

## 회분식 증류장치의 최적제어

이 주엽 · 정상헌 · 이 광순

서강대학교 이공대학 화학공학과

## Optimal Control of Batch Distillation

Joo Youp Lee, Sang Hun Jeong, Kwang Soon Lee

Dept. of Chem. Eng. Sogang University

## ABSTRACT

Three different reflux policies are compared for a batch distillation process in which a fixed recovery with a given average purity of the distillate is required: the first, for the constant distillate purity; the second, for the constant reflux ratio; finally, for the optimal reflux policy which gives the minimum operation time. The optimal reflux policy was obtained using Pontryagin's maximum principle. Through the numerical simulations for the three different binary mixtures, it was found that the time advantage of the optimal reflux operation over the constant overhead composition operation varies from 10.0 to 22.4% and the advantage over the constant reflux operation varies from 11.6 to 36.6% in the three cases considered.

## 1. 서론

회분식 증류장치는 소량의 정밀화학 제품을 생산하는데 요구되는 중요한 분리기술이며, 또한 일반 화학공장에서 비정기적으로 발생하는 폐액으로부터 유용한 성분을 회수하는 목적으로도 폭넓게 쓰이고 있다. 대부분의 경우 초기 원료의 조성은 매 배치(batch) 마다 변할 수 있으며, 더우기 일반적인 목적의 회분식 증류장치는 종종 많은 수의 다양한 제품을 생산하기 위해 사용된다.

회분식 증류장치의 가장 두드러진 특징은 융통성이라 할 수 있을 것이다. 대상물을 한 혼합물에서 다른 혼합물로 전환할 때의 변화를 거의 필요로 하지 않으며, 환류비와 원료 처리량을 쉽게 변화시킬 수 있으며, 원료와 탑상물의 균형을 유지할 필요가 없다. 특히 빈번히 원료의 조성을 바꾸거나 다른 혼합물들을 취급하여야 하는 경우, 회분식 증류장치는 뛰어난 효율성을 갖고있다.

이와 같은 회분식 증류공정의 운전에서 요구되는 중요한 문제 중의 하나는 원하는 생산물을 회수하여 생산성을 높여

는 것이라 할 수 있다. 일반적으로 회분식 증류공정의 최적 운전은 탑상물의 원하는 생산량과 농도를 가장 짧은 시간 내에 생산하는 것이라 할 수 있다. 이에 대해 기존의 운전방법은 목표하는 생산량과 탑상물의 농도를 얻기위해 환류비를 변화시키면서 운전하는 경우와 환류비를 일정하게 유지하면서 운전하는 경우로 나누어진다. 본 연구에서는 목적함수를 위에서 언급한 바와 같이 최소시간 내에 원하는 생산량과 농도를 얻는 것으로 정의하고, 이를 만족시키는 운전조건을 찾으려 하였다. 이 문제의 해결을 위하여 Pontryagin의 maximum principle을 이용하여 최소시간 내에 주어진 이성분계 혼합물을 분리할 수 있도록 하는 운전조건을 찾을 수 있었다.

## 2. 최소시간 문제 (Minimum time problem)

최종 운전시간이 결정되지 않은 경우 최적제어문제는 다음과 같이 정리될 수 있다.

$$\min_{u(t)} J = \Phi(x_f, t_f) + \int_{t_0}^{t_f} L(x, u, t) dt \quad (1)$$

$$\text{subject to } \begin{cases} \frac{dx}{dt} = f(x, u, t), & x_0 \text{ is given} \end{cases} \quad (2)$$

$$\Phi(x_f, t_f) = 0 \quad (3)$$

$$t_0 \text{ is given, } t_f \text{ is free} \quad (4)$$

즉, 초기와 말기의 상태조건(state condition)이 각각 식(2)와 (3)과 같이 결정되어 있는 state equation들의 집합, 식(2)가 주어졌을때 대상계를 초기상태  $x_0$ 에서 말기상태  $x_f$ 로 보내는 모든 제어입력(admissible control)  $u(t)$ ,  $0 \leq t \leq t_f$  (여기서는  $t_0=0$ 로 하였음), 중에서 전이시간(transition time)  $t_f$ 를 최소화하는 제어입력을 선택한다. 이런 의미에

서의 제어입력,  $u(t)$ 를 찾는 문제를 최소시간문제(minimum time problem)라 한다.

