



---

BUDAPESTI MŰSZAKI ÉS GAZDASÁGTUDOMÁNYI EGYETEM

Vegyipari Műveletek Tanszék

Ph.D. értekezés tézisei

**Vegyipari folyamatszintézis  
vegyes egészértékű nemlineáris programozás  
segítségével**

Farkas Tivadar

Témavezető: Dr. Lelkes Zoltán  
egyetemi docens

2006

## Bevezetés

Folyamatszintézis során célunk a rendelkezésre álló egységekből és azok lehetséges kapcsolódásaiból az optimális struktúrát és az optimális üzemeltetési paramétereket meghatározni. Ezen folyamat első lépéseként a lehetséges alternatívákat kell számbavenni. Az alternatívák nagy része mérnöki tapasztalatok alapján általában kizárható, de a fennmaradó alternatívák száma is olyan nagy, hogy ezek vizsgálata szisztematikus módszert igényel.

A matematikai programozás gyakran használt technika a folyamatszintézisben. Ennek a módszernek három fő lépése van. (1) Először az összes vizsgálandó alternatívát tartalmazó superstruktúrát és ennek gráf-reprezentációját állítjuk elő. (2) Majd ezen gráf-reprezentáció alapján egy matematikai modellt írunk fel. (3) Végül megkeressük a modell célfüggvényének szélsőértékét, a matematikai modellt optimalizáljuk.

A leggyakrabban használt olyan matematikai reprezentáció, amely diszkrét döntések kezelésére is alkalmas, a vegyes egészértékű nemlineáris programozás (Mixed Integer Nonlinear Programming, MINLP). Egy MINLP feladat folytonos és egészértékű változókat is tartalmaz, ahol az egészértékű változók általában binárisak. Grossmann 1996-ban definiálta a „jó” MINLP reprezentáció három fő tulajdonságát: (1) Legyen a feladat minél nagyobb része lineáris. (2) Legyen az NLP relaxáció minél szűkebb. (3) Lehetőség szerint legyen a probléma konvex. Habár ezen feltételek nagyon fontosak, tapasztalataim szerint nem elegendők a hatékony modellezéshez.

A multiplicitás komoly problémákat okoz az MINLP modellekben. A multiplicitás azt jelenti, hogy a matematikai reprezentáció több megoldása ugyanazt a struktúrát definiálja. Más szavakkal, egy-egy struktúrát több, egymással izomorf gráffal reprezentálunk. Ebben az esetben a célfüggvény több pontban azonos értéket vesz fel. Ez nehezebbé teszi az optimum megtalálását, és a keresési tér is szükségtelenül nagy.

Egy MINLP modell fontos jellemzője a bináris változók száma. A bináris változók számának növelésével exponenciálisan nő a feladat komplexitása és a megoldáshoz

szükséges idő. Egy MINLP modell új változók és korlátok bevezetésével átalakítható úgy, hogy kevesebb bináris változót tartalmazzon.

Doktori munkám során főleg a matematikai programozás első lépésével, a szuperstruktúra és a gráf reprezentációjának generálásával, valamint ezen és a többi lépés közötti kapcsolattal foglalkoztam.

Vizsgáltam, hogy egy új szintézisprobléma esetén hogyan használhatók fel korábbi tapasztalatok. Esetalapú tervezést használtam desztillációs kolonna szintézise során a megfelelő szuperstruktúra és MINLP reprezentáció generálásához. Esetalapú tervezés használatakor először egy adatbázisban megkeressük az aktuális problémához leghasonlóbb esetet. Ha a leghasonlóbb eset megoldása nem használható direkt módon az aktuális problémára, akkor a korábbi megoldást adaptáljuk az aktuális igények alapján. A probléma megoldása után utolsó lépésként a megoldott esetet felvesszük az adatbázisba.

