A(j) - u_3(z_m). \end{aligned} \quad (17)$$

이 결과를 식 (9)에 대입하면 최종 제어식 식 (18)을 도출할 수 있다.

$$\begin{aligned} \frac{v_c}{v} = & \left(\frac{\partial u_3(z_m)}{\partial z} \right)^{-1} \left[\frac{1}{St} \left[-K - 2Q \frac{u_1(z_m)}{u_2^2(z_m)} e^{-2/u_2(z_m)} + St \right] \frac{\partial u_2(z_m)}{\partial t} \right. \\ & + \frac{1}{St} [-Qe^{-2/u_2(z_m)}] \frac{\partial u_1(z_m)}{\partial t} - \frac{\rho C_p A}{\rho_c C_{p,c} A_c} St (u_2(z_m) + \sum_j A(j) - u_3(z_m)) \\ & \left. - \frac{K_f}{St} (u_2(z_m) - y_{sp}) \right]. \end{aligned} \quad (18)$$

식 (18)에서 요구하는 측정값의 개수는 PFR 모델 A의 제어식 식 (8)에서의 측정값 개수와 동일하다. 즉, 모델 A에서 요구하는 측정값 개수와 동일한 수의 측정값들로 방사 방향의 열 및 물질전달을 고려한 제어식을 도출하였다.

Karafyllis에 의하면 축 방향을 따라 반응물의 농도를 측정하는 것이 항상 가능한 것은 아니다[1]. 이 경우에는 보편적인 $u_{2,0}$ 범위에서 시뮬레이션을 돌렸을 때 z_m 부근에서의 u_1 값을 미리 파악하는 것으로 문제를 해결할 수 있다. $0.95 \leq u_{2,0} \leq 1.05$ 범위에서 본 연구에서 사용된 변수들(Fig. 3)을 이용했을 때 z_m 의 범위는 $0.35 \leq z_m \leq 0.55$ 이며, $u_1(z_m)$ 은 대략 0.2 부근으로 나왔다. 이 값은 시뮬레이션에 사용된 변수들의 값에 따라 변하므로, 설정된 변수들이 다를 경우 그에 맞는 $u_1(z_m)$ 을 파악하면 된다. 식 (13), (16), (18)에서 $u_1(z_m) = 0.20$ 으로 고정하면 식 (19)~(21)을 얻게 된다. 이 식들을 이용하면 농도 센서 없이 과열점의 온도를 제어할 수 있다.

$$A(1) = -\frac{h_r^2}{4D_T} [K(y-y_{sp}) + K_I \int (y-y_{sp}) dt + q(0.20, u_2(0, z_m))] \quad (19)$$

$$A(j+1) = \left[\frac{j h_r^2}{D_T} \left(\frac{0.25}{(j+0.5)^2 - (j-0.5)^2} (K(y-y_{sp}) + K_I \int (y-y_{sp}) dt) + q(0.20, u_2(0, z_m)) \right) + (j-0.5)A(j) \right] \frac{1}{j+0.5} \quad (20)$$

$$\frac{v_c}{v} = \left(\frac{\partial u_3(z_m)}{\partial z} \right)^{-1} \left[\frac{1}{St} \left[-K - 2Q \frac{0.20}{u_2^2(z_m)} e^{-2/u_2(z_m)} + St \right] \frac{\partial u_2(z_m)}{\partial t} - \frac{\rho C_p A}{\rho_c C_{p,c} A_c} St (u_2(z_m) + \sum A(j) - u_3(z_m)) - \frac{K_I}{St} (u_2(z_m) - y_{sp}) \right] \quad (21)$$

4. 제어식의 효과 검증

Fig. 4는 PFR 모델 A와 Fig. 3의 파라미터들 하에서 $u_{2,0}(t) = 1.00 + 0.05 \sin(t)$ 일 때 각각 control을 안 한 경우, 식 (1), (2), (7), (8)로 control 했을 때의 $y(t)$ 그래프를 보여준다. 각 식에서는 공통적으로 $K = 12, K_I = 10$ 을 대입하였다. Fig. 4의 결과를 보면 대조군, 식 (1), 식 (2), 식 (7), 식 (8) 순으로 갈수록 과열점의 온도가 효과적으로 제어된다는 것을 확인할 수 있다. 특히 식 (8)을 이용할 때는 $u_{2,0}$ 가 1.00 ± 0.05 범위에서 요동쳐도 과열점의 온도가 $y_{sp} \pm 0.01$ 범위에 존재하게 된다. Fig. 4를 통해 nonlinear control이 linear control 보다 복잡할지라도 더욱 효과적이라는 Karafyllis의 결과를 다시 확인할 수 있다[1].

