

# 상태공간 접근법에 의한 화학공정의 자동합성

## Automatic Synthesis of Chemical Processes by a State Space Approach

최수형\*  
(Soo Hyoung Choi)

**Abstract :** The objective of this study is to investigate the possibility of chemical process synthesis purely based on mathematical programming when given an objective, feed conditions, product specifications, and model equations for available process units. A method based on a state space approach is proposed, and applied to an example problem with a reactor, a heat exchanger, and a separator. The results indicate that a computer can automatically synthesize an optimal process without any heuristics or expertise in process design provided that global optimization techniques are improved to be suitable for large problems.

**Keywords :** process synthesis, state space, superstructure, mathematical programming, global optimization

### I. 서론

화학공정설계는 일반적으로 두 단계를 거친다. 제 1 단계에서는 우선 경험적 규칙 또는 전문지식에 의존한 구조 최적화(structural optimization)를 통하여 공정도를 합성한다. 제 2 단계는 수학적 계획법(mathematical programming)에 근거한 매개변수 최적화(parametric optimization) 단계로서 1 단계에서 만들어진 공정도에 대한 모델식의 설계변수(design variables) 값을 최적화하여 최적조업조건을 구하게 된다.

최근에는 구조 최적화에도 수학적 계획법의 적용사례가 늘고 있다. Bagajewicz 등[1]은 질량/열 교환기 네트워크 합성을 위한 상태공간(state space) 접근법을 제안하였으며, Schweiger 와 Floudas[2]는 반응기 네트워크 합성을 위한 초구조(superstructure) 방법을 제안하였다. 그들의 방법으로 네트워크 합성문제를 수식화 하면 일반적으로 정수포함 비선형 계획(mixed integer nonlinear program, MINLP) 문제가 된다. 이를 풀면 불필요한 흐름 및 장치들이 제거되어 구조가 최적화된다. 또한 반응기 부피 및 온도와 같은 모델 매개변수 및 조업조건이 이 과정에서 동시에 최적화된다. 따라서 이 방법으로 공정의 최적구조, 최적규모 및 최적조업조건의 동시계산이 가능하다.

상태공간 접근법 및 초구조를 사용한 기존 연구는 반응기, 분리공정, 열교환기, 물질교환기 등 주로 한가지 종류의 특정 장치로 구성된 네트워크 합성에 적용되어 왔다. 본 논문에서는 이를 확장하여 여러 종류의 장치를 사용하는 일반적인 공정합성 문제에 적용함으로써 컴퓨터가 순수하게 장치들의 모델식에 근거한 수학적 계획법만을 사용하여 주어진 목적에 맞는 화학공정을 자동으로 합성할 수 있는지 그 가능성을 알아보려고 한다.

### II. 제안된 방법

#### 1. 문제구성

본 연구에서 시도하는 방법은 모든 가능한 구조의 공정을

내포하는 공정도를 나타내는 기법 중 가장 일반적인 형태인 superstructure operator 를 사용하는 상태공간 접근법[1]에 기초를 둔다. 이 방법은 합성하고자 하는 공정의 초구조를 그림 1 과 같이 표시한다. 여기에서 process units 블록에는 사용 가능한 모든 장치가 포함되며 pipe network 블록에는 이 장치들의 모든 가능한 연결구조가 포함된다. 이를 최적화하는 수학적 계획문제는 pipe network 블록의 경계에 존재하는 mixer 와 splitter 들에 대한 질량 및 에너지 수지식들, process units 블록 내의 각 장치에 대한 모델식들, 원료 및 제품에 대한 제약조건들, 그리고 공정합성의 목표를 나타내는 목적함수로 구성된다.

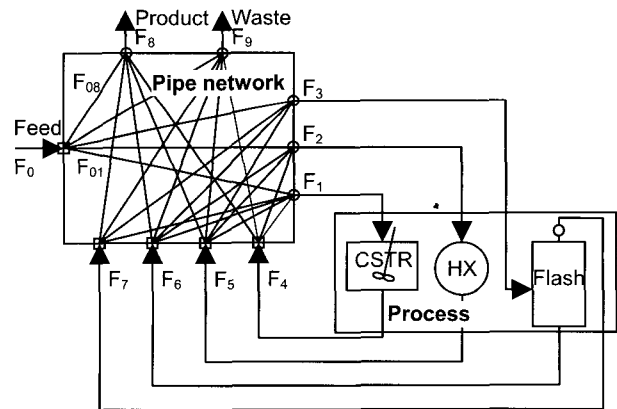


그림 1. 상태공간 접근법에 의한 공정 초구조.  
Fig. 1. Process superstructure by state space approach.