이때 cost functional  $J$ 를  $x$ 에 대해 1차 variation을 취하면 costate equation은 다음과 같이 나타난다.

$$\frac{d\lambda}{dt} = - \frac{\partial H}{\partial x} = - \lambda^T \frac{\partial f}{\partial x} \quad (5)$$

여기서 Hamiltonian 함수는  $H = L + \lambda^T f$  로 정의되며,  $L=0$ 로 놓으면  $H = \lambda^T f$  가 된다. 또한  $J$ 를  $u$ 에 대해 1차 variation을 취하면 다음과 같은 optimality condition을 얻을 수 있다.

$$\frac{\partial H}{\partial u} = 0 \quad (6)$$

위 (6)식에 나타낸 바와 같이 주어진  $x(t)$ 와  $\lambda(t)$ 에 대해 Hamiltonian 함수,  $H(x(t), \lambda(t), u(t))$ 를 최대화 시키는 제어입력  $u(t)$ 를 찾는 것을 Pontryagin의 maximum principle이라 하며, 이때 Hamiltonian의 최대값은 모든 시간( $0 \leq t \leq t_f$ )에 대해 양수값을 가지며 일정하다. 이제 이 식들을 최분식 증류공정에 응용함으로써 최소시간문제를 해결할 수 있다.

### 3. 이성분계 최분식 증류공정

증류탑 내에 액체나 증기의 holdup이 없다고 가정하면 전체 물질수지식과 각 성분에 대한 물질수지식을 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$B(t) + D(t) = B^0 \quad (7)$$

$$B(t)x_B(t) + D(t)x_D(t) = B^0x_B^0 \quad (8)$$

여기서  $x_B$ 와  $x_D$ 는 모두 휘발성이 강한 성분의 조성이며,  $B$ ,  $D$ ,  $x_B$ 와  $x_D$  중  $B$ 와  $x_B$ 를 임의로 독립상태변수(independent state variable)로 취하고 total condenser임을 가정하면 condenser에 대한 전체 물질수지식은 식(9)와 같이 나타낼 수 있다.

$$V = (R + 1) \frac{dD}{dt} \quad (9)$$

이때 임의의 순간에서 증류탑내의 액체와 증기의 유속이 일정하다고 가정하면 증류탑내 증기의 유속과 boil-up rate은

같아지고, 증류기내 일정한 속도로 열량공급을 하였을 경우 최소시간문제는 전체 에너지를 최소화시키는 문제의 성격을 갖는다고 할 수 있다.

이제 식(7)과 (9)로 부터 첫번째 상태변수  $B$ 의 시간에 대한 상미분식을 얻으면 다음과 같다.

$$\frac{dB}{dt} = - \frac{V}{R + 1} = L - V = - \frac{dD}{dt} \quad (10)$$

또한 두번째 상태변수  $x_B$ 의 시간에 대한 상미분식을 얻기 위해 condenser 주변에 각 성분에 대한 물질수지식을 세우면 다음과 같다.

$$y_N (V - L) = \frac{d(Dx_D)}{dt} = - \frac{d(Bx_B)}{dt} \quad (11)$$

위의 두식 (10)과 (11)을 이용하면 식(12)와 같은 Rayleigh 식을 얻을 수 있으며, 또한 식(11)로 부터 식(13)과 같은  $x_B$ 의 시간에 대한 상미분식을 얻을 수 있다.

$$\frac{dB}{B} = \frac{dx_B}{y_N - x_B} \quad (12)$$

$$\frac{dx_B}{dt} = - \frac{y_N - x_B}{B} \frac{V}{R + 1} \quad (13)$$

이제 본 연구에서 찾은 최소시간과 비교하기 위해 기존의 운전방법인 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우와 일정한 탑상농도를 유지하며 운전하는 경우에 소요되는 운전시간을 구해보면 다음과 같다. 우선 탑상농도를 일정하게 유지하면서 운전할 경우, 환류비는 탑저농도가 떨어짐에 따라 연속적으로 증가되어야 한다. 이 경우 소요되는 운전시간은 (7), (8), (10)과 (13)식으로 부터 다음과 같은 Bogart integral로 표현되는 식(14)를 얻을 수 있다.

