

## 화학공정 비정상상태 모사기 개발 I.

<sup>0</sup> 이 강 주                      윤 인 섭  
서울대학교 공과대학 화학공학과

## Development of Dynamic Process Simulator I.

<sup>0</sup> Kang Ju Lee,                      En Sup Yoon  
Department of Chemical Engineering, Seoul National Univ.

### Abstract

A sequential-clustered integrator based on GEAR method is developed for the purpose of dynamic simulation of chemical processes. And a single simulator structure capable of employing various integration approaches is designed and its efficiency and flexibility is evaluated. Sequential integration method is superior to simultaneous method for the process without recycle, but simultaneous method is very powerful for the coupled process with recycle.

### 1. 서 론

화학공정의 설계 및 조업(operation)은 좋은 CAD 프로그램의 사용으로 매우 단순화 될 수 있다. 또한 근래에 들어와서는 소형전산기의 급속한 발달등으로 저렴한 가격으로 이들 CAD 프로그램을 사용할 수 있게 되었다. 1950년대 부터 시작된 화학공정의 디지털 시뮬레이션은 최근에 와서는 상당수의 상업화된 프로그램이 나오게 되었다. 이들 프로그램중 일부는 비정상상태 모사를 할 수 있으나 대부분은 정상상태 모사만을 할 수 있다. 사실 정상상태 모사와 최적화를 위해서 이들 소프트웨어들은 매우 유용하고 실제 산업계에서 많은 응용이 이루어 지고 있다. 그러나 현대의 공정들이 경제적인 이유등으로 점차 복잡해지고 많은 수의 재순환 흐름이 존재하여 공정상호간의 작용을 이해하기가 어려워 지고있다. 이러한 프로세스의 동특성을

연구하기 위해서는 자세한 비선형 모델식을 사용한 비정상 상태 모사기가 절실히 요구되고 있다. 뿐만아니라 다음의 여러가지 목적으로 비정상상태 모사기는 사용된다.

- o 공장의 시작운전 및 중단 (startup and shutdown) 절차의 연구 및 공장자동화 연구
- o 제어전략의 설계, 시험, 효율성 평가
- o 조업성(operability) 평가
- o 복잡한 공정들간의 상호작용해석
- o 안전성 및 재해연구
- o 조업자의 훈련
- o 기타 프로세스 변수의 영향등의 동특성 연구

화학공정의 비정상상태 연구를 위한 프로그램으로는 PRO-DYC (IngeIs,1970), REMUS (Ham,1972), DYFLO (Franks,1972) DYSCO (Lopez,1974), DYNYSYS (Barney,1975) 등이 있다. 이들은 초창기의 프로그램들로 범용성에 문제가 있고, 수치해법적인 면에서도 초보적이었다. 80년대 초에 많은 연구가 진행되었고 DYNYSYS의 후속으로 DYNSYL (Patterson,1980)[1] 이 나왔고 DYNPACK (Stainthorp,1982) 등이 유사한 종류였다. 위의 프로그램들은 모두 모듈중심의(modular based) 구조를 가지고 있고, 이와 정반대의 방정식중심의(equation based) 모사기로는 JUSE(Japanese Union of Scientists and Engineers)에서 개발한 DPS 가있고, 영국 Imperial 대학의 SPEEDUP (Perkins)은 최근에 그 상업화에 이르렀다. 또한 Carnegie-Mellon에서도 ASCEND-II 에 비정상상태 모사 기능을 추가하는 연구를 진행중이다.[2] 위의 두극단적인 방법의 절충식으로 Sequential-clustered approach도 주목을 받고 있는데 MUNCHEPS (Fagley,1984)이 그 예이다. [3]

다음절에서 위3가지의 기본적인 구조와 장단점을 비교하였고 보다 경제적으로 판단되는 sequential-clustered 적분전략을 개발하고자 하는 모사기의 기본구조로 하였다.

본 연구의 목적은 범용의 화학공정 비정상상태 모사기를 개발하기 위한 그 첫단계로 구조를 확립하고 sequential-clustered 방식의 적분을 실행할 수 있는 적분루틴을 개발 하는데 있다.

