

바이오 기반 2,3-butanediol 증류 공정의 제어 및 동적 최적화

이기열*** · 안나현**** · 임종구**** · 한인수**** · 조형태* · 김정환***†

*한국생산기술연구원 친환경재료공정연구그룹

44413 울산광역시 중구 중가로 55

**건국대학교 화학공학부

05029 서울특별시 광진구 능동로 120

***연세대학교 화공생명공학과

03722 서울특별시 서대문구 연세로 50

****GS칼텍스 기술연구소

34122 대전광역시 유성구 엑스포로 359

(2022년 8월 18일 접수, 2022년 11월 1일 수정본 접수, 2023년 1월 13일 채택)

Process Control and Dynamic Optimization of Bio-based 2,3-butanediol Distillation Column

Giyeol Lee***, Nahyeon An****, Jongkoo Lim****, Insu Han****, Hyungtae Cho* and Junghwan Kim***†

*Green Materials and Processes R&D Group, Korea Institute of Industrial Technology, 55, Jongga-ro, Ulsan, 44413, Korea

**Department of Chemical Engineering, Konkuk University, 120, Neungdong-ro, Gwangjin-gu, Seoul, 05029, Korea

***Department of Chemical and Biomolecular Engineering, Yonsei University, 50, Yonsei-ro, Seoul, 03722, Korea

****R&D Center, GS Caltex Corp., 359 Expo-ro, Yuseong-gu, Daejeon, 34122, Korea

(Received 18 August 2022; Received in revised form 1 November 2022; Accepted 13 January 2023)

요 약

화장품, 비료 등 다양한 분야에서 사용되는 2,3-butanediol (2,3-BDO)는 고부가가치 물질로 그 수요가 점차 증가하고 있다. 미생물의 발효로부터 생산된 2,3-BDO는 발효의 부산물을 포함하고 있을 뿐만 아니라 발효 조건에 따라 피드 조성의 변동이 심하여 생산물의 목표 순도에 도달하기 위한 분리 공정의 효율적인 운전이 어렵다. 따라서 본 연구에서는 바이오 기반 2,3-BDO 증류 공정의 동적 최적화를 통해 피드의 농도가 변화할 때 하단 생산물의 2,3-BDO 농도를 99 wt% 이상으로 제어할 수 있는 최적의 제어 경로를 탐색하였다. 정상 및 동적 상태 공정 모사와 Proportional integral (PI) 제어기 설계 후 동적 최적화를 차례로 수행하였다. 그 결과 하단 생산물의 2,3-BDO 농도와 설정점 사이의 오차가 75.2% 감소하였다.

Abstract – 2,3-Butanediol (2,3-BDO), which is used in various fields such as cosmetics and fertilizers, is a high value-added substance and the demand for it is gradually increasing. 2,3-BDO produced from the fermentation of microorganisms not only contains by-products of fermentation, but also varies greatly in feed composition depending on fermentation conditions, so it is difficult to efficiently operate the separation process to reach the target purity of the product. Therefore, in this study, through dynamic optimization of the bio-based 2,3-BDO distillation process, the optimal control route was explored to control the 2,3-BDO concentration of the bottom product to 99 wt% or more, when feed concentration changes. Steady and dynamic state process simulation, proportional integral (PI) controller design, and dynamic optimization were sequentially performed. As a result, the error between the 2,3-BDO concentration and the set point of the bottom product was reduced by 75.2%.

Key words: Bio-based 2,3-butanediol, Distillation column, Dynamic modeling, Process control, Dynamic optimization

1. 서 론

†To whom correspondence should be addressed.

E-mail: kjh24@yonsei.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

화학 연료의 고갈과 환경 오염에 대한 우려로 인해 미생물 발효를 이용한 바이오 기반 2,3-BDO의 생산에 대한 관심이 증가하고 있다. 이산화탄소 배출에 대한 세계적인 규제에 의해 과학자들은 현재의

낮은 생산성과 높은 생산 비용을 극복할 수 있다면 바이오 기반 2,3-BDO의 생산이 석유 기반 화학 공정의 대안이 될 수 있다고 제안한다[1]. 2,3-BDO는 인쇄 잉크, 향수, 연화제 및 습윤제, 의약품, 부동액 및 액체 연료의 제조 등 다양한 산업적 응용이 가능한 유망한 화학물질이다[2,3]. 또한, 2,3-BDO의 수화 반응을 통해 레진과 래커로 사용되는 methyl ethyl ketone 과 합성고무의 단량체인 1,3-butadiene을 생산할 수 있다[3,4].

2,3-BDO의 발효 과정에서 아세트인, 아세트이트, 젖산, 석신산, 에탄올 등의 여러가지 물질이 함께 생성되기 때문에 발효된 피드는 낮은 농도의 2,3-BDO 를 포함한다[5,6]. 이러한 물질 중에서 아세트인은 특유의 냄새를 갖고 있기 때문에 엄밀한 분리가 필요하다. 아세트인과 2,3-BDO는 일반적으로 동일한 박테리아 균주에 의해 생산되며 공급되는 산소와 같은 매개변수에 의해 결정된다[7]. 이처럼 발효된 피드의 조성은 산소 공급, PH, 사용되는 원료 및 유기체에 따라 달라진다[7,8]. 바이오 기반 2,3-BDO 생산의 핵심 과제는 발효된 피드에서 낮은 농도의 2,3-BDO를 상업적으로 이용 가능한 수준까지 분리하는 것이다.

바이오 기반 2,3-BDO 생산의 상업화에 대한 주요 경제적 장벽은 발효 단계가 아닌 분리 단계이다[2]. 발효된 피드에서 2,3-BDO 를 분리하기 위한 분리 공정은 전체 생산 비용의 50% 이상을 차지한다[3,9]. 이는 발효된 피드의 2,3-BDO 농도가 낮고, 물, 염분, 잔류당, 발효 배지 등의 성분과 아세트인, 초산, 젖산과 같은 기타 부산물이 포함되어 있어 효율적인 분리가 어렵기 때문이다[10]. 또한, 앞서 말했듯이 발효 조건의 변동에 따라 피드 조성이 변화하기 때문에, 분리 공정의 생산물이 목표 순도를 일정하게 유지하도록 공정을 제어하는 것이 어렵다. 따라서 생산물의 2,3-BDO 농도를 안정적으로 유지하고, 에너지 소비를 줄이기 위해 분리 공정의 효율적인 제어가 중요하다.