Tanulmányoztam a struktúrák és gráfok közötti kapcsolatot is. Definiáltam egy struktúra MINLP reprezentációját, és megállapítottam, hogy mik a multiplicitás lehetséges okai. Javaslatokat adtam a multiplicitás és a bináris változók számának csökkentésére, így szűkítve a keresési teret, növelve a globális optimum megtalálásának esélyét, és csökkentve a megoldáshoz szükséges időt.

Végül tapasztalataimat desztillációs kolonnák szintézisére felhasználva egy új szuperstruktúrát és MINLP modellt fejlesztettem ki.

## **Számítási módszerek**

Munkám során különböző MINLP modelleket generáltam és oldottam meg. Ezen feladatok megoldásához GAMS programcsomagot (Brooke és tsai., 1992) és DICOPT++ szolvart (Viswanathan és Grossmann, 1990) használtam. A választás azért esett a GAMS programcsomagra, mert felhasználóbarát, jól dokumentált, és viszonylag olcsón hozzáférhető. A DICOPT++ szolver Outer Approximation (OA) módszert használ. Az OA módszer során váltakozva nemlineáris programozási (nonlinear programming, NLP) és vegyes egészértékű lineáris programozási (mixed integer linear programming, MILP) feladatokat oldunk meg.

A példafeladatokat és az összehasonlított modelleket az irodalomból vettem. Az eredmények egy részét ChemCAD 5.2 szimulátorral ellenőriztem.

## Új tudományos eredmények

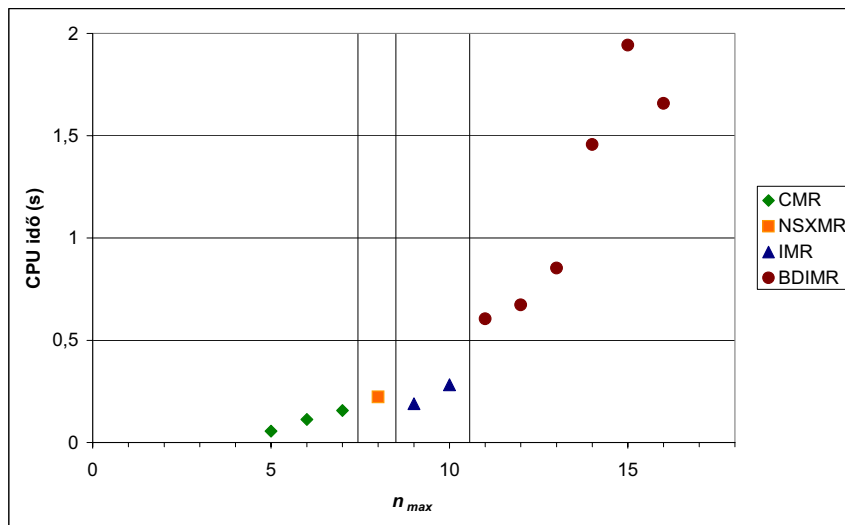
- 1. Bebizonyítottam, hogy az esetalapú tervezés alkalmas a szuperstruktúra és MINLP modell kiválasztására matematikai programozással történő folyamatszintézis esetén.** Esetalapú tervezési módszert dolgoztam ki, amely egy legfeljebb ötkomponensű ideális elegyet tartalmazó desztillációs kolonna szintézise esetén a fejlesztett adatbázisból kikeresi a leghasonlóbb esetet. Létrehoztam egy adatbázist, ami 26, az irodalomban publikált esetet tartalmaz. A leghasonlóbb eset keresése során először hasonló esetek egy halmazát határozzuk meg induktív keresés segítségével. Az eseteket olyan jellemzőik alapján osztályozzuk, mint éles / nem éles elválasztás, energiaintegráció, termékek és betápok száma. Ezután ezen halmaz eseteit legközelebbi szomszéd módszer segítségével rangsoroljuk aszerint, hogy mennyire hasonlítanak az aktuális problémához, figyelembe véve a komponensek típusát, forróját és moláris tömegét, valamint a betáp- és termékösszetételeket. A kiválasztott eset MINLP modellje és megoldása adaptálható az aktuális problémához, és az adaptált megoldás kezdeti értéként használható az optimalizálás során.
- 2. Kifejlesztettem egy automatikus eljárást az alap MINLP reprezentáció (Basic MINLP Representation, BMR) előállítására, amely referenciaként szolgálhat annak vizsgálatára, hogy egy MINLP reprezentáció reprezentálja-e a szuperstruktúrát.** Először egy alap általánosított diszjunktív programozási reprezentációt (Basic Generalized Disjunctive Programming Representation, BGR) írunk fel a szuperstruktúra R-gráf reprezentációja alapján. A BGR tartalmazza az egységek egyenleteit diszjunktív formában, a be- és kimeneti portok mérlegegyenleteit, és a költségfüggvényt. A BGR az egységek egyenletein kívül nem tartalmaz további logikai összefüggéseket, emiatt a szupergráf (a szuperstruktúra gráf reprezentációja) összes részgráfját reprezentálja. Második lépésben felírjuk a BMR-t a BGR alapján, bináris változókat használva a logikai változók helyett, és átalakítva a logikai kifejezéseket algebrai egyenletekké. A BGR és BMR felírása automatikusan történik az R-szupergráf alapján, ezért a BMR referenciaként szolgálhat annak

