

Bericht für die Max-Buchner-Forschungsförderung
Forschungsarbeiten 2004/2005
Bewertung und iterative Verbesserung von
rigoros-empirischen Hybridmodellen

Dipl.-Ing. O. Kahrs
Prof. Dr.-Ing. W. Marquardt
Lehrstuhl für Prozesstechnik, RWTH Aachen

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird der Gültigkeitsbereich stationärer Hybridmodelle definiert, der essentiell für eine erfolgreiche Prozessoptimierung ist. Darauf basierend wird eine inkrementelle Identifikations- und Optimierungsstrategie vorgestellt, die den Zeit- und Kostenaufwand der Prozessoptimierung senken kann. Dies wird am Simulationsbeispiel eines Ethylenglykol-Prozesses demonstriert.

1 Einleitung

Die modellbasierte Optimierung ist ein wichtiges Werkzeug zur Steigerung der Wirtschaftlichkeit, Sicherheit und ökologischen Verträglichkeit eines verfahrenstechnischen Prozesses. Die Modellierung ist jedoch aufwändig, wenn in dem Prozess komplizierte und teilweise unverstandene physikalische Phänomene ablaufen.

Als illustrierendes Beispiel betrachten wir den in Abb. 1 skizzierten Prozess zur Herstellung von Ethylenglykol (*EG*) aus Ethylenoxid (*EO*) und Wasser (*H₂O*). Die Edukte reagieren im Reaktor zu *EG*, Diethylenglykol (*DEG*) und Triethylenglykol (*TEG*). Unverbrauchte Edukte werden im Phasentrennapparat von den Glykolen getrennt und zum Reaktor rückgeführt.

Im Rahmen dieser Arbeit nehmen wir an, dass allein die Reaktionskinetik in diesem Prozess nicht exakt bekannt ist. Unbekannte Reaktionskinetiken sind typisch für biotechnologische Prozesse sowie katalysierte Reaktionen, bei denen die Aktivität der Katalysatoren von zahlreichen Einflussgrößen abhängen kann. Für eine modellbasierte Optimierung des Prozesses ist es notwendig, die chemischen Reaktionen zu modellieren. Da eine rigorose Modellierung der Kinetik mittels einer Laboranalyse kosten- und zeitaufwändig ist, wird diese hier durch ein leicht zu erstellendes empirisches Kinetikmodell beschrieben. Hierzu wurden in dieser Arbeit neuronale Netze [4] verwendet, da sie im Gegensatz zu den häufig verwendeten Potenzmodellen kein a priori Wissen in das Identifikationsproblem einbringen und flexibel an Messdaten angepasst werden können. Das resultierende stationäre Prozessmodell $\mathbf{f}(\mathbf{u}, \mathbf{x}, \mathbf{p}) = \mathbf{0}$ besteht somit aus zwei verschiedenen Modellarten: den rigorosen Teilmodellen für bekannte Phänomene, wie z.B. die

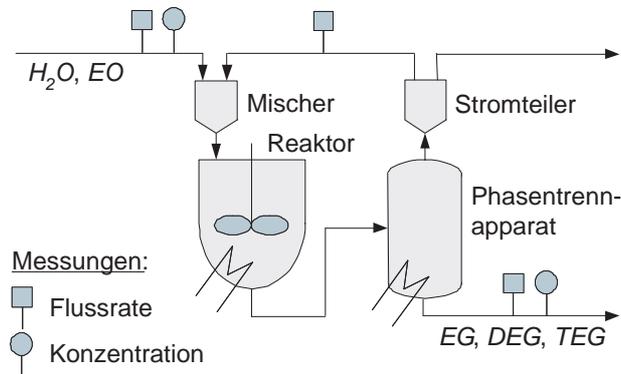


Abbildung 1: Fließbild des EG-Prozesses.

Massenbilanzen, und empirischen Teilmodellen für die unbekannte Reaktionskinetik. Hier bezeichnen \mathbf{u} unabhängige Variablen, \mathbf{x} abhängige Variablen und \mathbf{p} Parameter des Hybridmodells.

Am Beispiel eines ideal durchmischten semi-batch Bioreaktors wurde in [7] durch Simulationsstudien gezeigt, dass ein solches Hybridmodell im Vergleich zu einem rein empirischen Modell (Black Box) über einen größeren Gültigkeitsbereich verfügt und extrapolierbar ist, d.h. auch außerhalb des Bereiches, in dem Messdaten verfügbar sind, zuverlässig das Betriebsverhalten des Bioreaktors vorhersagen kann.