바이오 기반 2,3-BDO 생산에 사용되는 대표적인 분리 공정은 증

류 공정이다[11]. 2,3-BDO 증류 공정의 최적화를 위한 다음과 같은 연구가 있었다. J. Hong 등은 증류 공정을 최적화 후 다중 효용 증발기와 결합하였고[12], G. R. Harvianto 등은 증류 공정을 최적화 후 추출 공정과 결합하였다[13]. E. Sánchez-Ramírez 등은 증류 공정의 다목적 최적화를 통해 경제, 환경, 안전 문제를 고려하였다[14]. 하지만 이들은 동적 모델이 아닌 정상 상태 모델의 최적화에만 초점을 맞추고 있기 때문에 변화하는 피드 조성을 고려하지 못하였다.

따라서 본 연구에서는 바이오 기반 2,3-BDO 증류 공정의 정상 상태 및 동적 공정 모델을 개발하였다. 이후 개발된 모델을 활용하여 피드 조성의 변화에 따른 최적의 공정 운전 경로를 탐색하기 위해 동적 최적화를 수행하였다. 본 논문은 2장에서는 대상 공정 개요, 3장에서는 공정모델 개발 및 동적 최적화로 진행된다.

2. 대상 공정 개요

2,3-BDO 증류 공정은 Fig. 1과 같이 2,3-BDO 피드에서 물, 아세트인 및 기타 오염 물질을 분리하여 99 wt% 이상의 2,3-BDO 생산물을 생산하는 공정이다. 미생물 발효 공정을 통해 생산된 2,3-BDO 피드는 다중 효용 증발기를 거치며 40~50 wt% 로 농축된다. Column1은 하단으로 2,3-BDO를, 상단으로 물과 아세트인을 분리하며, column2는 당분과 염을 하단으로 분리하여 생산물을 생산한다. Column1의 하단과 column2의 생산물은 2,3-BDO 농도 99 wt% 이상, 아세트인 농도 0.3 wt% 이하를 만족해야 한다. 피드는 119.5 kg/hr의 유량으로 투입되며, column1과 column2의 상단부 압력은 $-0.95 \text{ kg/cm}^2\text{g}$ 로 조절된다. Column1의 하단부 온도는 $120 \text{ }^\circ\text{C}$ 이상에서 작동되어야 한다. Column1, column2 모두 packed bed column을 사용하였으며, 이는 plate column에 비해 압력강하가 작아 진공을 유지하기에 유리하다.

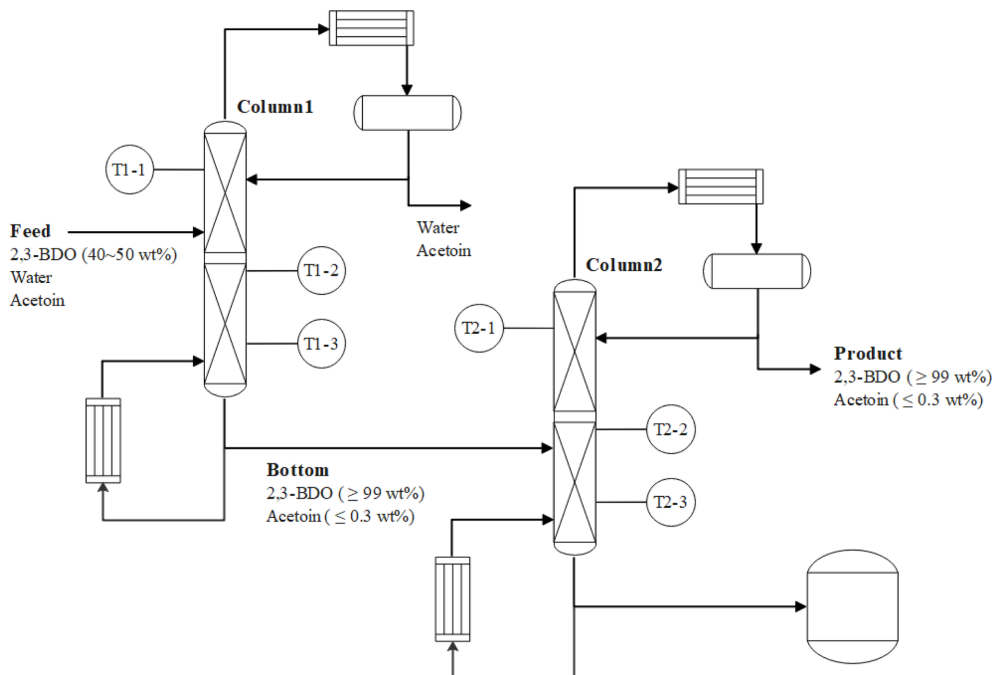


Fig. 1. Schematic diagram of 2,3-BDO distillation column.

3. 공정모델 개발 및 동적 최적화

본 논문의 전체적인 흐름을 Fig. 2에 나타냈다. Aspen Plus V11.0과 Aspen Plus Dynamic V11.0 으로 정상 상태 모델과 동적 모델을 개발하고, 온도를 이용하여 모델을 검증하였다. 앞서 말했듯이 발효 공정의 특성상 피드 조성이 일정하지 않기 때문에 피드의 2,3-BDO 질량 분율을 외란변수로 하여 계단 변화를 주었으며 변동폭은 ± 5 wt% (± 10%) 로 하였다. PI 제어를 통한 column1의 피드 유량 제어와 reboiler duty의 동적 최적화를 통해 최적의 제어 경로를 탐색하였다.

3-1. 공정 모델 개발

Fig. 3는 개발한 정상 상태 모델의 그림이다. Radfrac model을 사용하여 column을 모사하였으며, reboiler는 별도의 히터를 통해 모델링하였다. 하단에는 파이프 블록을 삽입하여 열손실을 고려해 주었다. Column을 모사하기 위해 GS칼텍스의 공정 설계치와 공정 운전 데이터를 바탕으로 아래와 같이 가정하였다.