Fig. 5는 Fig. 4에서 식 (8)을 이용했을 때 시간 t 에 따른 $v_c(t)/v$ 와 $z_m(t)$ 그래프를 보여준다. Fig. 5에서 초기에 $v_c(t)/v$ 값이 급격하게 증가하는 이유는 $u_{2,0}$ 이 요동치는 것에 의한 영향이 $t = 0.4$ 부근에서 뒤늦게 발현되어 dz_m/dt 이 무한에 가까워지고, 이로 인해 u_1 과 u_2 를 t 로 편미분한 값이 매우 커지기 때문이다. 이후에는 z_m 이 부드럽게 이동하여 $v_c(t)/v$ 값도 안정해진다.

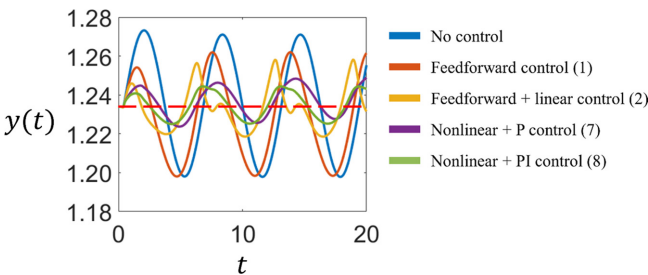


Fig. 4. $y(t)$ corresponding to t when using each control equation given that $u_{2,0}(t) = 1.00 + 0.05 \sin(t)$. The horizontal red dotted line represents $y_{sp} = 1.234$. Parameters are given in Fig. 3.

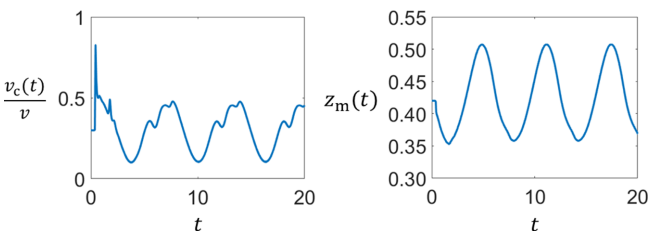


Fig. 5. $v_c(t)/v$ and $z_m(t)$ corresponding to t when using Eq. (8) in Fig. 4.