먼저 파이프 네트워크에서 splitter 는  $i \in I$ , mixer 는  $j \in J$  로 표시하고, splitter 입력흐름은  $F_i$ , mixer 출력흐름은  $F_j$ , 그리고 splitter  $i$  에서 mixer  $j$  로의 흐름은  $F_{ij}$  라 표시하자. 흐름 내에 존재하는 각 물질 성분은  $k \in K$  로 표시하여 각 흐름의 성분별 단위시간당 몰유량을 네트워크 외부에서는  $F_{ik}$  및  $F_{jk}$ , 내부에서는  $F_{ijk}$  로 표시하자. 또 흐름  $F_i$  의 온도 및 압력을 각각  $T_i$  및  $P_i$  라 하고  $F_i$  가  $F_j$  로 연결되는 비율을  $a_{ij} \in [0, 1]$  로 나타내자. 사용 가능한 장치는  $l \in L$  로 표시하고 각 장치의 매개변수들을  $w_l$  이라 하자. 변수들을  $\mathbf{F} = \{F_{ik} | i \in I \cup J, k \in K\}$ ,  $\mathbf{T} = \{T_i | i \in I \cup J\}$ ,  $\mathbf{P} = \{P_i | i \in I \cup J\}$ ,  $\mathbf{A} = \{a_{ij} | i \in I, j \in J\}$ ,  $\mathbf{W} =$

\* 책임저자(Corresponding Author)

논문접수 : 2003. 6. 17., 채택확정 : 2003. 8. 21.

최수형 : 전북대학교 화학공학부(soochoi@chonbuk.ac.kr)

※ 본 연구는 서울대학교 화학공정신기술연구소에서 지원하였음.

$\{w_l | l \in L\}$ 로 간략히 표현하면 문제는 다음과 같다.

$$\min f(\mathbf{F}, \mathbf{T}, \mathbf{P}, \mathbf{A}, \mathbf{W})$$

subject to

Pipe network:

$$F_{ijk} = a_{ij} F_{ik}, \quad i \in I, j \in J, k \in K$$

$$\sum_{j \in J} a_{ij} = 1, \quad i \in I$$

$$\sum_{i \in I} F_{ijk} = F_{jk}, \quad j \in J, k \in K$$

$$\sum_{i \in I} F_{ij} H(F_{ik}, T_i, P_i) = F_j H(F_{jk}, T_j, P_j), \quad j \in J$$

Process units:

$$\mathbf{h}_l(\mathbf{F}, \mathbf{T}, \mathbf{P}, \mathbf{w}_l) = \mathbf{0}, \quad l \in L$$

Other constraints:

$$\mathbf{g}(\mathbf{F}, \mathbf{T}, \mathbf{P}, \mathbf{W}) \leq \mathbf{0}$$

$$\mathbf{F}, \mathbf{T}, \mathbf{P}, \mathbf{A} \geq \mathbf{0}$$

여기서 함수  $H$  는 해당 흐름의 몰당 엔탈피를 나타낸다. 목적함수  $f$  는 궁극적으로 이익이 최대화 되도록 설정해야 하나 설계 초기단계에서는 간단히 제품수율을 최대화하거나 폐기물을 최소화할 수 있다. 본 논문에서는 폐기물을 최소로 배출하는 가장 단순한 공정을 찾기 위하여 다음과 같은 목적함수를 제안한다.

$$f = c \sum_{k \in K} F_{nk} - \sum_{i \in I} \sum_{j \in J} a_{ij}^2$$

여기서 계수  $c$  는 충분히 큰 양의 상수이다. 따라서 앞의 항이 훨씬 크므로 우선 폐기물 배출량  $F_n$  이 최소화된다. 다음 항은 각 splitter  $i$  에 대한  $a_{ij}$  들 중 하나를 가능하다면 상한값인 1로 만들기 위한 것으로 앞 항 값이 일정할 때 불필요하게 갈라지는 흐름을 제거함으로써 공정을 단순화하는 역할을 한다. 지금까지 사용된 변수들은 모두 연속변수이다. 목적함수에 장치의 사용여부를 반영하기 위하여 정수변수를 도입할 수도 있으나 본 논문에서는 사용하지 않기로 한다.