- 공정은 정상 상태이다.
- 피드는 온도 46.4 °C, 압력 2 kg/cm²g로 유입된다
- Column 내부의 압력강하는 column1 이 0.1 kg/cm²g, column2 가 0.04 kg/cm²g 이다.
- 파이프 출구 온도는 110 °C 이다.

Table 1은 피드의 온도와 압력 조건 및 조성, column1과 column2에 입력된 specification 이다.

공정 모델에 고려된 열역학 방정식은 Universal quasichemical (UNIQUAC) model 을 사용하였다[13]. 이 모델은 초과 깃스 에너지가 엔탈피 향으로만 구성되는 Wilson equation과 Non-random tow liquids (NRTL) model 과는 달리 엔탈피 향과 엔트로피 향으로 구성되며, 2,3-BDO와 물의 이성분 매개변수를 엄밀히 나타낼 수 있다. UNIQUAC model의 식은 다음과 같다(식 1~6)[15]. 이 때 r 은 활동도 계수, z 는 배위수, q 는 표면적 매개변수, Φ 는 segment fraction, θ 는 면적 분율, Δu 는 특성 에너지를 의미한다.

$$\ln r_1 = \ln \frac{\Phi_1}{x_1} + \frac{z}{q} q_1 \ln \frac{\theta_1}{\Phi_1} + \Phi_2 \left(l_2 - \frac{r_1}{r_2} l_2 \right) - q'_1 \ln(\theta'_1 + \theta'_2 \tau_{21}) + \theta'_2 q'_1 \left(\frac{\tau_{21}}{\theta'_1 + \theta'_2 \tau_{21}} - \frac{\tau_{12}}{\theta'_2 + \theta'_1 \tau_{12}} \right) \quad (1)$$

$$\ln r_2 = \ln \frac{\Phi_2}{x_2} + \frac{z}{q} q_2 \ln \frac{\theta_2}{\Phi_2} + \Phi_1 \left(l_2 - \frac{r_2}{r_1} l_1 \right) - q'_2 \ln(\theta'_2 + \theta'_1 \tau_{12}) + \theta'_1 q'_2 \left(\frac{\tau_{12}}{\theta'_2 + \theta'_1 \tau_{12}} - \frac{\tau_{21}}{\theta'_1 + \theta'_2 \tau_{21}} \right) \quad (2)$$

$$\tau_{12} = \exp\left(-\frac{\Delta u_{12}}{RT}\right) \quad (3)$$

$$\tau_{21} = \exp\left(-\frac{\Delta u_{21}}{RT}\right) \quad (4)$$

$$l_1 = \left(\frac{z}{2}\right)(r_1 - q_1) - (r_1 - 1) \quad (5)$$

$$l_2 = \left(\frac{z}{2}\right)(r_2 - q_2) - (r_2 - 1) \quad (6)$$

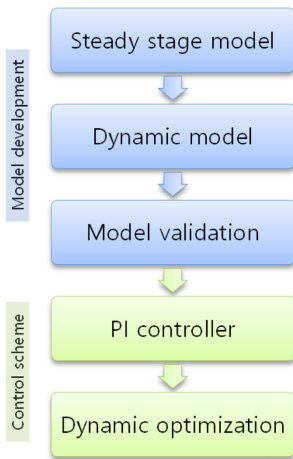


Fig. 2. Schematic diagram in this work.

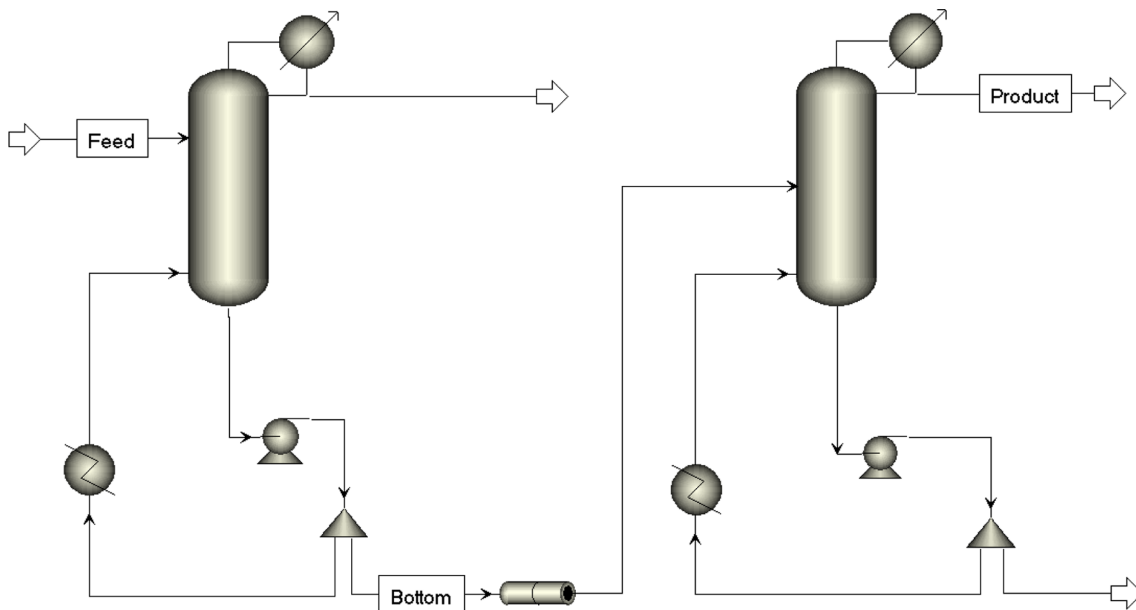


Fig. 3. Process model of 2,3-BDO distillation column.