$$\tau_D = \frac{B^0(x_D^1 - x_B^0)}{V} \int_{x_B^1}^{x_B^0} \frac{R + 1}{x_B^1 (x_D^1 - x_B)^2} dx_B \quad (14)$$

한편 환류비를 일정하게 유지하며 운전할 경우 탑상농도는 시간이 지남에 따라 계속 떨어지면서 운전종료시에는 결국 목표하는 탑상농도  $x_D^1$ 에 도달하게 된다. 이 경우 소요되

는 운전시간은 식(10)으로 부터 다음과 같이 표현된다.

$$\tau_R = \frac{R+1}{V} (B^0 - B^1) = \frac{R+1}{V} D^1 \quad (15)$$

#### 4. Maximum principle의 응용

앞절에서 얻은 식(10)과 (13)을 이용하여 본 문제에 대한 최소시간문제를 재구성하면 다음과 같다.

$$\begin{aligned} \min \quad & T \\ \text{subject to} \quad & \begin{bmatrix} \frac{dB}{dt} \\ \frac{dx_B}{dt} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\frac{V}{R+1} \\ -\frac{y_N - x_B}{B} \frac{V}{R+1} \end{bmatrix} \\ & x(0) = \begin{bmatrix} B^0 \\ x_{B0} \end{bmatrix} \quad x(t_f) = \begin{bmatrix} B^1 \\ x_{B1} \end{bmatrix} \end{aligned}$$

이때 Hamiltonian 함수와 costate eq. 은 각각 식(16)과 (17), (18)과 같이 구성되며, 최적의 운전조건을 찾기 위해서

$$H(B, x_B, \lambda_1, \lambda_2) = \lambda_1 \left( -\frac{V}{R+1} \right) + \lambda_2 \left( -\frac{y_N - x_B}{B} \frac{V}{R+1} \right) \quad (16)$$

$$\frac{d\lambda_1}{dt} = -\lambda_2 \frac{V}{R+1} \frac{y_N - x_B}{B^2} \quad (17)$$

$$\frac{d\lambda_2}{dt} = \lambda_2 \frac{V}{R+1} \frac{1}{B} \left[ \frac{\partial y_N}{\partial x_B} - 1 \right] \quad (18)$$

는 최종운전시간이 결정되지 않은 시간간격  $[0, t_f]$  내에서  $\lambda_1(t)$ ,  $\lambda_2(t)$ ,  $B(t)$ 와  $x_B(t)$ 를 찾아야 한다. 이를 위해 state eq.과 costate eq.을 풀어야 하며, 매 시간마다 Hamiltonian 함수가 양수인 최대값을 가져야 하는데, 이때  $\lambda_1(t)$ ,  $\lambda_2(t)$ ,  $B(t)$ 와  $x_B(t)$ 는 상수로 취급된다.

계산과정 중 state eq. (10)과 (13)식에서  $B(t)$ 와  $x_B(t)$ 의 초기와 말기조건은 결정되어 있으나, costate eq. (17)과 (18)식에서  $\lambda_1(t)$ 와  $\lambda_2(t)$ 의 초기나 말기조건은 결정되어 있지 않으므로 두 조건 중 하나를 가정하는 일이 필요하다. 따라서 costate 변수의 초기조건을 가정하여 상태변수의 말기

조건이 만족될 때까지  $\lambda_1(0)$ 와  $\lambda_2(0)$ 의 값을 찾아가는 과정이 필요하다. 사실상 Hamiltonian 함수는  $\lambda_1$ 과  $\lambda_2$ 에 대해 homogeneous하므로 그들의 비인  $\lambda_2(0)/\lambda_1(0)$ 를 가정하는 일이 필요하다. 여기서는  $\lambda_1(0)$ 를 항상 1로 놓고  $\lambda_2(0)$ 를 가정하였다.