## 2. 문제풀이

위에서 얻은 문제는 일반적으로 nonconvex nonlinear program 이고, 대개 여러 개의 지역해(local solution)들을 갖는다. 따라서 이들 중 진정한 최적점을 찾는 것이 필요하다. 그러나 이러한 nonconvex program 의 전역최적화(global optimization)는 최악의 경우 계산량이 문제크기의 지수함수로 증가하는 NP-hard problem 으로 알려져 있다. 특히 장치들의 모델식으로 인하여 많은 비선형 등식제약조건들을 포함하게 되므로 이 문제는 NP-hard 한 문제들 중에서도 특히 어려운 문제이다. 따라서 큰 문제를 풀기 위해서는 결과의 전역최적성(global optimality)을 보장하는 결정론적(deterministic) 방법보다는 NP-hard 한 성질을 피할 수 있는 확률적(stochastic) 방법을 적용한다[3].

본 논문에서 제안하는 확률적 전역최적화 알고리즘은 다음과 같다.

### Step 0: Initialization

- 1) Define constraint  $f(\mathbf{x}) \leq f^* - \epsilon$  where  $\epsilon > 0$ .
- 2) Set  $f^* = +\infty$ .

### Step 1: Starting point generation

- 1) Generate random points in the search space.
- 2) Select the least infeasible one as starting point.

### Step 2: Infeasibility minimization

- 1) Find a feasible point.
- 2) If no feasible point is found, go to step 1 or stop.

### Step 3: Objective function minimization

- 1) Find a local minimum  $f^*$ .
- 2) If a better solution is wanted, go to step 1.

단계 0 에서 설정한 제약조건은 현재 알려진 최소점보다 더 낮은 점을 찾으려 명령하는 역할을 한다. 단계 1 에는 simulated annealing 이나 genetic algorithm 을 적용할 수 있으며 단계 2 와 3 에서는 sequential quadratic programming 이나 generalized reduced gradient method 에 기반을 둔 local optimizer 를 사용한다. 본 논문에서는 단계 1 에 특별한 알고리즘을 적용하지 않고 보다 나은 지역해를 찾아가는 과정을 수동으로 실행하기로 한다.

## III. 사례연구

원료 A 로부터 제품 B 를 생산하는 공정을 합성하려고 한다. 반응은 A (feed)  $\rightarrow$  B (product)  $\rightarrow$  C (byproduct)로 진행하며 여기에 등장하는 성분들의 물성 및 반응 자료는 각각 표 1 및 2 에 주어져 있다[4]. 이 공정에 사용될 장치로는 isothermal CSTR (Continuous Stirred Tank Reactor), heat exchanger, 그리고 adiabatic flash 가 있다. 단, 반응기의 최대부피는 10  $\text{ft}^3$ , 최대온도는 900  $^\circ\text{R}$  이며, flash 의 압력은 14.7 psia, 최대 처리용량은 300 lb-moles/hr 이다. 성분 A 로 이루어진 공급흐름은 온도가 537  $^\circ\text{R}$  이고 유량이 100 lb-moles/hr 이다. 이 때 제품내 성분 B 의 몰분율을 95% 이상으로 하되 폐기물을 최소로 배출하는 공정을 설계하는 것이 목표이다.

표 1. 물성자료.

Table 1. Physical property data.

Component ( $i$ )	A	B	C
Density $\rho_b$ , lb-mole/ $\text{ft}^3$	0.667	0.667	0.667
Heat of vaporization $\lambda_b$ , Btu/lb-mole	17,580	16,150	18,060
Heat capacity $C_b$ , Btu/(lb-mole $^\circ\text{R}$ )	39.60	40.48	45.76
Vapor pressure correlation $\ln P_i^s$ (psia) = $A_i - B_i/T$			
$A_i$	15.84	14.88	16.46
$B_b$ , $^\circ\text{R}$	10,141.2	7,689.2	10,841.1

표 2. 반응자료.

