

Razvoj softverskih senzora za praćenje rada procesnih analizatora

Šimić, Magdalena

Master's thesis / Diplomski rad

2023

Degree Grantor / Ustanova koja je dodijelila akademski / stručni stupanj: **University of Zagreb, Faculty of Chemical Engineering and Technology / Sveučilište u Zagrebu, Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije**

Permanent link / Trajna poveznica: <https://urn.nsk.hr/urn:nbn:hr:149:073933>

Rights / Prava: [In copyright](#)/[Zaštićeno autorskim pravom.](#)

Download date / Datum preuzimanja: **2024-07-13**



Repository / Repozitorij:

[Repository of Faculty of Chemical Engineering and Technology University of Zagreb](#)



SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
FAKULTET KEMIJSKOG INŽENJERSTVA I TEHNOLOGIJE
DIPLOMSKI STUDIJ

MAGDALENA ŠIMIĆ

DIPLOMSKI RAD

Zagreb, srpanj 2023.

SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
FAKULTET KEMIJSKOG INŽENJERSTVA I TEHNOLOGIJE
DIPLOMSKI STUDIJ

MAGDALENA ŠIMIĆ

**RAZVOJ SOFTVERSKIH SENZORA ZA PRAĆENJE RADA
PROCESNIH ANALIZATORA**

DIPLOMSKI RAD

Mentor: doc.dr.sc. Željka Ujević Andrijić

Članovi ispitnog povjerenstva: doc. dr. sc. Željka Ujević Andrijić

dr. sc. Srećko Herceg

izv. prof. dr. sc. Igor Dejanović

Zagreb, srpanj 2023.

Ovaj rad je izrađen na Zavodu za Mjerenja i automatsko vođenje procesa, Fakulteta kemijskog inženjerstva i tehnologije, Sveučilišta u Zagrebu. Ovim putem se ponajprije zahvaljujem voditelju rada, dr.sc. Srečku Hercegu, na strpljivosti i susretljivosti tokom cijelog procesa izrade diplomskog rada. Također se zahvaljujem mentorici, doc.dr.sc. Željki Ujević Andrijić na stručnim savjetima tokom izrade diplomskog rada.

Posebno se zahvaljujem mojim roditeljima, sestri Luciji, te braći Stjepanu i Vitku koji su ovih 5 godina bili iznimna podrška na svakom koraku. Moji prijatelji također zaslužuju zahvalu (OG - Dora i Iva, Beta, i ostali - ljubim vas sve), hvala im što su sudjelovali u svakom aspektu mog života proteklih 5 godina.

SAŽETAK

U ovom diplomskom radu predstavljen je razvoj dinamičkih modela softverskih senzora za praćenje rada *online* procesnog analizatora za mjerenje količine sumpora u proizvodu procesa hidrodosulfurizacije dizelskog goriva.

Jedan od važnih koraka u razvoju softverskih senzora bio je odabir i statistička obrada kontinuirano mjerenih podataka dobivenih s postrojenja. Primjenom metoda identifikacije procesa razvijeni su dinamički polinomni linearni modeli: model konačnog impulsnog odziva, FIR (engl. *finite impulse response*), model temeljen na autoregresiji sa egzogenim ulazima, ARX (engl. *autoregressive with exogenous inputs*) te model izlazne pogreške, OE (engl. *output error*). Razvijeni su i dinamički nelinearni modeli: nelinearni model temeljen na autoregresiji s egzogenim ulazima, NARX (engl. *nonlinear autoregressive with exogenous inputs*) i Hammerstein-Wiener (HW) model. Različitim postupcima vrednovanja modela provjerena je valjanost razvijenih modela.

Najmanja odstupanja modela od eksperimentalnih podataka pokazali su ARX i OE modeli te se oni mogu koristiti za kontinuiranu procjenu količine sumpora u proizvodu procesa hidrodosulfurizacije dizelskog goriva.

Svrha razvijenih modela softverskih senzora je praćenje rada procesnih analizatora i potencijalno korištenje u svrhu zamjene procesnih analizatora prilikom njihovog održavanja ili dužeg kvara uređaja.

Ključne riječi: empirijski matematički modeli, polinomni linearni i nelinearni dinamički modeli, softverski senzori, statistička obrada podataka, proces hidrodosulfurizacije

SUMMARY

This master's thesis demonstrates the development of dynamic models of soft sensors to monitor the operation of on-line process analyzers for measuring the sulfur content in the product of the hydrodesulfurization process of diesel fuel.

The most important steps in the development of soft sensors were the selection and preprocessing of continuously measured data collected from the plant. Using process identification methods, dynamic polynomial linear models were developed: finite impulse response (FIR), autoregressive with exogenous inputs (ARX) and output error (OE) models, as well as dynamic nonlinear models: nonlinear autoregressive with exogenous inputs (NARX) and Hammerstein-Wiener (HW). The performances of the developed models were tested by various model evaluation procedures.

The models ARX and OE showed the smallest deviations from the experimental data and can be used for continuous estimation of the sulfur content in the product of the diesel fuel hydrodesulfurization process.

The purpose of the developed soft sensor models is to monitor the operation of process analyzer and potentially replace it during maintenance or equipment failures.

Key words: empirical mathematical models, polynomial linear and nonlinear dynamic models, soft sensors, statistical data processing, hydrodesulfurization process

SADRŽAJ

1. UVOD.....	1
2. OPĆI DIO.....	3
2.1.1. Uvodno o softverskim sensorima.....	3
2.1.2. Primjena softverskih senzora u procesnoj industriji	5
2.2. Razvoj modela softverskih senzora	6
2.2.1. Metode identifikacije procesa	6
2.2.2. Postupak identifikacije procesa.....	8
2.2.2.1. Prikupljanje i predobrada podataka.....	9
2.2.2.2. Odabir strukture modela i metoda regresije	10
2.2.2.3. Vrednovanje modela	17
2.3. Proces hidrodesulfurizacije	20
2.3.1. Osnovni reakcijski mehanizmi	21
2.3.2. Katalizatori	21
2.3.3. Sirovine	21
2.3.4. Procesni uvjeti	22
3. METODIKA.....	23
3.1.1. Opis procesa	25
3.1.1.1. Reaktorska sekcija.....	25
3.1.1.2. Sekcija za stipiranje.....	26
3.2. Razvoj softverskih senzora za procjenu koncentracije sumpora u dizelskom gorivu	28
3.2.1. Prikupljanje i predobrada podataka.....	28
3.2.1.1. Odabir potencijalno utjecajnih varijabli.....	29
3.2.2. Odabir strukture i razvoj modela.....	30
3.2.3. Vrednovanje modela	31
3.2.4. Primjena modela softverskog senzora.....	32
4. REZULTATI I RASPRAVA.....	33

4.1.1.	Korelacijska analiza	33
4.1.2.	Filtriranje podataka	34
4.1.3.	Preliminarni modeli	35
4.1.4.	Usporedba rada online analizatora i laboratorijske analize.....	36
4.1.5.	Deskriptivna statistika	36
4.2.	Rezultati linearnih modela	40
4.2.1.	FIR model.....	40
4.2.2.	ARX model	41
4.2.3.	OE model.....	42
4.3.	Rezultati nelinearnih modela	44
4.3.1.	NARX model.....	44
4.3.2.	HW model	45
5.	ZAKLJUČAK	47
6.	LITERATURA.....	48
7.	ŽIVOTOPIS	50

1. UVOD

U industrijskim procesima i postrojenjima vrlo je teško kontinuirano i pouzdano mjeriti većinu ključnih procesnih veličina. Za njihovo praćenje koriste se laboratorijske analize koje su vrlo često rijetke i dugotrajne, dok primjena i održavanje *online* procesnih analizatora može biti iznimno zahtjevna i skupa.

Zbog ovih razloga u primjenu se uvode softverski senzori pomoću kojih se mogu pratiti ključne procesne veličine. Zahvaljujući softverskim sensorima, na temelju lako mjerljivih sekundarnih veličina kao što su temperatura, tlak i protok, predviđa se vladanje teško mjerljivih veličina određivanjem njihovih matematičkih funkcijskih veza. Kod razvoja softverskih senzora u kemijskom inženjerstvu potrebna su znanja iz različitih tehničkih područja, a bitna je i sinergija znanstvenog istraživanja i iskustva tehnologa i operatera s postrojenja.

U procesima prerade nafte, kod proizvodnje dizelskog goriva, potrebno je ukloniti sumpor iz konačnog proizvoda. Dizelsko gorivo često sadrži manje ili veće količine sumpora, koji može imati negativan utjecaj na okoliš. Sagorijevanjem dizelskog goriva sumpor u gorivu reagira s kisikom i stvara sumporni dioksid (SO_2), koji je onečišćivač zraka te pridonosi nastanku kiselih kiša, smoga i uzrokuje razne respiratorne probleme.

Hidrodesulfurizacija (engl. *hydrodesulphurization* – HDS) je proces prerade nafte koji se koristi za uklanjanje sumpora iz dizelskog goriva. Dopušteni sadržaj sumpora u dizelskom gorivu prema važećoj hrvatskoj normi, HRN EN 590, je 10 mg/kg. Na postrojenjima hidrodesulfurizacije sadržaj količine sumpora određuje se laboratorijskim analizama i *online* procesnim analizatorima. Procesni analizatori su skupi, a ako se neredovito održavaju podložni su čestim kvarovima.

Zbog neredovitosti provođenja laboratorijskih analiza i mogućih učestalih kvarova procesnih analizatora često postoje situacije da se ključne procesne veličine neredovito mjere što utječe na kvalitetu proizvoda, odnosno dovodi do toga da su proizvodi izvan traženih specifikacija. Alternativa provođenju rijetkih laboratorijskih analiza u primjeni modela softverskih senzora koji će pratiti rad procesnih analizatora te služiti kao njihova zamjena tijekom redovitog održavanja ili kvara.

U ovom radu prikazan je razvoj polinomnih dinamičkih modela softverskih senzora za kontinuiranu procjenu sadržaja sumpora u proizvodu procesa hidrodesulfurizacije

dizelskoggoriva. Metodama identifikacije procesa razvijeni su dinamički linearni FIR (engl. *finite impulse response*), ARX (engl. *autoregressive with exogenous inputs*) i OE (engl. *output error*) modeli te nelinearni NARX (engl. *nonlinear ARX*) i HW (engl. *Hammerstein-Wiener*) modeli.

2. OPĆI DIO

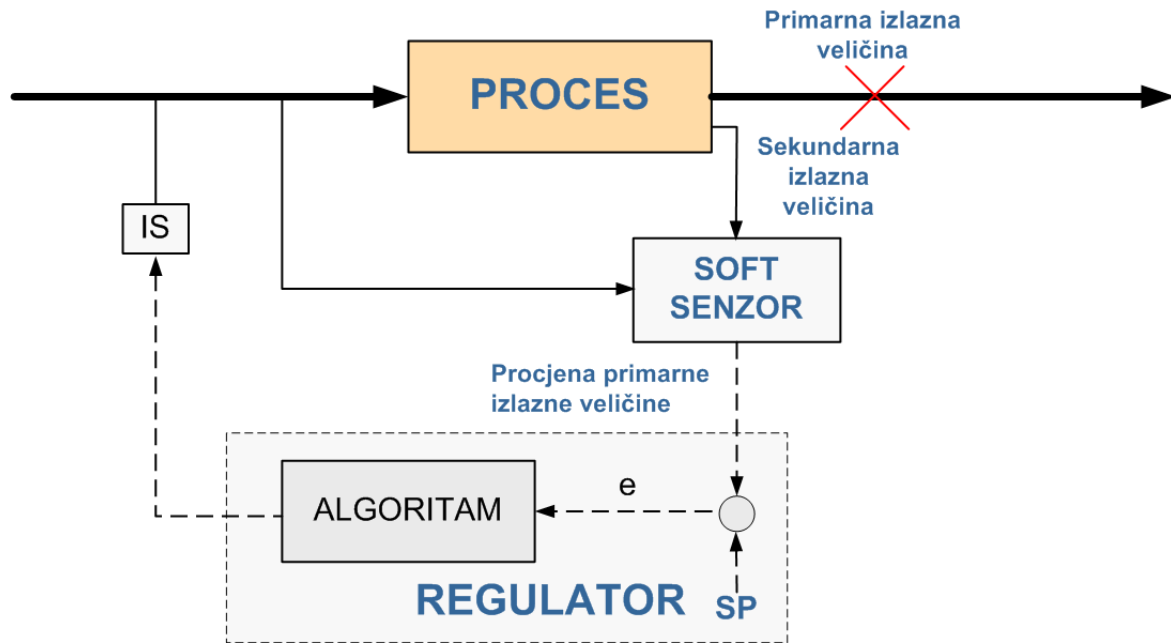
2.1. Softverski senzori

Jedan od češćih problema koji se javljaju u postrojenjima je nemogućnost kontinuiranog mjerenja i analize ključnih procesnih veličina, posebno kada se radi o sastavima procesnih struja i svojstvima proizvoda. Razvoj naprednih senzora i analizatora, koji se temelje na novim tehnologijama analitičke kemije i suvremenim elektroničkim napravama, važno je područje znanstvenog istraživanja, ali je cijena njihovog razvoja vrlo visoka, stoga je potrebno naći isplativiju, i dovoljno pouzdanu zamjenu [1].

2.1.1. Uvodno o softverskim sensorima

Softverski senzor ili soft senzor, (engl. *virtual soft sensor / software sensor / soft analyzer*) se definira kao matematički model, analitički ili empirijski, koji služi za procjenu nemjerljivih stanja procesa. Procjena se vrši na temelju dostupnih mjerenja ulaznih i izlaznih veličina. Na temelju lako mjerljivih, sekundarnih procesnih veličina procjenjuje se vrijednost primarnih, teško mjerljivih. Sve ključne veličine u procesu ne mogu se mjeriti u stvarnom vremenu, odnosno dovoljno brzo da bi se primjenjivale za automatsko vođenje procesa. Za to postoji više razloga:

- neke analitičke metode mjerenja nisu dovoljno automatizirane kako bi pružile točna i pouzdana mjerenja bez ljudske pomoći; rezultati ovakvih mjerenja se dobivaju samo povremeno iz laboratorija
- određena svojstva proizvoda se ne mogu određivati iz karakteristika poluproizvoda u pogonu; obično su te karakteristike povezane s krajnjom upotrebom proizvoda; tako npr. kvaliteta goriva, polimera ili prehrambenih proizvoda ovisi o njihovoj krajnjoj primjeni i ne može se ispitati sve dok nisu potpuno izrađeni
- trošak instaliranja osjetila koja bi omogućila mjerenja u stvarnom vremenu prevelik je da bi se opravdao potencijalnim koristima koje donosi taj senzor
- osjetilo ne može pravodobno pružiti informaciju, a za to postoje različiti razlozi (analizator dugo obrađuje podatke ili je smješten dalje od samog procesa zbog čega povratna informacija kasni).



Slika 2.1. Shematski prikaz inferencijskog vođenja i mjerenja [2]

Softverski senzori dio su inferencijskog vođenja procesa. Kao što se može vidjeti na slici 2.1., u nemogućnosti izravnog mjerenja primarne izlazne veličine, na temelju lako dostupnih, sekundarnih ulaznih i izlaznih veličina procjenjuje se primarna izlazna veličina i kao takva ulazi u regulator. Temeljem toga omogućeno je inferencijsko¹ vođenje procesa [2].

Postoje dvije osnovne grupe softverskih senzora – fundamentalni ili analitički, (engl. *first-principle*) i empirijski, na temelju podataka (engl. *data-driven*). Razvoj fundamentalnih modela je izazovan jer su kemijski procesi često vrlo složeni i nelinearni. Kao rezultat toga, ovaj pristup dovodi do kompleksnih nelinearnih modela koji zahtijevaju mnogo pretpostavki i vremena za rješavanje. Takvi modeli uglavnom se razvijaju kod projektiranja novih procesa i postrojenja te se obično fokusiraju na opis ponašanja procesa u stacionarnom stanju.

S druge strane, softverski senzori zasnovani na mjerenim podacima (empirijski modeli) mogu uglavnom pouzdano opisati dinamiku složenih industrijskih procesa. Ovi modeli ne pružaju detaljan uvid u fizikalno-kemijske značajke procesa, međutim, dovoljno dobro opisuju odnose između ulaznih i izlaznih veličina, što je često dovoljno za procjenu dinamičkog vladanja procesa. Također, postoje različite kombinacije fundamentalnih i empirijskih modela [3].

Razvoj softverskih senzora danas je područje velikog interesa, zato što se mogu predviđati vrijednosti teško mjerljivih veličina, posebice kad se radi o složenim i nelinearnim procesima.

¹ Inferencija (lat. *inferre*) – izvođenje zaključka, zaključivanje.

Pri tome se znanja o procesu povezuju sa statističkim metodama za identifikaciju i primjenjuju u svrhu optimiranja procesa. Mogućnosti primjene softverskih senzora posebno su široke u procesnoj industriji, ali i u drugim područjima, kao što su npr. biokemijska istraživanja [1].

2.1.2. Primjena softverskih senzora u procesnoj industriji

U industriji, točna i pouzdana mjerenja i odabir ključnih varijabli igraju najvažniju ulogu u vođenju procesa, praćenju, stabilnosti i poboljšanju kvalitete proizvoda. Softverski senzori se široko koriste za predviđanje vrijednosti varijabli koje je teško mjeriti u realnom vremenu. U tom smislu često su zamjena za mjerne uređaje tijekom kvarova ili servisa (npr. za *online* procesne analizatore i druge mjerne uređaje). Njihovom promjenom reducira se potreba za mjernom opremom (direktna primjena umjesto mjernog instrumenta), koriste se za dijagnostiku i otkrivanje pogrešaka, a potrebni su i za napredno vođenje procesa [4].

Pretraživanjem dostupne literature ustanovljeno je da postoji nekoliko radova objavljenih u proteklim godinama vezanih za razvoj softverskih senzora za procjenu sadržaja sumpora u proizvodu procesa hidrodesulfurizacije. Sharma [5] u svojoj disertaciji opisuje razvoj *online* senzora za procjenu sadržaja sumpora u proizvodu HDS procesa. Shokri i suradnici [6] razvili su softverski senzor za procjenu sadržaja sumpora u proizvodu HDS-a upotrebom tehnika strojnog učenja, dok su Salvatore i suradnici [7] razvili i primijenili takav senzor u jednoj brazilskoj rafineriji nafte. Lukec i suradnici [8] opisuju razvoj softverskog senzora u HDS procesu primjenom umjetnih neuronskih mreža.