megállapításában, hogy egy MINLP reprezentáció (MR) reprezentálja-e a szupergráfot. **Egy MR reprezentálja a szupergráfot, ha bijektív leképezés adható meg az MR megoldhatósági tartományának egy részhalmaza és a BMR megoldhatósági tartománya között.**

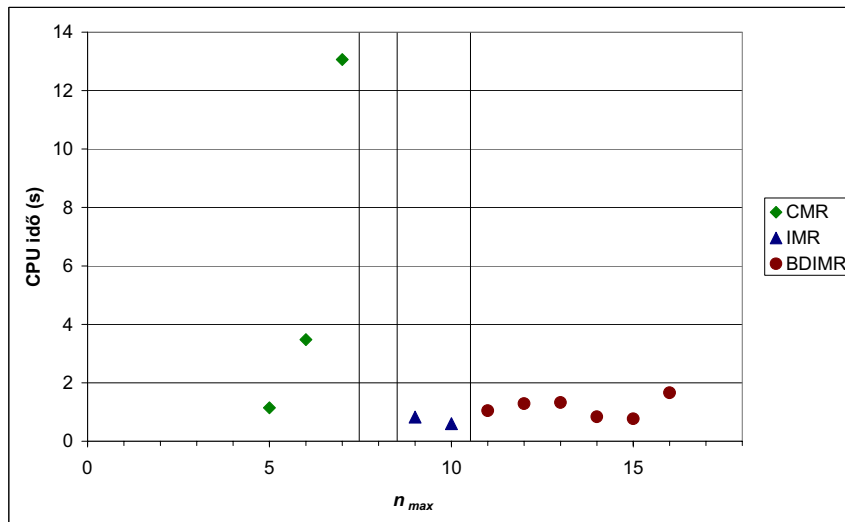
3. **Egy “jó” MINLP reprezentáció (MR) új kritériumát definiáltam: az MR lehetőség szerint a szupergráfnak csak a megengedett gráfjait reprezentálja. Ebben az esetben az MR-t ideális MINLP reprezentációnak (Ideal MINLP Representation, IMR) nevezzük.** A megengedett gráfok az explicit vagy implicit módon kiválasztott megengedett struktúrákat reprezentálják, és nincsenek közöttük izomorf gráfok. Az IMR minden esetben előállítható a nem megengedett gráfok reprezentációjának kizárásával. A nem megengedett gráfok reprezentációja kizárható, ha az MR-t kiegészítjük a tisztán logikai összefüggések algebrai átalakításaival. A számolási eredmények azt mutatják (1. és 2. ábra), hogy IMR használata esetén kisebb a megoldáshoz szükséges idő, és nagyobb a legnagyobb megoldható feladat mérete ( $n_{max}$ -szal jelölve), mint konvencionális MINLP reprezentáció (Conventional MINLP Representation, CMR) vagy nem-megengedett struktúrákat nem reprezentáló MINLP reprezentáció (Non-considered Structures eXcluded MINLP Representation, NSXMR) használata esetén.