Der Gültigkeitsbereich des Hybridmodells ist jedoch nicht universell und muss insbesondere während der Lösung eines Optimierungsproblems berücksichtigt werden [3]. Aus diesem Grund werden im Abschnitt 2 zunächst zwei sich gegenseitig ergänzende Ansätze zur Bestimmung der Gültigkeit des Hybridmodells vorgestellt. Diese werden anschließend im Abschnitt 3 zur Formulierung eines auf den Gültigkeitsbereich des Hybridmodells beschränkten Optimierungsproblems eingesetzt. Während des Betriebs des Prozesses eingesetzt, kann das Hybridmodell laufend mit Messdaten aktualisiert und basierend darauf der Prozess erneut optimiert werden. Diese inkrementelle Identifikations- und Optimierungsstrategie wird im Abschnitt 4 am Beispiel des simulierten EG-Prozesses veranschaulicht. Im Abschnitt 5 werden die Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick auf angestrebte Weiterentwicklungen gegeben.

2 Gültigkeitsbereich des Hybridmodells

Nachdem die Parameter $\hat{\mathbf{p}}$ des Hybridmodells mit Hilfe eines Messdatensatzes geschätzt wurden, stellt sich die Frage, für welche Werte der unabhängigen Variablen \mathbf{u} die Vorhersage des Hybridmodells gültig ist. Um die Gültigkeit der Vorhersage des Hybridmodells zu überprüfen, werden in dieser Arbeit zwei sich gegenseitig ergänzende Ansätze, die für neuronale Netze bzw. für allgemeine nichtlineare Regressionsmodelle entwickelt wurden, auf die Hybridmodellierung übertragen. Beide Ansätze basieren auf der Annahme, dass die rigorosen Teilmodelle sowie die Verschaltung der empirischen und rigorosen Teilmodelle zu einem Hybridmodell die physikalischen Zusammenhänge korrekt wiedergeben.

2.1 Interpolationsbereiche der empirischen Teilmodelle

Unter der Annahme, dass ein empirisches Modell in dem Datenbereich gültig ist, in dem es die Identifikationsdaten interpoliert, kann der Gültigkeitsbereich durch die konvexe Hülle der Identifikationsdaten mathematisch exakt abgeschätzt werden [2]. Die konvexe Hülle wird durch die Ungleichung

$$A^h \mathbf{u}^h \leq \mathbf{b}^h \quad (1)$$

beschrieben, wobei \mathbf{u}^h den Vektor der Eingangsvariablen des h -ten empirischen Teilmodells bezeichnet. Eine detaillierte Beschreibung der Berechnung der konvexen Hülle, deren Rand durch die Matrix A^h und den Vektor \mathbf{b}^h definiert ist, ist in [3] dokumentiert. Zur Veranschaulichung sei auf Abb. 3 verwiesen, welche die konvexen Hüllen der drei empirischen Teilmodelle des EG-Prozesses zeigt.

Eine Voraussetzung für die Gültigkeit des Hybridmodells ist, dass die Werte der Eingangsvariablen der empirischen Teilmodelle innerhalb der jeweiligen konvexen Hülle liegen. Falls die empirischen Teilmodelle über sehr große Datenlücken interpolieren müssen oder die Eingangsvariablen verschiedener empirischer Teilmodelle stark miteinander korreliert sind, kann dieses Kriterium jedoch ungenaue Vorhersagen liefern [3].

2.2 Konfidenzintervalle der Hybridmodellvorhersage

Zur Berechnung von Konfidenzintervallen für die Hybridmodellvorhersage wurde der Maximum Likelihood (ML) Ansatz angewendet [3], der bereits für rigorose Modelle [1] und neuronale Netze [5] verwendet wird. Dieser berücksichtigt im Gegensatz zum konvexe-Hülle-Kriterium auch die Verteilung der Identifikationsdaten bei der Bestimmung der Gültigkeit der Modellvorhersage. Die Anzahl der Neuronen in den neuronalen Netzen sollte sorgfältig an den Datensatz angepasst werden, um grobe Modellfehler zu vermeiden [5]. Da der ML-Ansatz auf einer Linearisierung des Prozessmodells und Annahmen über die statistische Verteilung der Messfehler beruht, sollten die Aussagen nicht als quantitativ exakt angesehen werden. Falls genauere Aussagen gewünscht sind, kann z.B. auf die rechenzeitintensivere Bootstrap-Methode zurückgegriffen werden [5].