#### 5. 계산과정

최적제어에서 소요되는 운전시간과 제어입력인 환류비를 구하기 위한 흐름도를 그림 1에 나타내었으며, 이때 사용한 가정들은 다음과 같다.

- (a) 모든 단에서 증기와 액체의 물흐름은 일정하다.
- (b) 이성분계의 기-액 상평형은 일정한 상대휘발도에 의해 적절히 표현된다.
- (c) 증기와 액체의 holdup은 없다고 가정한다.
- (d) Condenser는 total condenser로 가정한다.

이때 계산을 위해 필요한 subroutine들은 다음과 같이 구성된다.

##### (1) $\lambda_2(0)$ 를 찾는 과정

$B^1(t_f)$ 와  $B(t_f)$ 의 차이가 허용오차의 범위내로 수렴할 때까지  $\lambda_2(0)$ 를 가정하는데 여기서는 false position method를 이용하였으며, 허용오차는 0.05로 하였다.

##### (2) 탑상농도 계산

주어진 단수, 환류비와 탑저농도에 대하여 탑상농도를 찾는 과정은 식(19)와 (20)을 이용하여 탑상농도  $y_N$ 을 가정 한 후 탑상부에서 하부로 또는 탑하부에서 상부로 계산함으로써 찾을 수 있다. 여기서는 탑상부에서 하부로 내려오면서 계산을 수행하였으며, false position method를 이용하여 계산된 탑저농도  $x_B$ 와 주어진  $x_B$ 와의 허용오차가 0.00001이 될 때까지 반복계산을 수행하였다.

$$x_n = \frac{y_n}{a - (a-1)y_n} \quad n = N, \dots, 0 \quad (19)$$

$$y_{n-1} = \frac{R}{R+1} x_n + \frac{1}{R+1} y_N \quad n = N, \dots, 1 \quad (20)$$

##### (3) Hamiltonian의 최대값을 찾는 과정

여기서는 최대값을 갖는 Hamiltonian을 찾기 위하여 Golden section method를 사용하였으며, 바로 전 과정에서 찾은 환류비를 낮은 값의 가정치로 사용하여 환류비를 찾아 나갔다.

##### (4) 편미분 계산

식(18)에서의  $\partial y_N / \partial x_B$ 은 주어진 환류비에서의 값이므로 가정

한  $y_N$ 에 약간의 변화(여기서는 0.0001)를 주어 이 값들에 대한 탐저농도  $x_B$ 를 각각 계산하여 사용하였다.

(5)  $B(t)$ ,  $x_B(t)$ ,  $\lambda_1(t)$ 와  $\lambda_2(t)$ 의 적분

이는 4차의 Runge-Kutta method를 이용하여 적분을 수행하였다.

이상에서 기술한 최적제어 운전방법을 기존의 운전방법과 비교하기 위해 일정한 탐상농도를 유지하며 운전할 때와 일정한 환류비를 유지하며 운전할 때 소요되는 운전시간을 각각 식(14)와 (15)를 이용하여 구하였다. 이 프로그램들은 최소시간을 구하는 프로그램들과 유사하며, 앞에서 언급한 것과 동일한 가정들을 이용하였다.