Table 2. Reaction data.

No. (i)	1	2
Reaction	A → B	B → C
Rate	$r_1 = k_1 [A]$	$r_2 = k_2 [B]^2$
Rate constant $k_i = a_i \exp(-E_i/(RT))$		
$a_i$	$0.1269 \times 10^{12} \text{ hr}^{-1}$	$0.3077 \times 10^7 \text{ ft}^3/(\text{lb-mole hr})$
$E_i/R$	17,900 °R	11,910 °R

주어진 장치들을 가지고 구성할 수 있는 모든 공정을 포함하는 초구조를 상태공간 접근법으로 표현하면 그림 1 과 같다. 여기서 화살표로 표시된 모든 흐름이 액체라고 가정하자. 따라서 flash 의 상부기체흐름은 곧바로 포화 액체 (saturated liquid)로 응축시키기로 한다. 또 엔탈피는 온도만의 함수라 가정하고 각 흐름의 압력은 고려하지 않기로 한다. 이제 splitter, mixer, 그리고 성분들을 각각 나타내는 다음 집합들을 정의하자.

$$I = \{0, 4, 5, 6, 7\}$$

$$J = \{1, 2, 3, 8, 9\}$$

$$K = \{A, B, C\}$$

이를 토대로 문제를 수식화 하면 다음과 같다.

$$\min f = c \sum_{k \in K} F_{9k} - \sum_{i \in I} \sum_{j \in J} a_{ij}^2$$

subject to

Splitters:

$$F_{ijk} = a_{ij} F_{ik}, \quad i \in I, j \in J, k \in K$$

$$\sum_{j \in J} a_{ij} = 1, \quad i \in I$$

Mixers:

$$\sum_{i \in I} F_{ijk} = F_{jk}, \quad j \in J, k \in K$$

$$\sum_{i \in I} T_i \sum_{k \in K} C_k F_{ijk} = T_j \sum_{k \in K} C_k F_{jk}, \quad j \in J$$

Reactor:

$$R_1 = a_1 e^{-\frac{E_1}{RT_R}} \frac{\rho_R F_{4A}}{F_{4A} + F_{4B} + F_{4C}} V_R$$

$$R_2 = a_2 e^{-\frac{E_2}{RT_R}} \left( \frac{\rho_R F_{4B}}{F_{4A} + F_{4B} + F_{4C}} \right)^2 V_R$$

$$F_{1A} - F_{4A} - R_1 = 0$$

$$F_{1B} - F_{4B} + R_1 - R_2 = 0$$

$$F_{1C} - F_{4C} + R_2 = 0$$

$$T_4 = T_R$$

Heat exchanger:

$$F_{2k} = F_{5k}, \quad k \in K$$

$$(T_2 - T_5) \sum_{k \in K} C_k F_{2k} + Q_H = 0$$

Flash:

$$F_{3k} = F_{6k} + F_{7k}, \quad k \in K$$

$$(T_3 - T_F) \sum_{k \in K} C_k F_{3k} - \sum_{k \in K} \lambda_k F_{7k} = 0$$

$$\sum_{i \in K} F_{7i} P_F = \sum_{i \in K} F_{6i} e^{A_k - \frac{B_k}{T_F}}, \quad k \in K$$

$$T_6 = T_F; \quad T_7 = T_F$$

Specifications:

$$\frac{F_{8B}}{F_{8A} + F_{8B} + F_{8C}} \geq 0.95$$

$$V_R \leq 10, \quad T_R \leq 900$$

$$F_{3A} + F_{3B} + F_{3C} \leq 300$$

목적함수에서 계수는  $c = 100$  으로 놓았다. 제약조건에서  $Q_H$  는 열교환기의 heat duty 로 양의 값은 가열, 음의 값은 냉각을 뜻한다. 이를 제외한 모든 변수는 음이 아닌 값을 갖는다. 단 온도는 500 °R 이상이라 가정하였다. 이 문제에서 등식제약조건은 총 119 개, 부등식제약조건은 총 4 개이다. 여기서  $F_{0A} = 100, F_{0B} = F_{0C} = 0, T_0 = 537, \rho_R = 0.667, P_F = 14.7$  등 값이 주어진 모든 변수들을 상수로 치환하면 총 142 개의 변수가 남는다. 풀이에 필요한 local optimizer 는 LINGO 를 사용하였다.