## 2. 비정상상태 모사 시스템의 비교

전형적으로 화학공정은 비선형 대수식과 미분식들로 표기 될 수 있다. 이러한 혼합 수식을 적절히 푸는 것이 모사기의 임무이다. 특히 화학공정은 타고난 비선형을 가지고 있으며 미분식의 경우 다양한 시간정수 (time constant)를 가지는 stiff한 시스템이 된다. 뿐만아니라 긴 지연시간을 가지며 제어전략의 변화 (control action), 기타 여러 이유등으로 프로세스 변수들의, 특히 상태변수, 불연속이 존재하여 수치적 불안정성이 크게 분제가 된다. 이러한 화학공정의 비정상 상태 모사는 크게 다음의 세가지로 분류될 수 있다.

### (1) 모듈중심 접근방법 (modular based approach)

각 모듈은 화학공정의 기본적인 단위공정을 모델링한 대수식과 미분식으로 이루어져 있고, 이러한 모듈은 시뮬레이션 시에 독립적인 모사기의 역할을 한다. 즉 각모듈에서는 필요한 열역학 계산이나 대수식 계산을 하며 미분식은 적분루틴을 불러서 일정 시간간격 동안 적분을 시행한다. 기본적으로 이 방법은 유지 보수가 용이 하며, 전산기 사용 용량면에서 크게 유리하다. 그러나 공정들의 커플링이 심하면, 계산의 정확도가 낮아짐으로, 상대적으로 작은 적분간격을 취해야 하는 단점이 있다. 최근에는 각 모듈은 그모듈의 특성에 따라 적절한 적분전략을 쓰도록 하고 있다.

[4] 이때에는 모듈간의 상호연결을 위하여 Coordinator라 불리는 특별한 알고리즘이 필요하게 된다. [4,5] Fig.1는 일반적인 모듈방식의 시스템의 구조를 나타내었다.

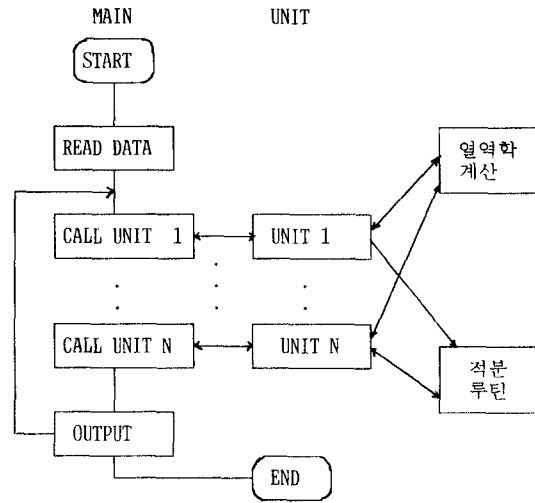


Fig. 1 모듈방식 모사기의 기본구조

### (2) 방정식 중심 접근방법 (Equation based approach)

일반적으로 대상 공정에 관련된 모든 대수식과 미분식을 한꺼번에 풀어버리는 방식이다. 이론상으로는 가장 정확하고 완벽한 방식이다. 최근에 개발 되었거나 연구중인 모사기로는 DPS, SPEEDUP, ASCEND등이 대표적이다. 이들은 대부분 정상상태 모사를 결합할 수 있게 되어있다. DPS는 미분방정식을 차분방정식(difference)으로 전환하여 매 시간간격마다 이 대수식을 푸는 구조를 가지고 있다. 즉, 시스템의 상미분 방정식들은 비교적 간단한 Euler식 이나 Runge-Kutta방법에 의하여 대수 관계식으로 바뀌며 graph theory에 바탕을 둔 방법으로 이러한 대수식들의 계산 순서를 정하여 풀게된다. 그러나 DPS는 적분간격이 고정되어 있고, 시뮬레이션을 통하여 한가지 적분방식만을 사용하며 정확도를 감시하기가 용이하지 않다.

SPEEDUP은 미분식과 혼합수식을 풀수 있도록 특별히 설계된 적분방식을 사용한다. 계산의 정확도를 감시하기 쉽고, 수식의 특성이 변하면 적절한 적분방법으로 도중에 바꾸어 사용할 수 도 있다.