## 6. 결과 및 고찰

표 1에 나타난 세가지 혼합물에 대하여 이상에서 기술한 운전방법들을 이용하여 전산모사를 수행하였으며, 그 중 기존의 운전방법을 이용한 결과를 표 2에 나타내었다. 또한 최적운전방법을 이용한 전산모사결과를 표 3에 나타내었으며, 이 운전방법과 기존의 운전방법을 이용시 소요되는 운전시간을 함께 비교하였다. 세가지 경우에 대하여 전산모사를 수행한 결과, 최적운전방법은 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우와 일정한 탐상농도를 유지하며 운전하는 경우보다는 모두 운전시간을 절약할 수 있음을 알 수 있었다. 그러나 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우와 일정한 탐상농도를 유지하며 운전하는 경우에는 cyclohexane-toluene의 경우를 제외하고는 모두 일정한 환류비를 유지하며 운전할 경우의 운전시간이 더 소요됨을 알 수 있었다. 본 연구에서 보인 세가지 경우외에 다른 경우에 대하여 전산모사를 수행한 결과를 참고해 볼 때 상대휘발도가 작은 경우는 대체로 일정한 탐상농도를 유지하며 운전하는 경우의 운전시간이 더 소요됨을 알 수 있었다. 이는 아마도 상대휘발도가 작은 경우는 분리가 어렵기 때문에 목표하는 탐상농도를 유지하며 운전하는데 시간이 많이 소요되는 것으로 생각되어진다. 반대로 pentane-hexane의 경우와 benzene-octane의 경우에서 볼 수 있듯이 상대휘발도가 커지는 경우는 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우의 운전시간이 더 소요됨을 알 수 있다. 이런 현상은 상대휘발도가 커질수록 더욱 두드러져 일정한 탐상농도를 유지하는 경우에 대하여 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우의 소요시간이 pentane-hexane의 경우에는 7.4%, benzene-octane의 경우에는 28.8% 정도 더 소요됨을 알 수 있었다.

세가지 운전방법에 대하여 전산모사를 수행한 결과 중 pentane-hexane의 혼합물을 탐저농도에 대하여 환류비로서

도시한 것을 그림 2에 나타내었으며, benzene-octane의 혼합물에 대한 결과를 그림 3에 나타내었다. 대부분의 경우 최적운전방법은 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우와 일정한 탐상농도를 유지하며 운전하는 경우의 사이에 존재함을 알 수 있다. 또한 세 경우 모두 최적운전시 대부분의 시간절약은 탐저농도에 대하여 환류비의 증가속도가 큰 운전후반부에 이루어지는 것임을 알 수 있다.

참고로 benzene-octane의 경우에 대하여 costate 변수를 시간에 대해 도시한 것을 그림 4에 나타내었다. 여기서  $\lambda_2(0)$ 는 탐저량  $B$ 를 목표하는 탐저량  $B^i$ 에 맞추기 위해 조절된다. 이때 false position method를 이용하여  $\lambda_2(0)$ 를 찾을 때 가정한  $\lambda_2(0)$ 의 값이 매우 작은 음수값이면 환류비가 전 영역에서 매우 작아  $B$ 가 매우 빨리 감소하므로 목표하는 탐저량  $B^i(t_f)$ 와  $B(t_f)$ 의 차이인  $B^i(t_f) - B(t_f)$ 가 양수가 된다.

## 7. 결론

Pontryagin의 maximum principle을 사용하여 회분식 증류공정의 운전시 소요되는 운전시간을 최소화시키는 최적제어 입력인 환류비를 찾을 수 있었다. 본 연구에서 찾은 최적운전방법이 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우나 일정한 탐상농도를 유지하며 운전하는 경우보다는 본질적인 운전시간 절감효과를 가져옴을 알 수 있었다.

세가지 경우에 대하여 전산모사를 수행한 결과, 최적운전방법은 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우보다 11.6%에서 36.6%의 시간절감 효과를 가져오며, 반면에 일정한 탐상농도를 유지하며 운전하는 경우보다는 10%에서 22.4%의 운전시간 절감효과를 가져옴을 알 수 있었다. 일정한 환류비를 유지하며 운전하는 경우가 일정한 탐상농도를 유지하며 운전하는 경우보다 운전시간이 길거나 짧았으나, 최적운전방법은 두가지 경우보다 모두 운전시간이 적게 소요됨을 알 수 있었다. 또한 최적운전방법은 일정한 탐상농도를 유지하며 운전하는 경우보다 증류공정 후반부에 상대적으로 낮은 환류비를 유지하며 운전할 수 있음을 알 수 있었으며, 최적운전시 대부분의 시간절약은 탐저농도에 대하여 환류비의 증가속도가 큰 운전후반부에 이루어지는 것임을 알 수 있었다.