4. **Egy “jó” MINLP reprezentáció (MR) új kritériumát definiáltam: az MR lehetőség szerint minimális számú bináris változót használjon a struktúrák megkülönböztetésére. Ebben az esetben az MR-t binárisan minimális MINLP reprezentációnak (Binarily Minimal MINLP Representation, BMMR) nevezzük.** BMMR esetében  $n_g$  számú gráf reprezentálására  $n_{bv}$  számú bináris változó használunk, ahol  $n_{bv}$  a legkisebb egész szám, amely kielégíti az  $n_{bv} \geq \log_2 n_g$  feltételt. **Bebizonyítottam, hogy a BMMR mindig előállítható.** Kifejlesztettem egy általánosan használható módszert a BMMR előállítására, amelyben új bináris változókat használunk a régiéik helyett. A számolási eredmények azt mutatják (1. és 2. ábra), hogy binárisan minimális és ideális MINLP reprezentáció (Binarily Minimal and Ideal MINLP Representation,

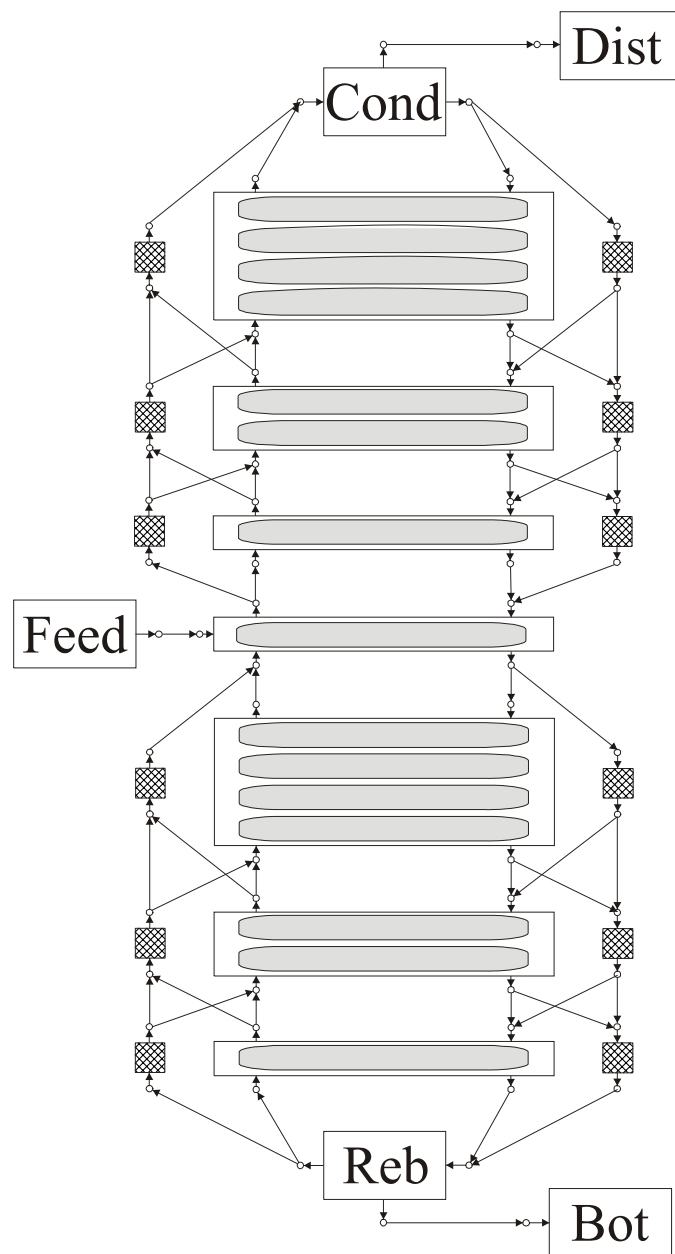
BMIMR) használata esetén kisebb a megoldáshoz szükséges idő, és nagyobb a legnagyobb megoldható feladat mérete ( $n_{max}$ -szal jelölve), mint IMR, CMR, vagy NSXMR használata esetén.