Table 1. Specification of each stream and block in process model

Stream & Block	Specification	Value	Unit	
Feed	Temperature	46.4	°C	
	Pressure	2	kg/cm ² g	
	Flow rate	119.5	kg/hr	
	Composition	2,3-BDO	47.2	
		Water	51.5	
		Acetoin etc	1 0.3	wt %
Column 1	Total number of stages	22	-	
	Stage where feed in	5	-	
	Top pressure	-0.95	kg/cm ² g	
	Reflux ratio	0.9	-	
Column 2	Total number of stages	24	-	
	Stage where feed in	15	-	
	Top pressure	-0.95	kg/cm ² g	
	Reflux ratio	1.3	-	

동적 모델은 정상 상태 모델을 이용하여 모사하였으며, reflux drum과 sump의 구조 데이터들은 실제 설계치를 바탕으로 하였다. reboiler의 specification은 Log-mean temperature difference (LMTD) method 를 이용하였으며 duty는 다음과 같이 계산한다(식 7,8). 이때 T_{in} 은 외부 교환기 유입 온도, T_{out} 은 외부 교환기 유출 온도, $T_{med,in}$ 은 medium 유입 온도, $T_{med,out}$ 은 medium 유출 온도, U 는 총괄 열전달 계수, A 는 액체와 코일의 접촉 영역을 의미한다.

$$LMTD = \frac{(T_{med,in} - T_{out}) + (T_{med,out} - T_{in})}{\ln \frac{T_{med,in} - T_{out}}{T_{med,in} - T_{in}}} \quad (7)$$

$$Duty = U \times A \times LMTD \quad (8)$$

Packed bed column은 실제로는 단수가 존재하지 않기 때문에 이론단 상당높이, Height equivalent to theoretical plate (HETP)를 계산하였다. HETP는 다음과 같이 계산하며 H 는 column 총 길이, N 은 총 단수이다(식 9).

$$HETP = \frac{H}{N} \quad (9)$$

시뮬레이션은 정상 상태에 도달하여 더 이상 변화가 없을 때까지 실행된다. 이 조건에 도달하면 시뮬레이션을 reinitialize 하고 검증 및 제어의 시작점으로 한다.

3-2. 모델 검증

개발된 모델을 GS칼텍스로부터 제공받은 실제 운전 데이터를 활용하여 검증하였다. 검증변수로는 센서를 통해 실시간 데이터를 얻을 수 있는 온도를 이용하였다. Packed bed column 이므로 온도 센서가 정확히 몇 단에 있는지 나타낼 수 없다. 따라서 실제 설계치를 바탕으로 column 총 길이(H)와 온도센서까지의 길이(l) 비를 통해 공정의 온도 센서 위치에 해당하는 모델의 stage(n)를 계산하였다(식 10) (Table 2). 계산한 stage의 온도는 내삽을 이용하여 도출하였다. 피드의 조성은 계속 변화하지만 조성의 실시간 데이터가 없기 때문에 5개의 조성을 샘플링 하였으며, 샘플링한 조성에서 온도

Table 2. Stage corresponding to sensor position

Column	Sensor	Stage
Column1	T1-1	5.5
	T1-2	11.5
	T1-3	20.5
Column2	T2-1	7.4
	T2-2	13.6
	T2-3	22.7

센서의 온도와 계산한 stage 온도(T_{mod}) 사이의 Normalized root man square error (NRMSE) 를 계산해 모델을 검증하였다(식 11). 공정의 공정 데이터는 정상 상태가 유지되는 14개의 series (n_{plant})로 나눈 후 각 series 최댓값($T_{plant,max}$), 최솟값 ($T_{plant,min}$), 그리고 평균값($T_{plant,avg}$)을 이용하였다. 동적 모델은 모델이 정상 상태에 도달하도록 5시간 간격으로 피드 조성 변화 시나리오를 작성하여 온도를 측정하였다. 정상 상태 모델의 검증 결과를 Table 3에, 동적 모델의 검증 결과를 Table 4에 나타냈다. 각 case 마다 오차의 평균값을 계산하였으며, column1과 column2의 오차를 각각 Fig. 4(a)와 (b)에 나타냈다. 모든 case에서 정상 상태 모델과 동적 모델 모두 NRMSE의 평균값이 4% 미만이므로 개발된 모델은 신뢰할 수 있다[16].

$$n = N \frac{l}{H} \quad (10)$$

$$NRMSE(\%) = \sqrt{\frac{\sum (T_{mod} - T_{plant,avg})^2}{n_{plant} (T_{plant,max} \times T_{plant,min})}} \times 100 \quad (11)$$

3-3. 제어 모델 개발

Column1은 2,3-BDO와 물, 아세트오인을 분리하며, column2는 당분과 염을 분리한다. Feed 조성의 변동으로 인해 column1의 제어가 어렵기 때문에 column1의 제어에 초점을 맞추었다. Column2는 상대적으로 잘 제어되기 때문에 column1의 제어를 통해 bottom 흐름을

Table 3. Steady state validation results

Column	Sensor	Composition				
		Case1	Case2	Case3	Case4	Case5
Column1	T1-1	3.05	2.78	2.88	2.91	2.84
	T1-2	2.31	2.20	2.18	2.23	2.20
	T1-3	4.85	2.20	2.21	3.18	2.40
Column2	T2-1	1.16	1.14	1.14	1.15	1.14
	T2-2	3.82	3.86	3.86	3.85	3.86
	T2-3	4.17	4.18	4.17	4.10	4.18

Table 4. Dynamic validation results

Column	Sensor	Composition				
		Case1	Case2	Case3	Case4	Case5
Column1	T1-1	3.05	2.79	2.88	2.85	2.77
	T1-2	2.31	2.35	2.37	2.35	2.36
	T1-3	4.88	2.44	3.15	0.65	2.45
Column2	T2-1	1.16	1.12	1.11	1.13	1.12
	T2-2	3.81	3.89	3.89	3.86	3.89
	T2-3	3.36	3.37	3.37	3.35	3.35

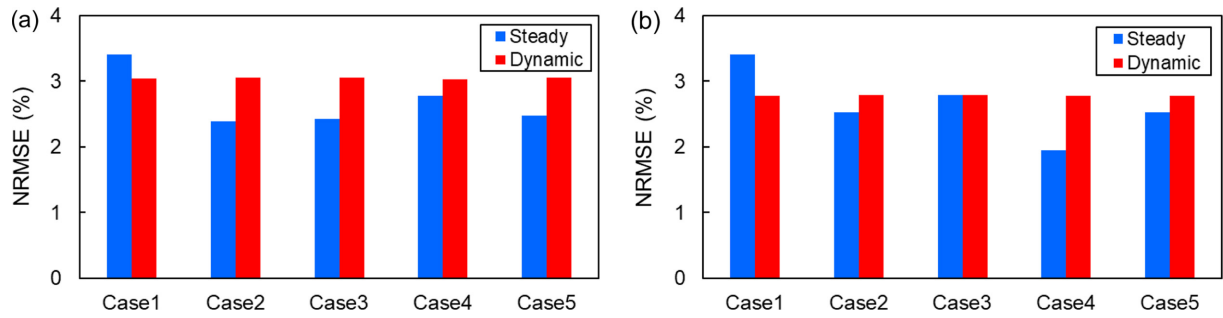


Fig. 4. Average error of temperature in (a) column1 and (b) column2.