## NOMENCLATURES

English

$B$  The amount of material in the still (moles)

$B^0$  The initial amount of material in the still (moles)

$B^1$  The final amount of material in the still (moles)

$D$  The amount of material in the distillate receiver (moles)

- D<sup>1</sup> The final amount of material in the distillate receiver (moles)  
 H Hamiltonian function  
 J The cost functional  
 L Liquid flow rate (mole/hr)  
 N The number of theoretical plates in the column  
 R The reflux ratio  
 t<sub>f</sub> The minimum time necessary to effect the given distillation (hr)  
 u The admissible control  
 V The constant boil-up rate, equal to the vapor flow rate (mole/hr)  
 x The state variable  
 x<sub>B</sub> The mole fraction of more volatile component in the still material  
 x<sub>B</sub><sup>0</sup> The initial mole fraction of more volatile component in the still material  
 x<sub>B</sub><sup>1</sup> The final mole fraction of more volatile component in the still material  
 x<sub>D</sub> The mole fraction of more volatile component in the material in the distillate receiver  
 x<sub>D</sub><sup>1</sup> The final mole fraction of more volatile component in the material in the distillate receiver  
 x<sub>n</sub> The mole fraction of more volatile component in the liquid from plate n: x<sub>D</sub> = x<sub>B</sub>  
 y<sub>n</sub> The mole fraction of more volatile component in the vapor from plate n: y<sub>0</sub> = y<sub>B</sub>  
 y<sub>N</sub> The vapor composition from the top plate

Greek

- α Relative volatility  
 λ The costate variable  
 τ<sub>D</sub> The time necessary to effect the given distillation at constant overheads  
 τ<sub>R</sub> The time necessary to effect the given distillation at constant reflux

REFERENCES

1. Converse A.O. and Gross G.D., Ind.Eng.Chem.Fundam., 2, 217(1963).
2. Coward I., Chem.Engng Sci., 22, 503(1967).
3. Distefano G.P., AIChE, 14, 190(1968).
4. Robinson E.R., Chem.Engng Sci., 24, 1961(1969).
5. Robinson E.R., Chem.Engng Sci., 25, 921(1970).
6. Divekar U.M., Malik R.K. and Madhavan K.P., Comput.chem.Engng., 11, 629(1987).

Table 1. Problem specification.

System	Number of plates	Relative volatility, α	V	B <sup>0</sup>	x <sub>B</sub> <sup>0</sup>	B <sup>1</sup>	x <sub>B</sub> <sup>1</sup>
A: Cyclohexane - toluene	5	2.46	50	100	0.4	60	0.1
B: Pentane - hexane	4	2.65	80	100	0.5	50	0.1
C: Benzene - octane	4	3.63	100	100	0.6	40	0.05

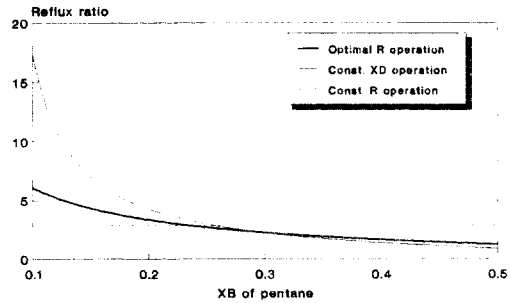


Fig.2. Example B. The reflux ratio as a function of XB for the three possible reflux policies.

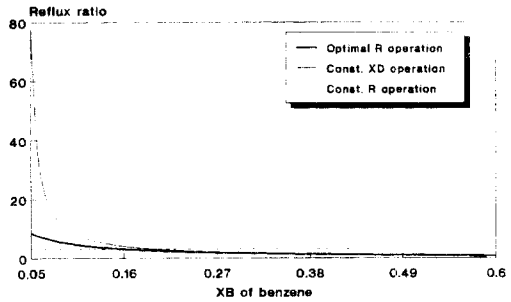


Fig.3. Example C. The reflux ratio as a function of XB for the three possible reflux policies.