방정식 중심의 방식은 모델의 복잡도와 계산의 정확도를 쉽게 제어할 수 있고, 공정의 자유도나 변수값의 변화등에 유연하게 대처할 수 있다. 그러나 현재까지는 이 방식이 가지고 있는 문제점들이 많이 있다. 방정식 중심모사에서 항상 문제가되는 초기값의 설정이라든지, 완벽한 수치해법

### 3) 수정값 계산

수정값 반복계산시 유한차분법에 의한 Jacobian의 생성 및 처리는 다음과 같다. Corrector가 끝난후 수정된 값들을 저장하거나 유한차분법을 사용할때 섭동된 값(perturbed value)들을 수행할때는 다음과 같다.

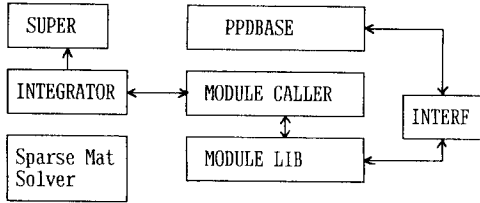


Fig. 6 Corrected or perturbed 값들을 저장

### (3) 적분기의 구조 및 적분전략

본 모사기에서 사용하는 적분루틴은 IMSL의 DGEAR인데 이코드는 선형다단계 방법으로 (linear multi-step method) 5차까지의 Gear BDF(backward difference formula)와 12차의 Adams방법을 사용할 수 있다. 원래의 코드는 전체의 상미분 방정식집합을 동시에 적분할 수 있는 구조로 되어있다. 그러므로 이 코드를 순차적분, 절충식적분, 동시적분이 가능하도록 수정하였고, 이런기능을 제어하고 감시하는 루틴 (supervisory routine)을 개발하였다.

- 1) 동시 적분에서는 모든 장치의 미분방정식을 하나의 그룹으로 적분이 된다. (방정식 중심모사와 유사);
- 2) 반면에 순차적분 방식에서는 첫번째 장치의 ODE 들이 적분이 되고 차례로 다음의 장치로 실행된다.(모듈중심);
- 3) 절충방식(sequential-clustered)은 하나의 블록에는 한개 이상의 장치가 모여있고, 전체의 공정은 이러한 블록으로 연결되어진다. 즉 한개의 블록 안에서는 그 안에 속해 있는 장치들의 모든 ODE가 1) 방식으로 적분되며, 전체공정은 블록단위로 2) 방식으로 적분이 된다. 보통 장치들 상호간에 심한 커플링을 할때, 하나의 cluster로 정의의 하면 계산의 정확도 및 계산의 효율성을 기대할 수 있다. 다음에 감시루틴(supervisory routine)의 구조도를 보이고 있다.

감시루틴이 행하는 일을 요약하면 다음과 같다. 동시 적분에서는 모든 ODE 종속변수를 전체로 예측하고 이를 수정하는 예측-수정법(predictor-corrector method) 을 사용한다. 그러나 적절한 수의 cluster로

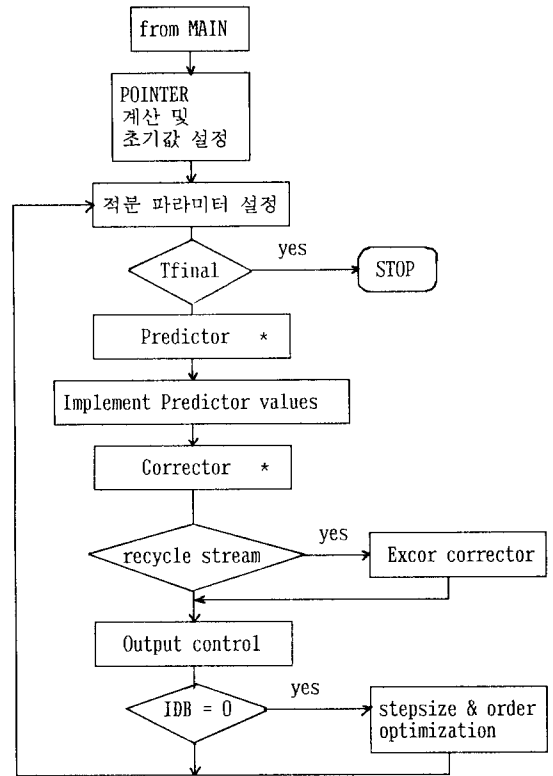


Fig. 7 SUPER routine의 순서도  
\* : 모든 cluster에 대하여 반복

적분단위가 나뉘면 다음의 절차에 의한 순차적분을 한다.