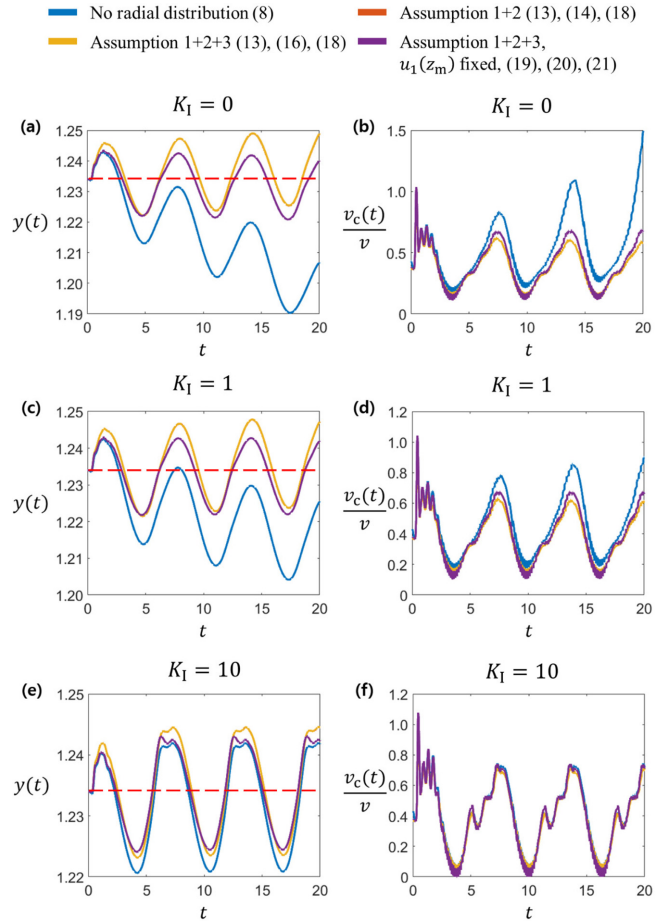


Fig. 6. $y(t)$ and $v_c(t)/v$ corresponding to t when (a, b) $K_I = 0$, (c, d) $K_I = 1$, and (e, f) $K_I = 10$ given that $u_{2,0}(t) = 1.00 + 0.05 \sin(t)$. The orange line on each graph overlaps with the yellow line and is obscured. The horizontal red dotted line on each graph represents $y_{sp} = 1.234$.

PFR 모델 B에서 제어식의 효과를 검증하기 위해 다음의 제어식들을 비교하였다. 대조군으로는 방사 방향의 열 및 물질전달을 고려하지 않은 PFR 모델 A의 식 (8)을 사용하였다. 첫 번째 비교군은 가정 1, 2만 적용한 식 (13), (14), (18)을 이용하였고, 두 번째 비교군은 가정 3도 고려한 식 (13), (16), (18)을 이용하였다. 세 번째 비교군은 $u_1(z_m) = 0.20$ 으로 고정된 식 (19), (20), (21)을 이용하였다.

$u_{2,0}(t) = 1.00 + 0.05 \sin(t)$ 인 경우에 대한 각 제어식의 효과를 Fig. 6에 나타냈다. Fig. 6의 (a), (b)는 $K_I = 0$ 인 경우, (c), (d)는 $K_I = 1$ 인 경우, (e), (f)는 $K_I = 10$ 인 경우를 나타내며 (a), (c), (e)는 과열점의 온도인 $y(t)$ 그래프, (b), (d), (f)는 냉각액의 유속 $v_c(t)/v$ 를 나타낸다. Fig. 6의 (a)를 보면 $K_I = 0$ 인 경우 식 (8)을 쓰면 과열점의 온도가 y_{sp} 로부터 점점 벗어난다는 것을 확인할 수 있다. (b)를 보면 냉각액의 유량 또한 발산한다. K_I 가 증가함에 따라 방사 방향의 열 및 물질전달을 고려하지 않은 경우와 고려한 경우 사이의 차이가 줄어들지만 K_I 가 과하게 클 경우 reset windup 현상에 유의해야 한다[11].

$u_{2,0}(t) \sim N(1, 0.02^2)$ 인 경우에 대한 제어식의 효과를 Fig. 7에 나타냈다. 본 상황은 PFR에 들어가는 반응물의 온도 $u_{2,0}(t)$ 가 단위 시간 Δt 마다 평균 1.00, 표준편차 0.02인 정규분포에서 랜덤으로 뽑은 값으로 변한다는 뜻이다. Fig. 7은 $K_I = 10$ 인 경우인데, $u_{2,0}(t)$ 가

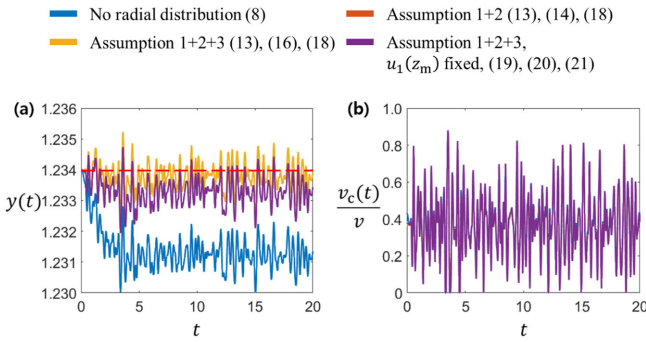


Fig. 7. (a) $y(t)$ and (b) $v_c(t)/v$ corresponding to t given that $K_I = 10$ and $u_{2,0}(t) \sim N(1, 0.02^2)$. The orange line on each graph overlaps with the yellow line and is obscured. The horizontal red dotted line represents $y_{sp} = 1.234$.