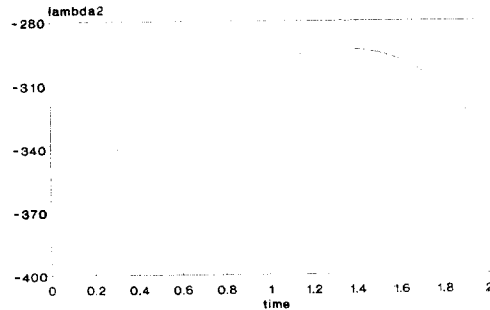
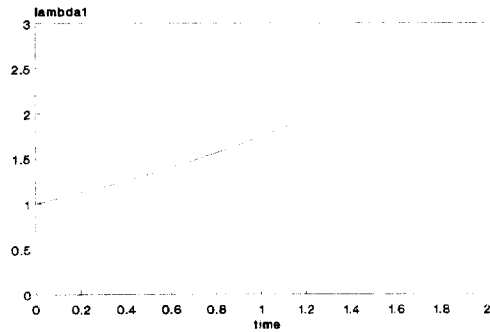


Fig.4. Example B. The costate variables lambda1 & lambda2 as functions of time.

Table 2. Simulation results of the more common operation method.

System	Constant $y_N$ operation				Constant R operation			
	$\tau_D$	$R(0)$	$R(\tau_D)$	$x_D^1$	$\tau_R$	$y_N(0)$	$y_N(\tau_R)$	R
A: Cyclohexane - toluene	3.178	1.483	11.056	0.90	3.037	0.965	0.525	2.796
B: Pentane - hexane	2.251	0.897	17.346	0.90	2.417	0.976	0.566	2.868
C: Benzene - octane	1.947	0.629	79.143	0.97	2.508	0.997	0.503	3.180

Table 3. Simulation results of optimal reflux operation and the comparison of operation time for the three possible reflux policies.

System	Optimal R						Constant R		Constant $y_N$	
	$R(0)$	$R(\tau_f)$	$\lambda_2(0)$	$H(0)$	$H(\tau_f)$	$\tau_f$	$\tau_R$	Excess time % over optimal	$\tau_D$	Excess time % over optimal
A: Cyclohexane - toluene	1.304	5.560	-587.46	39.29	38.85	2.722	3.037	11.6%	3.178	14.3%
B: Pentane - hexane	1.242	6.083	-364.56	20.66	20.57	2.047	2.417	15.3%	2.251	10.0%
C: Benzene - octane	0.827	8.543	-336.70	15.21	15.37	1.591	2.508	36.6%	1.947	22.4%

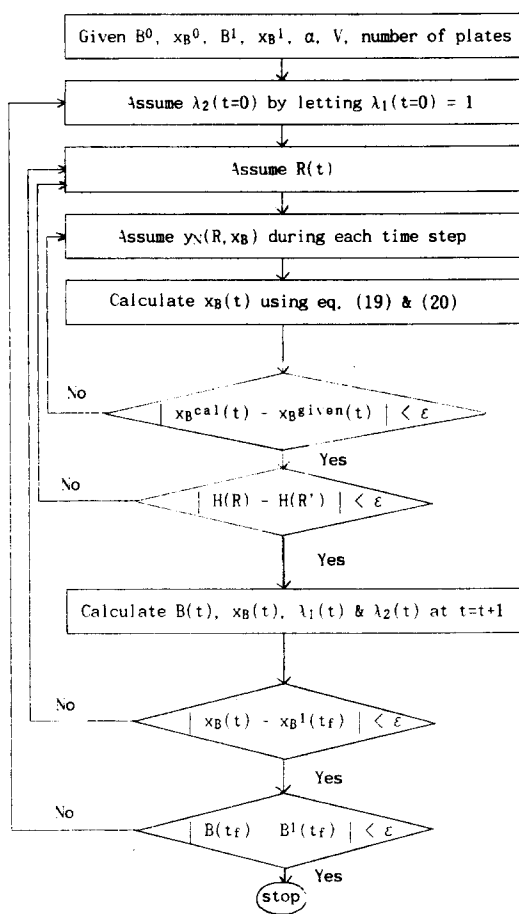


Fig.1. Flowchart to obtain an optimal reflux policy.