



Modellreduktion von Populationssystemen mit Hilfe von Proper Orthogonal Decomposition

Model Reduction of Population Balance Systems by Proper Orthogonal Decomposition

Michael Mangold, Max-Planck-Institut für Dynamik komplexer technischer Systeme, Magdeburg,
Mykhaylo Krasnyk, Donetsk National Technical University, Faculty of Computer Science and Technology,
Donetsk, Ukraine

Zusammenfassung Der Beitrag beschreibt den Einsatz der Proper Orthogonal Decomposition (POD) für die Modellreduktion von Partikelprozessen in fluider Strömung. Diese Prozessklasse ist von großer Bedeutung für die chemische und pharmazeutische Industrie. Physikalische Modelle solcher Prozesse sind häufig sehr komplex und für Regelungsaufgaben wenig geeignet. POD bietet hier eine attraktive Möglichkeit, zu reduzierten Prozessmodellen zu gelangen, da das Verfahren sehr flexibel ist, keine spezielle Struktur des Referenzmodells erfordert und interne und externe Koordinaten in einheitlicher Weise behandelt. Der Beitrag stellt das Reduktionsverfahren

vor und illustriert es an Beispielen. ▶▶▶ **Summary** This paper discusses the application of Proper Orthogonal Decomposition (POD) to the model reduction of particle processes in fluid flow. This class of processes is highly relevant for chemical and pharmaceutical industry. As detailed first principle models of such processes tend to be very complicated, reduced models are required for process control and process design. POD is an attractive method to obtain the reduced models, as it is highly flexible, does not require a special structure of the reference model and treats internal and external coordinates in the same manner. The method is presented and illustrated by examples.

Schlagwörter Partikelsysteme, Populationsbilanzen, Modellreduktion, Proper Orthogonal Decomposition ▶▶▶
Keywords Particle systems, population balances, model reduction, Proper Orthogonal Decomposition

1 Einleitung

Partikelprozesse sind in der chemischen und pharmazeutischen Industrie von großer Bedeutung. Die überwiegende Mehrzahl der Produkte in diesen Industrien wird in partikulärer Form hergestellt [26]. Typische Prozessbeispiele sind die Kristallisation, die Granulation oder auch die Polymerisation. Daneben kommen Partikelprozesse auch als Zwischenstufen von Produk-

tionsprozessen vor, z. B. bei der Stoffgemischtrennung durch Kristallisation.

Partikelprozesse bestehen typischerweise aus der eigentlichen dispersen Phase und einer fluiden Phase, die mit der dispersen Phase in Austausch steht. Wesentliche Vorgänge innerhalb der dispersen Phase sind die Entstehung von Partikeln (Nukleation), ihre Aufteilung in kleinere Partikel (Bruch) und die Vereinigung

von Partikeln zu größeren Einheiten (Aggregation). Zur Beschreibung von dispersen Phasen mit einer großen Anzahl von Partikeln haben sich Populationsbilanzen bewährt [23]. Partikuläre Systeme lassen sich damit in recht allgemeiner Form durch den folgenden Satz an Modellgleichungen beschreiben¹ (siehe z. B. [7; 10; 20]):

- Populationsbilanz der dispersen Phase:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial L_j} (G_j f)}_{\text{Wachstum}} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_k} (v_k f + j_k^f)}_{\text{Konvektion/Diffusion}} = \underbrace{\int_{\Omega_L} h_{br} dV_L}_{\text{Zerteilung}} + \underbrace{\int_{\Omega_L} h_{agg} dV_L}_{\text{Vereinigung}} \quad (1)$$

Dabei ist f die Anzahldichtefunktion der betrachteten Population; L_j bezeichnet die internen (Eigenschafts-) Koordinaten wie z. B. die charakteristische Partikelgröße, x_k bezeichnet die externen (Geometrie-) Koordinaten. G_j ist die Wachstumsrate in Richtung der Koordinate L_j , v_k ist die Strömungsgeschwindigkeit in Richtung der Koordinate x_k , j_k^f bezeichnet den Diffusionsstrom in Richtung von x_k . Partikelzerteilung und -vereinigung werden durch nichtlineare Funktionen h_{br} und h_{agg} beschrieben.

- Massen- und Energiebilanzen der kontinuierlichen Phase:

$$\frac{\partial(\rho s_l)}{\partial t} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_k} (\rho v_k s_l + j_{lk}^s)}_{\text{Konvektion/Diffusion}} = \underbrace{\int_{\Omega_L} J_l^s dV_L}_{\text{Austausch mit disperser Phase}} + \underbrace{\sigma_L(s)}_{\text{chemische Reaktion}} \quad (2)$$

Dabei ist ρ die Massendichte der fluiden Phase und s_l steht für eine spezifische Zustandsgröße (innere Energie, Massenanteil); j_{lk}^s bezeichnet einen Diffusionsstrom und J_l^s einen Austausch mit der dispersen Phase.

- Impulsbilanzen der kontinuierlichen Phase:

$$\frac{\partial(\rho v_m)}{\partial t} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_k} (\rho v_k v_m + \pi_{mk})}_{\text{Konvektion/Diffusion}} = \underbrace{\int_{\Omega_L} J_m^v dV_L}_{\text{Austausch mit disperser Phase}} + \underbrace{\rho g_m}_{\text{Volumenkraft}} \quad (3)$$

Dabei bezeichnet π_{mk} den Spannungstensor.

Aufgrund der hohen Komplexität des Gleichungssystems (1)–(3) ist bereits dessen numerische Lösung

¹ Zur übersichtlicheren Darstellung wird in Gleichung (1)–(3) die Einsteinsche Summenkonvention verwendet, d. h. Summationen werden durch Indizes angezeigt, Summationszeichen werden unterdrückt.

außerordentlich anspruchsvoll und Gegenstand aktueller mathematischer Forschung, z. B. [7]. Eine numerische Lösung in Echtzeit ist bei Systemen mit mehreren Orts- oder Eigenschaftskordinaten kaum noch möglich, so dass für modellgestützte Regelungsverfahren wie z. B. modellprädiktive Regelung vereinfachte Modelle benötigt werden. Reduzierte Modelle erleichtern zudem den Regelungsentwurf und erweitern das Spektrum anwendbarer Entwurfsverfahren.

Zur Herleitung reduzierter Modelle werden interne und externe Koordinaten meist getrennt betrachtet. Um die Abhängigkeit von externen Koordinaten zu vereinfachen, wird meist von stark idealisierten Strömungsverhältnissen wie idealer Durchmischung ausgegangen, oder es wird versucht, die Strömung in der fluiden Phase durch Compartment-Modelle anzunähern. Eine Möglichkeit zur Reduktion der internen Koordinaten besteht darin, das Referenzmodell zu diskretisieren und dann das resultierende endlich-dimensionale Modell zu reduzieren [2; 21]. Eine weit verwendete Alternative ist der Einsatz von Momentenmethoden [18]. Damit erhält man zwar reduzierte Modelle sehr niedriger Ordnung. Diese geben jedoch nur noch Auskunft über die Momente einer Population und nicht mehr über die vollständige Verteilung, was bei multi-modalen Verteilungen nachteilig sein kann.

In diesem Beitrag wird die Methode der *Proper Orthogonal Decomposition* (POD) als Reduktionsmethode für Partikelprozesse vorgeschlagen. Diese Methode wurde in den letzten Jahren sehr erfolgreich zur Modellreduktion und Regelung von Strömungsprozessen eingesetzt, die mit Navier-Stokes-Gleichungen beschrieben werden können. Eine Übersicht über den aktuellen Stand der Arbeiten auf diesem Gebiet findet man in [8; 9]. Bei der Anwendung der Methode auf Partikelprozesse stellen sich aber neue Herausforderungen, insbesondere da die nichtlinearen Terme, die in solchen Modellen auftreten, schwieriger zu behandeln sind als die bilinearen Ausdrücke in den Navier-Stokes-Gleichungen.

Im folgenden Kapitel werden die wesentlichen Schritte der Modellreduktionsmethode kurz vorgestellt und an einem sehr einfachen Reaktions-Diffusions-System illustriert. In Kapitel 3 und 4 wird die Methode auf zwei Partikelprozesse, einen Granulationsprozess sowie einen Kristallisationsprozess angewandt. Am Beispiel des Granulationsprozesses wird gezeigt, dass sich das POD-Verfahren sehr gut dafür eignet, um die Integralterme zu vereinfachen, die aufgrund der Partikelaggregation in der Populationsbilanz auftreten. Das in Kapitel 4 diskutierte System ist ein Technikumskristallisator zur Produktion von Harnstoff. Dieses Beispiel soll zeigen, dass mit Hilfe von POD eine sehr starke Reduktion der Systemordnung erreicht werden kann.

2 Modellreduktionsmethode

Die Methode der Proper Orthogonal Decomposition [15; 22; 24] kann grob in zwei Teilschritte unter-

gliedert werden. Der erste Schritt, die Offline-Phase, umfasst die Modellreduktion vorbereitende numerische Berechnungen, zu denen die Lösung des vollständigen Referenzmodells und weitere Operationen auf dem Ortsgitter des Referenzmodells gehören. Je nach Komplexität des Referenzmodells ist die Offline-Phase extrem rechenzeitintensiv. Diese Investition zahlt sich aber im zweiten Schritt, der Online-Phase aus. In der Online-Phase muss nur noch ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen sehr niedriger Ordnung, das eigentliche reduzierte Modell, gelöst werden.