#### IV. 결과 및 토론

최적화 결과 표 3 및 4 에 나타낸 지역해가 발견되었다. 이를 토대로 공정도를 구성하면 그림 2 와 같다. 주어진 열교환기를 사용하지 않고도 원하는 순도의 제품을 생산할 수 있음을 알 수 있다. 그러나 최종제품인 flash 상부흐름의 일부를 다시 flash 로 투입하는 흐름  $F_{73}$  이 사용되었다. 이것이 없으면 본 예제의 자료출처[4]에서 제시한 공정도와 구조가 같아지며 이 경우 95 mol%의 순도를 달성하려면 폐기물을 훨씬 많이 배출해야 한다. 이를 확인하기 위하여  $a_{73} = 0$  을 제약조건으로 추가하고 최적화한 결과 폐기물 배출량은  $F_9 = F_{69} = 16.782 \text{ lb-moles/hr}$  로 증가하였다. 흐름  $F_{73}$  의 사용은 flash 에 일반적으로 적용되는 것은 아니나 증류탑의 환류비 (reflux ratio)를 증가시켜 제품순도를 높이는 것과 원리가 비슷하다고 볼 수 있다.

또 다른 지역해를 표 5 및 6 에 표시하였다. 이를 토대로 얻은 그림 3 은 그림 2 의 공정과 제품순도는 같으나 제품을 더 많이, 즉 폐기물을 보다 적게 배출하는 공정을 나타낸다. 그러나 앞의 공정에 비하여 열교환기 및 냉각수가 추가로 요구된다. 이 점에서 목적함수 값은  $f = 355.81$  이며 이보다 나은

표 3. 지역해 1 의 네트워크 자료.

Table 3. Network data of local solution 1.

i	$a_{i1}$	$a_{i2}$	$a_{i3}$	$a_{i8}$	$a_{i9}$
0	1	0	0	0	0
4	0	0	1	0	0
5	0	0	0	1	0
6	0.9627	0	0	0	0.0373
7	0	0	0.3599	0.6401	0

표 4. 지역해 1의 흐름자료.

Table 4. Stream data of local solution 1.

$i$	$F_{iA}$	$F_{iB}$	$F_{iC}$	$T_i$
1	131.151	73.347	42.485	615.35
2	0	0	0	500.00
3	36.265	216.142	47.594	859.25
4	34.859	165.776	46.348	900.00
5	0	0	0	500.00
6	32.359	76.192	44.133	665.83
7	3.905	139.950	3.461	665.83
8	2.500	89.585	2.215	665.83
9	1.208	2.845	1.648	665.83

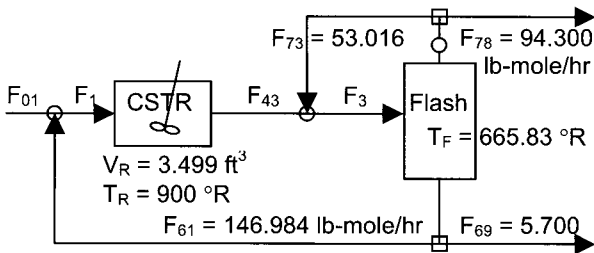


그림 2. 지역해 1에 의한 공정도.

Fig. 2. Process flowsheet by local solution 1.

지역해를 찾기 위해 탐색을 계속한 결과  $f = 355.42$  인 새로운 지역해를 얻었다. 이는 표 5에  $a_{42} = 1$  및  $a_{43} = 0$  을 넣고 표 6에서는 흐름  $F_2$  및  $F_3$  자료를 각각  $F_4$  및  $F_3$  자료로 바꾼 것과 같다. 즉 목적함수의 앞 항에는 변화가 없으나 뒤 항이 개선된 것이다. 그 결과 흐름  $F_{43}$ 이 제거되어 공정이 단순화되었다.