3 Prozessoptimierung innerhalb des Gültigkeitsbereichs des Hybridmodells

Um die Gültigkeit des Hybridmodells während einer Prozessoptimierung sicherzustellen, können beide Gültigkeitskriterien verwendet werden [3]. Numerisch effizient lässt sich insbesondere die folgende, auf dem konvexe-Hülle-Kriterium basierende Formulierung verwenden:

$$\begin{aligned} \min_{\mathbf{u}} \quad & \Phi(\mathbf{u}, \mathbf{x}, \hat{\mathbf{p}}) & (2) \\ \text{s.t.} \quad & \mathbf{f}(\mathbf{u}, \mathbf{x}, \hat{\mathbf{p}}) = \mathbf{0} \\ & \mathbf{g}(\mathbf{u}, \mathbf{x}, \hat{\mathbf{p}}) \leq \mathbf{0} \\ & A^h \mathbf{u}^h \leq \mathbf{b}^h \quad \forall h = 1, \dots, m \\ & \mathbf{u}_u \leq \mathbf{u} \leq \mathbf{u}_o \\ & \mathbf{x}_u \leq \mathbf{x} \leq \mathbf{x}_o. \end{aligned}$$

In diesem Optimierungsproblem wird die Gütefunktion $\Phi(\mathbf{u}, \mathbf{x}, \hat{\mathbf{p}})$, z.B. die Betriebskosten eines Prozesses, durch Variation der Stellgrößen des Prozesses \mathbf{u} minimiert. Hierbei müssen die möglicherweise vorhandenen Ungleichungsnebenbedingungen $\mathbf{g}()$ sowie Schranken für die Variablen eingehalten werden. Die Gültigkeit des Hybridmodells wird durch Hinzufügen von Gl. (1) für alle $h = 1, \dots, m$ empirischen Teilmodelle sichergestellt, wobei die Eingangsvariablen der empirischen Teilmodelle eine Teilmenge der Variablen des Hybridmodells sind, d.h. $\mathbf{u}^h \in [\mathbf{u}, \mathbf{x}]$.

Falls am Lösungspunkt von Gl. (2) eine oder mehrere der Gültigkeitsbeschränkungen aktiv sind, kann die Lösung möglicherweise weiter verbessert werden. Hierzu werden zunächst neue Messungen in der Nähe des optimalen Betriebspunktes durchgeführt, mit denen der Gültigkeitsbereich ausgedehnt werden kann. Mit dem aktualisierten Hybridmodell wird anschließend die Optimierung fortgesetzt. Diese inkrementelle Identifikations- und Optimierungsstrategie wird fortgesetzt bis ein unbeschränktes Prozessoptimum erreicht ist.

4 Inkrementelle Identifikation und Optimierung des EG-Prozesses

In diesem Abschnitt wird die inkrementelle Identifikations- und Optimierungsstrategie zur Steigerung der Ausbeute des EG-Prozesses eingesetzt. Der EG-Prozess wird an einem nominellen Betriebspunkt betrieben, der in Tab. 1 spezifiziert ist. Bedingt durch den vorgelagerten Prozess zur Herstellung des Ethylenoxids variiert der Stoffmengenstrom und die Zusammensetzung des Eduktstroms um den nominalen Betriebspunkt herum. Alle anderen Größen in Tab. 1 werden durch eine Regelung konstant gehalten.

Variable	Wert	Beschreibung
F_{ein}	2500* kmol/h	Stoffmengenstrom
$x_{ein,EO}$	0.25* mol/mol	EO-Konzentration im Eduktstrom
$T_{Reaktor}$	295 K	Reaktortemperatur
$V_{Reaktor}$	288.9 m ³	Flüssigkeitsvolumen im Reaktor
T_{trenn}	335 K	Temperatur im Phasentrennapparat
p_{trenn}	30 kPa	Druck im Phasentrennapparat
ω	0.97	Anteil des rückgeführten Dampfstroms

Tabelle 1: Nomineller Betriebspunkt des EG-Prozesses. Die mit einem * markierten Größen schwanken um den nominellen Betriebspunkt herum.