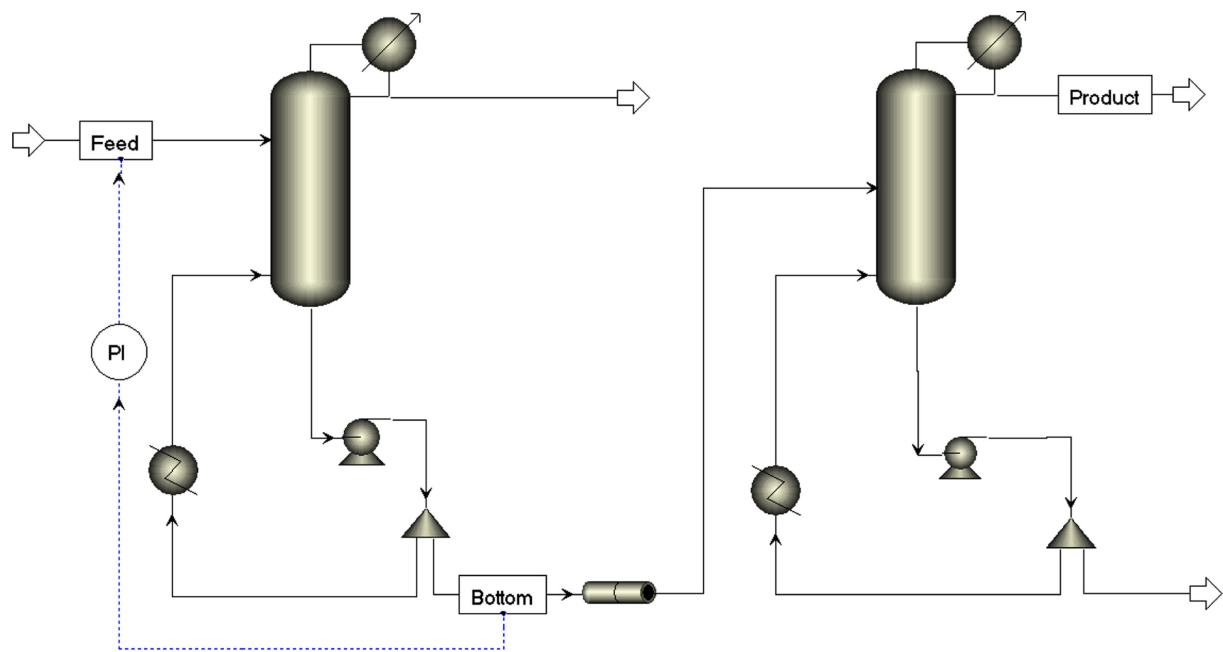


Fig. 5. Process model and controller of 2,3-BDO distillation column.

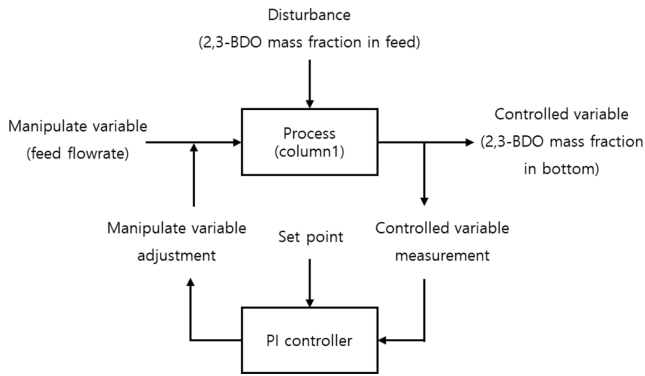


Fig. 6. Block diagram of control model.

Table 5. Ziegler-Nichols method for tuning PI controller

Parameter	Equation	value
K_p	$0.45 K_u$	33.5
T_i	$\frac{T_u}{12}$	18

일정하게 한다면 column2 도 안정적으로 운영할 수 있다. Fig. 5는 개발한 동적 모델과 제어를 나타낸 그림이다. 제어변수인 하단의 2,3-BDO 농도를 측정하여 조작변수($u(t)$)인 피드 유량을 조절하는 PI 제어를 개발하였다(식 12). 2,3-BDO의 목표 농도를 달성하기 위해 하단의 2,3-BDO 농도를 제어변수로 하였으며, 실제 공정에서 피드 유량을 통해 공정을 제어하고 있기 때문에 피드 유량을 조작변수로 하였다. 제어 모델의 블록 다이어그램을 Fig. 6에 나타냈으며, 이 때 $e(t)$ 는 설정점과 제어변수의 오차를 의미한다.

$$u(t) = K_p \left\{ e(t) + \frac{1}{T_i} \int_0^t e(t) dt \right\} \quad (12)$$

제어의 매개변수인 비례이득(K_p)과 적분시간(T_i)은 Ziegler-Nichols method 로 도출하였다. Ziegler-Nichols method는 제어변수가 일정한 진동을 가질 때까지 매개변수를 조정하여 튜닝하는 경험적인 방식이다. PI 제어기의 매개변수는 제어변수가 일정한 진동을 가질 때의 이득 K_u , 이 때의 진동주기 T_u 를 통해 구할 수 있으며, 이를 Table 5에 나타냈다[17].