이 예제를 푸는 과정에서 특별히 공정합성을 위한 경험적 규칙이나 전문지식을 사용하지 않았지만 그림 2의 공정에서는 제품 환류기술이 저절로 나타났으며 그림 3에서 흐름  $F_{43}$ 이 제거된 최종결과는 잘 알려진 Williams-Otto plant와 비슷

표 5. 지역해 2의 네트워크 자료.

Table 5. Network data of local solution 2.

$i$	$a_{i1}$	$a_{i2}$	$a_{i3}$	$a_{i8}$	$a_{i9}$
0	1	0	0	0	0
4	0	0.2706	0.7294	0	0
5	0	0	1	0	0
6	0.9823	0	0	0	0.0177
7	0	0	0	1	0

표 6. 지역해 2의 흐름자료.

Table 6. Stream data of local solution 2.

$i$	$F_{iA}$	$F_{iB}$	$F_{iC}$	$T_i$
1	141.716	99.668	58.617	624.50
2	12.171	52.228	16.767	900.00
3	44.987	193.040	61.973	791.78
4	44.987	193.040	61.973	900.00
5	12.171	52.228	16.767	500.00
6	42.467	101.464	59.673	665.91
7	2.519	91.576	2.300	665.91
8	2.519	91.576	2.300	665.91
9	0.752	1.796	1.056	665.91

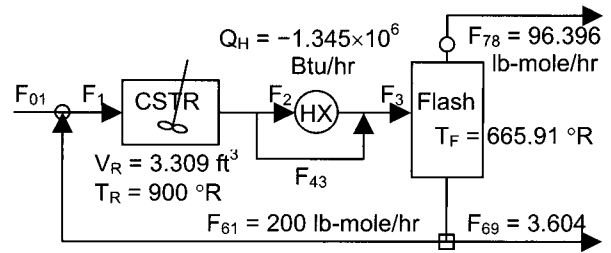


그림 3. 지역해 2에 의한 공정도.

Fig. 3. Process flowsheet by local solution 2.

한 전형적인 화학공정의 모습을 갖추고 있다. 이 공정이 본 예제의 전역최적해일 것으로 생각되나 결정론적 방법으로 풀기 전에는 이를 보장할 수 없다.

### V. 결론

열교환기 등 특정장치의 네트워크 합성에 적용되던 상태 공간 접근법을 일반적 공정합성 문제에 적용하는 방법을 제안하였다. 사례연구 결과 전역최적성은 보장되지 않으나 합리적인 구조 및 조업조건을 공정도를 얻을 수 있었다. 이는 앞으로 컴퓨터가 원료 및 제품에 대한 조건 및 목적함수를 받으면 사용가능한 장치 및 단위공정의 모델식만 가지고도 주어진 조건과 목적에 맞는 최적공정을 자동합성할 수 있다는 가능성을 시사한다. 따라서 보다 큰 문제를 다룰 수 있는 전역최적화 기법의 개발이 요구된다. 이것이 이루어지면 제안된 방법은 새로운 원료 및 제품을 위한 새로운 공정을 합성하는데 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

### 참고문헌

- [1] M. J. Bagajewicz, R. Pham, and V. Manousiouthakis, "On the state space approach to mass/heat exchanger network design," *Chem. Eng. Sci.*, vol. 53, no. 14, pp. 2595-2621, July, 1998.
- [2] C. A. Schweiger and C. A. Floudas, "Optimization framework for the synthesis of chemical reactor networks," *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol. 38, no. 3, pp. 744-766, March, 1999.
- [3] S. H. Choi and V. Manousiouthakis, "Global optimization methods for chemical process design: deterministic and stochastic approaches," *Korean J. of Chem. Eng.*, vol. 19, no. 2, pp. 227-232, March, 2002.
- [4] L. B. Evans, *New Developments in Modeling, Simulation, and Optimization of Chemical Processes*, special summer program, Massachusetts Institute of Technology, July, 1980.



최수형

1961년 1월 10일생. 1984년 서울대학교 화학공학과(공학사). 1986년(공학석사). 1990년 University of Missouri-Rolla(Ph.D.). 1993년~현재 전북대학교 화학공학부 교수. 관심분야는 공정시스템.