2.2. Razvoj modela softverskih senzora

2.2.1. Metode identifikacije procesa

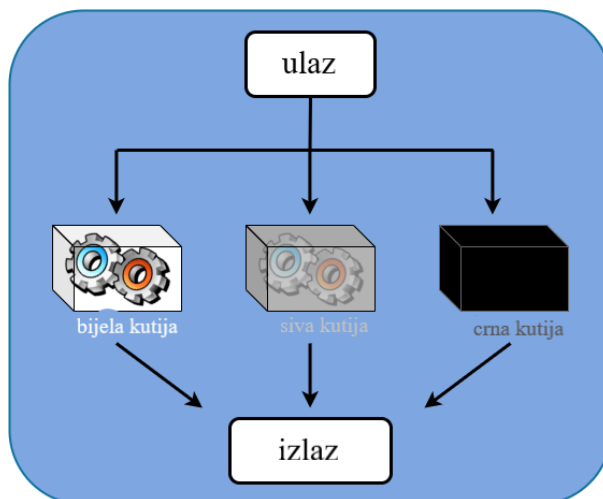
Identifikacija procesa/sustava je postupak izrade matematičkog modela koji opisuje vladanje dinamičkog sustava na temelju mjernih ulazno-izlaznih podataka. Uključuje analizu veza između ulaznih veličina u promatrani sustav i odgovarajućih izlaznih veličina radi određivanja strukture modela, identifikacije nepoznatih parametara, i vrednovanja modela. Cilj identifikacije procesa/sustava je razviti modele koji se mogu koristiti za simulaciju, vođenje, procjenu i analizu vladanja sustava.

Postupak identifikacije sustava ima logički slijed: prikupljanje „kvalitetnih“ podataka, izrada više vrsta modela te odabir najboljeg modela iz tog skupa. Vrlo je vjerojatno da prvi dobiveni model neće biti valjan. Tada se moraju ponovno analizirati različiti koraci postupka i tražiti uzroci nevaljanosti modela, a neki od uzroka mogu biti [9]:

- optimizacijski algoritam nije uspio odrediti optimalne parametre za dobar model prema odabranoj strukturi
- struktura modela nije dobro odabrana
- odabrane vrste modela nisu dovoljno dobro opisivale sustav
- skup podataka nije bio dovoljno informativan da obuhvati određenu dinamiku sustava.

Glavni dio postupka identifikacije zapravo se sastoji od rješavanja tih problema iterativnim pristupom, poznavajući informacije i rezultate iz prethodnih pokušaja. Tri najvažnije tehnike koje se koriste za identifikaciju procesa su [10]:

- tehnika bijele kutije (engl. *white box*): zahtijeva detaljno poznavanje fizikalno-kemijskih značajki promatranog procesa
- tehnika crne kutije (engl. *black box*): ne zahtijeva detaljno poznavanje procesa, odnosno nije potrebno poznavati fizikalno-kemijske značajke promatranog procesa
- tehnika sive kutije (engl. *grey box*): zahtijeva osnovno poznavanje procesa; kombinacijom tehnika bijele i crne kutije nastoji se identificirati proces.



Slika 2.2. Slikovni prikaz identifikacije procesa različitim tehnikama [10]

Prvi princip koji koristi fizikalno-kemijski opis procesa poznat je kao model bijele kutije, dok je model razvijen na temelju podataka poznat kao model crne kutije. Općenito, dobar model bi trebalo razviti kombinirajući tehnike bijele i crne kutije. U većini slučajeva, zbog nedostatka prethodnog znanja o procesu, uključujući njegovu nelinearnost, tehnika crne kutije je vrlo pogodan način za identifikaciju modela procesa. Vezano za tehniku bijele kutije, čak i u slučajevima kada su dostupne fizikalno-kemijske informacije o procesu, napor uložen u procjenu brojnih parametara takvih modela čini ovu tehniku manje pogodnom. Većina popularnih metoda za razvoj modela crne kutije temelji se na teoriji NARX (eng. *non-linear autoregressive with exogenous inputs*) modela izgrađenih korištenjem neuronskih mreža ili na drugim tehnikama kao što su primjerice metoda analize glavnih komponenata (engl. *principal component analysis – PCA*) i razne linearne tehnike modeliranja [11].

Ukratko, postupak identifikacije odvija se na način da se nakon izabrane prikladne strukture modela, početnih vrijednosti parametara i ulaznih veličina, izračunaju izlazne veličine modela. Izračunate izlazne veličine potom se uspoređuju s mjerenim vrijednostima izlaza iz procesa generirajući vrijednosti pogreške. Na osnovi vrijednosti pogreške izračunava se iznos funkcije cilja koja iskazuje ovisnost pogreške o parametrima modela. Zatim se postupcima optimiranja procjenjuju vrijednosti parametara koji daju minimalnu vrijednost funkcije cilja.

Vrsta modela koji se odabire ponajprije ovisi o svrsi i području primjene softverskog senzora. Ako proces radi u stacionarnim uvjetima, te kod standardnih metoda vođenja procesa, zbog jednostavnosti i lakše primjene, najčešće se odabire linearan model. Za složene industrijske procese bolji izbor je nelinearan model. Kada se softverski senzor koristi kao zamjena za

procesni analizator onda struktura modela ne smije uzimati prošle vrijednosti varijable koja se predviđa. U slučaju da se softverski senzor koristi radi smanjenja zadržke u regulacijskom krugu ili za „rezervnu“ analizu, onda se prethodne vrijednosti procjenjivane veličine mogu koristiti u modelu [12].

U procesnoj industriji najčešće se primjenjuju empirijski modeli softverskih senzora dobiveni upotrebom:

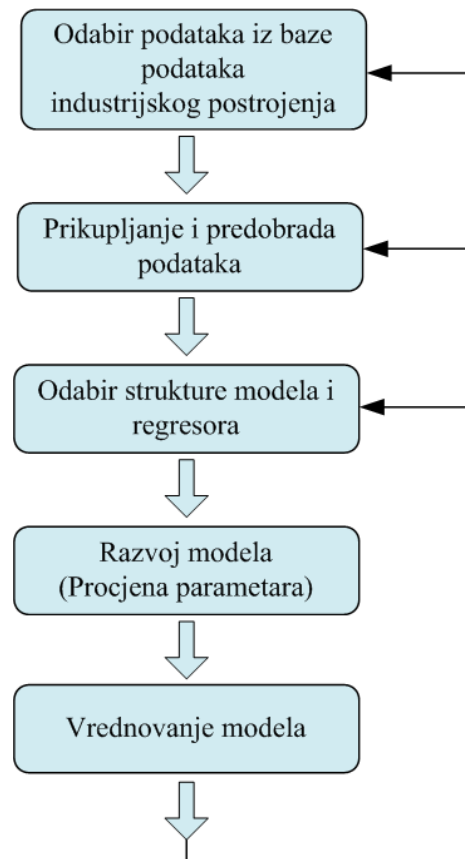
- regresijskih metoda
- metode analize glavnih komponentata (engl. *principal component analysis* – PCA)
- metode parcijalnih najmanjih kvadrata (engl. *Partial Least Squares* – PLS)
- umjetnih neuronskih mreža (engl. *artificial neural networks* – ANN)
- neizrazitih sustava (engl. *fuzzy systems* – FS) i neuro-neizrazitih sustava (engl. *neuro-fuzzy* – NF)
- metodi potpornih vektora (engl. *support vector machine* – SVM).

U najširoj primjeni su linearni regresijski modeli te modeli temeljeni na metodama analize glavnih komponentata (PCA) i parcijalnih najmanjih kvadrata (PLS) [12].

2.2.2. Postupak identifikacije procesa

Postoji mnogo koraka u razvoju modela softverskih senzora u literaturi, ali uglavnom im se razvoj sastoji od sljedećih glavnih koraka:

- prikupljanje i predobrada podataka
- odabir strukture modela i regresora
- razvoj modela
- vrednovanje modela



Slika 2.3. *Postupak razvoja softverskog senzora* [12]

U nadolazećim poglavljima objasniti će se svaki od koraka za razvoj softverskog senzora.

2.2.2.1. Prikupljanje i predobrada podataka

Prvi korak u identifikaciji dinamičkih procesa je prikupljanje i predobrada podataka sa procesnog postrojenja. U industrijskim postrojenjima se uglavnom pohranjuju mjereni podaci iz procesa [13]. Prikupljanje i adekvatna predobrada podataka od jednake i velike je važnosti kao i odabir utjecajnih varijabli za razvoj modela. Kod procesa prikupljanja podataka može doći do niza problema, kao što su: nedostajući podaci, neispravnost mjernog uređaja, prisutnost šuma i drugih smetnji, manjak informacija o samoj dinamici procesa, itd. Konzultacije sa stručnjacima za pojedini proces i operaterima na postrojenju su ključne. Oni mogu informirati o vremenima zadržki i/ili prisutnosti poremećaja. Također mogu ukazati na periode određene izražene dinamike procesa [12].

Iz odabranog skupa podataka izabiru se potencijalno utjecajne varijable. U ranijoj fazi razvoja dobro je uzeti u obzir više varijabli, a onda ih se u kasnijoj fazi po potrebi eliminira. Najčešće se provodi korelacijska analiza između potencijalnih utjecajnih varijabli i izlaznih varijabli.

Potrebna je predobrada podataka, naročito u smislu otkrivanja neželjenih ekstremnih vrijednosti (engl. *outliers*) ili nedostajućih podataka. Do takve vrste podataka dolazi zbog pogreški u mjerenju ili kvara mjernog uređaja. Ekstremne vrijednosti mogu imati neželjeni učinak na valjanost modela, međutim, potrebno je uočiti da nije svaka ekstremna vrijednost ujedno i neželjena već može sadržavati vrijednu informaciju o dinamičkom vladanju procesa. Važno je odabrati adekvatan period, tj. vrijeme uzorkovanja podataka. Dostupnost velikih količina memorije omogućuje manje vrijeme uzorkovanja podataka, često puno manje nego što je praktično potrebno. Kako bi se izbjegla obrada i računanje s velikim količinama podataka kod identifikacije procesa to je vrijeme moguće povećati [12].

Kada se podaci prikupljaju tijekom duljeg vremenskog razdoblja, mogu se pojaviti odstupanja podataka od pravih vrijednosti. Uklanjanjem srednjih vrijednosti (engl. *remove means*) može se postići poboljšanje nelinearnih modela za mjerne podatke koji značajno variraju, dok se kod razvoja linearnih modela u svrhu poboljšanja mogu ukloniti linearni trendovi [12].

2.2.2.2. Odabir strukture modela i metoda regresije

Postupak odabira strukture modela, metoda regresije i samih regresora (ulaznih veličina), drugim riječima – odabir modela, je izazov koji u ovisnosti o složenosti procesa i broju ulaznih varijabli s različitim vremenskim zadržkama i dinamičkim vladanjem se može definirati kao zahtjevan posao. Odabir modela također često ovisi o prethodnom iskustvu stručnjaka koji rade na razvoju softverskog senzora, a čiji manjak iskustava može biti nedostatak za konačni softverski senzor. Zato se mnogi usredotočuju samo na razvoj modela koji su vezani za njihovo područje istraživanja.

Iz skupa potencijalnih modela potrebno je odrediti koji model je prikladan za primjenu u odabranom procesu na postrojenju. Ovo je jako važan dio postupka identifikacije sustava. Potrebno je prethodno znanje, iskustvo i dobra inženjerska praksa kako bi se u konačnici primijenio optimalni model [9].

Pri odabiru strukture modela obično se počinje s linearnim modelima koji se po potrebi nadograđuju u odgovarajuće nelinearne modele. U industrijskim primjenama pozornost je usredotočena na parametarske strukture modela, a među njima ključnu ulogu imaju autoregresijski modeli s vanjskim ulazima u linearnim i nelinearnim izvedbama. Pretpostavka kod identifikacije procesa je ta da je proces koji se identificira uglavnom linearan i vremenski nepromjenljiv (engl. *time-invariant*).

Kod procesa kod kojih je nelinearnost znatno izražena moraju se primijeniti nelinearni modeli. U tom je slučaju postupak identifikacije znatno složeniji. Najveću poteškoću predstavlja odabir strukture modela za što su potrebna znanja i iskustva iz različitih strukovnih područja. Nelinearni model u pravilu ima znatno veći broj parametara, što povećava složenost njihove procjene.

Budući da se sva interakcija s procesom odvija preko ulaznih i izlaznih veličina, vladanje procesa se valjano može opisati tzv. ulazno-izlaznim modelom [12].

Linearni modeli dinamičkih procesa

Opći model linearnih, vremenski nepromjenljivih procesa s dodatkom poremećaja glasi:

$$\mathbf{y}(k) = \mathbf{G}(q)\mathbf{u}(k) + \mathbf{H}(q)\boldsymbol{\xi}(k) \quad (2.1)$$

gdje su:

q – operator vremenskog pomaka ((npr. $q\mathbf{u}(k)=\mathbf{u}(k+1)$, $q^{-1}\mathbf{u}(k)=\mathbf{u}(k-1)$))

$\mathbf{G}(q) = \sum_{k=1}^{\infty} \mathbf{g}(k)q^{-k}$ – prijenosni operator sustava (engl. *system transfer operator*)

$\mathbf{H}(q) = \mathbf{I} + \sum_{k=1}^{\infty} \mathbf{h}(k)q^{-k}$ – prijenosni operator poremećaja.

Jednadžba prediktora za opći linearni model procesa (2.1) je:

$$\hat{\mathbf{y}}(k) = \mathbf{H}^{-1}(q, \boldsymbol{\Theta})\mathbf{G}(q, \boldsymbol{\Theta})\mathbf{u}(k) + [\mathbf{I} - \mathbf{H}(q, \boldsymbol{\Theta})]\mathbf{y}(k) \quad (2.2)$$

Zbog neograničene dimenzije vektora $\mathbf{g}(k)$, $\mathbf{h}(k)$ i vektora parametara $\boldsymbol{\Theta}$, ovaj oblik modela procesa nije prikladan, pa se koriste konačno-dimenzionalni modeli u prostoru stanja te ulazno-izlazni modeli s prijenosnim operatorima $\mathbf{G}(q)$ i $\mathbf{H}(q)$ prikazanim u obliku racionalnih funkcija, s tim da koeficijenti brojnika i nazivnika predstavljaju parametre modela [12].

U nastavku rada dan je pregled struktura linearnih i nelinearnih modela obuhvaćenih ovim radom.

FIR model

Modeli konačnog impulsnog odziva (engl. *finite impulse response* – FIR) vrlo su česti u procesnim industrijama zbog njihove jednostavne strukture, dobrih generalizacijskih sposobnosti i zbog jednostavnosti primjene.

FIR model je najjednostavniji dinamički model, koji predstavlja linearnu regresiju nad prošlim mjernim uzorcima ulaznih veličina:

$$\mathbf{y}(k) = \mathbf{B}(q)\mathbf{u}(k - nk) \quad (2.3)$$

gdje je:

$$\mathbf{B}(q) = \mathbf{B}_1 + \mathbf{B}_2q^{-1} + \mathbf{B}_3q^{-2} + \dots + \mathbf{B}_{nb}q^{-nb+1} - \text{matrični polinom po } q^{-1}$$

\mathbf{B}_i – matrice koeficijenata dimenzije $n(y) \times n(u)$

nb – broj prošlih vrijednosti neke od ulaznih veličina

nk – vremenska zadržka izražena brojem prošlih vrijednosti ulaza.

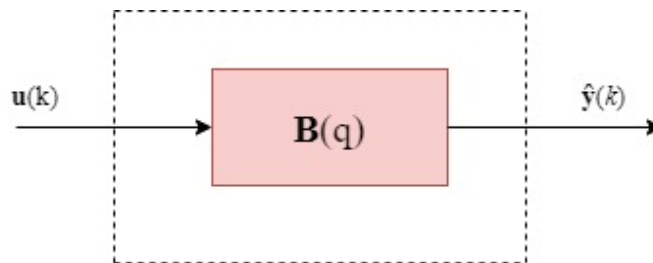
Prediktor FIR modela ima oblik linearne regresije:

$$\hat{\mathbf{y}}(k) = \mathbf{B}(q)\mathbf{u}(k - nk) = \mathbf{B}_1\mathbf{u}(k - nk) + \mathbf{B}_2\mathbf{u}(k - nk - 1) \dots + \mathbf{B}_{nb}\mathbf{u}(k - nb - nk + 1) \quad (2.4)$$

s regresijskim vektorom:

$$\boldsymbol{\varphi}(k) = \boldsymbol{\varphi}_u(k) = [\mathbf{u}(k-1), \dots, \mathbf{u}(k-nb)]^T \quad (2.5)$$

Aproksimacija linearnog procesa FIR modelom je bolja što je veća vrijednost parametra nb . Međutim, FIR model ne uzima u obzir dodatni poremećaj $\xi(k)$ jer nije uključen u regresijski vektor. Pored toga, potrebna dimenzija za regresijski vektor $n(\boldsymbol{\varphi})$ može biti vrlo velika.



Slika 2.4. Prediktor FIR modela procesa u kompaktnom obliku [12]

FIR model je pogodan za softverske senzore čija je svrha zamjena mjernog instrumenta ili procesnog analizatora zato što FIR model ne uzima u obzir prošle vrijednosti izlazne veličine kako bi procijenio buduću vrijednost izlazne veličine [12].

ARX model

Jedan od najčešće korištenih linearnih polinomnih dinamičkih modela koji u sebi ima uključene i vrijednosti izlaza je model temeljen na autoregresiji sa egzogenim ulazima (engl. *autoregressive with exogenous inputs* – ARX). Ovaj model uključuje i model poremećaja $\xi(k)$.