- 1) 각 적분단위를 순차적으로 예측한다.(predictor)
- 2) 각 적분단위를 순차적으로 수정한다.(corrector)

이때 주어진 블록이 성공적으로 적분이 되면, 다음블록을 수행하게 되는데 만약 하나의 블록이라도 오차시험에서 실패를 하거나 corrector 반복계산시 수렴을 하지않으면 현재 시간의 적분은 실패로 판명된다. 이때에는 시행된 수정치와 예측치를 모두 취소하고, 적절한 새로운 적분간격이나, 적분차수를 가지고 1) 번 스텝으로 간다. 모든 블록이 성공적으로 적분이 되면 3)번 스텝으로 간다. 3)때 얼마의 적분스텝마다 적분간격 최적화 논리를 적용한다. 즉 현재의 적분차수와 그보다 한차수 높고, 낮은 경우에 대하여 오차 테스트에 통과하는 최대의 적분 간격을 정한다. 그리고 각각의 차수에 대해 블록수 만큼의 적분간격 중 가장 작은 값을 정한다. 결국에 세개의 최소값들 중 가장 큰 적분간격을 주는 것을 고르는 최소-최대화(minimax)를 실행한다.

적 기술, 그리고 막대한 계산용량등이다.

(3) 절충식

위의 두 방법의 장점을 살리고 단점을 보완하기 위한 방법으로 자연스럽게 제시될 수 있는 방법이다. 이는 전체적인 구조는 모듈중심의 방식과 거의 유사하기 때문에 개발에 상대적으로 적은 노력이 든다. 또한 이방식은 단순한 절충뿐만 아니라 (1),(2) 어느 방법도 수용할 수 있는 구조를 가지고 있다. MUNCHEPS[3]은 이 방식의 효용가치를 입증하였다. 본 연구에서 개발하는 시뮬레이터의 구조는 이 방식을 사용하고 있다.

3. 본 론

(1) 모사기(Simulator)의 기본구조

본연구에서 개발하고 있는 모사기의 기본구조는 아래와 같다.

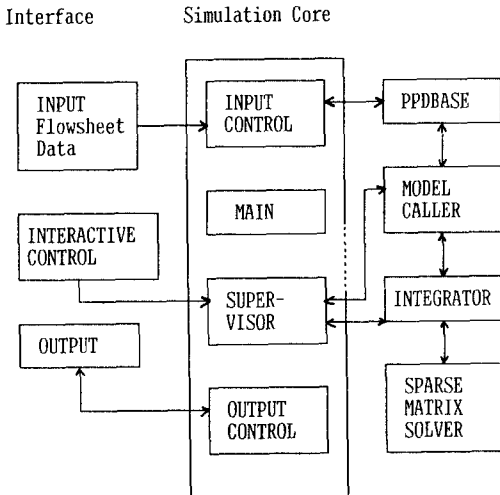


Fig. 2 모사기의 기본구조 (block diagram)

(2) 모사기의 설명

시뮬레이터의 기본적인 기능과 논리에 대하여 간단히 설명하면 다음과 같다. MAIN - 대화식으로 작동되는 preprocessor로 부터 자동으로 작성되며, 그문제에 맞는 각종의 공통기여 장소의 크기등을 결정하고 시뮬레이션을

시작시킨다.

SUPER - 시뮬레이션 전체를 제어하며, 임.출력을 시행하는 중심부분이다.

INTEGRATOR - IMSL DGEAR의 변형으로 적분을 시행한다.

MODULE CALLER - 모델(각 단위공정 또는 연관식) 라이브러리의 각 모델을 연결하여 시뮬레이션 문제를 완성하여, 적분기가 요구하는 함수들의 값과 Jacobian값을 생성한다.

PPDBASE - 각종 열역학 물성치와 관계계산을 행한다.

위의 시뮬레이터는 그제어의 흐름상 다음의 세가지 기능으로 나타낼 수 있다.

1) 초기값계산 및 기억장소의 초기화

이부분은 적분이 시작되기전에 최초로 단 한번 시행된다.