1. ábra Egy iterációra eső NLP számolási idő



2. ábra Egy iterációra eső MILP számolási idő



3. ábra A szuperstruktúra R-gráf reprezentációja

5. **Kifejlesztettem egy új, R-gráf alapú szuperstruktúrát és MINLP modellt desztillációs kolonnák szintézisére.** A szuperstruktúrát (3. ábra) úgy állítottam elő, hogy megkönnyítse a binárisan minimális és ideális MINLP reprezentáció (Binarily Minimal and Ideal MINLP Representation, BMIMR) előállítását. A szuperstruktúra  $k$ -dik feltételes egysége (a 3. ábrán téglalappal jelölve, alulról felfele számolva)  $2^{k-1}$  számú egyensúlyi tényért tartalmaz (sötétített oválissal jelölve). Az új MINLP modellben bináris változók jelölik az egyensúlyi tényérokat tartalmazó feltételes egységek létezését. A (sraffozott négyzetekkel jelölt) átvezető egységek létezését az egyensúlyi tényérokat tartalmazó egységek bináris változóival írjuk le. Az állandó egységek (betáplálás, Feed; termékek, Dist és Bot; visszaforráló, Reb; kondenzátor, Con; és a betáp tényér) egyenletei nem tartalmaznak bináris változókat. **A kifejlesztett MINLP modell binárisan minimális és egyben ideális, azaz minimális számú bináris változót használ a struktúrák megkülönböztetésére, és csak a megengedett gráfokat reprezentálja.** Az új MINLP modell jobb lokális optimumot talál rövidebb számítási idő alatt, mint a Yeomans és Grossmann (2000) GDP modelljén alapuló MINLP reprezentáció.



## **Az új tudományos eredmények jelentősége**

Disszertációm keretében megmutattam, hogy az esetalapú tervezés alkalmas szuperstruktúra és MINLP modell generálására desztillációs kolonna szintézise esetén. Ily módon igazoltam, hogy a korábbi tapasztalatok felhasználhatók egy új szintézis probléma esetén.

Kutatásom eredményeképpen a struktúrák, gráfok és MINLP reprezentációk közötti összefüggések világosabbak lettek. Javaslataim használatával az MINLP problémák megoldási ideje jelentősen csökkenthető, és növelhető a legnagyobb megoldható feladat mérete.

A fenti javaslatokat figyelembe vevő új szuperstruktúra és MINLP modell használatával a desztillációs kolonna szintézisproblémák jelentősen gyorsabban oldhatók meg.

## **Irodalom**

Brooke, A.; Kendrick, D.; és Maereus, A. (1992) GAMS, A User's Guide, Release 2.25. Scientific Press, Palo Alto.

Grossmann, I. E. (1996) Mixed-integer optimization techniques for algorithmic process synthesis. *Advances in Chemical Engineering*, 23, 171-246.

Viswanathan, J. és Grossmann, I.E. (1990) A combined penalty-function and outer-approximation method for MINLP optimization. *Computers & Chemical Engineering*, 14(7), 769-782.

Yeomans, H. és Grossmann, I. E. (2000a) Disjunctive programming models for the optimal design of distillation columns and separation sequences. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 39(6), 1637-1648.