ARX model je definiran kao:

$$\mathbf{A}(q)\mathbf{y}(k) = \mathbf{B}(q)\mathbf{u}(k) + \xi(k) \quad (2.6)$$

gdje je:

$$\mathbf{A}(q) = \mathbf{I} + \mathbf{A}_1q^{-1} + \mathbf{A}_2q^{-2} + \dots + \mathbf{A}_{na}q^{-na} \text{ - matrični polinom po } q^{-1}$$

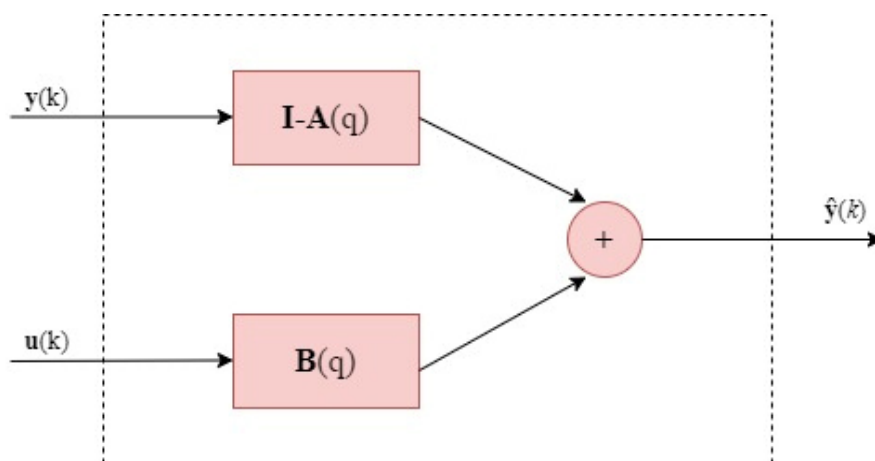
\mathbf{A}_i – matrice koeficijenata dimenzije $n(y) \times n(y)$

na – broj prošlih mjerenih vrijednosti izlaza.

Prediktor ARX modela u razvijenom obliku glasi:

$$\hat{\mathbf{y}}(k) = -\mathbf{A}_1\mathbf{y}(k-1) - \dots - \mathbf{A}_{na}\mathbf{y}(k-na) + \mathbf{B}_1\mathbf{u}(k-1) + \dots + \mathbf{B}_{nb}\mathbf{u}(k-nb) \quad (2.7)$$

Potrebna dimenzija regresijskog vektora $n(\phi)$ je znatno manja nego kod FIR modela [6].



Slika 2.5. Prediktor ARX modela procesa [12]

Zbog toga što koristi prošle vrijednosti mjerenih izlaza ne može se koristiti u svrhu zamjene mjernog instrumenta ili procesnog analizatora, već samo u dijagnostičke svrhe rada analizatora.

OE model

Model izlazne pogreške (engl. *output error* – OE) nadograđena je verzija FIR modela:

$$\mathbf{y}(k) = \frac{\mathbf{B}(q)}{\mathbf{F}(q)}\mathbf{u}(k) \quad (2.8)$$

gdje je

$$\mathbf{F}(q) = \mathbf{I} + \mathbf{F}_1q^{-1} + \mathbf{F}_2q^{-2} + \dots + \mathbf{F}_{nf}q^{-nf} \text{ - matrični polinom po } q^{-1}$$

\mathbf{F}_i – matrice koeficijenata dimenzije $n(\hat{y}) \times n(\hat{y})$

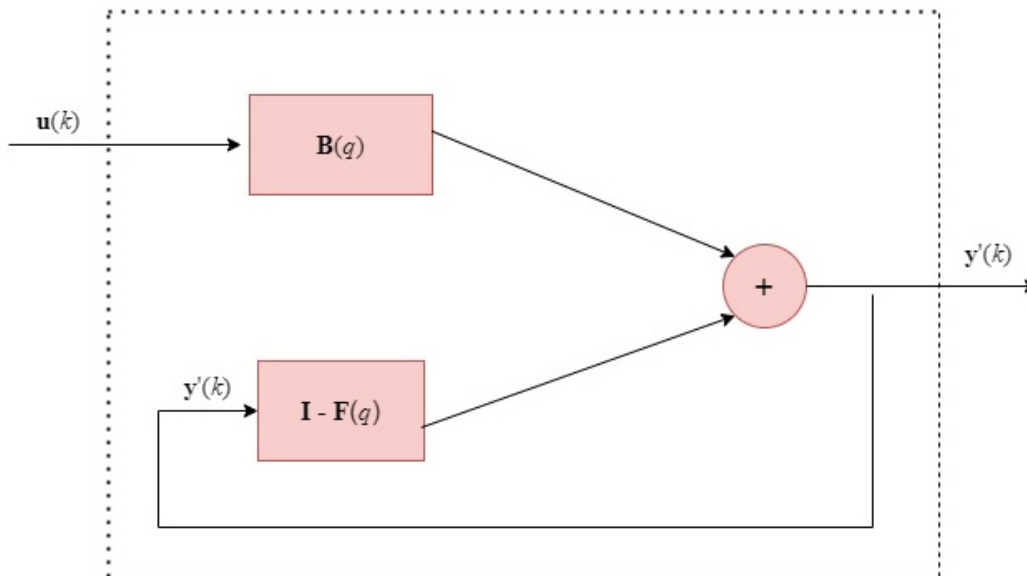
nf – broj prošlih vrijednosti izlaza iz modela.

Prediktor OE modela ima oblik pseudolinearne regresije:

$$\hat{y}(k) = \mathbf{B}(q)\mathbf{u}(k) + [\mathbf{I} - \mathbf{F}(q)]\hat{y}(k) \quad (2.9)$$

s pseudoregresijskim vektorom

$$\boldsymbol{\varphi}(k, \boldsymbol{\Theta}) = [\boldsymbol{\varphi}_u(k), \boldsymbol{\varphi}_y(k, \boldsymbol{\Theta})] = [\mathbf{u}(k-1), \dots, \mathbf{u}(k-nb), -\hat{y}(k-1), \dots, -\hat{y}(k-nf)]^T \quad (2.10)$$



Slika 2.6. Shematski prikaz prediktora OE modela [12]

Kod OE modela se kao i kod FIR modela predikcija temelji na prošlim vrijednostima ulaznih varijabli, međutim, dodatno su uključene i prošle vrijednosti izlaza iz modela, iako one ne unose ovisnost o nekim drugim veličinama. Kao i FIR model, OE model ne može modelirati poremećaj $\xi(k)$, ali dobro parametrira dinamiku procesa te obično uspijeva aproksimirati proces s manjim regresorom u odnosu na FIR model. Pogodan za softverske senzore čija je svrha zamjena mjernog instrumenta ili procesnog analizatora.

Premda se linearni dinamički modeli mogu uspješno primijeniti u mnogo slučajeva, nelinearni modeli imaju važnu ulogu kod primjene u industrijskim procesima koji uglavnom pokazuju značajno nelinearno dinamičko vladanje. Dok je struktura linearnih modela u potpunosti određena izabranim regresorima, struktura nelinearnih modela dodatno ovisi i o karakteristikama nelinearne funkcije $f_N(\boldsymbol{\varphi}, \boldsymbol{\Theta})$.

NARX model

Česti model za identifikaciju nelinearnih dinamičkih sustava je nelinearni ARX model (engl. *nonlinear ARX* – NARX).

Najopćenitiji se NARX model dobije primjenom nelinearne regresije nad prošlim mjernim uzorcima izlaznih i ulaznih veličina procesa:

$$\mathbf{y}(k) = \mathbf{f}(\mathbf{y}^{k-1}, \mathbf{u}^{k-1}) + \boldsymbol{\xi}(k) \quad (2.11)$$

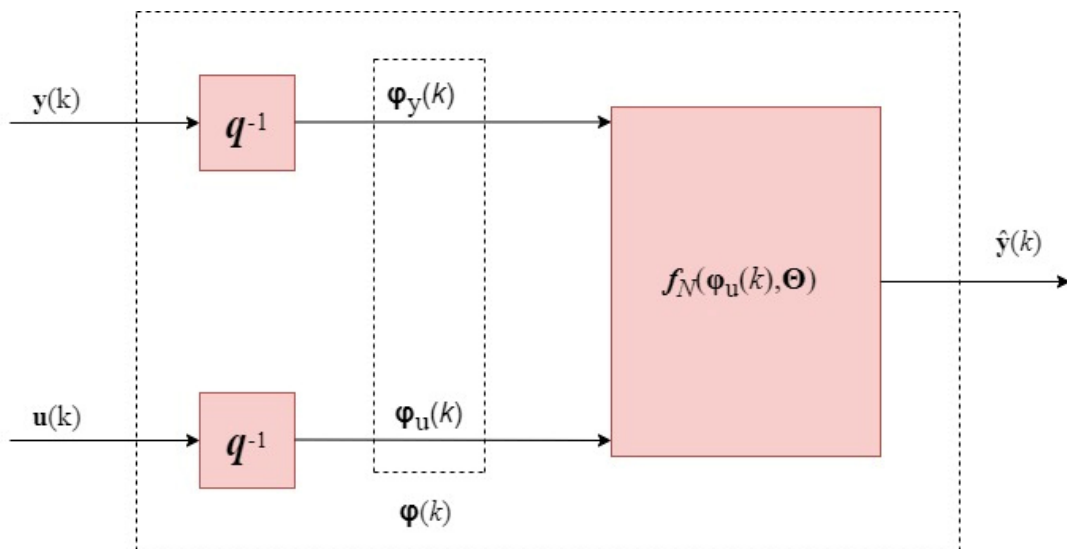
Prediktor NARX modela (slika 2.9) ima oblik:

$$\hat{\mathbf{y}}(k) = \mathbf{f}_N([\boldsymbol{\varphi}_y(k), \boldsymbol{\varphi}_u(k)], \boldsymbol{\Theta}) \quad (2.12)$$

s regresijskim vektorom:

$$\boldsymbol{\varphi}(k) = [\boldsymbol{\varphi}_y(k), \boldsymbol{\varphi}_u(k)] = [\mathbf{y}(k-1), \dots, \mathbf{y}(k-na), \mathbf{u}(k-1), \dots, \mathbf{u}(k-nb)]^T \quad (2.13)$$

Izraz $\mathbf{f}_N(\boldsymbol{\varphi}, \boldsymbol{\Theta})$ predstavlja nelinearnu funkciju koja može biti aproksimirana umjetnim neuronskim mrežama s različitim brojem aktivacijskih funkcija kao što su valna (engl. *wavelet*), sigmoidna (engl. *sigmoid*), segmentalna (engl. *piecewise-linear*) i druge.



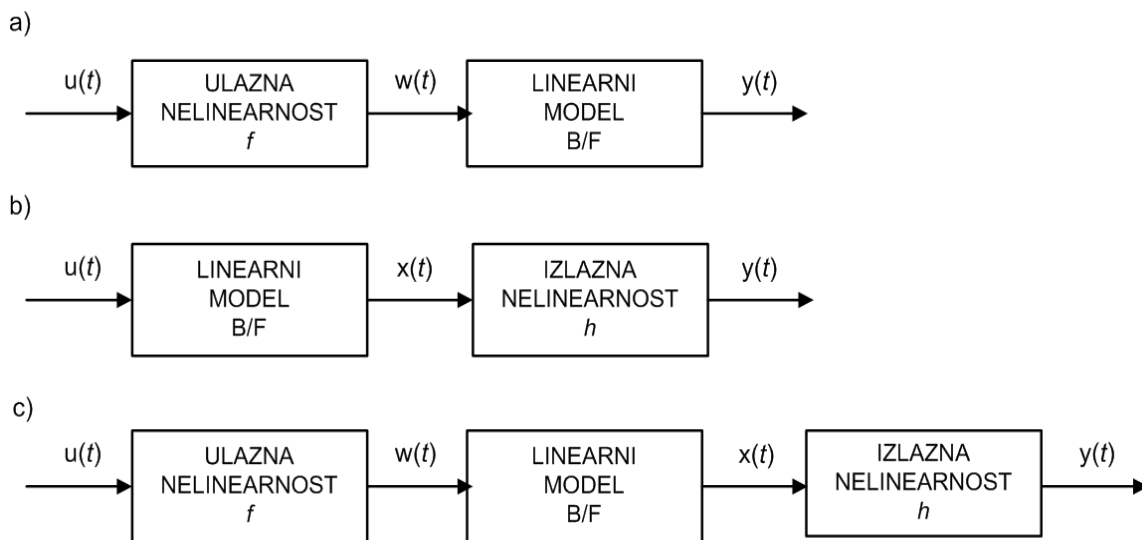
Slika 2.7. Prediktor NARX modela procesa [12]

Jedna od pogodnosti NARX modela je da njegovi regresori ne ovise o parametrima modela. Ovo svojstvo čini NARX modele strukturno stabilnim, a numeričke postupke procjene parametara modela jednostavnijim nego kod modela s povratnim djelovanjem. Nedostatak NARX modela je taj što se smetnja modelira kao dio dinamike procesa pa nema zasebnoga

modela smetnje pa zbog toga dimenzija regresijskog vektora može biti znatno veća nego što to zahtijeva dinamika procesa [12].

HW model

Kod identifikacije procesa često nailazimo na slučaj da se dinamika procesa može opisati linearnim modelom, dok je nelinearnost ulaza i izlaza statičkog karaktera. U takvim slučajevima kod identifikacije nelinearnih procesa koriste se blokovski orijentirani modeli. Tipičan blokovski orijentirani model sa statičkom nelinearnosti na ulazima je Hammerstein model. Ako se statička linearnost nalazi na izlazima, onda je to Wienerov model. Njihova kombinacija naziva se Hammerstein-Wienerov (HW) model.



Slika 2.8. Struktura a) Hammerstein; b) Wienerovog; c) Hammerstein-Wienerovog modela [12]

Slika 2.8. prikazuje strukturu Hammerstein-Weinerovog modela, gdje su:

- $w(t) = f(u(t))$ – nelinearna prijenosna funkcija ulaza $u(t)$; $w(t)$ je dimenzija kao $u(t)$
- $x(t) = (B/F)w(t)$ – linearna prijenosna funkcija; $x(t)$ ima iste dimenzije kao $y(t)$
- **B** i **F** su polinomi linearnog OE modela
- $y(t) = h(x(t))$ – nelinearna prijenosna funkcija što preslikava izlaz iz linearnog bloka u izlaz iz sustava.

Funkcija f djeluje na ulaz u linearni blok pa se i samim time naziva ulazna nelinearnost. Funkcija h djeluje na izlaz iz linearnog bloka te se naziva izlazna nelinearnost. Ako sustav ima nekoliko ulaza i izlaza, potrebno je funkcije f i h definirati za svaku ulaznu i izlaznu veličinu [12].

Izlaz iz Hammerstein – Wienerovog modela računa se u tri koraka:

- računanje $\mathbf{w}(t) = f(\mathbf{u}(t))$ iz ulaznih podataka, pri čemu je $\mathbf{w}(t)$ ulaz u linearnu prijenosnu funkciju \mathbf{B}/\mathbf{F}
- računanje izlaza iz dinamičkog linearnog bloka koristeći $\mathbf{w}(t)$ i početne uvjete: $\mathbf{x}(t) = (\mathbf{B}/\mathbf{F})\mathbf{w}(t)$
- računanje izlaza iz modela pomoću nelinearne funkcije h , pri čemu se koristi izlaz iz linearnog bloka $\mathbf{x}(t)$: $\mathbf{y}(t) = h(\mathbf{x}(t))$.

2.2.2.3. Vrednovanje modela

Posljednji korak u razvoju softverskih senzora je vrednovanje (validiranje) modela. Model obično daje dobre rezultate ako se vrednuje na podacima na kojima je razvijen, međutim tek se primjenom modela na neovisnom skupu podataka dobiva konačna slika o kvaliteti razvijenog modela. Zato je izrazito važno vrednovati model na neovisnom skupu podataka. Postupcima vrednovanja provjerava se valjanost identificiranog modela procesa, odnosno ocjenjuje sukladnost njegovog ponašanja s ponašanjem stvarnog procesa unutar pretpostavljenih radnih uvjeta [14]. Postoji mnogo načina na koje model može biti vrednovan, ali većinom spadaju u neke od sljedećih skupina [15]:

- vrednovanje korištenjem numeričkih metoda
- vrednovanje korištenjem analitičkih metoda
- vrednovanje korištenjem eksperimentalnih rezultata
- vrednovanje korištenjem posrednih rezultata
- vrednovanje korištenjem testova konvergenacije.

Od numeričkih (statističkih) metoda procjene valjanosti modela najpopularnija mjera u praktičnim primjerima je srednja kvadratna pogreška (engl. *root mean square error* – *RMSE*) između procijenjenih i stvarnih vrijednosti izlazne veličine

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\hat{y}_i - y_i)^2}{n}} \quad (2.15)$$

gdje je y mjerena vrijednost izlaza, \hat{y} izlaz iz modela, a n broj uzoraka u skupu za vrednovanje modela.

$$MAE = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |y_1 - \hat{y}_i|^2 \quad (2.16)$$

Srednja apsolutna pogreška (*MAE*) također je popularna mjera procjene valjanosti modela jer, kao i kod srednje kvadratne pogreške (*RMSE*), vrijednost pogreške odgovara jedinicama izlazne veličine. Za razliku od *RMSE*, promjene vrijednosti su linearne i stoga intuitivne te rastu linearno s povećanjem pogreške. Vrijednosti pogreške izražavaju se u apsolutnom iznosu. [16].

Povećanjem reda modela posljedično se smanjuje i vrijednost funkcije cilja, međutim, to često nije slučaj i s pogreškom procijenjenih parametara modela. Iz tog razloga često se za usporedbu modela koristi kriterij konačne pogreške predviđanja prema Akaikeu (engl. *Akaike's final prediction error – FPE*). *FPE* kriterij modificira funkciju cilja V tako što "kažnjava" kompleksnost modela (izraženu brojem parametara modela) u odnosu na vrijednost predikcijske pogreške. *FPE* se definira jednadžbom [17]:

$$FPE = V \left(\frac{1 + \frac{d}{N}}{1 - \frac{d}{N}} \right) \quad (2.17)$$

gdje je d ukupni broj procijenjenih parametara, a N broj uzoraka u skupu za razvoj modela. Funkcija cilja V definira se kao

$$V = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N (\mathbf{y}(k) - \hat{\mathbf{y}}(k, \Theta))^2 \quad (2.18)$$

gdje Θ označava vektor procijenjenih parametara.