Als Ausgangspunkt der Modellreduktion mit POD approximiert man die Zustände des Referenzmodells durch einen Reihenansatz, der Produkte aus zeitabhängigen Funktionen und ortsabhängigen Funktionen enthält. So wird die Anzahldichtefunktion der Partikelpopulation $f(t, L, x)$ z. B. durch den folgenden Ausdruck angenähert:

$$f(t, L, x) \approx \sum_{i=1}^{N_f} f_i(t) \varphi_i^f(L, x) \quad (4)$$

Aus den zeitabhängigen Funktionen $f_i(t)$ werden im Weiteren die Zustände des reduzierten Modells. Die Anzahl der Reihenglieder N_f in (4) legt damit die Systemordnung des reduzierten Modells fest. Die Basisfunktionen $\varphi_i^f(L, x)$ sind unabhängig von der Zeit, können aber sowohl von den internen als auch den externen Koordinaten abhängen. Daraus wird deutlich, dass der Modellreduktionsansatz interne und externe Koordinaten in einheitlicher Weise behandelt. Für die Basisfunktionen $\varphi_i^f(L, x)$ könnte man klassischerweise z. B. Laguerre-Polynome wählen. Stattdessen konstruiert man beim POD-Verfahren aber spezielle orthogonale Basisfunktionen, die an das Problem angepasst sind und eine gute Approximation schon bei einer kleinen Anzahl N_f von Reihengliedern ermöglichen. Die problemangepassten Basisfunktionen werden aus numerischen Referenzlösungen des detaillierten Modells berechnet, die als Ergebnis dynamischer Simulationen in Form von Ortsprofilen $f(t_s, L, x)$ zu diskreten Zeitpunkten $t_s, s = 1, \dots, N_s$ vorliegen und häufig als *Snapshots* bezeichnet werden. Das Ziel ist, die Basisfunktionen so zu wählen, dass sie die Snapshots im Mittel bestmöglich approximieren. Dies kann als das folgende Optimierungsproblem für eine Basisfunktion φ_j^f formuliert werden:

$$\sum_{s=1}^{N_s} \left(f(t_s, L, x) - \left(f(t_s, L, x), \varphi_j^f(L, x) \right)_\Omega \varphi_j^f(L, x) \right) \quad (5)$$

$$f(t_s, L, x) - \left(f(t_s, L, x), \varphi_j^f(L, x) \right)_\Omega \varphi_j^f(L, x) \Big|_\Omega \stackrel{!}{=} \min$$

Dabei bezeichnet der Klammerausdruck $(\cdot, \cdot)_\Omega$ ein Skalarprodukt auf dem von den Koordinaten x und L aufgespannten Raum:

$$(f(x, L), g(x, L))_\Omega = \iint f(x, L) g(x, L) dx dL \quad (6)$$

Der Term $(f(t_s, L, x), \varphi_j^f(L, x)) = f_j^f(t_s)$ stellt die Projektion des Snapshots $f(t_s, L, x)$ auf die Basisfunktion $\varphi_j^f(L, x)$ dar.

Zur Skalierung der Basisfunktionen wird gefordert, dass die Lösung des Optimierungsproblems (5) noch die Nebenbedingung

$$\left(\varphi_j^f(L, x), \varphi_j^f(L, x) \right)_\Omega = 1 \quad (7)$$

erfüllt. Verwendet man für die Basisfunktionen den Ansatz

$$\varphi_j^f(L, x) = \sum_{s=1}^{N_s} f(t_s, L, x) v_{sj} \quad (8)$$

mit noch unbekanntem Koeffizienten v_{sj} , so lässt sich das Optimierungsproblem (5,7) mit Hilfe einer Lagrange-Funktion in das folgende Eigenwertproblem überführen [14]:

$$\underbrace{\begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} & \cdots & M_{1N_s} \\ M_{21} & M_{22} & \cdots & M_{2N_s} \\ \vdots & \ddots & & \vdots \\ M_{N_s,1} & M_{N_s,2} & \cdots & M_{N_s,N_s} \end{pmatrix}}_{=: \mathbf{M}} \underbrace{\begin{pmatrix} v_{1j} \\ v_{2j} \\ \vdots \\ v_{N_s j} \end{pmatrix}}_{=: \mathbf{v}_j} = \lambda_j \begin{pmatrix} v_{1j} \\ v_{2j} \\ \vdots \\ v_{N_s j} \end{pmatrix} \quad (9)$$

Dabei steht M_{ik} für das Skalarprodukt zweier Snapshots:

$$M_{ik} = (f(t_i, L, x), f(t_k, L, x))_\Omega \quad (10)$$

Da \mathbf{M} symmetrisch ist, sind ihre Eigenvektoren und auch die resultierenden Basisfunktionen orthogonal.

Die Eigenwerte λ_j können als Maß dafür interpretiert werden, wie relevant die Basisfunktion $\varphi_j^f(L, x)$ für die Reproduktion der Snapshots ist [5].

Die beschriebene Konstruktion der Basisfunktionen ist in der Regel rechenzeitintensiv. Aufwändige Schritte sind die Erzeugung der Snapshots durch Lösung des Referenzmodells, die Berechnung der Matrix \mathbf{M} sowie die Lösung des Eigenwertproblems (9). Alle diese Schritte laufen jedoch in der Offline-Phase ab und haben keine Auswirkung auf die eigentliche Lösung des reduzierten Modells. In der Online-Phase werden die Basisfunktionen in der Regel festgehalten. Eine Neuberechnung der Basisfunktionen kann allerdings notwendig sein, wenn sich die Modellparameter stark ändern, z. B. in einer Optimierungsrechnung [16].

Nachdem die Basisfunktionen festliegen, müssen in einem nächsten Schritt Differentialgleichungen für die zeitabhängigen Funktionen im Reihenansatz (4) aufgestellt werden. Dazu verwendet man das Galerkinsche Verfahren der gewichteten Reste: Der Reihenansatz (4) wird in die ursprüngliche Bilanzgleichung des Referenzmodells eingesetzt, im Beispiel der Anzahldichtefunktion also in die Populationsbilanz (1). Aus der Forderung, dass die Projektionen des entstehenden Residuums auf

die N_f Basisfunktionen verschwinden sollen, erhält man N_f Differentialgleichungen für die Unbekannten $f_i(t)$.

Die Auswertung der Differentialgleichungen für die $f_i(t)$ erfordert die Berechnung von Skalarprodukten bzw. von Integralen über den Ortsbereich. Um die Rechenzeiten während der Online-Phase möglichst gering zu halten, ist man bestrebt, alle Integralauswertungen in die Offline-Phase zu legen. Dies gelingt sehr leicht für die linearen Terme in den Bilanzgleichungen. Die aus diesen Termen resultierenden Ausdrücke lassen sich so umstellen, dass die Integralterme nur noch von den Basisfunktionen abhängen und damit offline ausgewertet werden können. Weit schwieriger ist die Behandlung der nichtlinearen Terme in den Bilanzgleichungen. Eine analytische Umformung der nichtlinearen Terme in Integralausdrücke, die von den Zuständen des resultierenden Modells unabhängig sind, ist in vielen Fällen nicht möglich. Die naheliegende Lösung, die nichtlinearen Integralterme zur Laufzeit des reduzierten Modells durch numerische Quadratur auszuwerten, kann nicht befriedigen, da sie zu rechenzeit- und speicherplatzintensiven Operationen während der Onlinephase führt, die die Lösung des reduzierten Modells extrem verlangsamen.

Eine Alternative bietet der in [19] beschriebene Ansatz zur Approximation parametrierter Funktionen. Die Idee ist, auch die nichtlinearen Terme durch Reihenansätze mit problemangepassten Basisfunktionen anzunähern, ganz analog zu den Zuständen des Modells. In der Online-Phase muss die Nichtlinearität dann nur noch an wenigen Kontrollpunkten im Raum ausgewertet werden. Diese Kontrollpunkte, die so genannten *Best Points* werden über eine Optimierungsrechnung in der Offline-Phase so positioniert, dass der Approximationsfehler durch die Reihenentwicklung minimiert wird.

2.1 Beispiel Reaktions-Diffusions-System

Ein sehr einfaches Beispielsystem soll zunächst dazu dienen, das Modellreduktionsverfahren zu illustrieren und in seinen Einzelheiten darzustellen. Dazu wird ein aus einer Energie- und einer Massenbilanz bestehendes Modell betrachtet, also das Subsystem (2) des in der Einführung skizzierten allgemeineren Modells. Es wird angenommen, dass der konvektive Transport vernachlässigbar ist, so dass sich ein System aus den folgenden beiden partiellen Differentialgleichungen für die Temperatur T und eine Reaktandenkonzentration c ergibt:

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + (-\Delta_R h) r(c, T) \quad (11)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - r(c, T) \quad (12)$$

Die zugehörigen Randbedingungen lauten:

$$\begin{aligned} \alpha (T_{in} - T(0, t)) &= -\lambda \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{0,t} & \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{L_z,t} &= 0 \\ \beta (c_{in} - c(0, t)) &= -D \left. \frac{\partial c}{\partial z} \right|_{0,t} & \left. \frac{\partial c}{\partial z} \right|_{L_z,t} &= 0 \end{aligned}$$

Tabelle 1 Modellparameterwerte des Reaktions-Diffusions-Systems.

| | |
|------------|---|
| D | 10^{-6} m s^{-2} |
| E | $70.000 \text{ J mol}^{-1}$ |
| k | $5 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ |
| L_z | 10^{-3} m |
| α | $100 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ |
| β | 10^{-1} m s^{-1} |
| λ | $0,026 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ |
| ρc_p | $1000 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$ |

Dabei bezeichnen T_{in} und c_{in} Temperatur und Konzentration in der Umgebung des Systems. Für die Reaktionsgeschwindigkeit $r(c, T)$ wird

$$r(c, T) = k \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) c \quad (13)$$

verwendet. Die in der Simulation verwendeten Parameterwerte sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

1. Schritt: Erzeugung der Basisfunktionen

Zur Generierung von Snapshots wird eine Testsimulation durchgeführt, bei der die Umgebungsbedingungen T_{in} und c_{in} variiert werden, wie in Bild 1 dargestellt.