실시간으로 변하는 경우는 sin함수를 따라 변하는 경우에 비해 적분항이 매우 작기 때문에 큰 K_I 에서도 식 (8)과 나머지 제어식의 차이가 크다는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 6과 Fig. 7을 통해 다음과 같은 결론을 내릴 수 있다. 우선 방사 방향의 열 및 물질전달을 고려하지 않은 제어식은 그것을 고려한 제어식에 비해 제어 효과가 작다. 각 그래프에서 주황색 선과 노란색 선이 겹쳐져서 하나의 선으로 보이는 것을 보면 세 번째 가정이 타당하다고 볼 수 있다. 한편, 보라색 선은 노란색 선과 비교했을 때 $y(t)$ 가 y_{sp} 로부터 벗어난 정도가 크다. 하지만 노란색 선이 각 z 에서의 온도 및 온도 센서를 필요로 하는 반면, 보라색 선은 각 z 에서의 온도 센서만을 필요로 하기 때문에 온도 센서를 설치하기 힘든 반응기에서는 보라색 제어식을 적용할 수 있다. Fig. 7의 (b)를 보면 상당히 미세한 $v_c(t)/v$ 차이에도 $y(t)$ 의 차이가 크게 나타나는 것을 확인할 수 있다.

5. 제어식의 robustness 검증

동일한 제어식이어도 모델에 쓰인 parameter의 값에 따라 제어 효과가 달라질 수 있다. 예를 들어 냉각액의 온도가 너무 낮다면 미세한 유량 변화에도 과열점의 온도가 많이 바뀌기 때문에 민감(sensitive)한 제어가 힘든 반면, 냉각액의 온도가 너무 높다면 민감한 제어는 가능하지만 필요로 하는 냉각액의 양이 많아지게 된다. 따라서 본 파트에서는 모델에 영향을 주는 parameter 값이 어느 정도 범위에 있어야 제어식이 효과적으로 사용될 수 있는지 알아본다. 본 연구에서는 냉각액의 온도($u_{3,0}$), Stanton 수(St), 냉각액과 반응물의 단면적 비(A_c/A)를 변화시켰다. 냉각액과 반응물의 밀도비(ρ_c/ρ)와 등압비열비($C_{p,c}/C_p$)의 효과 역시 단면적비와 동일한 효과를 나타낸다.

5-1. 냉각액의 온도

Fig. 8은 $u_{2,0}(t) = 1.00 + 0.05 \sin(t)$ 일 때 $u_{3,0}$ 에 따른 $y(t)$ 와 $v_c(t)/v$ 그래프를 나타낸다. 예상대로 $u_{3,0}$ 이 클수록 $y(t)$ 의 섬세한 제어가 가능하지만, 필요한 냉각액의 양이 증가했다. $u_{3,0}$ 에 따른 $y(t)$ 제어 효과와 냉각액의 양이 서로 상충하기 때문에 u_2 의 upper bound와 냉각액의 비용을 고려하여 적절한 $u_{3,0}$ 을 설정해주는 것이 좋다. $u_{3,0} = 0.90$ 의 경우에는 발산이 일어난다.

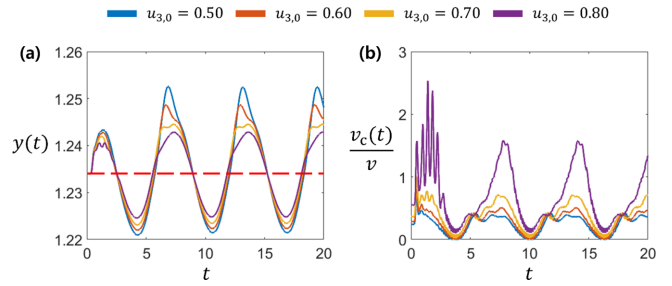


Fig. 8. (a) $y(t)$ and (b) $v_c(t)/v$ corresponding to t at various $u_{3,0}$ values given that $K_I = 10$ and $u_{2,0}(t) = 1.00 + 0.05 \sin(t)$. The horizontal red dotted line represents $y_{sp} = 1.234$.

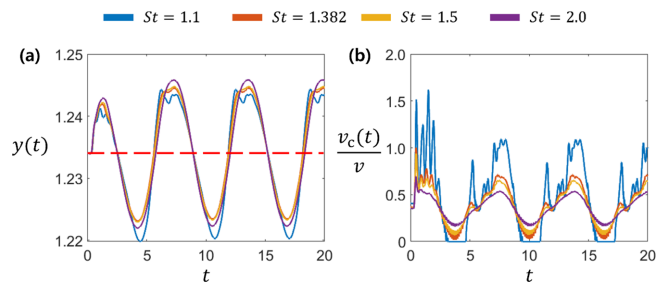


Fig. 9. (a) $y(t)$ and (b) $v_c(t)/v$ corresponding to t at various St values given that $K_I = 10$ and $u_{2,0}(t) = 1.00 + 0.05 \sin(t)$. The horizontal red dotted line represents $y_{sp} = 1.234$.