## Publikációk

### ***Az értekezés témakörében megjelent publikációk***

#### **Nemzetközi folyóiratokban megjelent cikkek**

**Farkas Tivadar**, Yuri Avramenko, Andzej Kraslawski, Lelkes Zoltán és Lars Nyström (2005) Selection of proper MINLP model of distillation column synthesis by case-based reasoning. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, elfogadva.

**Farkas Tivadar**, Rév Endre és Lelkes Zoltán (2005) Process flowsheet superstructures: Structural multiplicity and redundancy: Part I: Basic GDP and MINLP representations. *Computers & Chemical Engineering*, 29(10), 2180-2197.

**Farkas Tivadar**, Rév Endre és Lelkes Zoltán (2005) Process flowsheet superstructures: Structural multiplicity and redundancy: Part II: Ideal and binarily minimal MINLP representations. *Computers & Chemical Engineering*, 29(10), 2198-2214.

**Farkas Tivadar**, Czuczai Barbara, Rév Endre, Fonyó Zsolt és Lelkes Zoltán (2005) R-graph-based superstructure and MINLP model for distillation column synthesis. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, beküldve.

Rév Endre, **Farkas Tivadar** és Lelkes Zoltán (2005) Process flowsheet superstructures: Structural multiplicity and redundancy, Part III: Structures and R-graphs. Definitions and theorems, *Computers & Chemical Engineering*, beküldve.

#### **Nemzetközi konferenciákon tartott előadások**

Rév Endre, Lelkes Zoltán és **Farkas Tivadar** (2002) Structural multiplicity and redundancy in chemical process synthesis with MINLP. *Proceeding of SIMO 2002. Système d'Information Modélisation, Optimisation Commande en Génie des Procédés*, 24-25 October, 2002, Toulouse, France

**Farkas Tivadar**, Yuri Avramenko, Andrzej Kraslawski, Lelkes Zoltán és Lars Nyström (2003) Selection of MINLP model of distillation column synthesis case-based reasoning. *Computer-Aided Chemical Engineering, 14. European Symposium on Computer Aided Process Engineering – 13. ESCAPE-13*, 1-4 June, 2003, Lappeenranta, Finland. *Elsevier*. 113-118.

**Farkas Tivadar**, Rév Endre és Lelkes Zoltán (2004) Structural multiplicity and redundancy in chemical process synthesis with MINLP. *Computer-Aided Chemical Engineering, 15. European Symposium on Computer Aided Process Engineering – 14. ESCAPE-14*, 16-19 May, 2004, Lisbon, Portugal. *Elsevier*. 403-408.

Czuczai Barbara, **Farkas Tivadar**, Fonyó Zsolt és Lelkes Zoltán (2005) R-graph-based distillation column superstructure and MINLP model. *Computer-Aided Chemical Engineering, 16. European Symposium on Computer Aided Process Engineering – 15. ESCAPE-14*, 29 May – 01 June, 2005, Barcelona, Spain. *Elsevier*. 889-894.

#### **Hazai konferenciákon tartott előadások**

Lelkes Zoltán, Rév Endre és **Farkas Tivadar** (2001) Szuperstruktúrák optimális MINLP reprezentációi. *Műszaki Kémiai Napok '01. 24-26 April 2001, Veszprém, KE Műszaki Kémiai Kutató Intézet*, ISBN 963 00 6467 7, 289. (in Hungarian)

**Farkas Tivadar**, Yuri Avramenko, Andrzej Kraslawski, Lelkes Zoltán és Lars Nyström (2003) Case-based reasoning aided MINLP optimization of distillation column and sequences. *Műszaki Kémiai Napok '03. 8-10 April 2003, Veszprém, KE Műszaki Kémiai Kutató Intézet*, ISBN 963 7172 99 8, 214-218.