ODE 종속변수의 초기값을 Nordsieck array에 저장하고, 이와 관련된 대수식들을 계산하며 stream 벡터에 저장한다.

2) 예측값 계산

ODE 종속변수 값을 예측한다.

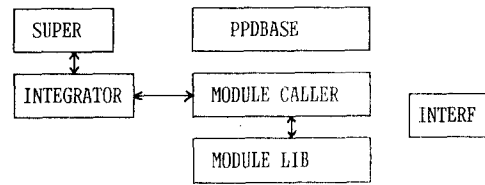


Fig. 3 Predictor계산을 위한 루틴간의 관계 예측이 끝나면 이 값은 저장이 되며, 관계 대수식이 계산된다.

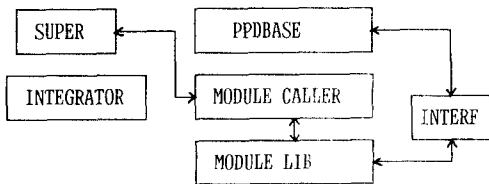


Fig. 4 Predictor값을 수행

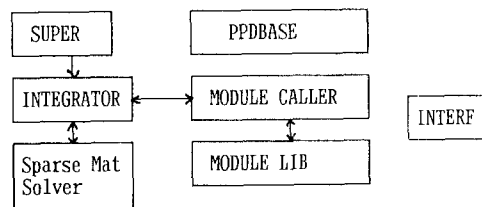


Fig. 5 Corrector iteration

#### 4. 예 제

##### (1) 원래의 DGEAR루틴의 테스트

시뮬레이터와 결합하기 이전에 이 루틴이 과연 얼마나 효율적으로 화학공정 비정상상태 모사에 사용될 수 있을지를 시험하였다. 사용되는 DGEAR프로그램은 선형다단계 적분방식을 가지는데 화학공정과 같은 stiff 시스템이나 혹은 non-stiff 시스템에 대하여도 효율과 정확성이 좋은 것으로 알려져 있다. 그러나 LMS(linear multi-step)방식은 과거의 값에 많은 영향을 받으므로 어떠한 계단변화나 불연속에 대하여 취약하다는 비평을 받아왔다. 다음과 같은 4개의 탱크가 연결되어 있는 가상공정을 생각하자.

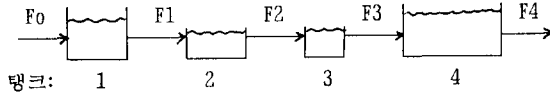


Fig. 8 4개의 잘 혼합되는 탱크가 직렬로 연결된 공정

각 탱크는 잘혼합이 되며, 이성분계 혼합물이 사용된다고 가정한다. 다음의 초기조건을 가지며, 입력의 계단변화를 아래의 식과같이 시간  $\tau=1.9$  에서 준다.

$$M1(0) = 10. \quad M2(0) = 0.1 \quad M3(0) = 0.01 \quad M4(0) = 50000$$

$$X1(0) = 1.0 \quad X2(0) = 0.0 \quad X3(0) = 1.0 \quad X4(0) = 1.0$$

이때  $M_i$ 는  $i$ 번째 탱크에서의 전체 혼합물의 몰수, moles

$X_i$ 는  $i$ 번째 탱크에서의 첫번째 성분의 몰분율

$$F1 = F2 = 100. \quad F3 = 100. - 0.03t$$

$$F4 = 100. - 0.04t \quad F5 = 100. - 0.05t, \text{ moles/hr}$$

입력스트림에서의 첫번째 화학물질의 조성은 다음과 같이 시간  $\tau$ 일때서  $1 - \exp(-\tau)$ 에서 1.로 계단변화를 일으킨다. 위의 예제는 stiff 시스템의 전형을 보여주며, stiffness ratio는  $5.E6$  정도이다.

$$X0(t) = 1.0 - \exp(-\tau) \quad 0 < t < \tau$$

$$X0(t) = 1.0 - \exp(-t+\tau) \quad t > \tau$$

위의 시스템에 대하여 물질수지식 만을 고려하여 다음의 모델식들을 만들었다.

$$\frac{dM_i}{dt} = F_{i-1} - F_i, \quad i = 1, 2, 3, 4 \quad (\text{식 1})$$

$$\frac{dX_{j,i}}{dt} = \frac{F_{i-1}}{M_i} (X_{j,i-1} - X_{j,i}) \quad (\text{식 2})$$

$$j = 1, 2$$

이때  $i$ 는 각 탱크를 나타내며,  $j$ 는 이성분계의 각각의 성분을 나타낸다.