Valjanost modela može se ocijeniti na temelju izraza

$$FIT = \left(1 - \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^n (\hat{y}_i - y_i)^2}}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \right) \cdot 100 \quad (2.19)$$

gdje je \bar{y} srednja vrijednost mjerenog izlaza.

Vrednovanje modela može se provesti i uporabom grafičkih prikaza, a glavna je analiza reziduala modela pomoću četiri grafička prikaza (engl. *4-plot analysis of model residuals*). Analiza reziduala modela obuhvaća sljedeće grafičke prikaze:

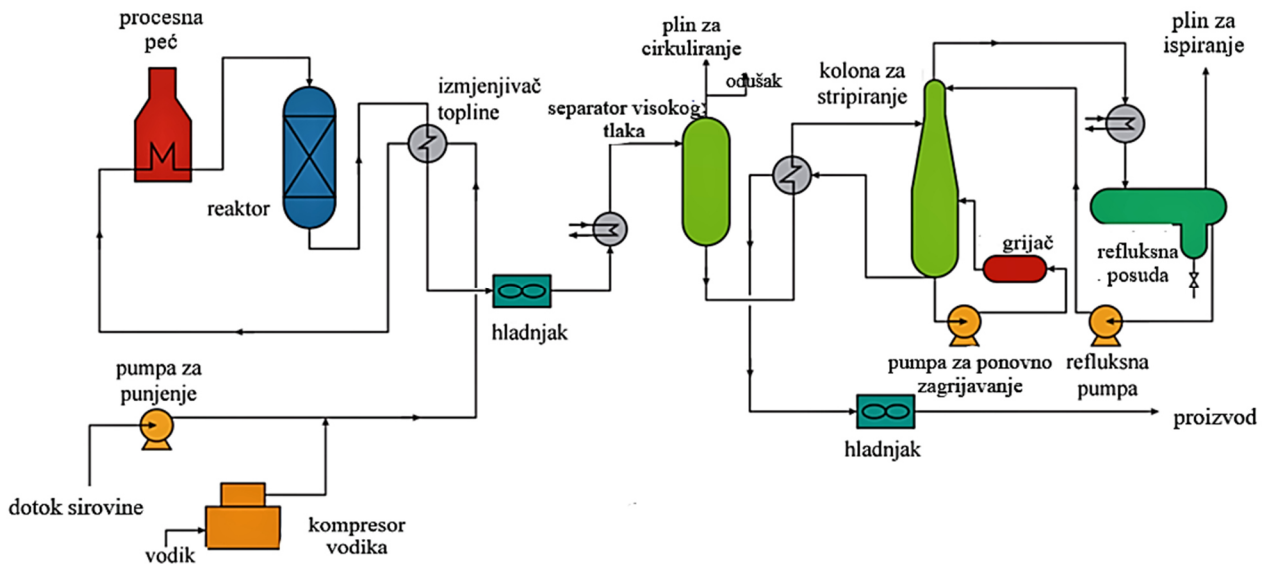
- prikaz tijeka izvođenja
- histogram
- prikaz zadržke
- prikaz normalne razdiobe.

Ako se postupcima vrednovanja utvrdi da model nije valjan, potrebno je otkriti uzroke i ako je moguće ponoviti odgovarajući dio postupka identifikacije. Uzrok lošeg vladanja modela na testu vrednovanja može biti u svakom od koraka postupka identifikacije [17]:

- mjerni podaci nisu dovoljno informativni
- struktura modela nije prikladno odabrana
- kriterij za ocjenu kvalitete modela nije dobro odabran
- loše odabran numerički postupak procjene parametara modela
- radno područje iz kojeg su uzimani podaci za razvoj modela je znatno drugačije od onih na kojima je model vrednovan;
- loše procijenjen red modela i zadržke ulaza;
- loše odabrane ulazne varijable.

2.3. Proces hidrodesulfurizacije

Hidrodesulfurizacija (HDS) je proces u kojem se naftni proizvodi i međuprodukti obrađuju s vodikom uz prisutnost katalizatora s ciljem uklanjanja sumporovih spojeva. Hidrodesulfurizacija je jedan od oblika procesa blagog hidrokrekiranja tijekom kojeg se uz sumporove spojeve uklanjaju dušikovi i kiskovi spojevi te dolazi do hidrogenacije ugljikovodičnih spojeva koji sadrže dvostruke veze, a smanjuje se i sadržaj metala. Hidrodesulfurizacijom se povećava kemijska stabilnost benzina, kao i cetanski broj i stabilnosti dieselskih goriva, pa se može reći da se općenito ovim procesom poboljšavaju ekološka i primjenska značajka naftnih goriva [18].



Slika 2.9. Prikaz postrojenja za hidrodesulfurizaciju [19]

Na slici 2.9. prikazana je općenita procesna shema HDS procesa. Svježa sirovina (obično benzinsko ili dizelsko gorivo s jedinice za atmosfersku destilaciju) spaja se vodikom, zagrijava i ulazi u HSD reaktor u kojem se odvijaju reakcije hidrodesulfurizacije i zasićenja nezasićenih spojeva poput olefina i aromata. Hidrodesulfurizirani proizvod se zatim hladi i odlazi u separator visokog tlaka gdje se na dnu odvaja željeni proizvod, a na vrhu plinovi, uglavnom vodik koji nakon čišćenja od sumporovodika dalje ide u cirkulaciju za ponovno korištenje. Odvojeni proizvod odlazi u kolonu za stripiranje gdje se dodatno odvajaju laki ugljikovodici na vrhu kolone te u obliku „kiselog“ ugljikovodičnog plina preko refleksne posude odlaze na čišćenje. Proizvod dna kolone za stripiranje se hladi i odlazi u skladište kao gotov hidrodesulfurizirani proizvod.

2.3.1. Osnovni reakcijski mehanizmi

Među osnovnim reakcijama u postrojenju za hidrodosulfurizaciju su reakcije hidrogenacije gdje reakcijom sumporovih spojeva s vodikom nastaje odgovarajući ugljikovodik i sumporovodik (H₂S). Neke od takvih reakcija su:

Tablica 2.1. Prikaz reakcija sumporovih spojeva s vodikom

Merkaptani	$C_2H_5-SH + H_2 \rightarrow C_2H_6 + H_2S$
Sulfidi	$C_2H_5-S-C_2H_5 + 2H_2 \rightarrow 2C_2H_6 + H_2S$
Tiofan	$C_4H_8S + 2H_2 \rightarrow C_4H_{10} + H_2S$
Tiofen	$C_4H_4S + 4H_2 \rightarrow C_4H_{10} + H_2S$
Dibenzotiofen	$C_{12}H_8S + 2H_2 \rightarrow C_{12}H_{10} + H_2S$

HDS proces pokazuje visoku sposobnost uklanjanja tiola, sulfida, disulfida i djelomično tiofena. Međutim, neki dibenzotiofeni (DBT) i njihovi derivati, kao što su 4,6-DMDBT preostanu nakon HDS procesa jer alkilne skupine na 4- i/ili 6- poziciji snažno inhibiraju HDS proces alkilnih DBT spojeva. Zbog toga je došlo do razvoja ne-HDS tehnologija, kao što su oksidacijska desulfurizacija, ekstrakcijska desulfurizacija, adsorpcijska desulfurizacija, alkilacija i biodesulfurizacija [20].

2.3.2. Katalizatori

Kod procesa hidrodosulfurizacije, katalizatori su prvenstveno metali koji obavljaju posao katalize u HDS-u, iako je nedavno zabilježena upotreba materijali od ugljika bez metala koji također mogu vršiti katalizu. Aktivni metali koriste se kao katalizatori bez potpore (u rasutom stanju) ili kao katalizatori na podlozi. Aktivni metali koji se koriste su Co(Ni) i Mo(W). Aktivne faze koje se koriste su monometalne, bimetalne, trimetalne ili čak multimetalne ovisno o zahtijevanom učinku katalizatora. Bimetalna kombinacija je još uvijek općeprihvaćen sustav katalizatora [21].

2.3.3. Sirovine

Sirovine za proces hidrodosulfurizacije su frakcije u širokom području vrelišta, a njihovom dobivanju prethode procesi kao što su atmosferska i vakumska destilacija. Sirovine koje se upotrebljavaju su:

- primarni benzin – sirovina za katalitički reforming
- mlazno gorivo
- pirolitički benzin kerozin i dieselsko gorivo
- vakuum destilati - sirovine za katalitički kreking.

2.3.4. Procesni uvjeti

Najvažnije varijable koje se prate kod procesa hidrodesulfurizacije su temperatura, tlak i omjer vodika i sirovine [18]. Svaka od ovih komponenti može značajno utjecati na konačni proizvod procesa.

Temperatura

Temperature u procesu hidrodesulfurizacije uobičajeno se kreću u području od 280 do 420 °C. Ako su temperature ispod 280 °C reakcije se odvijaju vrlo malom brzinom, a ako su iznad 420°C dolazi do nepoželjnih reakcija stvaranja lakih produkata (plinova) i koksa. Ako u proces ulaze lakše frakcije (npr. benzin) temperatura je niža. Teže sirovine (npr. ostaci atmosferske i vakuum destilacije) zahtijevaju više temperature. Postepeni gubitak aktivnosti katalizatora nadoknađuje se povišenjem temperature.

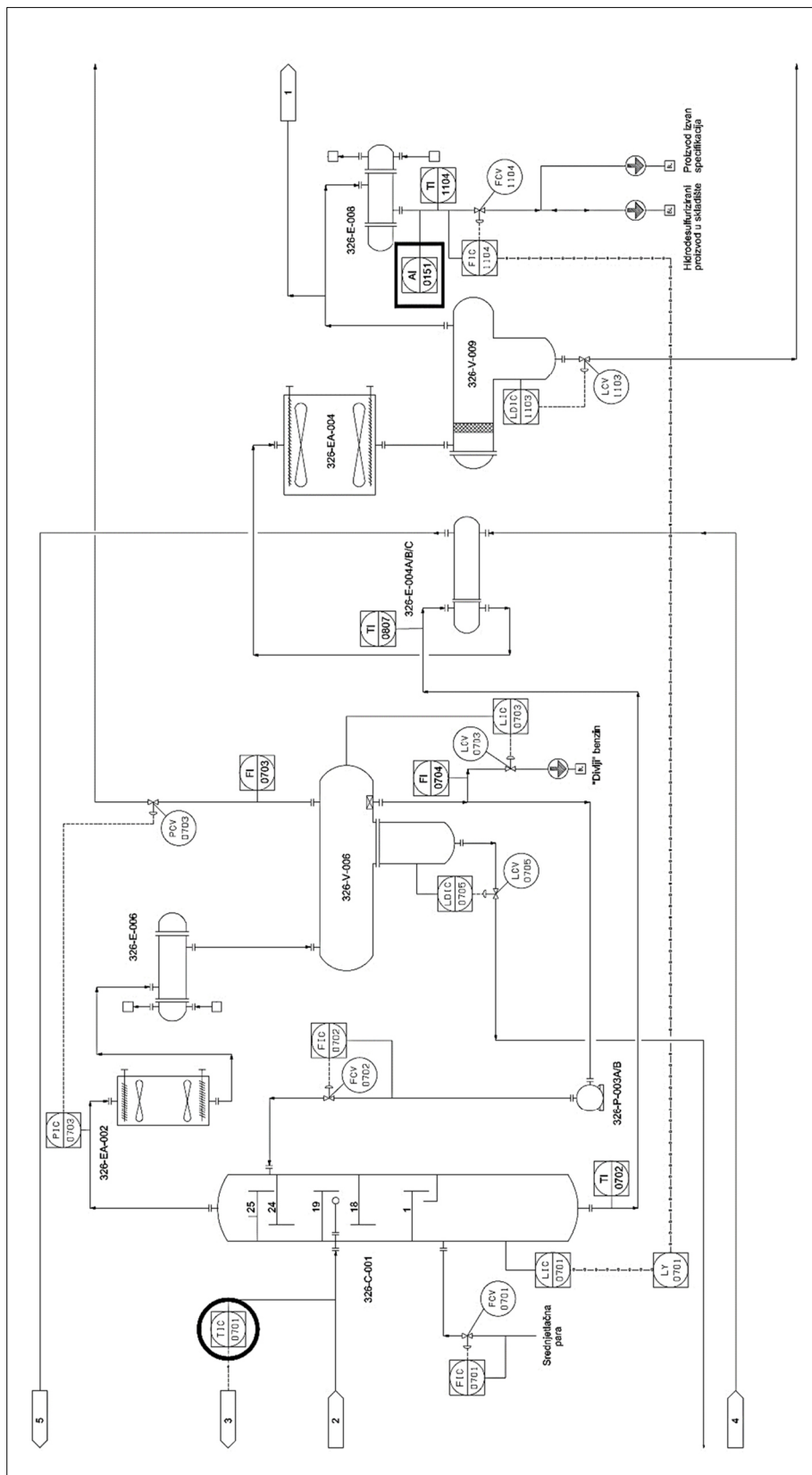
Tlak

Raspon tlaka kod hidrodesulfurizacije kreće se od oko 15-175 bara, iako se procesi najčešće provode, ovisno o početnoj sirovini, u području tlakova 20-70 bara. Za lakše sirovine potreban je niži tlak, dok je za hidrodesulfurizaciju težih sirovina potrebno imati tlak viših vrijednosti:

- benzin – 15 do 25 bara
- dieselsko gorivo – 35 do 70 bara
- vakuum ostatak – 120 do 175 bara.

Omjer vodik/sirovina

U HDS procesima vodik se koristi za razgradnju organskih sumporovih spojeva i uklanjanje sumpora iz naftnih frakcija. Količina upotrijebljenog vodika ovisi o vrsti sirovine. Za teže sirovine zahtijevaju se veće količine vodika. Ovaj omjer se kreće od 5 do 350 m³/m³ sirovine, a volumni udjeli vodika u plinu trebaju biti od 40 do 70% kako bi bilo omogućeno odvijanje reakcija hidrodesulfurizacije [18].



Slika 3.2. Shematski prikaz sekcije stripiranja procese hidrodesulfurizacije

3.1.1. Opis procesa

Postrojenje hidrodeshulfurizacije s kojeg su uzeti podaci za razvoj softverskog senzora može raditi u tri načina rada:

1. način: HDS – obrada lakog plinskog ulja
2. način: VGO – obrada vacuum plinskog ulja
3. način: JET – obrada petroleja.

U razdoblju istraživanja i razmatranja skupova podataka postrojenje je radilo u HDS načinu rada, odnosno vršila se obrada lakog plinskog ulja (PUL) s postrojenja „*Topping*“.

Proces HDS podijeljen je u četiri tehnološke sekcije. To su: reaktorska sekcija, sekcija stripiranja, sekcija obrade plina aminom i sekcija stripera kiselih voda. Na slikama 3.1. i 3.2. prikazane su sheme reaktorske sekcije, odnosno sekcije stripiranja koje su bile u fokusu istraživanja obuhvaćenog ovim radom. U nastavku je opis procesa ove dvije sekcije.

3.1.1.1. Reaktorska sekcija

Sirovina dolazi preko granice postrojenja na usis pumpe 326-P-020A/B, nakon koje ide na tzv. *back wash* filtere 326-F-001A/B. Ispiranje filtera se vrši pomoću desulfuriziranog plinskog ulja koji dolazi iz koalescera 326-V-009 ili kolone 326-C-001 ili spremnika 331-SA 005 i 331-SA-006.



Slika 3.3. Grafički prikaz dijela reaktorske sekcije u sustavu za vođenje procesa

Nakon filtera, sirovina ide u sirovinsku posudu. Dalje se sirovina odvodi uz regulaciju protoka 326-FC-0201 pomoću elektro pumpe ili turbinske pumpe. Zatim se sirovina predgrijava u izmjenjivačima topline. Prije ulaza u izmjenjivač topline miješa se sa svježim vodikom (engl. *make-up*) i recirkulirajućim (engl. *recycle gas*) plinom, dopremljenim kompresorima, čiji se ukupni protok mjeri pomoću 326-FI-0202. Iz izmjenjivača topline šarža pomiješana sa svježim i recirkulirajućim plinom dalje se predgrijava u izmjenjivaču topline, a zatim prolazi kroz procesnu peć gdje se zagrijava na potrebnu temperaturu. Također, između izmjenjivača se dodaje voda za otapanje amonijačnih soli iz spremnika kondenzata, pomoću pumpe.

Mješavina plinovite i tekuće faze ulazi u prvi reaktor 326-R-001, a zatim u drugi reaktor 326-R-002 gdje se odvijaju reakcije hidrodesulfurizacije, hidrogenitrifikacije, hidroleoksidacije i hidrodemetalizacije, kao i zasićenje nezasićenih spojeva poput olefina i aromata. Regulacija temperature ulaza u prvi reaktor 326-R-001 vrši se pomoću regulatora temperature 326-TC-0443, koji djeluje prema zahtjevu temperature šarže reaktora i regulira količine protoka goriva za loženje u peć. Temperaturni gradijent kroz reaktore regulira se dodavanjem plina za hlađenje (engl. *quench*) pomoću kompresora recirkulirajućeg plina.

U reaktoru 326-R-001 dodavanje plina za hlađenje odvija se između dva sloja katalizatora, a protok je reguliran regulatorom 326-FIC-0401 koji je u kaskadi s regulatorom temperature TC-0446. Regulacija ulazne temperature u drugi reaktor se također regulira dodavanjem plina za hlađenje na ulazu u reaktor 326-R-002. Regulacija protoka plina za hlađenje regulira se regulatorom FIC-0451, koji je u kaskadi s regulatorom temperature TIC-0493.

3.1.1.2. Sekcija za stipiranje

Nakon predgrijavanja u izmjenjivaču 326-E-004A/B/C (šarža stripera/produkt dna stripera), tekuća faza ugljikovodika iz niskotlačnog odjeljivača ide u striper kolonu. Ulazna temperatura šarže u striper regulirana je količinom protoka izlaznog toka reaktora kroz izmjenjivač 326-E-003 pomoću regulatora 326-TC-0701. U striper kolonu šarža ulazi između 18. i 19. plitice dok se para za stripiranje dodaje pri dnu kolone ispod prve plitice. Količina pare za stripiranje regulira se pomoću regulatora 326-FC-0701, ovisno o željenoj temperaturi dna kolone. Bitno je održavati temperaturu vrha kolone iznad 172°C pri tlaku 8 bara kako bi se spriječilo ukapljivanje vodene pare u produkt dna kolone.