Die numerische Lösung des Referenzmodells erfolgt mit der Linienmethode auf einem Ortsgitter mit 100 äquidistanten Gitterpunkten. Bild 2 zeigt die simulierten Referenzlösungen, aus denen die Basisfunktionen berechnet werden. Insgesamt stehen Snapshots zu $N_s = 237$ Zeitpunkten zur Verfügung.

Es werden Basisfunktionen für die Systemzustände T und c , aber auch für die Nichtlinearität r benötigt. Für jeden Satz von Basisfunktionen muss ein Eigenwertproblem vom Typ (9) gelöst werden, im Falle der Temperatur z. B.

$$M^T \mathbf{v}_j^T = \lambda_j^T \mathbf{v}_j^T \quad (14)$$

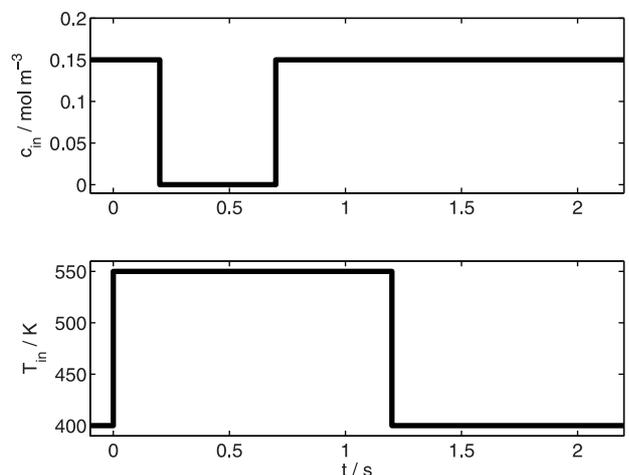


Bild 1 Simulationsbedingungen für die Erzeugung der Snapshots.

mit

$$M_{ik}^T = \int_{z=0}^{L_z} T(t_i, z) T(t_k, z) dz. \quad (15)$$

Es ergeben sich die ersten vier Eigenwerte $\lambda_1^T = 5,9 \times 10^4$, $\lambda_2^T = 3,6$, $\lambda_3^T = 2,6 \times 10^{-2}$, $\lambda_4^T = 2,4 \times 10^{-4}$. Daraus sieht man, dass die Größe der Eigenwerte sehr rasch abnimmt und höhere Basisfunktionen kaum mehr von Relevanz

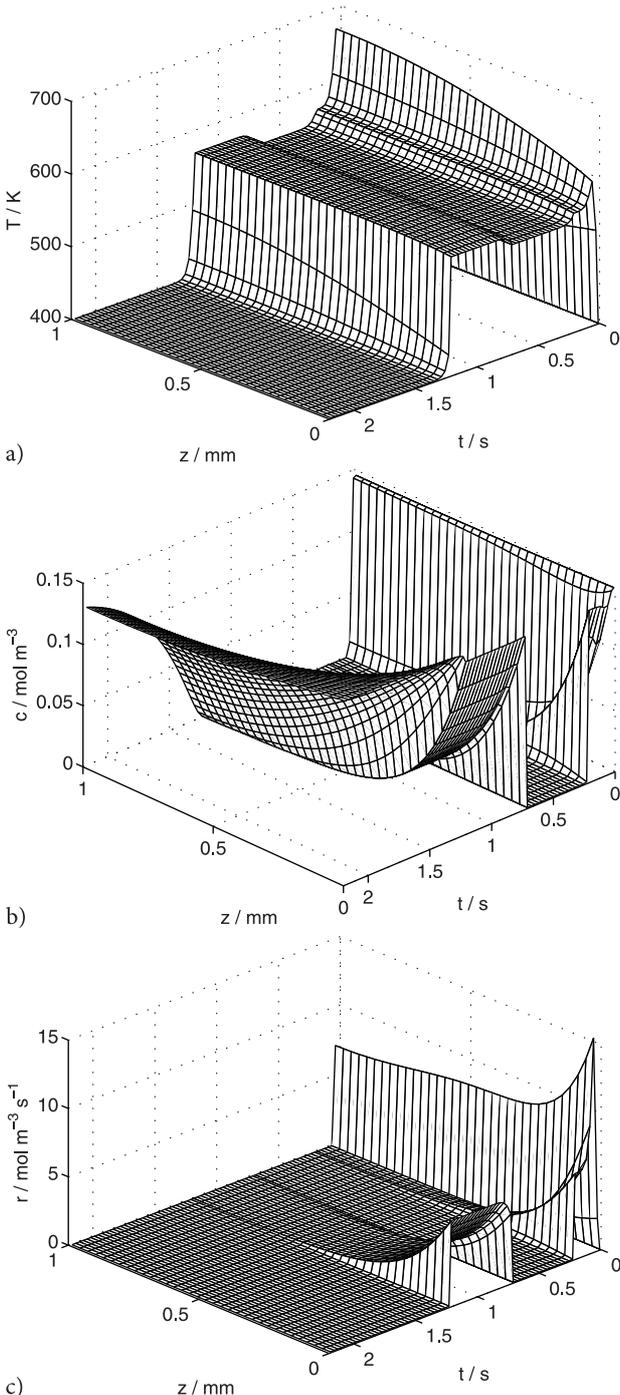


Bild 2 Snapshots der Temperatur (oberes Diagramm), der Reaktandenkonzentration (mittleres Diagramm) und der Reaktionsgeschwindigkeit (unteres Diagramm).

für die Approximation der Snapshots sind. Aus den Eigenwerten wird geschlossen, dass $N_T = 3$ Basisfunktionen

$$\varphi_j^T(z) = \sum_{i=1}^{N_s} T(t_i, z) v_{ij}^T, \quad j = 1, \dots, N_T \quad (16)$$

ausreichen sollten, um das Temperaturprofil zu approximieren. In analoger Weise erhält man $N_c = 4$ für die Zahl der Basisfunktionen zur Approximation der Reaktandenkonzentration und $N_r = 5$ für die Zahl der Basisfunktionen zur Approximation der Reaktionsgeschwindigkeit. Bild 3 enthält die resultierenden Basisfunktionen. Zusammenfassend erfolgt die Generierung der Basisfunktionen rein datengetrieben auf Grundlage der numerischen Simulationsergebnisse und ohne Rückgriff auf die Modellgleichungen. Demzufolge liegen die Basisfunktionen auch nur als Datenfelder und nicht als analytische Ausdrücke vor.

2. Schritt: Herleitung der Differentialgleichungen des reduzierten Modells

Wie oben ausgeführt werden die Temperatur, die Reaktandenkonzentration und die Reaktionsgeschwindigkeit durch die folgenden Reihenansätze approximiert:

$$T(t, z) \approx \sum_{i=1}^{N_T} T_i(t) \varphi_i^T(z) =: \tilde{T}(t, z) \quad (17)$$

$$c(t, z) \approx \sum_{i=1}^{N_c} c_i(t) \varphi_i^c(z) =: \tilde{c}(t, z) \quad (18)$$

$$r(c(z, t), T(z, t)) \approx \sum_{i=1}^{N_r} r_i(t) \varphi_i^r(z) =: \tilde{r}(t, z) \quad (19)$$

Differentialgleichungen für $T_i(t), i = 1, \dots, N_T$ und $c_i(t), i = 1, \dots, N_c$ erhält man durch Einsetzen der Approximationen in die Bilanzgleichungen (11,12) und Gewichtung des Residuums mit den Basisfunktionen:

$$\int_{z=0}^{L_z} \left(\rho_{CP} \frac{\partial \tilde{T}}{\partial t} - \lambda \frac{\partial^2 \tilde{T}}{\partial z^2} - (-\Delta_R h) \tilde{r} \right) \varphi_j^T(z) dz = 0 \quad (20)$$

($j = 1, \dots, N_T$)

$$\int_{z=0}^{L_z} \left(\frac{\partial \tilde{c}}{\partial t} - D \frac{\partial^2 \tilde{c}}{\partial z^2} - \tilde{r} \right) \varphi_j^c(z) dz = 0 \quad (21)$$

($j = 1, \dots, N_c$)

Nach Umsortieren der Terme in (20) und (21), partieller Integration des Wärmeleit- und des Diffusionsterms sowie Einsetzen der Randbedingungen erhält man:

$$\rho_{CP} \frac{dT}{dt} = -\lambda A_T T - \alpha B_T T + \alpha \Phi_T(0) T_{in} + (-\Delta_R h) C_T r \quad (22)$$

$$\frac{dc}{dt} = -D A_c c - \beta B_c c + \beta \Phi_c(0) c_{in} - C_c r \quad (23)$$