3.4. 동적 최적화

최적의 제어 경로를 찾기 위해 하단의 2,3-BDO 질량 분율($c(t)$)과 설정점(c^*) 사이의 Integral absolute error (IAE)를 목적함수로 하여 최소화하는 동적 최적화를 하였다(식 13).

$$\min_{Q(t)} \int_{t_0}^{t_f} |c(t) - c^*| dt \quad (13)$$

피드 농도에 외란을 가하기 전 피드 농도가 일정하게 유지되는 상황에서 먼저 최적화를 수행하였으며, 이 상태를 시작점으로 하였다. 최적화변수 reboiler duty ($Q(t)$)의 element 개수는 피드 농도의 변화 횟수와 동일하게 4개로 지정하였으며, 4개의 시점에서 다음과 같은 제약조건을 만족한다(식 14,15). 이 때 $a(t)$ 는 하단의 아세트오인 질량 분율을 의미한다.

$$c(t) > 99.0 \text{ wt\%} \quad (14)$$

$$a(t) < 0.3 \text{ wt\%} \quad (15)$$

경로 연속 2차 계획법 최적화 프로그램인 FEASOPT 를 solver 알고리즘으로 사용하였다. FEASOPT 는 최적의 해를 찾기 위해 reduced space optimization method 를 사용한다. 현재 지점에서 목적함수 IAE 를 평가하고, 최적화변수인 $Q(t)$ 를 이동시킨 후, 목적함수를 재평가한다. 만약 해를 얻을 수 없는 경우 이전의 해결된 위치로 돌아가 다른 변수 값으로 풀이를 시도한다. 이러한 방식으로 FEASOPT 는 목적함수를 평가하고 최적화변수를 이동시킨다[18].

최적화 전 후 공정의 개선을 목적함수 IAE, $Q(t)$, $c(t)$, $a(t)$ 를 통해 평가하였다.

4. 결과 및 고찰

피드의 2,3-BDO 질량 분율을 외란변수($d(t)$)로 하여 3시간 마다 $\pm 5 \text{ wt\%}$ 계단 변화를 주었을 때, 최적화 전과 최적화 후의 공정의 거동을 Fig. 7과 Table 6에 나타냈다. Average reboiler duty (Q_{avg})와 difference (Diff)는 다음과 같이 계산하였다(식 16, 17).

$$Q_{avg} = \frac{\int_{t_0}^{t_f} Q(t) dt}{\int_{t_0}^{t_f} dt} \quad (16)$$

$$\text{Diff(\%)} = \frac{|x_b - x_d|}{x_b} \times 100 \quad (17)$$

이 때, t_f 는 최종 시간, t_0 는 시작 시간, x_b 는 최적화 전 변수, x_d 는 최적화 후 변수이다. 최적화 후가 최적화 전에 비해 목적함수 IAE 가 2.246 wt%×hr에서 0.0557 wt%×hr로 75.2% 감소하였으며, Q_{avg} 가 0.319 GJ/hr 에서 0.307 GJ/hr로 3.8% 감소하였다. $c(t)$ 의 최대 오버슈트가 0.267 wt% 에서 0.221 wt%로 17.2%, 최대 언더슈트가 0.635 wt%에서 0.155 wt%로 75.6% 감소하였으며, 최대 $a(t)$ 가 0.895 wt%에서 0.420 wt%로 53.1% 감소하였다. 이는 제어 및 동적 최적화를 통해 $d(t)$ 에 따른 최적의 $Q(t)$ 가 도출되기 때문이다. 예를 들어, $d(t)$ 가 감소(-5 wt%) 하여 $c(t)$ 가 감소하면 $Q(t)$ 를 증가시켜 column 온도를 높인다. Column 온도가 높아지면 2,3-BDO 보다 끓는점이 낮은 물과 아세트오인이 증발하여 상단으로 빠져나가 $c(t)$ 가 증가하고 $a(t)$ 가 감소한다. 반대로, $d(t)$ 가 증가(+5 wt%) 하여 $c(t)$ 가 증가하면 $Q(t)$ 가 감소하여 과도한 에너지의 소비를 막고 $c(t)$ 를 c^* 에 도달하게 한다. 결과적으로 $d(t)$ 에 따라 적절한 $Q(t)$ 의 제어 경로를 찾음으로써 더 나은 제어성과 더 적은 에너지 소모를 보였다. Column2 역시 최적화 후가 최적화 전보다 2,3-BDO와 acetoin 질량분율이 더 일정하게 유지되므로, column1의 제어를 통해 column2의 제어 성능도 개선할 수 있다. 이처럼 피드 농도의 변화가 잦은 바이오 기반 증류 공정에서는 다양한 외란을 고려한 동적 최적화를 통해 공정의 제어 전략을 수립해야 한다.

5. 결 론

본 연구에서는 바이오 기반 2,3-BDO 증류공정을 안정적으로 제어하기 위해 정상 및 동적 상태 공정 모델을 개발하고 PI 제어를 설계하였다. 개발된 모델을 활용하여 동적 최적화를 통해 피드의