Produkt s dna striper kolone izmjenjuje toplinu u izmjenjivaču 326-E-004 A/B/C s šaržom stripera i dalje se hladi u zračnom hladnjaku. 326-EA-004 nalazi se prije ulaza u koalescer

plinskog ulja. Ulaz u koalescer se drži ispod 35°C jer je pri nižim temperaturama značajno uspješnije odvajanje vode. U koalesceru se odjeljena voda odvodi s dna uz regulaciju razine, dok se plinsko ulje dalje hladi u vodenom hladnjaku prije odlaska izvan granice postrojenja, točnije u spremnike proizvoda. Regulacija protoka desulfuriziranog plinskog ulja odvija se pomoću regulatora 326-FC-1104 koji je u kaskadi s regulatorom razine.

3.2. Razvoj softverskih senzora za procjenu koncentracije sumpora u dizelskom gorivu

Postrojenje za hidrodosulfurizaciju dizelskog goriva složeno je industrijsko postrojenje u kojem je prisutno izraženo dinamičko vladanje procesa i nelinearnost procesa. Proizvod procesa je hidrodosulfurizirano dizelsko gorivo s dopuštenim sadržajem sumpora 10 mg/kg, prema važećoj hrvatskoj normi HRN EN 590. Razvoj softverskih senzora, odnosno modela za procjenu koncentracije sumpora u dizelskom gorivu temelji se na parametarskim polinomnim dinamičkim modelima: linearnim FIR, ARX i OE te nelinearnim NARX i HW.

Za razvoj modela korišten je programski paket Mathworks MATLAB, odnosno njegov *System identification toolbox*, a za statističku obradu podataka, uz MATLAB, i programski paket TIBCO Statistica.

3.2.1. Prikupljanje i predobrada podataka

Podaci za razvoj modela prikupljeni su iz baze podataka postrojenja gdje se kontinuirano pohranjuju sve mjerene veličine na postrojenju (tlakovi, temperature, protoci, ...).

Razmatrano je nekoliko perioda rada postrojenja tijekom 2021. i 2022. godine. Iz tog vremenskog perioda pokušao se pronaći skup podataka s naglašenom dinamikom procesa u trajanju od najmanje desetak dana. Zbog određenih zastoja u radu postrojenja te povremenih kvarova procesnog *online* analizatora relevantan period nije bilo lako izabrati.

Na koncu su odabrani periodi od 21. do 26. listopada 2022. za razvoj modela i od 4. do 8. listopada 2022. za vrednovanje modela, uključujući potencijalne ulazne varijable i izlaznu varijablu. Podaci su uzorkovani svake minute što uključuje približno 13 750 podataka.

Predobrada podataka uključivala je detekciju i uklanjanje ekstremnih vrijednosti, filtriranje podataka i određivanje korelacija između ulaznih i izlazne varijable, određivanje vremena uzorkovanja i uklanjanje linearnih trendova. Napravljena je i usporedba podataka mjerenih vrijednosti izlazne varijable upotrebom *online* procesnog analizatora s laboratorijskom analizom provedenom u prosjeku četiri puta dnevno. Prikazana je deskriptivna statistika i vremenski prikaz podataka za svaku od konačno izabranih utjecajnih varijabli i izlaznu varijablu na skupu za razvoj modela.

3.2.1.1. Odabir potencijalno utjecajnih varijabli

Na temelju proučavanja procesa hidrodosulfurizacije i razgovora s tehnolozima i operaterima na postrojenju odabrano je dvadesetak varijabli koje imaju potencijalni utjecaj na izlaznu varijablu – količinu sumpora u dizelskom gorivu (tablica 3.1.).

Važna činjenica je da količina sumpora na ulazu u postrojenje direktno utječe na količinu sumpora na izlazu iz postrojenja, odnosno u proizvodu. Ukoliko se analizom utvrdi da u sirovini koja dolazi na preradu ima znatno više sumpora od trenutne vrijednosti prema kojoj je postavljena ulazna temperatura u reaktor, temperaturu na ulazu u reaktor treba sniziti budući da su reakcije desulfurizacije egzotermne i može doći do „bijega temperature“.

Korelacijska analiza svih ulaznih varijabli provedena je određivanjem Pearsonovih korelacijskih koeficijenata na temelju koje su izabrane konačne utjecajne varijable. Iskustveno je optimalan broj utjecajnih varijabli od šest do osam. Veći broj ulaznih varijabli može dovesti do nepotrebne složenosti modela dok je kod manjeg broja ulaza vjerojatnost da se modelom neće moći opisati sveobuhvatna dinamika procesa složenih industrijskih postrojenja. Rezultati korelacijske analize prikazani su u poglavlju Rezultati i rasprava.

Tablica 3.1. Prikaz svih potencijalnih ulaznih varijabli

BR.	OZNAKA	MJERNA JEDINICA	VARIJABLA
1	26TI0201.PV	°C	temperatura na ulazu u posudu 326-V-001
2	26FC0201.PV	kg/h	protok sirovine iza pumpe 326-P-001
3	26FI0202N.PV	m ³ /h	ukupna količina vodika
4	26TI0202.PV	°C	temperatura na ulazu u izmjenjivač 326-E-001A
5	26TC0701.PV	°C	temperatura ulaza ugljikovodika u kolonu 326-C-001
6	26TC0443.PV	°C	temperatura ulaza šarže u reaktor 326-R-001
7	26TC0446.PV	°C	temperatura prvog reaktora 326-R-001
8	26FC0401.PV	kg/h	plin za hlađenje u reaktor 326-R-001
9	26FC0451.PV	kg/h	plin za hlađenje u reaktor 326-R-002
10	26TC0493.PV	°C	temperatura ulaza u reaktor 326-R-002

11	26TI0495.PV	°C	izlazna temperatura iz reaktora 326-R-002
12	26FC0502.PV	kg/h	izlaz ugljikovodika iz niskotlačnog separatora 326-V-003
13	26TC0701.PV	°C	temperatura ulaza ugljikovodika u kolonu 326-C-001
14	26TI0702.PV	°C	temperatura dna striper kolone 326-C-001
15	26FI0352.PV	kg/h	ukupna količina šarže kroz filter 326-F-002
16	26FC0702.PV	kg/h	protok refleksa striper kolone 326-C-001
17	26FI0703.PV	kg/h	plinska faza iz posude 326-V-006
18	26FI0704.PV	kg/h	“divlji“ benzin u skladište
19	26FC1104.PV	kg/h	protok plinskog ulja u skladište
20	26TI0807.PV	°C	temperatura na ulazu u izmjenjivač 326-E-004C
21	26TI1104.PV	°C	temperatura plinskog ulja u skladište

Budući u prikupljenim podacima nije zamijećeno puno ekstremnih vrijednosti one su uklonjene „ručno“ pregledom svih podataka. Podaci su dodatno filtrirani upotrebom *loess* (engl. *locally weighted scatterplot smoothing*) filtra u MATLAB-u.

Dostupnost perioda uzorkovanja između mjerenih podataka je jedna minuta. Često tako malo vrijeme uzorkovanja u praksi nije potrebno. Iskustveno je dovoljno uzeti period uzorkovanja od tri do pet minuta. Na koncu je uzet period uzorkovanja od tri minute. U poglavlju Rezultati i rasprava dana je usporedba rezultata izrade preliminarnih modela za period od jedne i tri minute.

U slučaju razvoja linearnih parametarskih polinomnih modela preporuča se ukloniti linearne trendove mjerenih ulaznih i izlaznih podataka [9]. Linearni trendovi uklonjeni su upotrebom metode najmanjih kvadrata.

3.2.2. Odabir strukture i razvoj modela

Tablica 3.2. daje pregled parametara modela kod linearnih FIR, ARX i OE te nelinearnih NARX i HW. Vrijednostima ovih parametara određeni su redovi polinomnih matrica svakog od modela, a polinomne matrice predstavljene su koeficijentima (tablica 3.3.).

Tablica 3.2. Parametri modela

Parametri	Opis
na	broj prošlih mjerenih vrijednosti izlaza (ARX, NARX)
nb	broj prošlih vrijednosti neke od ulaznih veličina (svi modeli)
nk	vremenska zadržka izražena brojem prošlih vrijednosti ulaza (svi modeli)
nf	broj prošlih vrijednosti izlaza iz modela (OE, HW)
n	broj aktivacijskih funkcija – nelinearnih jedinica (NARX, HW)

Tablica 3.3. Koeficijenti polinomnih matrica

Koeficijent	Polinomne matrice
\mathbf{A}_i	$\mathbf{A}(q) = \mathbf{I} + \mathbf{A}_1q^{-1} + \mathbf{A}_2q^{-2} + \dots + \mathbf{A}_{na}q^{-na}$ (ARX, NARX)
\mathbf{B}_i	$\mathbf{B}(q) = \mathbf{B}_1 + \mathbf{B}_2q^{-1} + \mathbf{B}_3q^{-2} + \dots + \mathbf{B}_{nb}q^{-nb+1}$ (svi modeli)
\mathbf{F}_i	$\mathbf{F}(q) = \mathbf{I} + \mathbf{F}_1q^{-1} + \mathbf{F}_2q^{-2} + \dots + \mathbf{F}_{nf}q^{-nf}$ (OE, HW)

Ispitivale su se vrijednosti parametara na , nb i nf u rasponu od 0 – 12 što je prema ranijim istraživanjima i iskustveno u skladu s dinamikom procesa, razumnim vremenom potrebnim za izračun modela i kompleksnošću modela. Parametar nk fiksiran je na određene vrijednosti vremenskih zadržki izabranih utjecajnih varijabli, a njihove vrijednosti su određene prema iskustvenim informacijama operatera na postrojenju. Kod nelinearnih modela parametar n koji predstavlja broj aktivacijskih funkcija (valnih, sigmoidnih, segmentalnih i dr.) u strukturi umjetnih neuronskih mreža također je ispitan u rasponu od 0 – 12.

Nakon određivanja optimalnog reda modela izborom optimalnih parametara, konačni model dobiva se izračunom optimalnih koeficijenata polinomnih matrica modela. Koeficijenti su izračunati optimizacijskim algoritmima ugrađenim u programski paket MATLAB, temeljenim na metodi najmanjih kvadrata (za FIR i ARX), algoritama pretraživanja (za OE) te na kombinacijama Gauss-Newtonove, Levenberg-Marquardtove i *trust-region* optimizacijskim metodama (za NARX i HW modele) [22].

3.2.3. Vrednovanje modela

Vrednovanje modela provedeno je na neovisnom skupu podataka (različitom od onoga na kojima su modeli razvijeni) upotrebom numeričkih statističkih kriterija: koeficijenta

korelacije između mjerenih izlaznih vrijednosti i vrijednosti procijenjenih modelom (*FIT*), konačne pogreške predviđanja prema Akaikeu (*FPE*), srednje kvadratne pogreške (*RMSE*) i srednje apsolutne pogreške (*MAE*). Vrednovanje modela provedeno je i grafički usporedbom mjerenih izlaznih vrijednosti i vrijednosti procijenjenih modelom.

3.2.4. Primjena modela softverskog senzora

Cilj razvijenih softverskih senzora je da se mogu koristiti za procjenu koncentracije sumpora u proizvodu procesa hidrodesulfurizacije ugradnjom u rafinerijski sustav za vođenje procesa. Ugrađuje se optimalni model koji ne mora nužno pokazivati najbolje rezultate već je svojom strukturom stabilan i pogodan da omogući minimalno vrijeme izračuna i zadovolji namjenu. Softverski senzor može pratiti rad procesnog analizatora i služiti kao njegova zamjena tijekom redovitog održavanja ili kvara. Instalacija ovakvog soft senzora preduvjet je za omogućavanje naprednog vođenja procesa.

4. REZULTATI I RASPRAVA

4.1. Prikupljanje i predobrada podataka

4.1.1. Korelacijska analiza

U tablici 4.1. prikazani su rezultati korelacijske analize između potencijalnih ulaznih varijabli i izlazne varijable (koncentracije sumpora u proizvodu, oznake 09AI151_1.PV) određivanjem Pearsonovih korelacijskih koeficijenata. Uvažavajući više vrijednosti korelacija, stečeno znanje o procesu i savjete operatera na postrojenju, izabrano je šest utjecajnih varijabli koje su uzimane u obzir u daljnjim koracima razvoja modela (tablica 4.2).

Tablica 4.1. *Pearsonovi korelacijski koeficijenti između potencijalnih ulaznih i izlazne varijable*

Oznake varijabli	09AI151_1.PV
26TI0201.PV	-0,01
26FC0201.PV	-0,24
26FI0202N.PV	0,24
26TI0202.PV	0,29
26TC0701.PV	-0,35
26TC0443.PV	-0,38
26TC0446.PV	-0,44
26FC0401.PV	0,17
26FC0451.PV	-0,15
26TC0493.PV	-0,59
26TI0495.PV	-0,51
26FC0502.PV	-0,23
26TC0701.PV	-0,35
26TI0702.PV	-0,47
26FC0702.PV	-0,38
26FI0703.PV	0,17
26FI0704.PV	-0,27
26FC1104.PV	-0,24
26TI0807.PV	-0,47
26TI1104.PV	-0,04

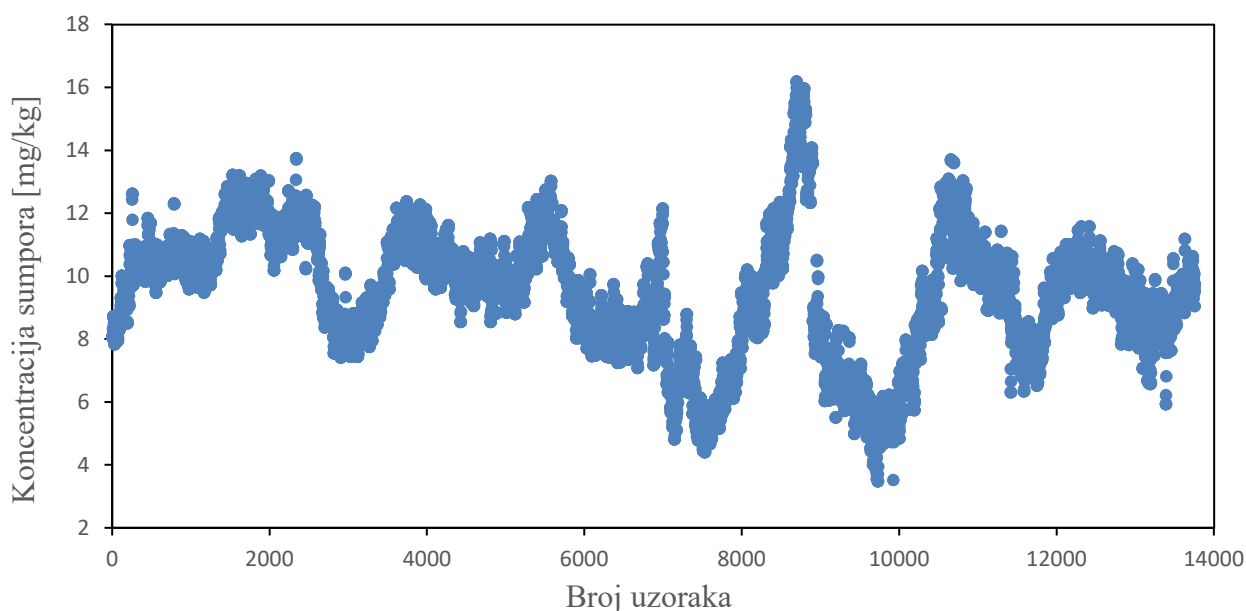
Tablica 4.2. Utjecajne ulazne varijable za razvoj modela procjene sadržaja sumpora u proizvodnji HDS procesa

Naziv varijable	temperatura ulaza šarže u reaktor 326-R-001	temperatura ulaza ugljikovodika u kolonu 326-C-001	plin za hlađenje u reaktor 326-R-001	temperatura prvog reaktora 326-R-001	temperatura ulaza u reaktor 326-R-002	izlazna temperatura iz reaktora 326-R-002
Oznaka varijable	26TC0443	26TC0701	26FC0401	26TC0446	26TC0493	26TI0495
Mjerna jedinica	°C	°C	kg/h	°C	°C	°C

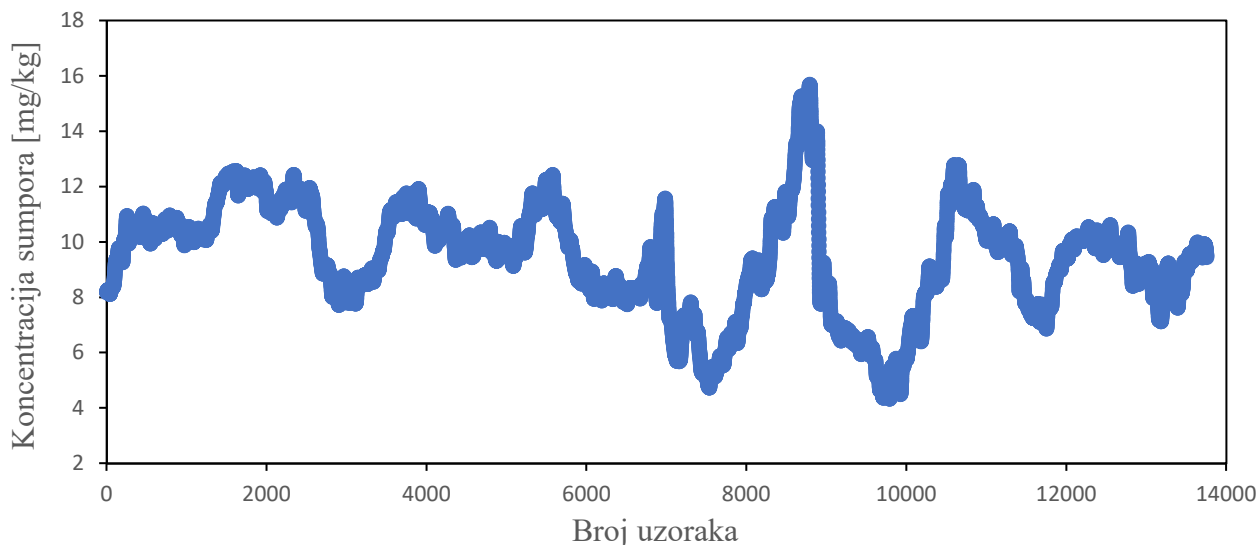
4.1.2. Filtriranje podataka

Nakon ručnog uklanjanja ekstremnih neželjenih vrijednosti provedeno je filtriranje podataka upotrebom *loess* filtra u MATLAB-u, s koeficijentom od 0,005. Postupak je proveden za ulazne (utjecajne) varijable i za izlaznu varijablu.