5-2. Stanton 수 St

Fig. 9는 St 에 따른 $y(t)$ 와 $v_c(t)/v$ 그래프를 나타낸다. St 는 PFR에서 반응물과 냉각액 사이의 열 교환 정도를 나타내는 지표이다. $1.1 \leq St \leq 2.0$ 범위에서 $y(t)$ 의 경향은 비슷하지만 $v_c(t)/v$ 의 경향에서 많은 차이가 난다. St 가 클수록 반응물과 냉각액 사이에 열 교환이 잘 일어나기 때문에 과열점의 온도는 냉각액의 유량에 민감하게 변하게 된다. 즉, St 가 클수록 필요한 냉각액의 유량 자체도 적어질 뿐더러, 변화폭이 더 부드러운 것을 확인할 수 있다. $St = 1$ 인 경우에는 과열점의 온도와 냉각액의 유량이 발산했다.

5-3. 냉각액과 반응물 사이의 단면적비(A_c/A)

Fig. 10은 A_c/A 에 따른 $y(t)$ 와 $v_c(t)/v$ 그래프를 나타낸다. A_c/A 가 클수록 냉각액의 유속 변화가 작긴 하지만 실시간으로 냉각액의 온도를 조절하는 것이 어렵기 때문에 과열점 온도의 정밀한 제어가 어렵다. 냉각액의 유량은 Fig. 10의 (b)에 나와있는 유속에 단면적을 곱해야 하기 때문에 $1.0 \leq A_c/A \leq 3.0$ 범위에서는 필요한 냉각액의

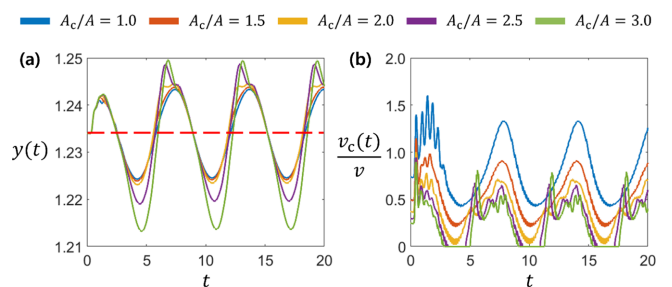


Fig. 10. (a) $y(t)$ and (b) $v_c(t)/v$ corresponding to t at various A_c/A values given that $K_I = 10$ and $u_{2,0}(t) = 1.00 + 0.05 \sin(t)$. The horizontal red dotted line represents $y_{sp} = 1.234$.

양이 비슷하다고 볼 수 있다. Fig. 10의 (a)에 의하면 단면적비가 작을수록 과열점의 온도를 정밀하게 제어할 수 있다. 본 경향은 밀도비(ρ/ρ)와 등압비열비($C_{p,c}/C_p$)의 경우에도 동일하게 작용한다.

5.1~5.3의 결과를 종합해보면 본 연구에서 제안하는 제어식은 $u_{3,0}$ 이 0.7 부근인 경우, St 가 1.3 이상인 경우, A_c/A 가 2.0 이하인 경우에 효과적으로 작용했다. 이 중에서 실질적으로 사용자가 변경할 수 있는 parameter는 $u_{3,0}$ 으로, 들어오는 반응물 온도의 0.7배에 해당하는 냉각액을 사용해야 본 연구에서 제안된 제어식을 효과적으로 사용할 수 있을 것이다.

6. 결 론

본 연구는 다음과 같은 점에서 그 의의를 가진다.

(1) 기존에 냉각액의 온도를 조절하여 PFR 내부의 과열점 온도를 제어하는 것을 넘어서 냉각액의 유량으로 과열점 온도를 제어하는 식을 유도했다.

(2) Karafyllis가 제시한 PFR 모델에 방사 방향의 열 및 물질 전달을 고려하였다.