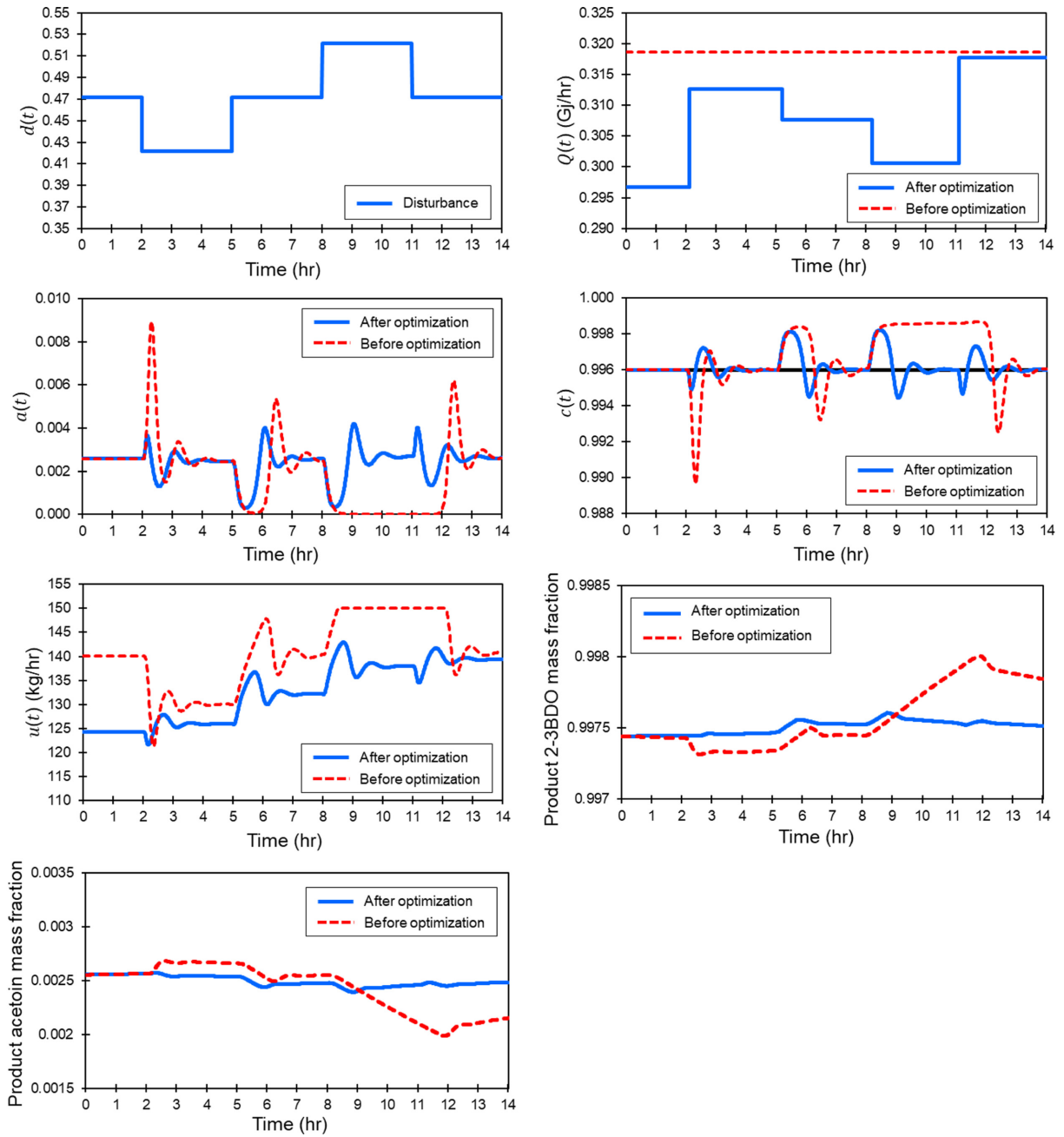


Fig. 7. Simulation results of before and after dynamic optimization.

Table 6. Comparison of before and after dynamic optimization

Variable	Before optimization	After optimization	Diff	Unit
IAE	2.246	0.557	75.2%	wt%×hr
Q_{avg}	0.319	0.307	3.8%	GJ/hr
$c(t)$	Maximum overshoot	0.267	17.2%	wt%
	Maximum undershoot	0.635	75.6%	wt%
Maximum $a(t)$	0.895	0.420	53.1%	wt%

2,3-BDO 농도가 변화할 때 하단의 2,3-BDO 농도와 설정점의 IAE를 최소화하는 최적의 제어 경로를 설정하였다. 그 결과 최적화 후가 최적화 전에 비해 IAE 가 75.2%, 하단의 2,3-BDO 질량 분율의 최대 오버슈트가 17.2%, 최대 언더슈트가 75.6%, 하단의 최대 아세

토인 질량 분율이 53.1% 감소하여 더 나은 제어성능을 보였으며, Q_{avg} 가 3.8% 감소하여 더 적은 에너지 소모를 보였다. 이처럼 피드 농도의 변화가 잦은 바이오 기반 증류 공정에서는 다양한 외란을 고려한 동적 최적화를 통해 공정의 제어 전략 수립이 필요하다. 본

연구에서는 하단의 2,3-BDO 농도를 제어하였는데, 실제 공정에서는 농도의 측정이 어려우므로 inference control과 같이 측정이 쉬운 변수를 이용해 공정을 제어하거나 soft sensor 와의 결합을 통해 공정을 제어하는 후속 연구가 필요하다.

감 사

본 논문은 한국생산기술연구원 “기업체 에너지공정 최적화 지원 사업(IR-22-0040, IZ-22-0049, UR-22-0031)”, “중소·중견기업 4차 산업 기술적용 에너지효율 향상 지원사업(IR-22-0041, IZ-22-0051, UR-22-0030)”, “화학산업 연속 제조공정 플랜트 레벨 지능화 플랫폼 기술개발(JH-22-0004)” 및 대한민국 정부 산업통상자원부 및 방위사업청 재원으로 민군협력진흥원에서 수행하는 “민군기술협력사업(UM19313RD3)”의 지원으로 수행한 연구입니다.

사용기호

r	: activity coefficient
Z	: coordination number
q	: surface area parameter
Φ	: segment fraction
θ, θ'	: area fraction
Δu	: characteristic energy
T_{in}	: external exchanger inlet temperature
T_{out}	: external exchanger outlet temperature
$T_{med,in}$: the medium inlet temperature
$T_{med,out}$: the medium outlet temperature
U	: overall heat transfer coefficient
A	: contact area between liquid and jacket and/or coils
H	: length of column
N	: total number of stage
n	: number of stage corresponding to the sensor
l	: length from top to sensor
T_{mod}	: temperature of model
$T_{plant,avg}$: average temperature of plant
$T_{plant,max}$: maximum temperature of plant
$T_{plant,min}$: minimum temperature of plant
n_{plant}	: number of series of process data
$u(t)$: manipulate variable
$e(t)$: error between set point and controlled variable
$c(t)$: bottom 2,3-BDO mass fraction (wt%)
c^*	: set point of bottom 2,3-BDO mass fraction (wt%)
$a(t)$: bottom acetoin mass fraction (wt%)
$Q(t)$: reboiler duty (GJ/hr)
$d(t)$: disturbance variable
Q_{avg}	: average reboiler duty (GJ/hr)
t_f	: final time (hr)
t_0	: initial time (hr)
x_a	: variables after optimization
x_b	: variables before optimization