Na slici 4.1. prikazane su vrijednosti izlazne varijable na spojenim skupovima podataka za razvoj i vrednovanje modela bez prethodne predobrade, a na slici 4.2. nakon uklanjanja ekstremnih vrijednosti i upotrebe filtra.



Slika 4.1. Prikaz izlazne varijable prije predobrade



Slika 4.2. Prikaz izlazne varijable nakon filtriranja

4.1.3. Preliminarni modeli

U tablici 4.3. prikazana je usporedba rezultata preliminarnih ARX modela s periodima uzorkovanja mjerenih podataka od jedne, tri i pet minuta. Valjanost modela vrednovana je koeficijentom korelacije, *FIT*.

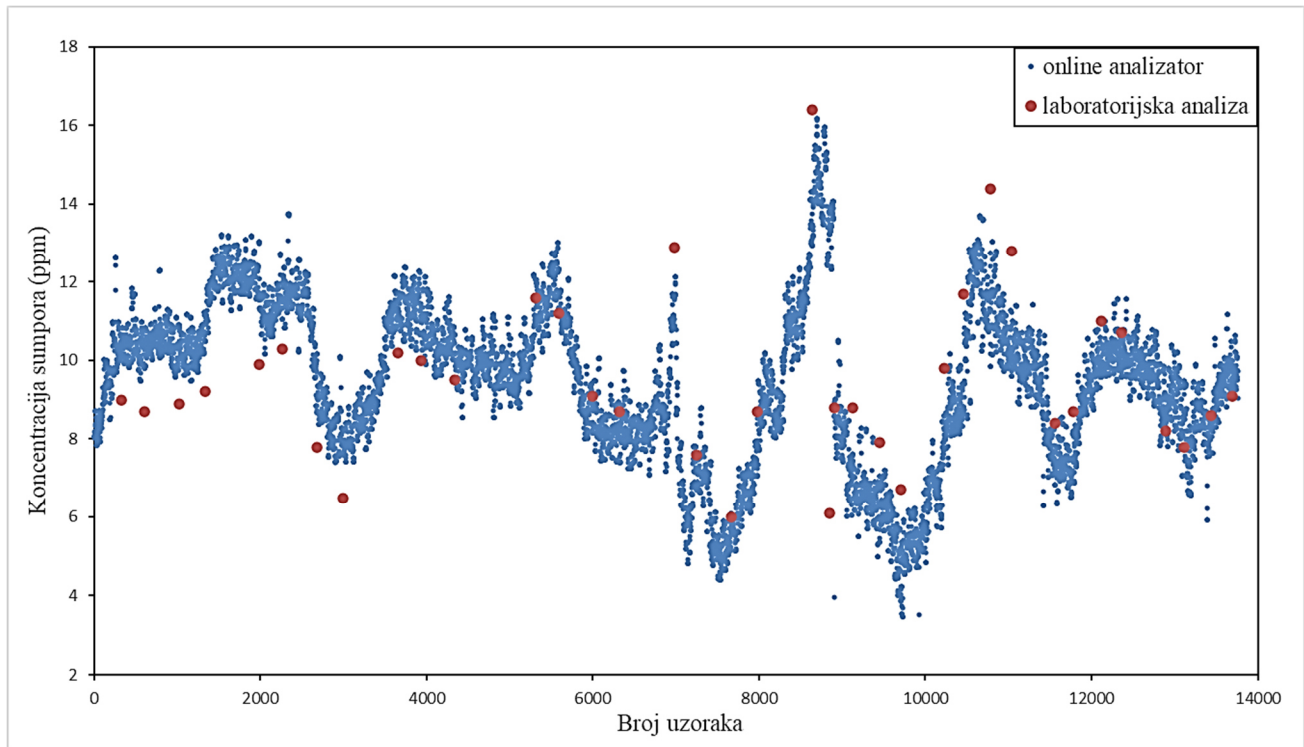
Tablica 4.3. Rezultati preliminarnog ARX modela sa različitim vremenima uzorkovanja

Period uzorkovanja	<i>FIT</i> , %
1 minuta	25,38
3 minute	42,75
5 minuta	32,08

Kao što je vidljivo, valjanosti modela s periodima uzorkovanja od jedne i pet minuta manje su nego u slučaju tri minute, za iste vrijednosti parametara ($na = [4]$; $nb = [8\ 8\ 8\ 8\ 8]$; $nk = [1\ 5\ 4\ 4\ 4\ 3]$) i iste skupove za razvoj i vrednovanje modela s proporcionalno jednakim brojem podataka koji su predobrađeni. Ovime je potvrđeno da je period uzorkovanja od 3 minute ispravno odabran.

4.1.4. Usporedba rada *online* analizatora i laboratorijske analize

Vrijednosti koje se mjere procesnim analizatorom dobro je usporediti s vrijednostima laboratorijske analize. To je jedna od provjera ispravnosti rada analizatora, odnosno relevantnosti odabranog skupa podataka za razvoj i vrednovanje modela.



Slika 4.3. Prikaz usporedbe podataka laboratorijske analize i *online* analizatora

Iz slike 4.3. može se zaključiti o relativno dobrom poklapanju vrijednosti *online* analizatora s laboratorijskom analizom koja je provedena 4 puta dnevno, na spojenim skupovima za razvoj i vrednovanje modela. Vidljivo je međutim da vrijednosti ponekad prelaze normiranu granicu dopuštenog sadržaja sumpora u dizel gorivu od 10 ppm (mg/kg).

4.1.5. Deskriptivna statistika

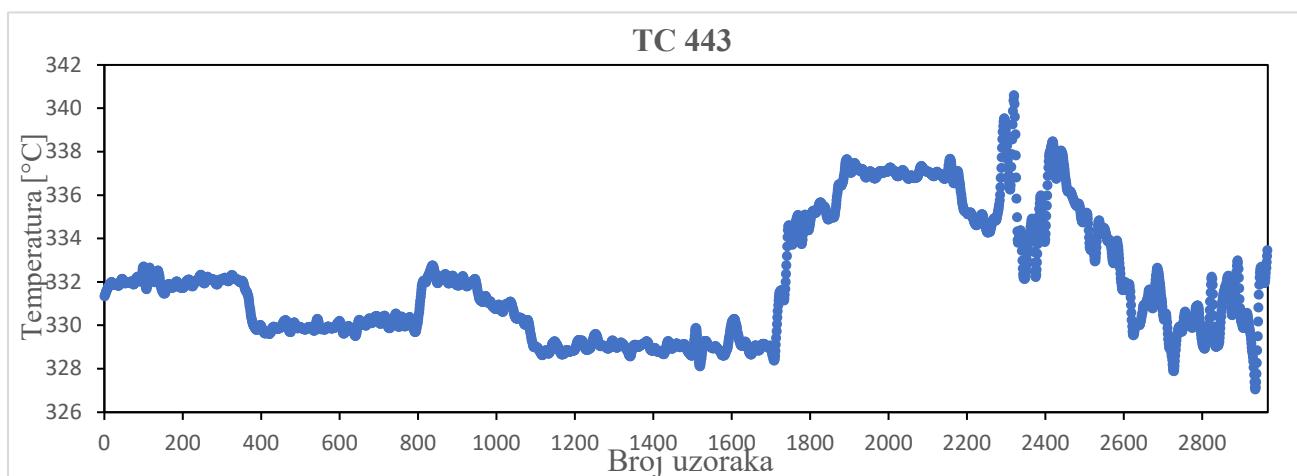
Tablica 4.4. prikazuje deskriptivnu statistiku za 6 utjecajnih varijabli i izlaznu varijablu na spojenim skupovima predobrađenih podataka za razvoj i vrednovanje modela, s vremenom uzorkovanja od 3 minute. Određene su srednje vrijednosti, medijani, minimalne vrijednosti, maksimalne vrijednosti, varijance i standardne devijacije. Provedena statistička analiza pomaže u analizi rezultata razvijenih modela.

Tablica 4.4. *Deskriptivna statistika*

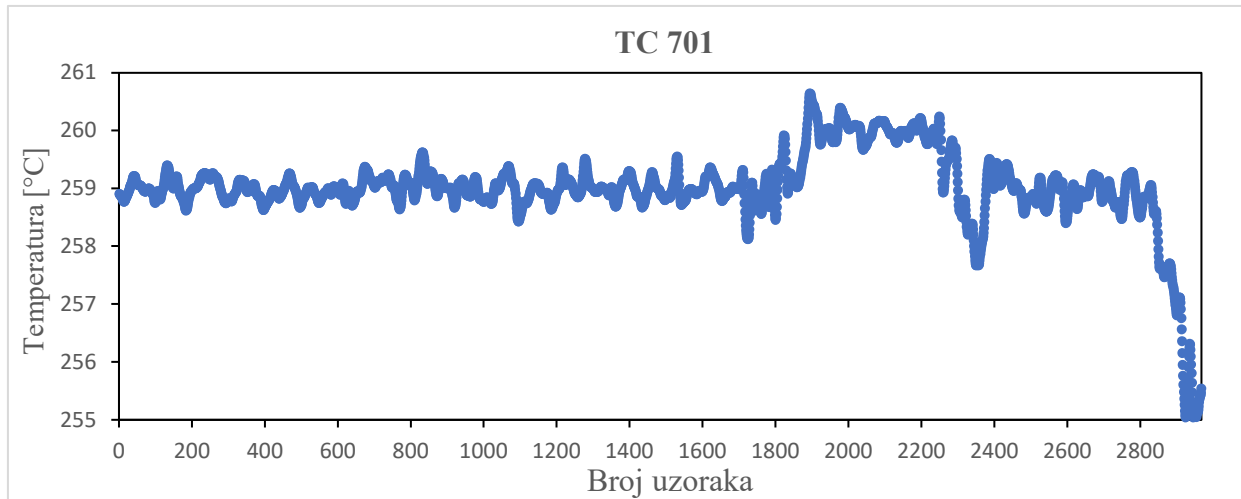
Red. br.	Oznake varijabli	Broj uzoraka	Srednja vrijed.	Median	Minimalna vrijed.	Maks. vrijed.	Varijanca	Stand. dev.
1	26TC0443	8900	331,9	331,4	323,3	341,1	8,090	2,844
2	26TC0701	8900	259,0	259,0	254,0	260,8	0,500	0,710
3	26FC0401	8900	1114	1107	845,1	1319	9053	95,15
4	26TC0446	8900	337,4	336,7	332,0	347,0	11,61	3,407
5	26TC0493	8900	332,2	332,3	327,2	340,0	6,690	2,587
6	26TI0495	8900	336,8	335,8	331,7	346,1	14,16	3,762
Izlaz	09AI151	8900	9,860	10,05	4,400	16,18	3,730	1,931

U nastavku su vremenski prikazi podataka za svaku od ulaznih varijabli i izlaznu varijablu na predobrađenom skupu podataka za razvoj modela, s periodom uzorkovanja tri minute (slike 4.4. do 4.10.). Grafički prikaz podataka ujedno omogućuje vizualnu detekciju korelacija ulaznih varijabli u odnosu na izlaznu što pomaže prilikom izbora/potvrde utjecajnih varijabli.

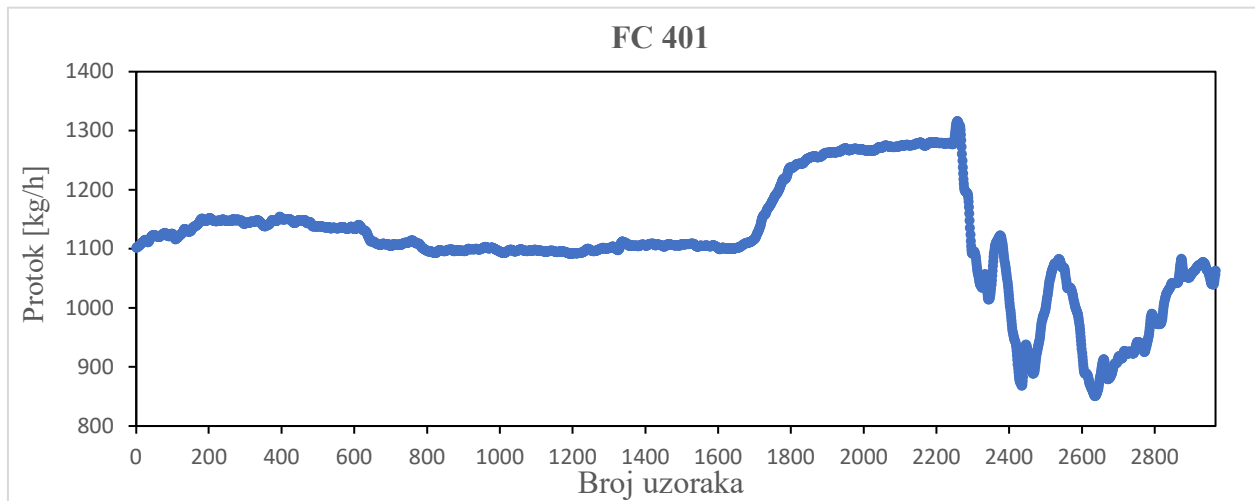
Kako bi se osigurao ispravan izbor ulaznih varijabli, napravila se grafička usporedba vrijednosti ulaznih varijabli u odnosu na izlaznu varijablu na skupu za razvoj modela. Grafička usporedba kretanja vrijednosti ulaznih varijabli u odnosu na izlaznu varijablu omogućuje grafičko praćenje, njihovu međusobnu ovisnost i identifikaciju najznačajnijih varijabli. Kroz analizu prikazanih trendova podataka, odabrano je šest ulaznih varijabli koje najbolje prate kretanje izlazne vrijednosti online analizatora, što osigurava ispravan izbor tih varijabli u daljnjem modeliranju ili analizi. Na slikama ispod su prikazane krivulje za svaku od ulaznih varijabli i za izlaznu varijablu.



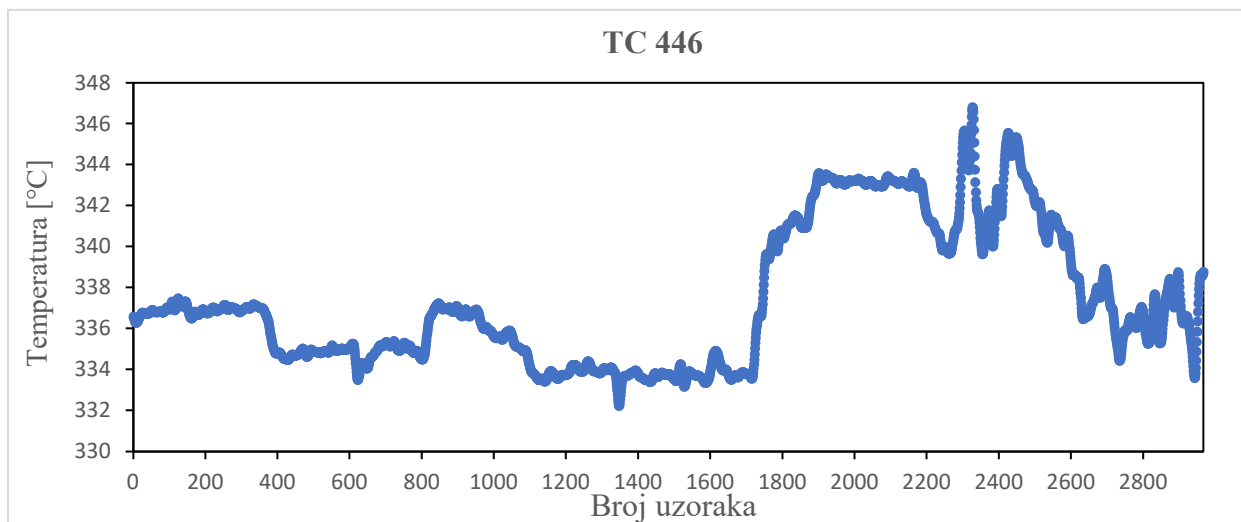
Slika 4.4. *Vremenski prikaz vrijednosti ulazne varijable 26TC0443*



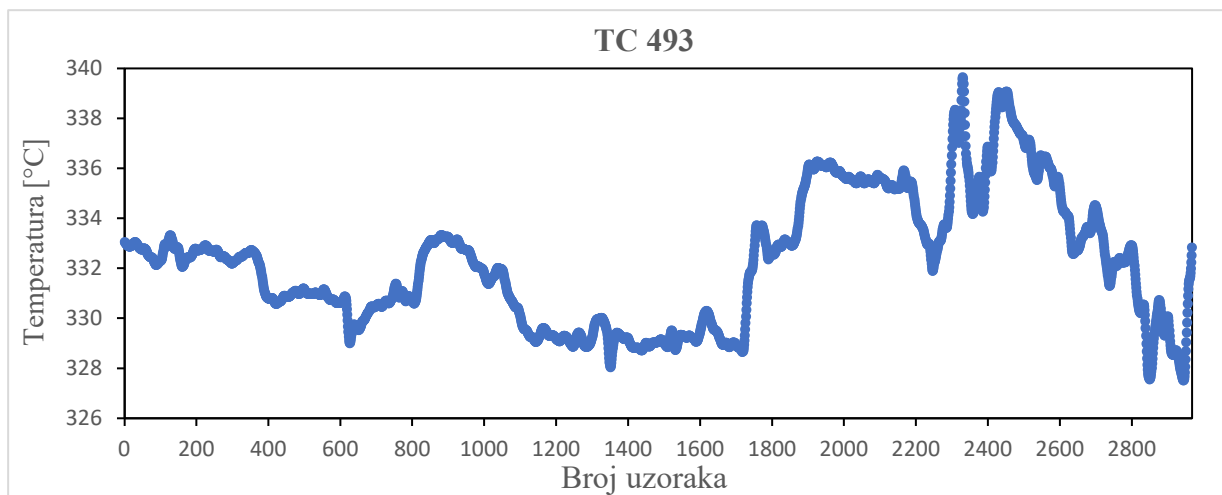
Slika 4.5. Vremenski prikaz vrijednosti ulazne varijable 26TC0701