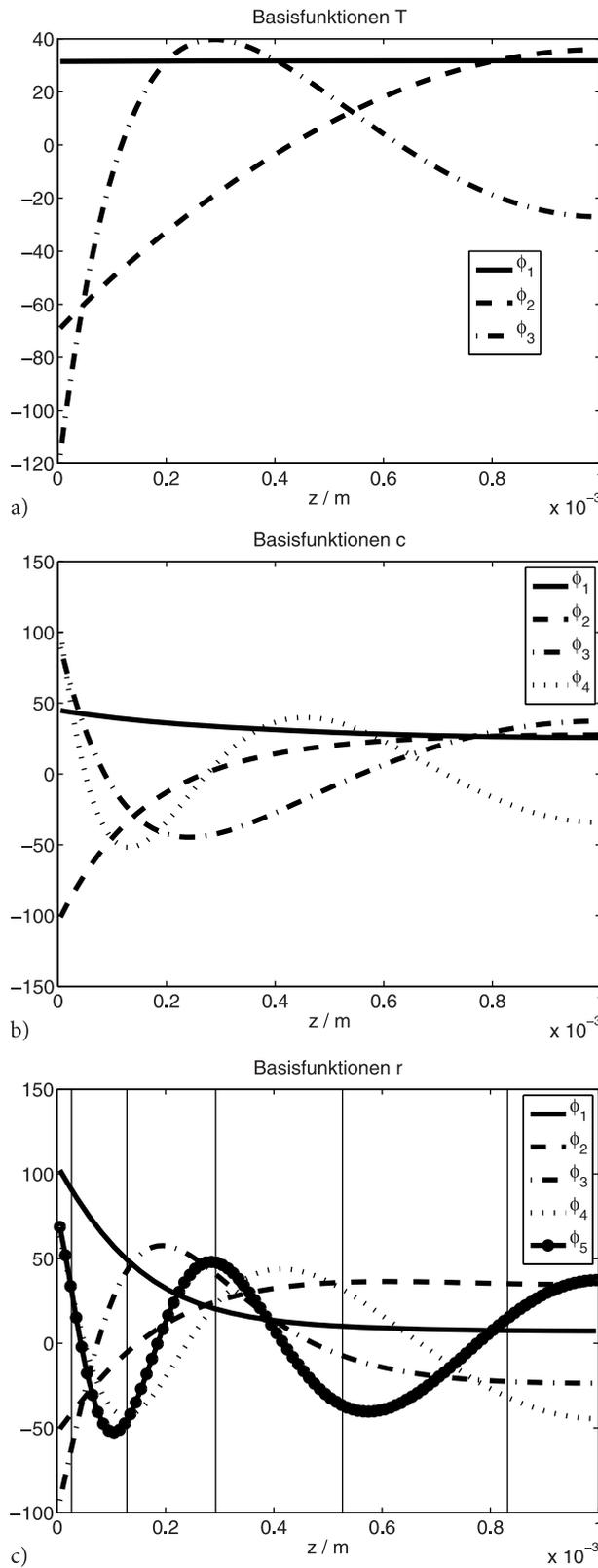


Bild 3 Basisfunktionen für die Temperatur (oberes Diagramm), die Reaktandenkonzentration (mittleres Diagramm) und die Reaktionsgeschwindigkeit (unteres Diagramm). Die vertikalen Linien im unteren Diagramm zeigen die Position der „Best Points“ an, an denen die Reaktionsgeschwindigkeit zur Laufzeit des reduzierten Modells ausgewertet wird.

mit

$$\mathbf{T}(t) = (T_1(t), \dots, T_{N_T}(t))^T \quad (24)$$

$$\mathbf{c}(t) = (c_1(t), \dots, c_{N_c}(t))^T \quad (25)$$

$$\mathbf{r}(t) = (r_1(t), \dots, r_{N_r}(t))^T \quad (26)$$

$$A_{T,ij} = \int_0^{L_z} \frac{d\varphi_i^T}{dz} \frac{d\varphi_j^T}{dz} dz, \quad i, j = 1, \dots, N_T \quad (27)$$

$$B_{T,ij} = \varphi_i^T(0) \varphi_j^T(0), \quad i, j = 1, \dots, N_T \quad (28)$$

$$C_{T,ij} = \int_0^{L_z} \varphi_i^T \varphi_j^r dz, \quad i = 1, \dots, N_T, j = 1, \dots, N_r \quad (29)$$

$$\boldsymbol{\phi}_T(0) = (\varphi_1^T(0), \dots, \varphi_{N_T}^T(0))^T \quad (30)$$

$$A_{c,ij} = \int_0^{L_z} \frac{d\varphi_i^c}{dz} \frac{d\varphi_j^c}{dz} dz, \quad i, j = 1, \dots, N_c \quad (31)$$

$$B_{c,ij} = \varphi_i^c(0) \varphi_j^c(0), \quad i, j = 1, \dots, N_c \quad (32)$$

$$C_{c,ij} = \int_0^{L_z} \varphi_i^c \varphi_j^r dz, \quad i = 1, \dots, N_c, j = 1, \dots, N_r \quad (33)$$

$$\boldsymbol{\phi}_c(0) = (\varphi_1^c(0), \dots, \varphi_{N_c}^c(0))^T \quad (34)$$

Die Matrizen A_T , A_c , B_T , B_c , C_T , C_c hängen nur von den Basisfunktionen ab. Sie ändern sich also zur Laufzeit des reduzierten Modells nicht. Die zu ihrer Berechnung notwendigen Quadraturen können komplett in der Offline-Phase ausgeführt werden und belasten die Online-Phase nicht. Da die Basisfunktionen nur in Form von Datenfeldern vorliegen, sind gewisse numerische Ungenauigkeiten bei der Berechnung der Koeffizientenmatrizen unvermeidlich. Es kann daher sinnvoll sein, die Koeffizienten in einem nachträglichen „Kalibrierungsschritt“ so zu korrigieren, dass die Approximationsfehler des reduzierten Modells minimiert werden [14].

Es ist zu beachten, dass es sich bei dem reduzierten Modell (22, 23) um ein nichtlineares System handelt, da die Approximation der Reaktionsgeschwindigkeit \mathbf{r} in nichtlinearer Weise von den Zuständen \mathbf{T} und \mathbf{c} des reduzierten Modells abhängt. Die Berechnung von \mathbf{r} wird im nächsten Abschnitt diskutiert.

3. Schritt: Behandlung der nichtlinearen Terme

Um Bestimmungsgleichungen für die noch unbekannt Funktionen $r_1(t), \dots, r_{N_r}(t)$ zu erhalten, fordert man, dass die Approximation (19) die tatsächliche Reaktionsgeschwindigkeit an N_r Kontrollpunkten im Ort z_1, \dots, z_{N_r} exakt wiedergibt [19]:

$$\sum_{i=1}^{N_r} \varphi_i^r(z_j) r_i(t) = r(\bar{\mathbf{c}}(z_j, t), \bar{\mathbf{T}}(z_j, t)) \quad (35)$$

$$(j = 1, \dots, N_r)$$

Das Gleichungssystem (35) besteht damit aus linearen Gleichungen für die Koeffizienten $r_i(t)$, deren rechte Seiten nichtlinear von den Zuständen des reduzierten Modells $T_1(t), \dots, T_{N_T}, c_1(t), \dots, c_{N_c}(t)$ abhängen. Noch offen ist im Moment die Positionierung der N_r Kontrollpunkte z_1, \dots, z_{N_r} . Eine Minimalanforderung ist, dass die Linke-Seite-Matrix von (35) invertierbar sein muss. Darüber hinaus möchte man durch eine geschickte Kontrollpunkt-Positionierung aber auch erreichen, dass der Fehler der Approximation (19) im gesamten Ortsbereich, und nicht nur an den Kontrollpunkten minimiert wird. Dies lässt sich in das folgende Optimierungsproblem für z_1, \dots, z_{N_r} überführen [19]:

$$(z_1, \dots, z_{N_r}) = \operatorname{argmin} \sum_{s=1}^{N_s} \sum_{j=1}^{N_r} (r_j(t_s) - r_j^*(t_s))^2 \quad (36)$$

mit

$r_j(t_s)$ aus (35)

und

$$r_j^*(t_s) = \int_{z=0}^{L_z} r(c(z, t_s), T(z, t_s)) \varphi_j^r(z) dz \quad (37)$$

Während r_j also mit geringem Aufwand aus einem linearen Gleichungssystem berechnet wird, wobei nur N_r Auswertungen der Nichtlinearität erforderlich sind, ist die Berechnung von r_j^* wesentlich teurer. Sie erfordert eine Quadratur und die Auswertung der Nichtlinearität über den gesamten Ortsbereich.

Die Lösung des Optimierungsproblems erfolgt in der Offline-Phase. Zur Laufzeit des reduzierten Modells werden die optimierten Positionen der Kontrollpunkte, in [19] als „Best Points“ bezeichnet, nicht geändert. Im vorliegenden Beispiel wurde das Optimierungsproblem mit der Matlab-Routine `fmincon` unter Verwendung der „Active-Set“-Methode gelöst. Die resultierenden „Best Points“ sind in Bild 3 eingezeichnet. Man erkennt, dass die Kontrollpunkte nicht ganz äquidistant über den Ortsbereich verteilt sind, sondern sich zum linken Rand hin etwas verdichten. Dies ist plausibel, da die Reaktionsgeschwindigkeit am linken Rand des Ortsbereichs meist die größeren Werte annimmt.

4. Schritt: Lösung des reduzierten Modells

Die Online-Phase umfasst die Lösung der $N_T + N_c = 7$ Differentialgleichungen (22,23) sowie unterlagert zu jedem Zeitschritt die Lösung der $N_r = 5$ linearen Gleichungen (35). Man beachte, dass alle physikalischen Parameter des ursprünglichen Modells auch explizit in das reduzierte Modell eingehen. So erscheinen die Kinetikparameter k und E in (35), alle übrigen Parameter findet man in (22) und (23). Eine Änderung der Modellparameter hat also direkte Auswirkungen auf das Ergebnis des reduzierten Modells, obwohl die Snapshots

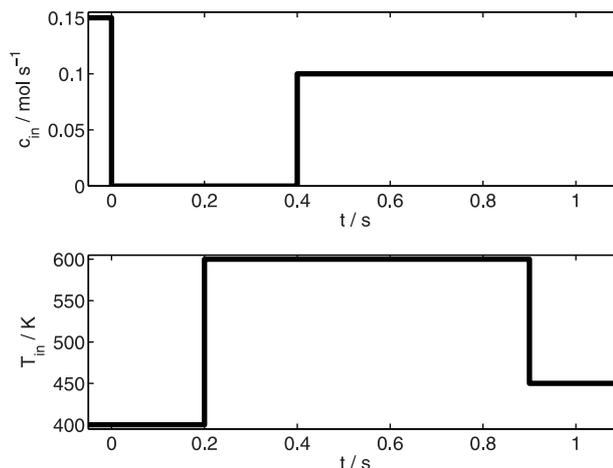


Bild 4 Eingangssignale zum Test des reduzierten Modells.

zur Generierung der Basisfunktionen für einen festen Parametersatz berechnet wurden.