(3) 방사 방향의 열 및 물질 전달을 고려한 제어모델 B에서 유도한 제어식이 모델A에서 유도한 제어식보다 더 효과적이라는 것을 보였다.

(4) 세 개의 가정을 설정하여 $r=0$ 에서의 온도만 측정함으로써 모델 B에서 유도한 제어식을 사용할 수 있도록 하였다.

(5) $u_{3,0}$ 이 0.7 부근인 경우 본 연구에서 제안된 제어식이 St 가 1.3 이상인 경우, A_c/A 가 2.0 이하인 조건에서 효과적으로 작용했다는 것을 보였다.

그 동안 냉각액의 온도를 변화시킴으로써 반응기 내부의 과열점 온도를 조절하는 연구는 많았지만 냉각액을 그대로 사용하는 경우는 많지 않았다. 본 연구에서 제시된 제어모델을 사용할 경우, 반응기에 들어가는 냉각액에 대한 전처리를 할 필요가 없어지기 때문에 경제적인 공정 운영이 가능해질 것으로 보인다. 다만 이 연구에서는 반응물의 확산도와 열확산도가 온도에 무관하게 일정하다는 가정을 사용하였다. 각 반응물의 확산도와 열확산도가 온도에 따라 어떻게 변하는지를 위의 제어모델에 반영한다면 더욱 효과적인 과열점 온도 조절이 가능할 것으로 보인다.

References

1. Karafyllis, I. and Daoutidis, P., "Control of Hot Spots in Plug Flow Reactors," *Computers & Chemical Engineering*, **26**(7-8), 1087-1094(2002).
2. Barrio, V. L., Schaub, G., Rohde, M., Rabe, S., Vogel, F., Cambra, J. F., Arias, P. L. and Güemez, M. B., "Reactor Modeling to Simulate Catalytic Partial Oxidation and Steam Reforming of Methane. Comparison of Temperature Profiles and Strategies for Hot Spot Minimization," *International Journal of Hydrogen Energy*, **32**(10-11), 1421-1428 (2007).
3. Agrawal, R., West, D. H. and Balakotaiah, V., "Modeling and Analysis of Local Hot Spot Formation in Down-flow Adiabatic Packed-bed Reactors," *Chemical Engineering Science*, **62**(18-20), 4926-4943(2007).
4. Weyer, C., Peiffer, S., Schulze, K., Borken, W. and Lischeid, G., "Catchments as Heterogeneous and Multi-species Reactors: An Integral Approach for Identifying Biogeochemical Hot-spots at the Catchment Scale," *Journal of Hydrology*, **519**, 1560-1571 (2014).
5. Yu, G. S., Lee, J. G., Park, D. G., Jeong, M. J., Lee, C. and Sin, J.W., "The Selective Non-Catalytic Reduction Reaction of NOx Using Urea Solution in a Flow Reactor," *Korean Chemical Engineering Research*, **41**(2), 219-223(2003).
6. Mruyama, S., Jamashita, K., Fujimoto, N., Murata, I., Sudo, Y., Murakami, T. and Fujii, S., "Evaluation of Hot Spot Factors for Thermal and Hydraulic Design of HTTR," *Journal of Nuclear Science and Technology*, **30**(11), 1186-1194(1993).
7. Gang, B. G., Gang, G. U., Lee, B. U. and Seo, J. C., "A Study on the Development of AHA (Automatic Hazard Analyzer) for Chemical Processes," *Korean Chemical Engineering Research*, **37**(3), 393-393(1999).
8. Park, J., Eom, Y. and Lee, K. S., "Design of Temperature Control System for an Extruder using Model Predictive Control," *Journal-korean Institute of Chemical Engineers*, **37**, 539-546(1999).
9. Palma, M. and Giudici, R., "Analysis of Axial Dispersion in an Oscillatory-flow Continuous Reactor," *Chemical Engineering Journal*, **94**(3), 189-198(2003).
10. Gangurde, L. S., Sturm, G. S., Devadiga, T. J., Stankiewicz, A. I. and Stefanidis, G. D., "Complexity and Challenges in Noncontact High Temperature Measurements in Microwave-assisted Catalytic Reactors," *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **56**(45), 13379-13391(2017).
11. Seborg, D. E., Mellichamp, D. A., Edgar, T. F. and Doyle III, F. J., *Process dynamics and control*. 2010: John Wiley & Sons.