Abb. 2 zeigt die Struktur des Hybridmodells. Es besteht aus einem rigorosen und drei neuronalen Netzen N_i , welche die drei Reaktionsraten r_i mit $i = 1, \dots, 3$ in Abhängigkeit der Konzentrationen c_j mit $j \in \{H_2O, EO, EG, DEG\}$ im Reaktor beschreiben. F_{aus} und \mathbf{x}_{aus} bezeichnen den Stoffmengenstrom und die Konzentration des Produktstroms, sowie $F_{recycle}$ den rückgeführten Stoffmengenstrom. Zusätzlich zu den Größen in Tab. 1 werden diese Variablen gemessen (vgl. Abb. 1).

Basierend auf der rigorosen Reaktionskinetik aus [6] werden 50 simulierte Messdatenpunkte (vgl. Abb. 4) für die Identifikation des Hybridmodells erzeugt.

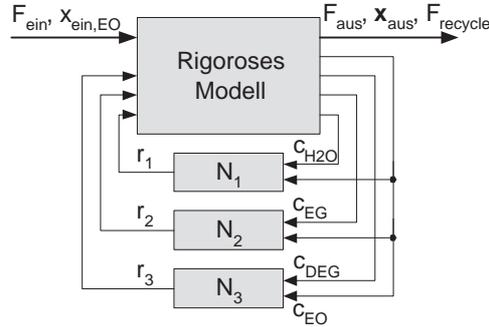


Abbildung 2: Hybridmodellstruktur des EG-Prozesses.

Die Simulationsergebnisse werden mit einem normalverteilten Messfehler verrauscht, um die Identifikation des Hybridmodells realistischer zu machen.

4.1 Vergleich der Gültigkeitskriterien für den EG-Prozess

Nachdem das Hybridmodell durch einen ML-Ansatz identifiziert wurde [3], wird mittels der vorgestellten Kriterien dessen Gültigkeitsbereich analysiert. Für das konvexe-Hülle-Kriterium werden zunächst die drei konvexen Hüllen der empirischen Kinetikmodelle für den Identifikationsdatensatz bestimmt, die in Abb. 3 gezeigt sind. Hieraus lässt sich nun der Gültigkeitsbereich ϕ_{KH} des Hybridmodells bestimmen, der in Abb. 4 als gepunktete Fläche dargestellt ist. In Abb. 4a) ist der Gültigkeitsbereich als Funktionen von $x_{ein,EO}$ und F_{ein} dargestellt, wobei die Temperatur im Phasentrennapparat T_{trenn} konstant auf 335 K gehalten wird. In der $(x_{ein,EO}, F_{ein})$ -Ebene ist das Hybridmodell nur innerhalb des Messdatenbereichs gültig. Zum Vergleich ist der Vorhersagefehler des Hybridmodells für die EG-Konzentration im Produktstrom als Konturdiagramm dargestellt, wobei helle Grautöne einen kleinen Fehler kennzeichnen. Obwohl der Vorhersagefehler für die EG-Konzentration in manchen Bereichen auch außerhalb des Gültigkeitsbereichs klein ist, kann dies nicht garantiert werden.

Abb. 4 b) zeigt, dass das Hybridmodell extrapoliert werden kann. Obwohl die Temperatur im Identifikationsdatensatz konstant auf 335 K gehalten wurde,

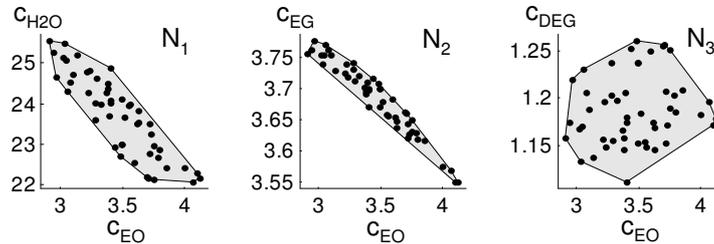


Abbildung 3: Konvexe Hüllen (graue Flächen) der Eingangsdaten der drei empirischen Teilmodelle des Hybridmodells.