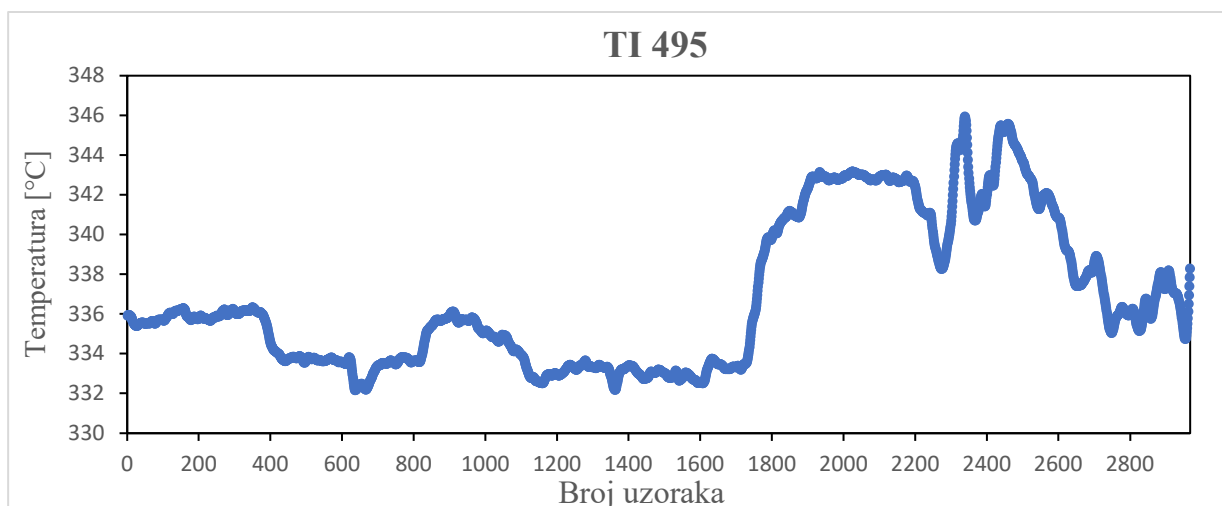
Slika 4.6. Vremenski prikaz vrijednosti ulazne varijable 26FC0401



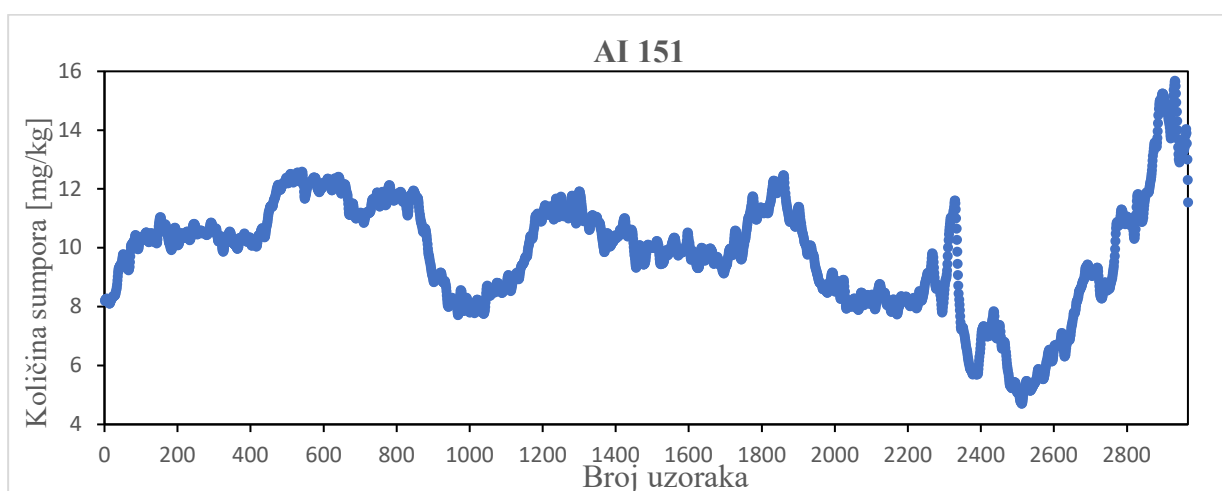
Slika 4.7. Vremenski prikaz vrijednosti ulazne varijable 26TC0446



Slika 4.8. Vremenski prikaz vrijednosti ulazne varijable 26TC0493



Slika 4.9. Vremenski prikaz vrijednosti ulazne varijable 26TI0495



Slika 4.10. Vremenski prikaz vrijednosti izlazne varijable 09AI151

4.2. Rezultati linearnih modela

Korištenje grafičkih sučelja od MATLAB *System identification toolbox*-a tzv. GUI-a (engl. *graphic user interface*) u procesu dobivanja optimalnih parametara za linearni model pruža praktičan pristup koji olakšava postupak podešavanja modela i omogućuje brže i preciznije rezultate. Navedeni GUI pruža mogućnost jednostavne vizualizacije i grafičke analize rezultata, što omogućuje bolje razumijevanje vladanja procesa i interpretacije modela i evaluaciju njegove učinkovitosti.

4.2.1. FIR model

FIR model je najjednostavniji dinamički polinomni linearni model što znači da ima najjednostavniju strukturu. U tablici 4.5. prikazane su vrijednosti statističkih pokazatelja vrednovanja FIR modela na neovisnom skupu podataka (skupu za vrednovanje). S obzirom na krajnje jednostavnu strukturu modela i izraženu nepreciznost u mjerenim podacima, naročito kod izlazne varijable (sadržaj sumpora), postignuti rezultati su na granici prihvatljivosti. Vrijednosti pogrešaka relativno su velike.

Tablica 4.5. *Statistički pokazatelji vrednovanja razvijenog FIR modela*

<i>FIT (%)</i>	<i>FPE</i>	<i>RMSE</i> [mg/kg]	<i>MAE</i> [mg/kg]
19,34	1,476	1,536	1,214

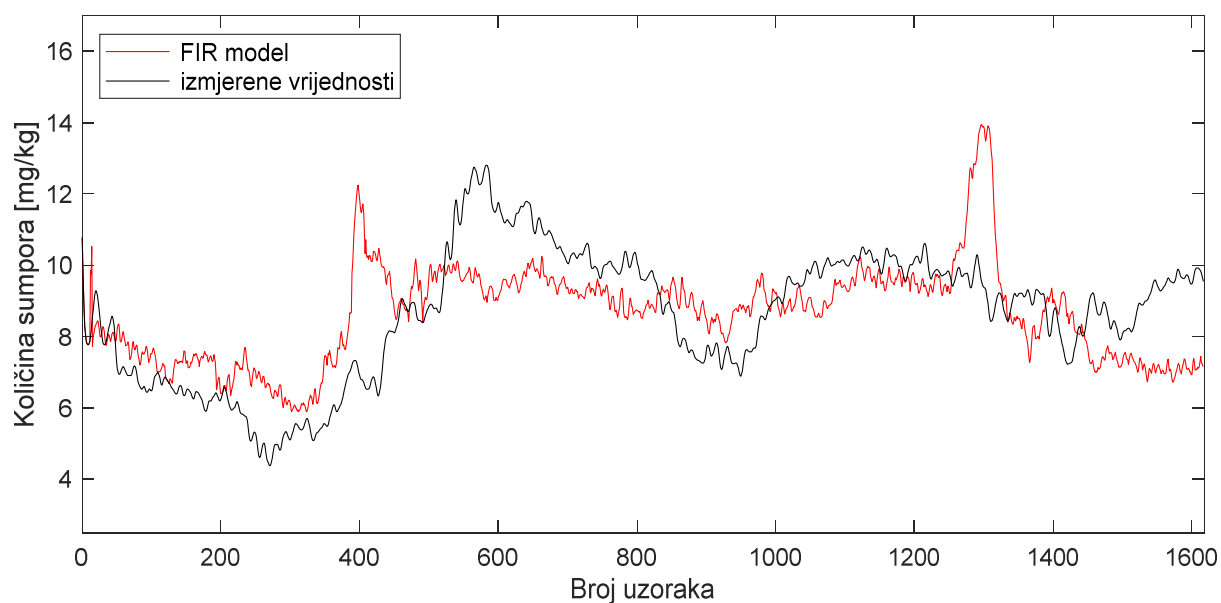
Optimalni parametri koji određuju red modela predstavljeni su u vektorskom obliku kako slijedi:

$$nb = [nb_{ulaz1} \ nb_{ulaz2} \ nb_{ulaz3} \ nb_{ulaz4} \ nb_{ulaz5} \ nb_{ulaz6}] = [0 \ 3 \ 3 \ 12 \ 3 \ 3]$$

$$nk = [nk_{ulaz1} \ nk_{ulaz2} \ nk_{ulaz3} \ nk_{ulaz4} \ nk_{ulaz5} \ nk_{ulaz6}] = [1 \ 5 \ 4 \ 4 \ 4 \ 3].$$

Slika 4.11. predstavlja grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog FIR modela i mjerenih vrijednosti na skupu za vrednovanje. Može se uočiti da model prati trend mjerenih vrijednosti, međutim, prisutne su lokalne ekstremne vrijednosti.

Zbog prisutnosti neželjenih ekstrema i relativno velikih vrijednosti pogrešaka razvijeni FIR model nije preporučljiv za primjenu na postrojenju.



Slika 4.11. Grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog FIR modela i mjerenih vrijednosti

4.2.2. ARX model

U usporedbi s FIR modelom, ARX model ima složeniju strukturu te uzima prethodne vrijednosti mjerenog izlaza kao ulaz u model stoga daje značajno bolje rezultate. U tablici 4.6. prikazane su vrijednosti statističkih pokazatelja vrednovanja ARX modela na neovisnom skupu podataka. Za razliku od FIR modela, pogreške su manje, a postotak poklapanja rezultata modela i mjerenih vrijednosti je veći.

Tablica 4.6. Statistički pokazatelji vrednovanja razvijenog ARX modela

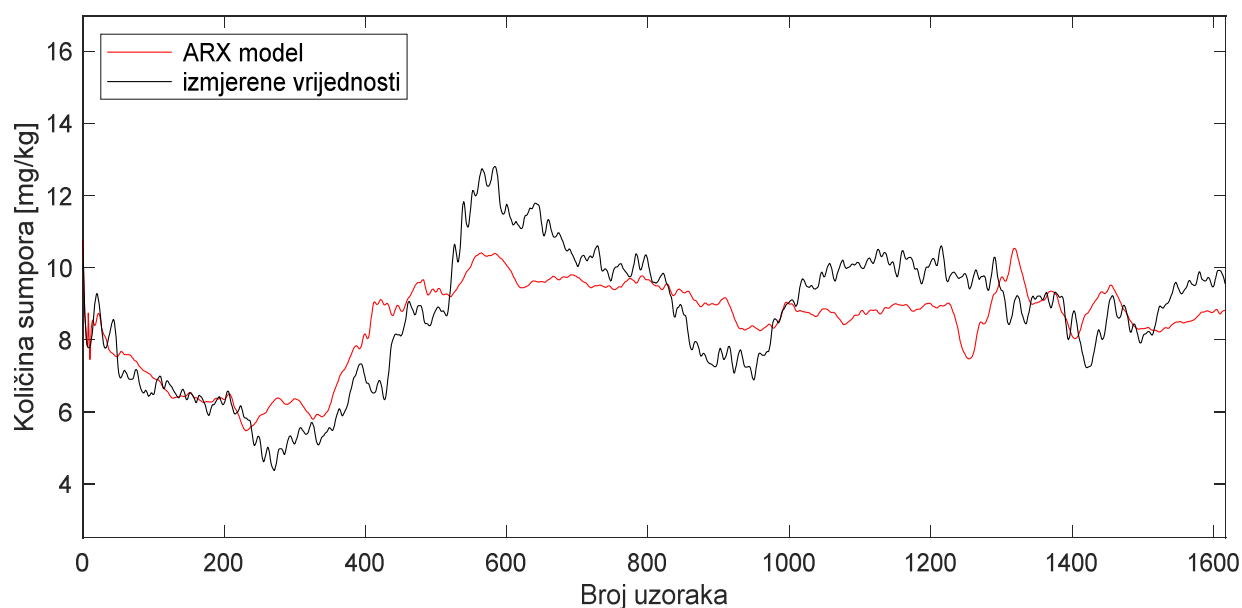
<i>FIT (%)</i>	<i>FPE</i>	<i>RMSE [mg/kg]</i>	<i>MAE [mg/kg]</i>
44,85	$8,906 \times 10^{-5}$	1,050	0,863

Optimalni parametri koji određuju red ARX modela predstavljeni su u vektorskom obliku kako slijedi:

$$na = [na_{izlaz}] = [4]$$

$$nb = [nb_{ulaz1} \ nb_{ulaz2} \ nb_{ulaz3} \ nb_{ulaz4} \ nb_{ulaz5} \ nb_{ulaz6}] = [12 \ 12 \ 12 \ 12 \ 12 \ 12]$$

$$nk = [nk_{ulaz1} \ nk_{ulaz2} \ nk_{ulaz3} \ nk_{ulaz4} \ nk_{ulaz5} \ nk_{ulaz6}] = [1 \ 5 \ 4 \ 4 \ 4 \ 3].$$



Slika 4.12. Grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog ARX modela i mjerenih vrijednosti

Slika 4.12. predstavlja grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog ARX modela i mjerenih vrijednosti na skupu za vrednovanje. Može se uočiti da model prati trend mjerenih vrijednosti, bez izraženije sustavne pogreške i lokalnih ekstrema.

Na temelju statističkog i grafičkog vrednovanja modela može se zaključiti da je model primjenjiv u dijagnostičke svrhe, međutim, potreban je oprez i dodatna usporedba s laboratorijskom analizom količine sumpora zbog u pojedinim dijelovima nešto većih pogrešaka u procjeni izlazne varijable.

4.2.3. OE model

OE model u obzir uzima i prošle vrijednosti procjene izlazne varijable te mu je struktura kompleksnija od svih linearnih polinomnih modela. Očekivano stoga pokazuje i najbolje rezultate (tablica 4.7.). Pošto je OE model, u odnosu na FIR i ARX kompleksnije prirode, za očekivati je da i njegovi rezultati budu povoljniji, što je i vidljivo na grafu ispod (slika 4.14.).

Tablica 4.7. Statistički pokazatelji vrednovanja razvijenog OE modela

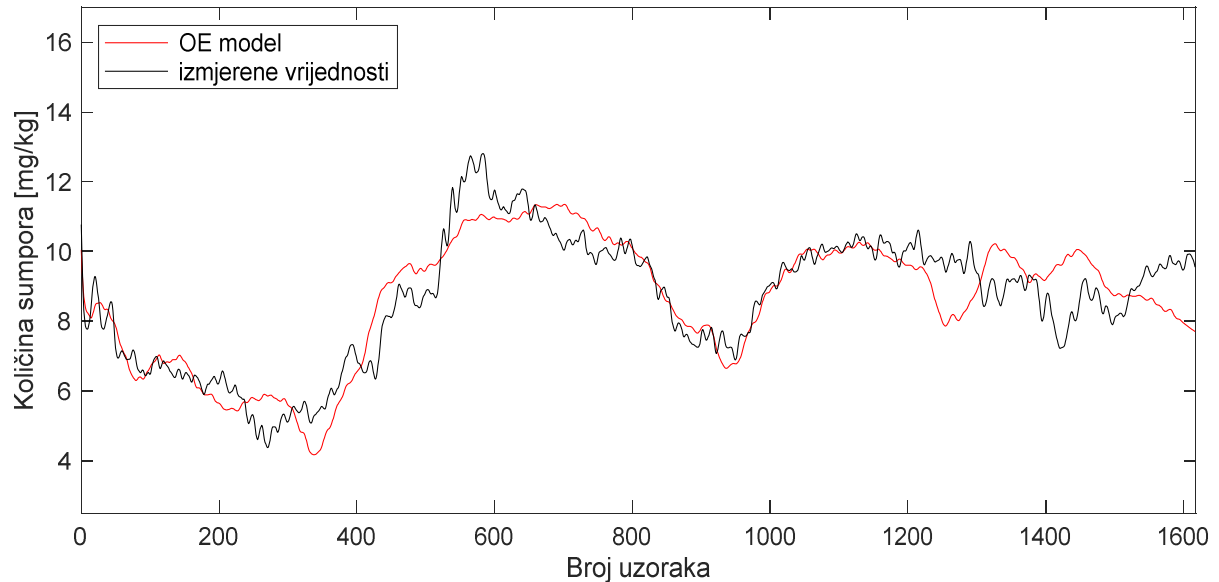
<i>FIT (%)</i>	<i>FPE</i>	<i>RMSE [mg/kg]</i>	<i>MAE [mg/kg]</i>
56,89	2,854	0,821	0,641

Optimalni parametri koji određuju red OE modela predstavljeni su u vektorskom obliku kako slijedi:

$$nb = [nb_{ulaz1} \quad nb_{ulaz2} \quad nb_{ulaz3} \quad nb_{ulaz4} \quad nb_{ulaz5} \quad nb_{ulaz6}] = [2 \quad 2 \quad 2 \quad 2 \quad 2 \quad 2]$$

$$nf = [nf_{ulaz1} \quad nf_{ulaz2} \quad nf_{ulaz3} \quad nf_{ulaz4} \quad nf_{ulaz5} \quad nf_{ulaz6}] = [2 \quad 4 \quad 4 \quad 4 \quad 4 \quad 4]$$

$$nk = [nk_{ulaz1} \quad nk_{ulaz2} \quad nk_{ulaz3} \quad nk_{ulaz4} \quad nk_{ulaz5} \quad nk_{ulaz6}] = [1 \quad 5 \quad 4 \quad 4 \quad 4 \quad 3].$$



Slika 4.13. Grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog OE modela i mjerenih vrijednosti

Slika 4.13. predstavlja grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog OE modela i mjerenih vrijednosti na skupu za vrednovanje. Može se uočiti da model dobro prati trend mjerenih vrijednosti, bez sustavne pogreške.