초기 적분간격은 오차시험에 통과하려면  $1.E-6$ 이 되어야 하며, 오차한계는  $0.0001$ 로 하였다. 처음에는 적분차수는 1차로 되며, 점차 적분간격(H)와 적분차수(NQ)가 증가하여 아래의 표에서 보는바와 같이 시간(T)이 1.788일때  $\tau=1.9$ 를 통과하는  $H=0.1923$ 를 취했으나 실패하여 점차 H가 감소하며 NQ도 1로 된다. 결국 H가  $1E-5$ 정도로  $\tau$ 를 통과하였다.

Table 1. 4-탱크에 대한 적분결과

T(시간)	스텝횟수	H	NQ	NFE
1.59596E+00	110	1.92134E-01	3	295
1.78809E+00	111	1.92134E-01	3	296
1.88416E+00	112	9.60670E-02	3	306
1.88512E+00	113	9.54544E-04	1	348
1.88607E+00	114	9.54544E-04	1	349
1.89562E+00	115	9.54544E-03	2	358
1.89642E+00	116	8.06229E-04	1	379
1.89723E+00	117	8.06229E-04	1	380
1.89803E+00	118	8.06229E-04	1	381
1.89855E+00	119	5.13253E-04	1	410
1.89906E+00	120	5.13253E-04	1	411
1.89957E+00	121	5.13253E-04	1	412
1.89973E+00	122	1.51139E-04	1	423
1.89997E+00	123	2.44052E-04	1	442
1.90003E+00	124	5.67940E-05	1	475
1.90008E+00	125	5.67940E-05	1	476
5.05596E+00	187	2.64528E-01	4	645

NFE = Number of Function Evaluation

위의 결과를 볼때 GEAR이 계단입력 변화에 대처할 수 있는 능력이 있으며 효율이 좋을음을 알 수 있다. 또한 LMS방법이 불연속이나 계단변화를 대처하도록 제안되는 방법은 그 구간을 적분차수 1차로 하는 것인데, 이를 잘 실행하고 있다.

##### (2) 재순환 흐름이 없는 경우의 비교

위의 예제문제의 경우에 대하여, 동시적분(simultaneous) 방법과 1,2번과 3,4번 탱크를 각각의 블록(cluster)로 묶어 순차적분(sequential integration)를 시행하였다. 이때 다음의 3가지 다른 전략을 사용하여 비교하였다.

1. 블록1에서의 예측값을 블록2의 수정계산시 사용
2. 블록1의 최종 수정된 값을 블록2의 수정계산에 사용
3. 블록1의 예측값을 블록2의 첫번째 수정계산시 사용하고 다음의 반복계산시에는 수정된값을 사용

어느정도 예측할 수 있듯이 2.의 전략이 가장 좋은 결과를 나타내었다. 그래서 이 방식을 시뮬레이터에 사용하였다.

Table 2. 재순환이 없는 경우의 동시적분과 순차적분의 비교

- 100 hrs, RMS error = 0.001

	NSTEP	NFE
동시 적분	154	648
순차 적분	154	458

재순환 흐름(recycle stream)이 없는 경우에는 순차적분 방식이 유리하다. 이는 한번의 Jacobian 계산시에 동시적분에서는 (11X11)번의 개별적인 함수값이 계산되나, 순차적분에서는 (6X6+5X5)번으로 훨씬 유리하기 때문이다.

### (3) 재순환 흐름이 존재할 경우의 비교

위의 예제를 다음과 같이 재순환 흐름이 존재하도록 바꾸고 각 스트림의 유량을 조절하였다.