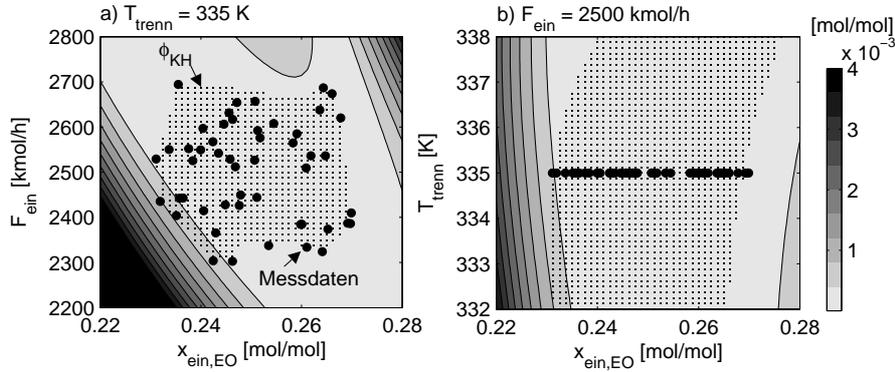


Abbildung 4: Gültigkeitsbereich ϕ_{KH} des Hybridmodells nach dem konvexe-Hülle-Kriterium (gepunktete Flächen), Vorhersagefehler der EG-Konzentration im Produktstrom (Konturdiagramme) und Messdaten (Punkte) in der $(x_{ein,EO}, F_{ein})$ -Ebene und in der $(x_{ein,EO}, T_{trenn})$ -Ebene.

kann das Hybridmodell für abweichende Werte das Prozessverhalten zuverlässig vorhersagen.

In Abb. 5 sind die Konfidenzintervalle für die vorhergesagte EG-Konzentration als Konturdiagramm dargestellt. Auch dieses Kriterium zeigt, dass in der $(x_{ein,EO}, F_{ein})$ -Ebene das Hybridmodell nur im Messdatenbereich gültig ist, wohingegen es in der $(x_{ein,EO}, T_{trenn})$ -Ebene extrapoliert werden kann. Für dieses Beispiel kann die Gültigkeit des Hybridmodells somit durch beide Kriterien korrekt bestimmt werden.

4.2 Optimierung der Ausbeute des EG-Prozesses

Die Ausbeute $Y = \frac{x_{out,EG} F_{out}}{x_{in,EO} F_{in}}$ des EG-Prozesses soll durch eine Änderung des Wasser-Eduktstroms $x_{in,EO} F_{in}$, der Temperatur im Phasentrennapparat T_{trenn} und dem Flüssigkeitsvolumen im Reaktor $V_{Reaktor}$ optimiert werden. Die Ausbeute beträgt am nominellen Betriebspunkt nur 42,8% und kann im ersten Optimierungsschritt durch Änderung der Prozessgrößen auf die Werte in Tab. 2 auf 47,7% gesteigert werden. Hier zeigt sich der Vorteil der Hybridmodell-basierten

Variable	vor der Opt.	nach 1. Opt.	nach 2. Opt.
Y [%]	42,8	47,7	55,2
F_{ein} [kmol/h]	2500	1768	1828
$x_{ein,EO}$ [mol/mol]	0,25	0,35	0,34
T_{trenn} [K]	335,0	350,2	350,8
$V_{Reaktor}$ [m ³]	289	324	257

Tabelle 2: Betriebspunkte vor, nach der ersten und nach der zweiten Prozessoptimierung.

Prozessoptimierung im Vergleich zu einer Optimierung mit einem Black Box-Prozessmodell, da die Prozessgrößen auf Werte geändert werden können, die

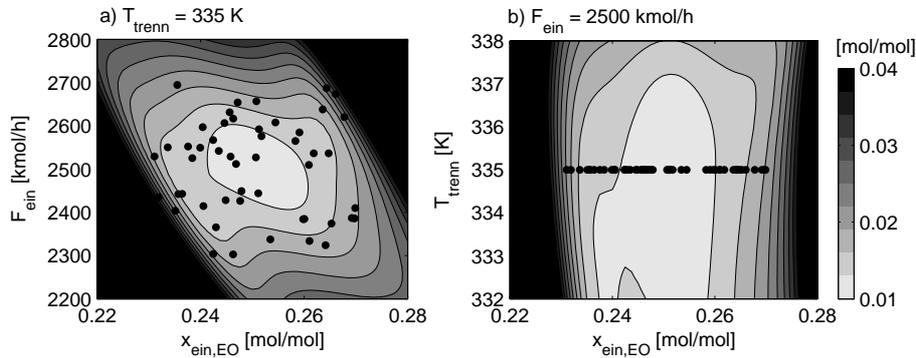


Abbildung 5: Konfidenzintervall der vorhergesagten EG-Konzentration im Produktstrom (Konturdiagramme) und Messdaten (Punkte) in der $(x_{ein,EO}, F_{ein})$ -Ebene und in der $(x_{ein,EO}, T_{trenn})$ -Ebene.

weit entfernt von gemessenen Betriebspunkten liegen (vgl. Tab. 2). Während der Optimierung wird die Gültigkeit des Hybridmodells durch das konvexe-Hülle-Kriterium sichergestellt. Das Konfidenzintervall mit einem Signifikanzniveau von 95% beträgt für die optimierte Ausbeute $47.68 \pm 0.52\%$ und bestätigt somit die Gültigkeit der Lösung.