Na temelju statističkog i grafičkog vrednovanja modela može se zaključiti da je model primjenjiv u svrhu zamjene procesnog analizatora u slučaju njegovog kvara, međutim, i ovdje je potreban oprez i dodatna usporedba s laboratorijskom analizom u tom slučaju.

4.3. Rezultati nelinearnih modela

4.3.1. NARX model

Zbog svoje složenije strukture od svih linearnih modela, za očekivati je da će nelinearni modeli dati dobre, odnosno bolje rezultate u odnosu na njihove linearne ekvivalente.

U tablici 4.8. prikazane su vrijednosti statističkih pokazatelja vrednovanja NARX modela na neovisnom skupu podataka. Iako su vrijednosti pogrešaka relativno slične kao i kod ARX modela, postotak poklapanja rezultata modela i mjerenih vrijednosti je manji. Drugim riječima, nelinearni ARX model nije se pokazao boljim u usporedbi s njegovim nelinearnim ekvivalentom. Neki od razloga bi mogli biti u nedovoljnom broju podataka za razvoj modela za opis nelinearnosti u procesu (zbog određenih zastoja u radu postrojenja i povremenih kvarova procesnog analizatora duži kontinuirani period podataka naglašene dinamike nije bilo moguće izabrati), mogućnost izražene linearnosti procesa pa upotreba nelinearnih modela nema velikog učinka, korištenje nedovoljno dobrih algoritama za optimizaciju brojnih polinomnih koeficijenata ugrađenih u programski paket MATLAB kad je u pitanju složeni industrijski proces, itd.

Tablica 4.8. Statistički pokazatelji vrednovanja razvijenog NARX modela

<i>FIT (%)</i>	<i>FPE</i>	<i>RMSE [mg/kg]</i>	<i>MAE [mg/kg]</i>
38,46	$6,793 \times 10^{-5}$	1,105	0,951

Optimalni parametri koji određuju red NARX modela predstavljeni su u vektorskom obliku kako slijedi:

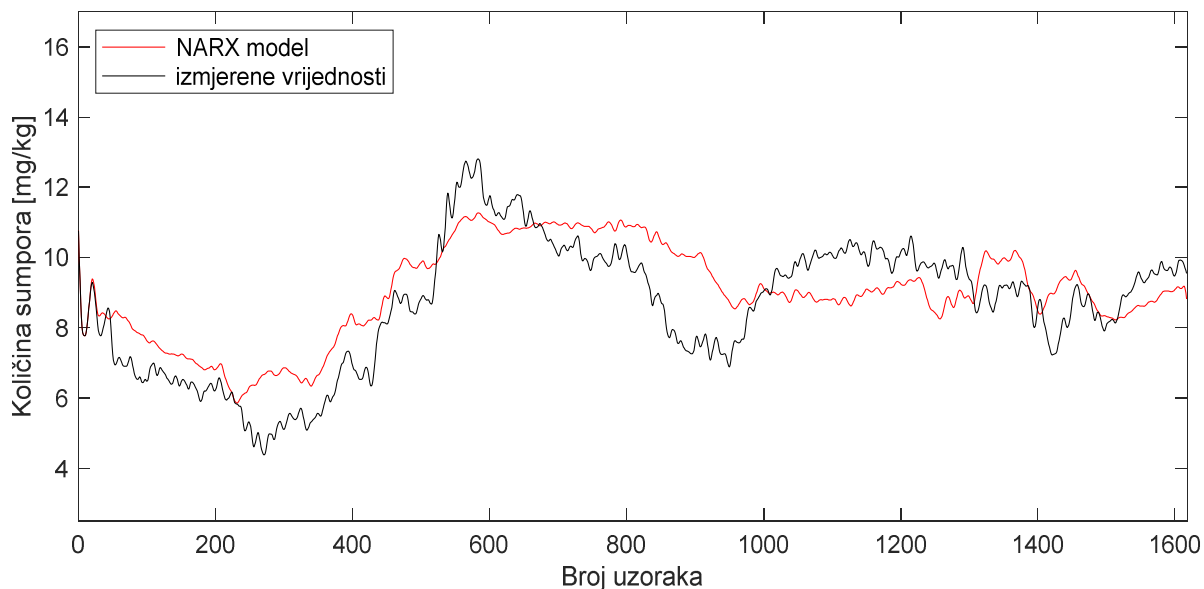
$$na = [na_{izlaz}] = [12]$$

$$nb = [nb_{ulaz1} \ nb_{ulaz2} \ nb_{ulaz3} \ nb_{ulaz4} \ nb_{ulaz5} \ nb_{ulaz6}] = [12 \ 12 \ 12 \ 12 \ 12 \ 12]$$

$$nk = [nk_{ulaz1} \ nk_{ulaz2} \ nk_{ulaz3} \ nk_{ulaz4} \ nk_{ulaz5} \ nk_{ulaz6}] = [1 \ 5 \ 4 \ 4 \ 4 \ 3]$$

$$n = [n_{izlaz}] = [10].$$

Nelinearni model unosi nelinearnost u strukturu modela koja je ovdje predstavljena brojem nelinearnih jedinica.



Slika 4.14. Grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog NARX modela i mjerenih vrijednosti

Slika 4.14. predstavlja grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog NARX modela i mjerenih vrijednosti na skupu za vrednovanje. Može se uočiti da model u određenoj mjeri prati trend mjerenih vrijednosti, međutim, vidljiva su značajnija odstupanja u nekim dijelovima. Na temelju statističkog i grafičkog vrednovanja modela zaključak je da prednost primjene svakako ima linearni ARX model, zbog jednostavnije strukture te nešto boljih ukupnih rezultata.

4.3.2. HW model

U tablici 4.9. prikazane su vrijednosti statističkih pokazatelja vrednovanja HW modela na neovisnom skupu podataka. Iako su vrijednosti pogrešaka relativno slične kao i kod njegovog linearnog ekvivalenta (OE modela), postotak poklapanja rezultata modela i mjerenih vrijednosti je puno manji. Razlozi mogu biti slični kao kod usporedbe ARX i NARX modela. Posljednji nelinearni model koji je napravljen je Hammerstein – Wienerov model, za koji su očekivani najbolji rezultati modela. Na slici 4.16. može se vidjeti koliko HW model prati podatke sa *online* analizatora.

Tablica 4.9. Statistički pokazatelji vrednovanja razvijenog HW modela

<i>FIT (%)</i>	<i>FPE</i>	<i>RMSE [mg/kg]</i>	<i>MAE [mg/kg]</i>
38,46	$6,793 \times 10^{-5}$	1,105	0,951

Optimalni parametri koji određuju red HW modela predstavljeni su u vektorskom obliku kako slijedi:

$$nb = [nb_{ulaz1} \quad nb_{ulaz2} \quad nb_{ulaz3} \quad nb_{ulaz4} \quad nb_{ulaz5} \quad nb_{ulaz6}] = [6 \ 6 \ 6 \ 6 \ 6 \ 6]$$

$$nf = [nf_{ulaz1} \quad nf_{ulaz2} \quad nf_{ulaz3} \quad nf_{ulaz4} \quad nf_{ulaz5} \quad nf_{ulaz6}] = [3 \ 3 \ 3 \ 3 \ 3 \ 3]$$

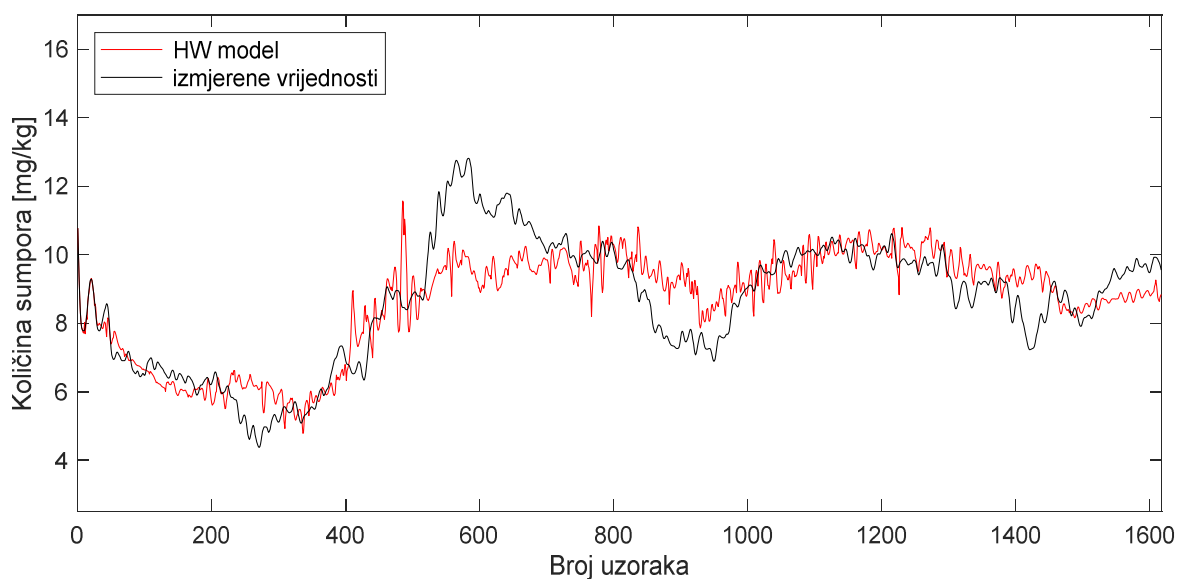
$$nk = [nk_{ulaz1} \quad nk_{ulaz2} \quad nk_{ulaz3} \quad nk_{ulaz4} \quad nk_{ulaz5} \quad nk_{ulaz6}] = [1 \ 5 \ 4 \ 4 \ 4 \ 3]$$

$$n = [n_{ulaz1} \quad n_{ulaz2} \quad n_{ulaz3} \quad n_{ulaz4} \quad n_{ulaz5} \quad n_{ulaz6}] = [10 \ 10 \ 10 \ 10 \ 10 \ 10]$$

$$n = [n_{izlaz}] = [10].$$

Nelinearnost je i ovdje predstavljena brojem nelinearnih jedinica, kako kod ulaznih varijabli, tako i kod izlazne (proizlazi iz strukture HW modela). Korištene su segmentalne (engl. *piecewise-linear*) aktivacijske funkcije.

Slika 4.15. predstavlja grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog HW modela i mjerenih vrijednosti na skupu za vrednovanje. Može se uočiti da HW model u određenoj mjeri prati trend mjerenih vrijednosti, međutim, u nekim dijelovima su vidljiva odstupanja kao i prisutnost u stvarnosti nepostojećeg šuma kod procijenjenih podataka.



Slika 4.15. Grafički prikaz usporedbe rezultata razvijenog HW modela i mjerenih vrijednosti

Na temelju statističkog i grafičkog vrednovanja modela zaključak je da prednost primjene i u ovom slučaju svakako ima linearni OE model, zbog jednostavnije strukture i boljih ukupnih rezultata.

5. ZAKLJUČAK

Razvoj softverskih senzora je kompleksan proces koji zahtijeva određeno predznanje o procesu koji se istražuje, te znanja i iskustvo iz različitih strukovnih područja. U slučaju izrade softverskog senzora za praćenje koncentracije sumpora u dizelskom gorivu u proizvodnji procesa hidrodesulfurizacije, rezultati su djelomično zadovoljavajući. Važniji zaključci koji se mogu izvući su:

- uočena je izražena nepreciznost u mjerenim podacima, naročito kod izlazne varijable (sadržaj količine sumpora u proizvodnji procesa)
- iz prikupljenih podataka tijekom 2021. i 2022. godine uočeni su periodi zastoja u radu postrojenja i kvarovi procesnog analizatora zbog čega nije bilo moguće izabrati skup podataka s naglašenim dinamičkim vladanjem procesa duži od desetak dana
- količine sumpora u proizvodnji ponekad prelaze normirane vrijednosti od 10 mg/kg
- zbog prisutnosti lokalnih ekstremnih vrijednosti u izlaznim podacima iz modela i relativno velikih vrijednosti pogrešaka FIR model nije preporučljiv za primjenu
- ARX model može biti primjenjiv u dijagnostičke svrhe te u svrhu inferencijskog vođenja procesa uz oprez i povremenu dodatnu usporedbu s laboratorijskom analizom
- OE model može biti primjenjiv u svrhu zamjene procesnog analizatora u slučaju njegovog kvara, uz potreban oprez i povremenu dodatnu usporedbu s laboratorijskom analizom
- nelinearni modeli nisu pokazali bolje rezultate u odnosu na njihove linearne ekvivalente (ARX i OE modele); neki od razloga bi mogli biti u nedovoljnom broju podataka za razvoj modela koji bi uhvatili nelinearnost u procesu, mogućnost linearnosti procesa pa upotreba nelinearnih modela nema velikog učinka, korištenje neprikladnih algoritama za optimizaciju polinomnih koeficijenata ugrađenih u programski paket MATLAB za konkretan industrijski proces, odnosno njihovu neprikladnost za ispitivani veliki prostor pretraživanja parametara.

Uzimanje u obzir ovih zaključaka može pomoći u daljnjem pristupu razvoja softverskog senzora, stvaranjem prilagodbi i poboljšanja kako bi se postigla veća pouzdanost i uspješnost u praćenju koncentracije sumpora u dizelskom gorivu nakon hidrodesulfurizacije.

6. LITERATURA

- [1] Bolf N., *Softverski senzori – alat suvremenog kemijskog inženjerstva*, Kem.Ind, 60(4), (2011), 193-199
- [2] Ujević Andrijić, Ž., *Softverski senzori – inferencijsko vođenje, Modeliranje procesa*, Zagreb (2022)
- [3] Kadlec, P., Gabrys, B., Strandt, S., *Data-driven Soft Sensors in the Process Industry*, *Computers and Chemical Engineering*, (2008)
- [4] Ehmer Khan M., Rajasthan J., Farmeena I., Sikkim J., *A Comparative Study of White Box, Black Box and Grey Box Testing Techniques*, *International Journal of Advanced Computer Science and Applications(IJACSA)*, 3(6), (2012)
- [5] Sharma P., *Developing an online predictor to predict product sulfur concentration for HDS unit*, Masters thesis, Memorial University of Newfoundland, (2018)
- [6] Shokri S., Sadeghi M.T., Marvast M.A. *et al.*, *Soft sensor design for hydrodesulfurization process using support vector regression based on WT and PCA*, *J. Cent. South Univ.* 22, (2015), 511–521
- [7] Salvatore L., De Souza J., Campos M., *Design And Implementation Of A Neural Network Based Soft-Sensor To Infer Sulfur Content In A Brazilian Diesel Hydrotreating Unit*, *Chemical Engineering Transactions*, 17, (2009.) 1389-1394
- [8] Lukec I., Sertić-Bionda K., Lukec D., *Prediction of sulphur content in the industrial hydrotreatment process*, *Fuel Processing Technology*, 89(3), (2008), 292-300
- [9] Ljung L., *System Identification Theory for the User - Second Edition*, University of Sweden (1999)
- [10] <https://www.wikidata.org/wiki/Q1366192> (pristup 15.5.2023.)
- [11] Chitralkha S.B, Shah S., *Application Of Support Vector Regression For Developing Soft Sensors For Nonlinear Processes*, *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 88(5), (2010), 696 – 709
- [12] Ujević Andrijić Ž., *Softverski senzori za identifikaciju i vođenje nelinearnih procesa*, disertacija, Zagreb, (2012)

- [13] Souza F.A.A., Aratijo R., *Review of Soft Sensors Methods for Regression Applications, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, (2015)
- [14] Herceg S., *Razvoj softverskih senzora za napredno vođenje procesa izomerizacije*, doktorski rad, Zagreb, (2021)
- [15] Jauregui R., Silva F., *Numerical Analysis – Theory and Application*, InTech, Rijeka, (2011)
- [16] <https://www.sciencedirect.com/topics/engineering/mean-absolute-error>, (pristup 30.4.2023.)
- [17] Fortuna L., Graziani S., Rizzo A., Xibilia M.G., *Soft Sensors for Monitoring and Control of Industrial Processes*, Springer, (2007)
- [18] Cerić E., *Nafta, procesi i proizvodi*, IBC, Sarajevo, (2012)
- [19] <https://www.aiche.org/resources/publications/cep/2021/october/overview-hydrotreating> (pristup 16.05.2023)
- [20] Vidović E., *Naftno-petrokemijski proizvodi - NASTAVNI MATERIJALI*, Diplomski studij Kemija i inženjerstvo materijala, Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije, Sveučilište u Zagrebu, (2022)
- [21] Tanimu A., Alhooshani K., *Advanced Hydrodesulfurization Catalysts: A Review of Design and Synthesis*, *Energy & Fuels*, 33 (4), (2019), 2810-2838
- [22] Herceg S., Ujević Andrijić Ž., Bolf N., *Development of soft sensors for isomerization process based on support vector machine regression and dynamic polynomial models*, *Chem. Eng. Res. Des.*, 149, (2019), 95-103.

7. ŽIVOTOPIS

Magdalena Šimić [REDACTED] Završila je osnovnu školu Stjepana Ivičevića u Makarskoj, nakon toga jezičnu gimnaziju u srednjoj školi fra Andrije Kačića Miošića u Makarskoj. Maturirala je 2018.godine, te iste godine započinje školovanje na Fakultetu kemijskog inženjerstva i tehnologije, Sveučilišta u Zagrebu. Sezonski je radila kao tehničar u proizvodnji na postrojenju Solana Ramova u Krvavici, Baška Voda, od 2018.-2021. Na preddiplomskom studiju Kemija i inženjerstvo materijala obranila je završni rad na zavodu za Polimerno inženjerstvo i organsku tehnologiju, na temu „ Priprava i karakterizacija polimernih filmova s kitozonom“. U srpnju 2021. započela je rad u Pliva d.d., Istraživanje i razvoj, Zagreb, Odjel za fizikalnu karakterizaciju te je radila na istom odjelu do siječnja 2022.