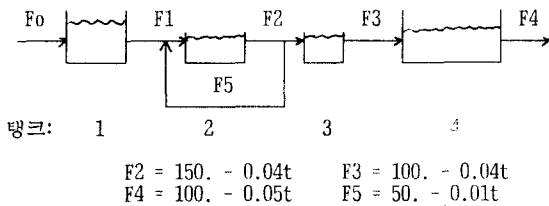


Fig. 9 재순환흐름을 포함한 4-탱크 공정

- 1,2탱크를 블럭1으로 3,4번 탱크를 블럭2로 하여 순차적분을 하기위한 5가지전략을 시험하였다. 1,2,3전략은 (2)의 경우와 같고 여기에 다음의 4,5전략을 추가한다.
- 3를 시행한 후 각 적분 구간의 마지막에 재순환흐름과 스트림2에 대한 최종 수정된 값을 가지고 한번 더 수정치 반복계산을 해준다. (extra-corrector)
- 2을 시행한 후 4와 같은 extra-corrector계산을 한다.

이들 전략들에 대한 시뮬레이션 결과를 종합하면 다음의 그림과 같다. 즉 사용자가 정해준 오차한계(rms error tolerance)가 작아지면 동시수렴법이 제일 효율적이며, 순차 적분법을 사용할 경우 5번 전략이 제일 유리하다. 그래서 이 방법을 순차 적분법의 기본으로 삼았다. 즉 모든 블럭의 수정값 계산이 끝나면 마지막으로 수정된 값을 가지고 모든 블럭에 대하여 수정값 계산을 한번더 하여준다.

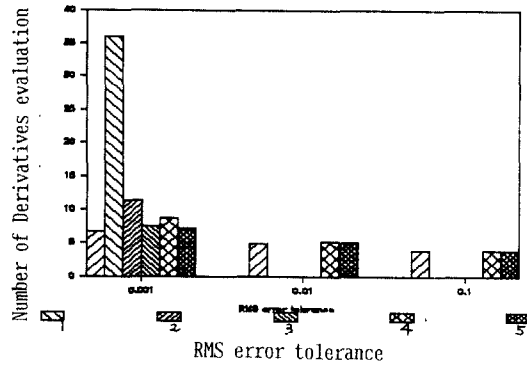


Fig. 10 재순환흐름이 존재할 경우의 각 전분전략 비교

## 5. 결론 및 검토

화학공정 비정상상태 모사기를 개발하는데 있어서 기본적인 시뮬레이터의 구조를 확립하였고, 적분전략의 선택에 있어서 유연성을 가진 적분루틴을 개발하였다. 재순환흐름이 없는 공정의 경우는 동시 적분법 보다는 순차 적분법이 훨씬 효율적 인데, 그이유는 규모가 좀더 작은 Jacobian행렬을 다루기 때문이다. 재순환흐름이 존재하여 장치들 상호간의 커플링이 심하면, 동시 적분법이 그 정확도와 계산면에서 탁월하다. 또한 순차 적분시에 extra-corrector를 행하여 그 효율을 증가시킬 수 있다.

화학공정의 비정상상태 모사는 많은 문제점들을 가지는데, 예를 들어 수송지연이 크고, 많은양의 열역학계산이 필요하며, 대규모 공정을 모사하기 위한 수치해법적인 기법, 초기값의 설정문제, 정확한 동특성 모델식의 개발등, 이들 문제점들을 극복하기 위한 연구가 진행되어야 한다.

## 6. 참고 문헌

- (1) Gary K. Patterson and Rudolph B. Rozsa, DYNOSYL: A general-purpose dynamic simulator for chemical processes, Comput. and chem. Engng. Vol.4, 1980
- (2) Selahattin Kuru, Dynamic Simulation with an Equation-based Flowsheeting System, PhD. thesis, Carnegie-Mellon, 1981
- (3) John Charles Fagley, Flexibility and Efficiency in Modular Dynamic chemical plant simulation, PhD. thesis, Univ. of Michigan, 1984
- (4) Yin-Chang Liu and Coleman B. Brosilow, Simulation of Large Scale Dynamic Systems-I. Modular integration methods, Comput. and chem. Engng. Vol. 11, No. 3, 1987
- (5) W. Jeffrey Cook, John Klatt and Coleman B. Brosilow, Simulation of Large Scale Dynamic Systems-II. A modular-simulator for the dynamics of distillation systems, Comput. and chem. Engng. Vol. 11, No. 3, 1987