Nachdem neue Messdaten in der Nähe des optimalen Betriebspunktes verfügbar sind, wird das Hybridmodell aktualisiert und erneut optimiert. Hierdurch lässt sich die Ausbeute auf 55,2% steigern. Diese inkrementelle Identifikations- und Optimierungsstrategie wird fortgesetzt bis ein Betriebspunkt erreicht ist, der nicht mehr am Rande des Gültigkeitsbereiches liegt. Weitere Details zu diesem Beispiel sind in [3] dokumentiert.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Die modellbasierte Optimierung ist ein wichtiges Werkzeug zur Steigerung der Wirtschaftlichkeit, Sicherheit und ökologischen Verträglichkeit eines verfahrenstechnischen Prozesses. Die aufwändige rigorose Modellierung eines komplizierten und teilweise unverstandenen Prozesses kann durch die Kombination vorhandenen Modellwissens mit Messdaten zu einem Hybridmodell umgangen werden.

Im Vergleich zu einem rein empirischen Modell (Black Box) kann ein Hybridmodell einen größeren Gültigkeitsbereich besitzen, für dessen Abschätzung in dieser Arbeit zwei sich gegenseitig ergänzende Kriterien entwickelt wurden. Beide Ansätze basieren auf der Annahme, dass die rigorosen Teilmodelle sowie die Verschaltung der empirischen und rigorosen Teilmodelle zu einem Hybridmodell die physikalischen Zusammenhänge korrekt wiedergeben. Die Gültigkeit des Hybridmodells basierend auf dem konvexe-Hülle-Kriterium verlangt, dass die empirischen Teilmodelle bekannte Betriebspunkte des Prozesses interpolieren. Beim zweiten Kriterium liefern Konfidenzintervalle Aufschluss über die Verlässlichkeit der Hybridmodellvorhersage. Da beide Gültigkeitskriterien unter gewissen Umständen zu ungenauen Aussagen führen können, sollten sie beide ausgewertet werden [3].

Basierend auf den Gültigkeitskriterien wurde eine inkrementelle Identifikations- und Optimierungsstrategie vorgestellt, die den Zeit- und Kostenaufwand einer Prozessoptimierung senken kann. Anstatt ein rigoroses Prozessmodell mit einem möglichst universellen Gültigkeitsbereich zu erstellen, wird zunächst aus dem vorhandenen Modellwissen und Messdaten ein Hybridmodell erstellt, dessen Gültigkeitsbereich anschließend in Bezug auf eine Optimierungsgröße in Richtung des Prozessoptimums erweitert wird. Diese Strategie wurde im Simulationsbeispiel zur Optimierung der Ausbeute eines EG-Prozesses illustriert.

In zukünftigen Arbeiten soll die vorgestellte Methode auf dynamische Systeme übertragen werden. Um den Gültigkeitsbereich des Modells zielgerichtet zum Prozessoptimum hin zu erweitern, soll die inkrementelle Identifikations- und Optimierungsstrategie um eine Versuchsplanung erweitert werden.

Literatur

- [1] D.M. Bates and D.G. Watts. *Nonlinear Regression Analysis and its Applications*. XXXI. Wiley Sons, New York, 1988.
- [2] P. Courrieu. Three algorithms for estimating the domain of validity of feed-forward neural networks. *Neural Networks*, 7(1):169–174, 1994.
- [3] O. Kahrs and W. Marquardt. The validity domain of hybrid models and its application in process optimization. *Submitted to: Chemical Engineering and Processing*, 2006.
- [4] D.J.C. MacKay. *Information Theory, Inference & Learning Algorithms*. Cambridge University Press, Cambridge, 2002.
- [5] G. Papadopoulos, P.J. Edwards, and A.F. Murray. Confidence estimation methods for neural networks: A practical comparison. *IEEE T. Neural Networ.*, 12(6):1278–1287, 2001.
- [6] W.A. Parker and J.W. Prados. Analog computer design of an ethylene glycol system. *Chem. Eng. Prog.*, 60(6):74–78, 1964.
- [7] D.C. Psychogios and L.H. Ungar. A hybrid neural network - first principles approach to process modeling. *AIChE J.*, 38(10):1499–1511, 1992.