Zum Test des reduzierten Modells dient eine Simulation mit der in Bild 4 dargestellten Systemanregung. Das Simulationsszenario unterscheidet sich damit von den Bedingungen, unter denen die Snapshots generiert wurden. Es ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen reduziertem und vollständigem Modell. Einige ausgewählte Ortsprofile in Bild 5 illustrieren dies. Die Simulationsergebnisse deuten auf eine hohe Approximationsgüte des reduzierten Modells hin. Für systematische Betrachtungen des Schätzfehlers bei einem verwandten Modellreduktionsproblem sei auf [3] verwiesen.

3 Reduziertes Modell eines Batch-Granulators

Während im vorigen Abschnitt das Modell einer kontinuierlichen Phase reduziert wurde, soll nun ein Modell betrachtet werden, bei dem der Schwerpunkt auf der Partikelphase und der Populationsbilanz liegt, während die kontinuierliche Phase sehr einfach beschrieben wird. Die Herausforderung liegt auf der Behandlung der Integralterme auf der rechten Seite der Populationsbilanz, die Partikelvereinigung oder -bruch beschreiben. Für die Behandlung von Integrodifferentialgleichungen eignen sich nur wenige Reglerentwurfverfahren wie z. B. nichtlineare modellprädiktive Regelung [4]. Daher sind reduzierte Modelle mit einer einfacheren Struktur wünschenswert, auf die sich eine größere Klasse von Entwurfverfahren anwenden lässt. Das folgende Beispiel aus dem Bereich der Granulation soll illustrieren, dass man solche Modelle mit Hilfe von POD-Verfahren herleiten kann.

Bei der Granulation werden Pulverpartikel durch Zugabe einer Binderflüssigkeit zu größeren Aggregaten, den Granulaten, verklumpt. Es wird ein Granulationsprozess in Batch-Fahrweise betrachtet, wie er in [25] beschrieben ist. Das Granulationspulver wird dabei in einer rotie-

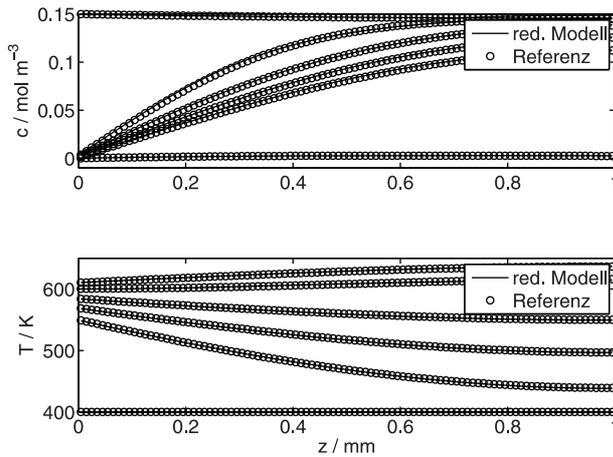


Bild 5 Vergleich von reduziertem Modell und Referenzmodell; oberes Diagramm: Konzentrationsprofile zu den Zeitpunkten $t = 0$ s, $t = 0,05$ s, ..., $t = 0,25$ s; unteres Diagramm: Temperaturprofile zu den Zeitpunkten $t = 0,21$ s, $t = 0,22$ s, ..., $t = 0,25$ s.

renden Trommel vorgelegt. Während der Laufzeit des Prozesses führt man Binderflüssigkeit kontrolliert zu. Die Prozessführung hat in diesem Fall die Aufgabe, die Dosierrate so einzustellen, dass die Granulate am Ende des Batchprozesses eine gewünschte Größenverteilung besitzen. Die Größe der Granulate ändert sich einerseits durch Wachstum, wobei sich Pulverpartikel direkt an die Granulate anlagern, und andererseits durch Aggregation, wobei aus zwei Granulaten ein größerer Partikel entsteht.

3.1 Referenzmodell

In [25] wird ein Prozessmodell des Batch-Granulators vorgestellt. Das Modell nimmt eine ideale Durchmischung im Ort an und besteht aus Bilanzen für die Massendichtefunktion der Partikelpopulation, für die Masse des Granulationspulvers und für die Binderflüssigkeit:

- Eine Populationsbilanz für die Partikel-Massendichteverteilung $m(L, t)$, wobei L für die charakteristische Partikelgröße steht, ergibt:

$$\begin{aligned} \frac{\partial m}{\partial t} = & -L^3 \frac{\partial}{\partial L} \left(G \frac{m}{L^3} \right) \\ & + \frac{L^5}{2} \int_{L_{min}}^L \frac{6}{\pi \rho} \frac{\beta \left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}}, \lambda \right)}{(L^3 - \lambda^3)^{\frac{2}{3}}} \\ & \frac{m \left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}}, t \right)}{L^3 - \lambda^3} \frac{m(\lambda, t)}{\lambda^3} d\lambda \\ & - m(L, t) \frac{6}{\pi \rho} \int_{L_{min}}^{L_{max}} \beta(L, \lambda) \frac{m(\lambda, t)}{\lambda^3} d\lambda \end{aligned} \quad (38)$$

Der erste Term auf der rechten Seite von (38) beschreibt das Partikelwachstum mit einer Wachstumsrate G , die größenunabhängig ist, aber von der Granulationspulvermasse und dem Binderflüssigkeitsgehalt abhängt. Der zweite und der dritte Term resultiert aus Änderungen der Partikelmassenverteilung durch Aggregation; dabei ist β der Koaleszenz-Kern, der gegeben ist durch

$$\beta = \beta_0(x_w) \frac{(L + \lambda)^2}{L \lambda} \quad (39)$$

Die genaue Definition von G und β_0 findet man in [25].

- Das Partikelwachstum verursacht einen Massentransport vom Granulationspulver in die Partikelphase. Eine Bilanz für die Masse des Granulationspulvers M_{powder} ergibt

$$\frac{dM_{powder}}{dt} = \int_{L_{min}}^{L_{max}} L^3 \frac{\partial}{\partial L} \left(G \frac{m}{L^3} \right) dL \quad (40)$$

- Aus einer Massenbilanz der Flüssigphase erhält man eine Differentialgleichung für den Flüssigmassenanteil x_w :

$$M_{total} \frac{dx_w}{dt} = R_w \quad (41)$$

In (41) stellt $M_{total} = \int_{L_{min}}^{L_{max}} m(L, t) dL + M_{powder}$ die gesamte Feststoffmasse dar. R_w ist die Dosierrate der Binderflüssigkeit.

Zur numerischen Lösung des Referenzmodells wird das massenerhaltende Diskretisierungsverfahren aus [17] verwendet. Dieses Verfahren unterteilt die Eigenschaftskordinate geometrisch in i_{max} Größenintervalle und jedes dieser Intervalle in q Unterintervalle. Für den Batch-Granulator wird $i_{max} = 20$ und $q = 4$ gewählt.

3.2 Herleitung des reduzierten Modells

Wie im vorigen Beispiel besteht der erste Schritt der Modellreduktion in der Approximation der Massendichtefunktion $m(L, t)$ durch einen Reihenansatz:

$$m(L, t) \approx \sum_{i=1}^N m_i(t) \varphi_i(L) \quad (42)$$

Die Basisfunktionen $\varphi_i(L)$ werden aus Snapshots des Referenzmodells mit der Methode konstruiert, die in Abschnitt 2 bereits ausführlich dargestellt wurde.

Wie am Beispiel des Reaktions-Diffusions-Systems ebenfalls schon gezeigt wurde, erhält man Differentialgleichungen für die Zeitfunktionen $m_i(t)$ durch Anwendung der Gewichtete-Reste-Methode. Aus der Forderung, dass das aus dem Näherungsansatz (42) resultierende Residuum verschwinden soll, wenn es auf die

Basisfunktionen projiziert wird, ergibt sich

$$\begin{aligned}
 \left(\frac{\partial m}{\partial t}, \varphi_j \right)_{\Omega} &= - \left(L^3 \frac{\partial}{\partial L} \left(G \frac{m}{L^3} \right), \varphi_j \right)_{\Omega} \\
 &+ \left(\frac{L^5}{2} \int_{L_{\min}}^L \frac{6}{\pi \rho} \frac{\beta \left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}}, \lambda \right)}{(L^3 - \lambda^3)^{\frac{2}{3}}} \right. \\
 &\quad \left. \frac{m \left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}}, t \right)}{L^3 - \lambda^3} \frac{m(\lambda, t)}{\lambda^3} d\lambda, \varphi_j \right)_{\Omega} \\
 &- \left(m(L, t) \frac{6}{\pi \rho} \int_{L_{\min}}^{L_{\max}} \beta(L, \lambda) \frac{m(\lambda, t)}{\lambda^3} d\lambda, \varphi_j \right)_{\Omega} \\
 &\quad (j = 1, \dots, N) \quad (43)
 \end{aligned}$$

(Für das Skalarprodukt $(\cdot, \cdot)_{\Omega}$ wird in diesem Fall nur über die interne Koordinate L integriert.)