References

- Lee, Y. G. and Seo, J. H., “Production of 2,3-butanediol from Glucose and Cassava Hydrolysates by Metabolically Engineered Industrial Polyploid *Saccharomyces Cerevisiae*,” *Biotechnology for Biofuels*, **12**(1), 1-12(2019).
- Ji, X. J., Huang, H. and Ouyang, P. K., “Microbial 2,3-butanediol Production: A State-of-the-art Review,” *Biotechnology Advances*, **29**(3), 351-364(2011).
- Xiu, Z. L. and Zeng, A. P., “Present State and Perspective of Downstream Processing of Biologically Produced 1,3-propanediol and 2,3-butanediol,” *Applied Microbiology and Biotechnology*, **78**(6), 917-926(2008).
- Haveren, J. Van, Scott, E. L. and Sanders, J., “Bulk Chemicals from Biomass,” *Biofuels, Bioproducts and Biorefining: Innovation for a Sustainable Economy*, **2**(1), 41-57(2008).
- Maddox, I. S., “Microbial Production of 2, 3-butanediol,” *Biotechnology Set*, 269-291(2001).
- Magee, R. J. and Kosaric, N., “The Microbial Production of 2, 3-butanediol,” *Advances in Applied Microbiology*, in, Elsevier, pp. 89-161.
- Maina, S., Prabhu, A. A., Vivek, N., Vlysidis, A., Koutinas, A., and Kumar, V., “Prospects on Bio-based 2,3-butanediol and Acetoin Production: Recent Progress and Advances,” *Biotechnology Advances*, **54**(January 2021), 107783(2022).
- Wong, C. L., Yen, H. W., Lin, C. L. and Chang, J. S., “Effects of pH and Fermentation Strategies on 2,3-butanediol Production with an Isolated *Klebsiella* sp. Zmd30 Strain,” *Bioresource Technology*, **152**, 169-176(2014).
- Wheat, J. A., Leslie, J. D., Tomkins, R. V., Mitton, H. E., Scott, D. S. and Ledingham, G. A., “Production and Properties of 2,3-butanediol: XXVIII. Pilot Plant Recovery of levo-2,3-butanediol from Whole Wheat Mash Fermented by *Aerobacillus polymyxa*,” *Canadian Journal of Research*, **26**(11), 469-496(1948).
- Davey, C. J., Havill, A., Leak, D. and Patterson, D. A., “Nanofiltration and Reverse Osmosis Membranes for Purification and Concentration of a 2,3-butanediol Producing Gas Fermentation Broth,” *Journal of Membrane Science*, **518**, 150-158(2016).
- Tinôco, D., Pateraki, C., Koutinas, A. A. and Freire, D. M. G., “Bioprocess Development for 2,3-butanediol Production by *Paenibacillus* Strains,” *ChemBioEng Reviews*, **8**(1), 44-62(2021).
- Hong, J., Van Duc Long, N., Harvianto, G. R., Haider, J. and Lee, M., “Design and Optimization of Multi-effect-evaporation-assisted Distillation Configuration for Recovery of 2,3-butanediol from Fermentation Broth,” *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification*, **136**(January), 107-115(2019).
- Harvianto, G. R., Haider, J., Hong, J., Van Duc Long, N., Shim, J. J., Cho, M. H., Kim, W. K. and Lee, M., “Purification of 2,3-butanediol from Fermentation Broth: Process Development and Techno-economic Analysis,” *Biotechnology for Biofuels*, **11**(1), 1-16(2018).
- Sánchez-Ramírez, E., Quiroz-Ramírez, J. J., Hernández, S., Segovia Hernández, J. G., Contreras-Zarazúa, G. and Ramírez-Márquez, C., “Synthesis, Design and Optimization of Alternatives to Purify 2,3-Butanediol Considering Economic, Environmental and Safety Issues,” *Sustainable Production and Consumption*, **17**, 282-295(2019).

15. Anderson, T. F. and Prausnitz, J. M., "Application of the UNIQUAC Equation to Calculation of Multicomponent Phase Equilibria. 1. Vapor-liquid Equilibria," *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development*, **17**(4), 552-561(1978).
16. Lv, F., Song, J., Giltrap, D., Feng, Y., Yang, X. and Zhang, S., "Crop Yield and N₂O Emission Affected by Long-term Organic Manure Substitution Fertilizer Under Winter Wheat-summer Maize Cropping System," *Science Total Environment*, **732**, 139321(2020).
17. Ellis, G., *Control System Design Guide: Using Your Computer to Understand and Diagnose Feedback Controllers*. Butterworth-Heinemann(2012).
18. Lawrence, P. S., Grünewald, M. and Agar, D. W., "Spatial Distribution of Functionalities in An Adsorptive Reactor at the Particle Level," *Catalysis Today*, **105**(3-4), 582-588(2005).

Authors

Giyeol Lee: Researcher, Department of Chemical Engineering, Konkuk University, Seoul, 05029, Korea; abcik@naver.com

Nahyeon An: Researcher, Green Materials and Processes R&D Group, Korea Institute of Industrial Technology, Ulsan, 44413, Korea; Department of Chemical and Biomolecular Engineering, Yonsei University, Seoul, 03722, Korea; anna@kitech.re.kr

Jongkoo Lim: Senior research engineer R&D Center, GS Caltex Corp., Daejeon, 34122, Korea; chaoslim@gscaltex.com

Insu Han: Chief research engineer, R&D Center, GS Caltex Corp., Daejeon, 34122, Korea; c15833@gscaltex.co.kr

Hyungtae Cho: Senior researcher, Green Materials and Processes R&D Group, Korea Institute of Industrial Technology, Ulsan, 44413, Korea; htcho@kitech.re.kr

Junghwan Kim: Professor, Department of Chemical and Biomolecular Engineering, Yonsei University, Seoul, 03722, Korea; kjh24@yonsei.ac.kr