Czuczai Barbara, **Farkas Tivadar**, Fonyó Zsolt és Lelkes Zoltán (2005) Desztillációs kolonna R-gráf alapú szuperstruktúrája és MINLP modellje, *Műszaki Kémiai Napok '05, 26-28 April 2005, Veszprém, KE Műszaki Kémiai Kutató Intézet*, ISBN 963 9495 71 9, 212-215. (in Hungarian)

## **A doktori tanulmányokhoz kapcsolódó egyéb publikációk**

### **Nemzetközi folyóiratokban megjelent cikkek**

Szitkai Zsolt, **Farkas Tivadar**, Lelkes Zoltán, Rév Endre, Fonyó Zsolt és Zdravko Kravanja (2005) A fairly linear MINLP model for the synthesis of mass exchange networks, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, accepted for publication.

### **Nemzetközi konferenciákon tartott előadások**

Lelkes Zoltán, Szitkai Zsolt, **Farkas Tivadar**, Rév Endre és Fonyó Zsolt (2003) Short-cut design of batch extractive distillation using MINLP. *Computer-Aided Chemical Engineering, 14. European Symposium on Computer Aided Process Engineering – 13. ESCAPE-13*, 1-4 June, 2003, Lappeenranta, Finland. *Elsevier*. 203-208.

Szitkai Zsolt, **Farkas Tivadar**, Zdravko Kravanja, Lelkes Zoltán, Rév Endre és Fonyó Zsolt (2003) A new MINLP model for mass exchange network synthesis. *Computer-Aided Chemical Engineering, 14. European Symposium on Computer Aided Process Engineering – 13. ESCAPE-13*, 1-4 June, 2003, Lappeenranta, Finland. *Elsevier*. 323-328.

Abdulfattah M. Emhamed, Lelkes Zoltán, Rév Endre, **Farkas Tivadar**, Fonyó Zsolt és Duncan M. Fraser (2005) New hybrid method for mass exchange network optimisation. *Computer-Aided Chemical Engineering, 16. European Symposium on Computer Aided Process Engineering – 15. ESCAPE-14*, 29 May – 01 June, 2005, Barcelona, Spain. *Elsevier*. 877-882.

Lelkes Zoltán, Rév Endre, **Farkas Tivadar**, Fonyó Zsolt, Kovács Tibor és Ian Jones (2005) Multicommodity transportation and supply problem with stepwise constant cost function. *Computer-Aided Chemical Engineering, 16. European Symposium on Computer Aided Process Engineering – 15. ESCAPE-14*, 29 May – 01 June, 2005, Barcelona, Spain. *Elsevier*. 1069-1074.

### Hazai konferenciákon tartott előadások

Lelkes Zoltán, **Farkas Tivadar** és Rév Endre (2002) Optimization of Batch Extractive Distillation using MINLP. *Műszaki Kémiai Napok '02. 16-18 April 2002, Veszprém, KE Műszaki Kémiai Kutató Intézet*, ISBN 963 7172 95 5, 112-117.

Szitzkai Zsolt, **Farkas Tivadar**, Zdravko Kravanja, Lelkes Zoltán, Rév Endre és Fonyó Zsolt (2004) A new MINLP model for mass exchange network synthesis, *Műszaki Kémiai Napok '04, 20-22 April 2004, Veszprém, KE Műszaki Kémiai Kutató Intézet*, ISBN 963 9495 37 9, 310-313. (in Hungarian)

Lelkes Zoltán, Rév Endre, **Farkas Tivadar**, Fonyó Zsolt, Kovács Tibor és Ian Jones (2005) Többtermékes szállítási és elosztási probléma optimalizálása, *Műszaki Kémiai Napok '05, 26-28 April 2005, Veszprém, KE Műszaki Kémiai Kutató Intézet*, ISBN 963 9495 71 9, 208-211.

Abdulfattah M. Emhamed, Lelkes Zoltán, Rév Endre, **Farkas Tivadar**, Fonyó Zsolt és Duncan M. Fraser (2005) New hybrid method for mass exchange network optimisation, *Műszaki Kémiai Napok '05, 26-28 April 2005, Veszprém, KE Műszaki Kémiai Kutató Intézet*, ISBN 963 9495 71 9, 217.