Die Ausdrücke in (43) können in der folgenden Weise umgeformt werden:

$$\left(\frac{\partial m}{\partial t}, \varphi_j \right)_{\Omega} = \frac{dm_j}{dt} \quad (44)$$

$$\left(L^3 \frac{\partial}{\partial L} \left(G \frac{m}{L^3} \right), \varphi_j \right)_{\Omega} = \quad (45)$$

$$G \sum_{i=1}^N m_i \underbrace{\left(L^3 \frac{\partial}{\partial L} \left(\frac{\varphi_i}{L^3} \right), \varphi_j \right)_{\Omega}}_{=: A_{ji}} \quad (46)$$

$$\left(\frac{L^5}{2} \int_{L_{\min}}^L \frac{6}{\pi \rho} \frac{\beta \left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}}, \lambda \right)}{(L^3 - \lambda^3)^{\frac{2}{3}}} \right. \\
 \left. \frac{m \left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}}, t \right)}{L^3 - \lambda^3} \frac{m(\lambda, t)}{\lambda^3} d\lambda, \varphi_j \right)_{\Omega}$$

$$= \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^N \frac{6}{\pi \rho} \beta_0(x_w) m_i(t) m_k(t)$$

$$\underbrace{\int_{L=L_{\min}}^{L_{\max}} \int_{\lambda=L_{\min}}^L \frac{L^5}{2} \frac{\beta \left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}}, \lambda \right)}{(L^3 - \lambda^3)^{\frac{2}{3}}} \frac{\left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}} + \lambda \right)^2}{(L^3 - \lambda^3)^{\frac{4}{3}} \lambda^4} \varphi_i \left((L^3 - \lambda^3)^{\frac{1}{3}} \right) \varphi_k(\lambda) d\lambda \varphi_j(L) dL}_{=: B'_{jki}} \quad (47)$$

$$\begin{aligned}
 &\left(m(L, t) \frac{6}{\pi \rho} \int_{L_{\min}}^{L_{\max}} \beta(L, \lambda) \frac{m(\lambda, t)}{\lambda^3} d\lambda, \varphi_j \right)_{\Omega} \\
 &= \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^N \frac{6}{\pi \rho} \beta_0(x_w) m_i(t) m_k(t) \\
 &\quad \underbrace{\int_{L=L_{\min}}^{L_{\max}} \varphi_i(L) \varphi_j(L) \int_{\lambda=L_{\min}}^{L_{\max}} \frac{(L + \lambda)^2}{L \lambda^4} \varphi_k(\lambda) d\lambda dL}_{=: B''_{jki}} \quad (48)
 \end{aligned}$$

Dabei ist zu beachten, dass die Integralterme in diesem Beispiel analytisch so umgestellt werden können, dass die Argumente unter den Integralen nur noch von den Basisfunktionen abhängen, dass die numerische Lösung der Integrale also komplett in der Offline-Phase erfolgen kann. Eine Approximation der Nichtlinearitäten durch die Best-Point-Interpolation ist bei diesem Beispiel nicht erforderlich, da es sich bei den Nichtlinearitäten um einfache quadratische Ausdrücke handelt.

Setzt man den Reihenansatz (42) für $m(L, t)$ in die Massenbilanz des Granulationspulvers (40) ein, erhält man

$$\frac{dM_{\text{powder}}}{dt} = G \sum_{i=1}^N m_i(t) \underbrace{\int_{L_{\min}}^{L_{\max}} L^3 \frac{\partial}{\partial L} \left(\frac{\varphi_i}{L^3} \right) dL}_{=: C_i} \quad (49)$$

3.3 Lösung des reduzierten Modells

Zur Laufzeitphase des reduzierten Modells muss der folgende Satz an gewöhnlichen Differentialgleichungen gelöst werden ($j = 1, \dots, N$):

$$\begin{aligned}
 \frac{dm_j}{dt} &= -G \sum_{i=1}^N A_{ji} m_i \\
 &+ \frac{6}{\pi \rho} \beta_0(x_w) \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^N (B'_{jki} - B''_{jki}) m_i m_k \quad (50)
 \end{aligned}$$

$$\frac{dM_{\text{powder}}}{dt} = G \sum_{i=1}^N C_i m_i \quad (51)$$

$$M_{\text{total}} \frac{dx_w}{dt} = R_w \quad (52)$$

A_{ji} , B'_{jki} , B''_{jki} und C_i sind dabei konstante Koeffizienten, die in der Offline-Phase berechnet werden, wie oben beschrieben wurde.

Man erkennt, dass das reduzierte Modell eine recht einfache Struktur besitzt und dass die Integralterme der Populationsbilanz (38) im reduzierten Modell durch eine Summe quadratischer Terme ersetzt wird. Es zeigt sich, dass $N = 6$ Basisfunktionen ausreichen, um die Massendichtefunktion hinreichend genau zu approximieren, so

das das reduzierte Modell aus acht Differentialgleichungen besteht.

Eine Testsimulation vergleicht das reduzierte Modell mit der Referenz. In dem Test wird Binderflüssigkeit für einige Zeit mit konstanter Dosierrate zugeführt, dann wird die Dosierung gestoppt (vgl. Bild 6). Bild 7 zeigt die resultierenden Partikelgrößenverteilungen. Reduziertes Modell und Referenzmodell stimmen dabei gut überein. Eine typische Prozessführungsaufgabe für den Batch-Granulator besteht darin, Partikel eines definierten Größenintervalls herzustellen, das in Bild 7 schattiert ist. Bild 8 zeigt die Gesamtmasse der Partikel mit gewünschter Größe in Abhängigkeit der Zeit. Reduziertes Modell und Referenzmodell stimmen wieder gut überein. Zusätzlich ist in Bild 8 das Ergebnis eingetragen, das man erhält, wenn man anstelle des Diskretisierungsschemas aus [17] mit 80 Größenintervallen das vereinfachte

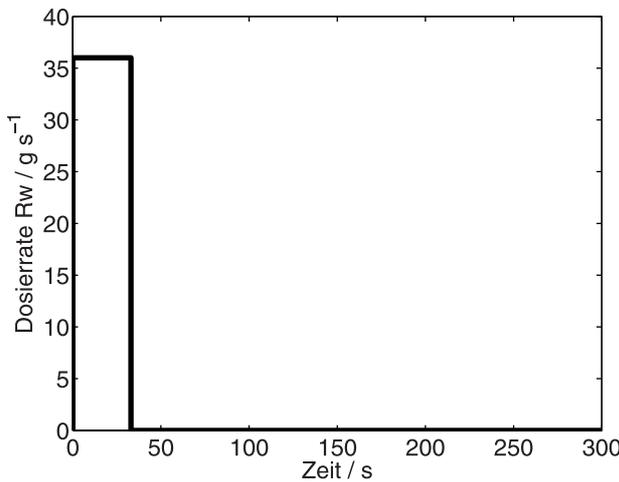


Bild 6 Test des reduzierten Batch-Granulator-Modells: Binderflüssigkeit wird für 33 s mit konstanter Dosierrate zugeführt; anschließend wird die Dosierrate auf null gesetzt.

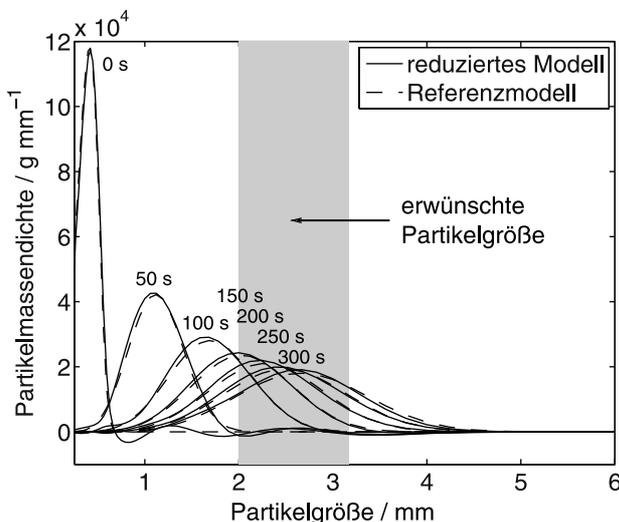


Bild 7 Massendichteverteilungen für das in Bild 6 gezeigte Testszenario.

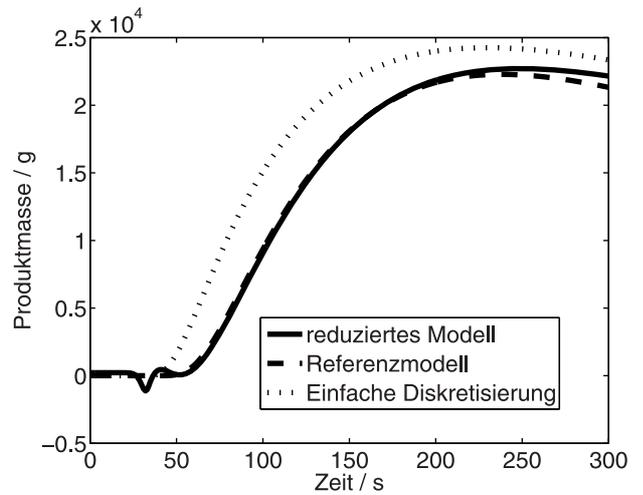


Bild 8 Zeitliche Entwicklung der Produktmasse; die gepunktete Linie zeigt das numerische Ergebnis, wenn das vereinfachte Diskretisierungsschema aus [6] mit 20 Größenintervallen verwendet wird, um das Referenzmodell zu lösen.

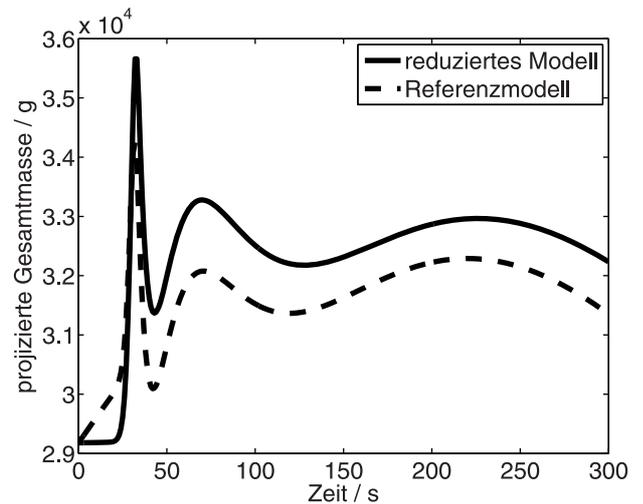


Bild 9 Projektion der Gesamtpartikelmasse auf den von den Basisfunktionen aufgespannten Unterraum.

Schema aus [6] mit 20 Größenintervallen einsetzt, wie dies in [25] geschieht. Man erkennt, dass das reduzierte POD-Modell trotz niedrigerer Systemordnung der einfacheren Diskretisierung überlegen ist.

Man könnte es als einen gewissen Nachteil der POD-Methode ansehen, dass dieses Verfahren nicht massenerhaltend ist [1]. Im Unterschied zu nicht massenerhaltenden Diskretisierungsmethoden ist eine leichte Variation der Gesamtmasse in diesem Beispiel aber keine numerische Ungenauigkeit, sondern liegt in der Natur des Projektionsansatzes. Bild 9 illustriert dies. Gezeigt wird die Projektion der Gesamtmasse auf den von den Basisfunktionen aufgespannten Unterraum. Obwohl die Gesamtmasse in der Referenzsimulation konstant ist, variiert die *projizierte* Gesamtmasse etwas mit der Zeit. Das reduzierte Modell gibt diese Variation recht gut wieder.

4 Reduziertes Modell eines Harnstoff-Kristallisators

Als drittes Beispiel dient das Modell eines Harnstoff-Kristallisators. Dieses System umfasst sowohl Strömungseffekte als auch eine Populationsbilanz, so dass es dem in der Einleitung präsentierten allgemeinen durchströmten Partikelsystem schon sehr nahe kommt. Die Herausforderung besteht in diesem Fall in der Komplexität des Referenzmodells, die weit über die beiden vorigen Beispiele hinausgeht. Da das Referenzmodell und der Modellreduktionsprozess in früheren Publikationen [11–13] schon detailliert dargestellt wurden, ist die folgende Zusammenfassung knapp gehalten.

4.1 Referenzmodell

Bei dem betrachteten Kristallisor handelt es sich um eine von C. Borchert/K. Sundmacher aufgebaute Technikumsanlage am MPI Magdeburg. Bild 10 zeigt eine schematische Darstellung des Prozesses. Der Kristallisor hat die Form eines Rohres mit rechteckigem Querschnitt. Am in der Darstellung linken Ende des Rohres werden Saatkristalle mit einer definierten Größenverteilung zugesetzt. Diese wandern in Strömungsrichtung durch das Rohr und wachsen dabei. Zur Beeinflussung der Wachstumsgeschwindigkeit lässt sich die Wandtemperatur des Kristallisators über einen Heizmantel einstellen. Die Wandtemperatur ist entlang der x -Koordinate näherungsweise konstant.

Zur Herleitung eines Referenzmodells des Kristallisators werden zwei Ortskoordinaten x und y sowie die charakteristische Kristallgröße als Eigenschaftskordinate berücksichtigt. Weitere Einzelheiten zu dem Modell findet man in [13]. Da die Fluiddynamik im vorliegenden Beispiel deutlich schneller ist als die Dynamiken der Energie- und Massenbilanzen der fluiden Phase sowie die Populationsbilanz der dispersen Phase, wird die Strömungsgeschwindigkeit als quasistationär betrachtet. Die fluide Phase wird als inkompressibel modelliert. Unter diesen Annahmen kann man die Fluidströmung im Kristallisor mit Hilfe der inkompressiblen stationären Navier-Stokes-Gleichungen beschreiben:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad \rho(\mathbf{u} \cdot \nabla)\mathbf{u} + \nabla p = \mu_E \Delta \mathbf{u} \quad (53)$$

wobei $\mathbf{u} = (u, v)$ für die Strömungsgeschwindigkeit in x - und y -Richtung steht, p ist der Druck, μ_E und ρ sind die Viskosität und die Dichte des Fluids.

Aus der Energiebilanz erhält man eine Differentialgleichung für die Temperatur T im Kristallisor:

$$\rho c_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla T \right) = \lambda_E \Delta T + \Delta H_{\text{cryst}} \cdot h_{\text{gr}} \quad (54)$$

Dabei sind c_p und λ_E die Wärmekapazität und die thermische Leitfähigkeit des Fluids, ΔH_{cryst} ist die Lösungsenthalpie.

Eine Komponentenmassenbilanz für den im Fluid gelösten Harnstoff ergibt die folgende Konvektions-Diffusions-Gleichung für die Partialdichte ρ_c :

$$\frac{\partial \rho_c}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \rho_c = D_c \Delta \rho_c + h_{\text{gr}} \quad (55)$$

mit dem Diffusionskoeffizienten D_c . Der Term h_{gr} steht für den Stofftransport zwischen fluider Phase und Partikelphase aufgrund des Kristallwachstums. Er lässt sich schreiben als

$$h_{\text{gr}}(T, \rho_c, f) = -3 \rho_d k_V G(T, \rho_c) \int_0^\infty L^2 f dL, \quad (56)$$

wobei ρ_d die Dichte der Kristalle ist, G ist die Wachstumsrate und f ist die Anzahldichtefunktion der Kristallpopulation.

Die disperse Partikelphase wird mit Hilfe einer Populationsbilanz für die Partikelgrößenverteilung modelliert, die Kristallwachstum und räumlichen Transport der Kristalle erfasst:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla f + G \frac{\partial f}{\partial L} = D_f \Delta f \quad (57)$$

Für die Wachstumsrate wird ein Potenzansatz in Abhängigkeit der Übersättigung σ verwendet:

$$G = \begin{cases} k_g \sigma(T, \rho_c)^g, & \sigma > 0, \\ 0, & \sigma \leq 0, \end{cases} \quad (58)$$

Die numerische Lösung des Referenzmodells erfolgt mit Hilfe des Simulationstools MoonMD [13]. Nach einer Diskretisierung der externen und internen Koordinaten kommt man auf ein System aus 565.656 Differentialgleichungen.

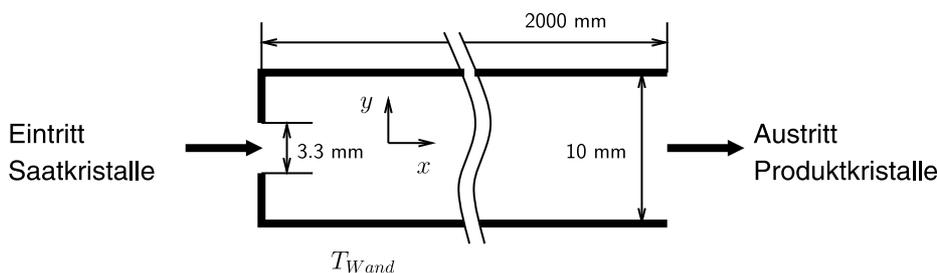


Bild 10 Schematische Darstellung des Harnstoff-Kristallisators.

4.2 Modellreduktion

Die Erzeugung eines reduzierten POD-Modells verläuft ganz analog zu den beiden vorigen Beispielen. Die Systemzustände $T(x, y, t)$, $\rho_c(x, y, t)$, $f(L, x, y, t)$ werden durch Reihenansätze mit problemspezifischen Basisfunktionen approximiert. Für die Temperatur werden 5 Basisfunktionen verwendet, für die Partialdichte 25 und für die Anzahldichtefunktion 32. Die nichtlineare Wachstumsfunktion wird mit Hilfe der Best-Points-Interpolation approximiert, wobei 16 Basisfunktionen eingesetzt werden. Insgesamt besteht das reduzierte Modell also aus 62 gewöhnlichen Differentialgleichungen und 16 linearen algebraischen Gleichungen. Damit erreicht man gegenüber dem Referenzmodell eine Reduktion der Systemordnung um vier Größenordnungen. Die Reduktion in der Rechenzeit ist nicht ganz so groß, aber mit 3 Größenordnungen immer noch beachtlich.

Eine Testsimulation soll wieder die Güte des reduzierten Modells illustrieren. Dazu wird die Wandtemperatur sprunghaft angehoben und abgesenkt, wie in Bild 11 gezeigt. Die Modellantwort wird in der Abbildung an-

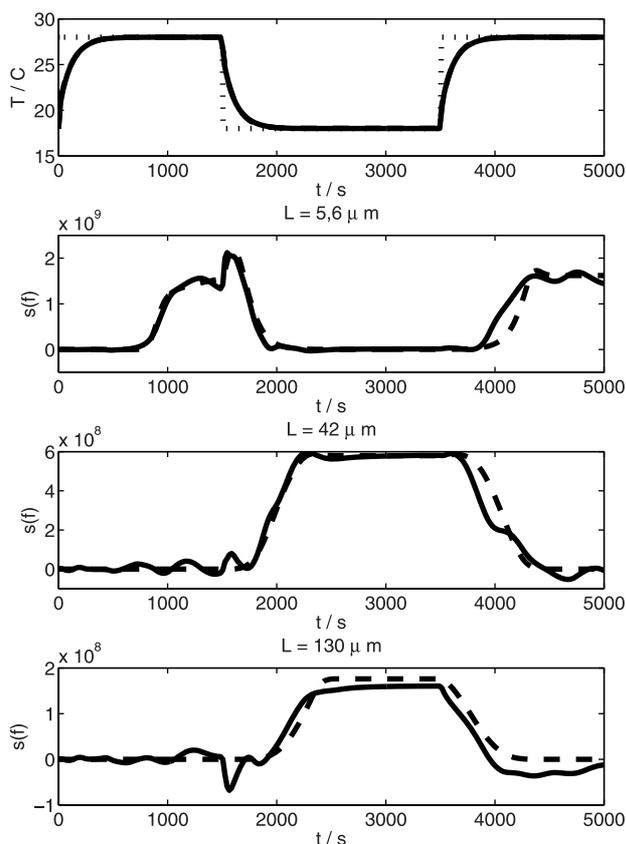


Bild 11 Testsimulation des reduzierten Harnstoffkristallisatormodells; oberstes Diagramm: Wandtemperatur als Eingangssignal (gepunktete Linie) und über den Ausgang gemittelte Kristaller-Temperatur (durchgezogene Linie: reduziertes Modell, gestrichelt: Referenz); untere drei Diagramme: über den Ausgang gemittelte Anzahldichtefunktion für Kristalle der charakteristischen Größen $L = 5,6 \mu\text{m}$, $L = 42 \mu\text{m}$, $L = 130 \mu\text{m}$ (durchgezogene Linien: reduziertes Modell, gestrichelt: Referenz).

hand der über den Ausgang gemittelten Modellzustände dargestellt, wobei

$$s(\cdot) = \frac{1}{10 \text{ mm}} \int_{\Gamma_{out}} \cdot dy. \quad (59)$$

Der Test ist recht anspruchsvoll, da die Snapshots zur Generierung der Basisfunktionen nur bei konstanter Wandtemperatur aufgenommen wurden. Dennoch ergibt sich eine zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen Referenzmodell und reduziertem Modell. Die Prädiktion des reduzierten Modells für die Zustände der fluiden Phase ist mit dem Referenzmodell nahezu identisch. Bei der dispersen Phase ist die Übereinstimmung etwas schlechter. Der konvektiv dominierte Charakter der Populationsbilanz führt zu kleinen Oszillationen des reduzierten Modells um die Referenzlösung. Angesichts der sehr starken Reduktion der Systemordnung und Rechenzeit erscheint dieser Fehler aber tolerierbar.

5 Zusammenfassung

Die präsentierten Beispiele zeigen, dass POD-Verfahren eine interessante Möglichkeit sind, um vereinfachte Prozessmodelle für Partikelprozesse zu erhalten, die sich für die Bearbeitung von Prozessführungs- und Prozesswurfauflagen eignen. Der Modellreduktionsansatz ist sehr flexibel und stellt kaum Anforderungen an die Struktur und Komplexität des detaillierten Referenzmodells. Die Generierung des vereinfachten Modells kann weitgehend automatisiert erfolgen. Sie beinhaltet die Durchführung von Referenzsimulationen mit dem detaillierten Modell sowie die Berechnung konstanter Koeffizienten in den reduzierten Modellgleichungen. Diese Schritte können für komplexe Referenzmodelle sehr rechenzeitintensiv sein, führen dafür aber zu reduzierten Modellen niedriger Ordnung, die sich problemlos in Echtzeit lösen lassen. Die Genauigkeit der reduzierten Modelle hängt in gewissem Maße von der Wahl der Snapshots ab, aus denen die Basisfunktionen generiert werden. Ändern sich die Betriebsbedingungen oder Modellparameter sehr stark, kann es sein, dass die Basisfunktionen die Lösungen des Referenzmodells nicht mehr gut wiedergeben. Insbesondere bei Optimierungsrechnungen kann dies von Zeit zu Zeit eine Neuberechnung der Basisfunktionen erfordern. Bei Regelungsaufgaben ist dieses Problem weniger gravierend, da hier der Modell- und Betriebsparameterbereich, in dem das reduzierte Modell eingesetzt werden soll, meist besser abgeschätzt werden kann.

Literatur

- [1] A. Bück, G. Klaunick, J. Kumar, M. Peglow, E. Tsoatsas. Numerical simulation of particulate processes for control and estimation by spectral methods. *AIChE Journal* (in Druck, online verfügbar), 2012.
- [2] P. D. Christofides, N. El-Farra, M. Li, P. Mhaskar. Model-based control of particulate processes. *Chemical Engineering Science*, 63:1156–1172, 2008.

- [3] M. Drohmann, B. Haasdonk, M. Ohlberger. Adaptive reduced basis methods for nonlinear convection-diffusion equations. In *Proceedings of FVCA6 – Finite Volumes for Complex Applications*, Prag, 2011.
- [4] T. Glaser, C. Sanders, F. Wang, I. Cameron, J. Litster, J. Poon, R. Ramachandrian, C. Immanuel, F. Doyle. Model predictive control of continuous drum granulation. *Journal of Process Control*, 19:615–622, 2009.
- [5] P. Holmes, J. L. Lumley, G. Berkooz. *Turbulence, Coherent Structures, Dynamical Systems and Symmetry*. Cambridge University Press, 1998.
- [6] M. J. Hounslow, R. L. Ryall, V. R. Marshall. A discretized population balance for nucleation, growth and aggregation. *AIChE Journal*, 34:1821–1832, 1988.
- [7] V. John, M. Roland, T. Mitkova, K. Sundmacher, A. Voigt, L. Tobiska. Simulations of population balance systems with one internal coordinate using finite element methods. *Chemical Engineering Science*, 64(4):733–741, 2009.
- [8] R. King (Hrsg.). *Active Flow Control*, volume 95 of *Notes on Numerical Fluid Mechanics and Multidisciplinary Design*. Springer, 2007.
- [9] R. King (Hrsg.). *Active Flow Control II*, volume 108 of *Notes on Numerical Fluid Mechanics and Multidisciplinary Design*. Springer, 2010.
- [10] J. Koch, W. Hackbusch, K. Sundmacher. H-matrix methods for quadratic integral operators appearing in population balances. *Computers and Chemical Engineering*, 32:1789–1809, 2008.
- [11] M. Krasnyk, C. Borchert, M. Mangold. Model reduction techniques for the simulation of particle populations in fluid flow. *Mathematical and Computer Modelling of Dynamical Systems (accepted)*, 2011.
- [12] M. Krasnyk, M. Mangold. Reduction of a urea crystallizer model by proper orthogonal decomposition and best point interpolation. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 49:9887–9898, 2010.
- [13] M. Krasnyk, M. Mangold, S. Ganesan, L. Tobiska. Reduction of a crystallizer model with internal and external coordinates by proper orthogonal decomposition. *Chemical Engineering Science (accepted)*, 2011.
- [14] M. Krasnyk, M. Mangold, A. Kienle. Reduction procedure for parametrized fluid dynamics problems based on proper orthogonal decomposition and calibration. *Chemical Engineering Science*, 65:6238–6246, 2010.
- [15] K. Kunisch, S. Volkwein. Galerkin proper orthogonal decomposition methods for a general equation in fluid dynamics. *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 40:492–515, 2003.
- [16] K. Kunisch, S. Volkwein. Proper orthogonal decomposition for optimality systems. *ESAIM: Mathematical Modelling and Numerical Analysis*, 42:1–23, 2008.
- [17] J. D. Litster, D. J. Smit, M. J. Hounslow. Adjustable discretized population balance for growth and aggregation. *AIChE Journal*, 41:591–603, 1995.
- [18] D. Marchisio, R. Fox. Solution of population balance equations using the direct quadrature method of moments. *Journal of aerosol science*, 36(1):43–73, 2005.
- [19] N. C. Nguyen, A. T. Patera, J. Peraire. A “best points” interpolation method for efficient approximation of parametrized functions. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 73(4):521–543, 2008.
- [20] A. Öncül, K. Sundmacher, A. Seidel-Morgenstern, D. Thévenin. Numerical and analytical investigation of barium sulphate crystallization. *Chemical Engineering Science*, 61:652–664, 2006.
- [21] S. Palis, A. Kienle. Stabilization of continuous fluidized bed spray granulation with external product classification. *Chemical Engineering Science*, 70:200–209, 2012.
- [22] H. M. Park, D. H. Cho. The use of the Karhunen-Loève decomposition for the modeling of distributed parameter systems. *Chemical Engineering Science*, 51:81–98, 1996.
- [23] D. Ramkrishna. *Population balances: theory and applications to particulate systems in engineering*. Academic Press, 2000.
- [24] L. Sirovich. Turbulence and the dynamics of coherent structures. Part 1: coherent structures. *Quarterly of Applied Mathematics*, 45(3):561–571, October 1987.
- [25] F. Y. Wang, X. Y. Ge, N. Balliu, I. T. Cameron. Optimal control and operation of drum granulation processes. *Chemical Engineering Science*, 61:257–267, 2006.
- [26] K. Wintermantel. Process and product engineering – achievements, present and future challenges. *Chemical Engineering Science*, 54:1601–1620, 1999.

Manuskripteingang: 26. Januar 2012



apl. Prof. Dr.-Ing. Michael Mangold gehört der Arbeitsgruppe Prozesssynthese und Prozessdynamik am Max-Planck-Institut Magdeburg an. Hauptarbeitsgebiete: modellgestützte Regelung und Analyse von chemischen, biologischen und Energiesystemen.

Adresse: Max-Planck-Institut für Dynamik komplexer technischer Systeme, Sandtorstraße 1, D-39106 Magdeburg, Fax: +49-(0)391-6110-513, E-Mail: mangold@mpi-magdeburg.mpg.de



Dr.-Ing. Mykhaylo Krasnyk ist Dozent an der NTU Donetsk. Hauptarbeitsgebiete: Nichtlineare Analyse technischer Prozesse, nichtlineare Modellreduktion

Adresse: Donetsk National Technical University, Faculty of Computer Science and Technology, Department of Computer Engineering, Artema Str. 58, 83001 Donetsk, Ukraine