

## 화학 공정 설계 및 분석을 위한 설명 가능한 인공지능 대안 모델

고유나 · 나종걸<sup>†</sup>

이화여자대학교 화공신소재공학과  
03760 서울특별시 서대문구 이화여대길 52  
(2023년 6월 12일 접수, 2023년 7월 31일 수정본 접수, 2023년 8월 3일 채택)

### Explainable Artificial Intelligence (XAI) Surrogate Models for Chemical Process Design and Analysis

Yuna Ko and Jonggeol Na<sup>†</sup>

Department of Chemical Engineering and Materials Science, Ewha Womans University, Seoul 03760, Korea  
(Received 12 June 2023; Received in revised form 31 July 2023; Accepted 3 August 2023)

#### 요 약

대안 모델링에 대한 관심이 커진 이후 데이터 기반의 기계학습을 이용하여 비선형 화학 공정을 모사하고자 하는 연구가 지속되고 있다. 그러나 기계 학습 모델의 black box 성질로 인하여 모델의 해석 가능성에 한계는 산업 적용에 걸림돌이 되고 있다. 따라서, 모델의 정확도가 보장된 상태에서 해석력을 부여하는 개념인 설명 가능한 인공지능(explainable artificial intelligence, XAI)을 이용하여 화학 공정 분석을 시도하고자 한다. 기존의 화학 공정 민감도 분석이 변수의 민감도 지수를 계산하고 순위를 매기는 데에 그쳤다면, XAI를 이용하여 전역적, 국소적 민감도 분석뿐만 아니라 변수들 간의 상호작용에 대하여 분석하여 데이터로부터 물리적 통찰을 얻어내는 방법론을 제안한다. 사례 연구의 대상공정인 암모니아 합성 공정에 대하여 첫번째 반응기로 향하는 흐름에 대한 예열기(preheater)의 온도, 세 반응기로 향하는 cold-shot의 분배 비율을 공정 변수로 설정하였다. Matlab과 Aspen plus를 연동하여 공정 변수를 바꿔가면서 암모니아의 생산량과 세 반응기의 최고 온도에 대한 데이터를 얻었으며, tree 기반의 모델들을 훈련시켰다. 그리고 성능이 좋은 모델에 대하여 XAI 기법 중 하나인 SHAP 기법을 이용하여 민감도 분석을 수행하였다. 전역적 민감도 분석 결과, 예열기의 온도가 가장 큰 영향을 미쳤으며 국소적 민감도 분석 결과에서 생산성 향상 및 과열 방지를 위한 공정 변수들의 범위를 규정할 수 있었다. 이처럼 화학 공정의 대안 모델을 구축하고 설명 가능한 인공지능을 이용해 민감도 분석을 진행하는 방법론을 통해 공정 최적화에 대한 정량적, 정성적 피드백을 제안하는 데 도움을 줄 것이다.

**Abstract** – Since the growing interest in surrogate modeling, there has been continuous research aimed at simulating nonlinear chemical processes using data-driven machine learning. However, the opaque nature of machine learning models, which limits their interpretability, poses a challenge for their practical application in industry. Therefore, this study aims to analyze chemical processes using Explainable Artificial Intelligence (XAI), a concept that improves interpretability while ensuring model accuracy. While conventional sensitivity analysis of chemical processes has been limited to calculating and ranking the sensitivity indices of variables, we propose a methodology that utilizes XAI to not only perform global and local sensitivity analysis, but also examine the interactions among variables to gain physical insights from the data. For the ammonia synthesis process, which is the target process of the case study, we set the temperature of the preheater leading to the first reactor and the split ratio of the cold shot to the three reactors as process variables. By integrating Matlab and Aspen Plus, we obtained data on ammonia production and the maximum temperatures of the three reactors while systematically varying the process variables. We then trained tree-based models and performed sensitivity analysis using the SHAP technique, one of the XAI methods, on the most accurate model. The global sensitivity analysis showed that the preheater temperature had the greatest effect, and the local sensitivity analysis provided insights for defining the ranges of process variables to improve productivity and prevent overheating. By constructing alternative models for

<sup>†</sup> To whom correspondence should be addressed.

E-mail: jgna@ewha.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.

chemical processes and using XAI for sensitivity analysis, this work contributes to providing both quantitative and qualitative feedback for process optimization.

Key words: XAI, Process analysis, Surrogate modeling, Process systems engineering

## 1. 서 론

대안 모델링(surrogate modeling)은 물리적 원리를 기반으로 한 제1법칙 모델(first-principle model)을 대체하여 통계기법 또는 기계학습을 이용하는 방법이다[1]. 대안 모델은 낮은 계산 비용으로 빠르고 정확한 예측을 제공하며, 공정모사기(process simulator)의 수렴 속도와 안정성을 향상시킨다는 장점으로 인해 화학공학 분야에서 다양하게 이용되고 있다[2]. 특히 데이터 기반의 기계학습 대안 모델은 입력 출력 데이터셋만으로 훈련되어 데이터의 복잡한 패턴을 학습할 수 있기 때문에 공정 시스템 공학 분야에서 유연하게 이용되고 있다[3-5].

그러나 기계학습 모델은 내부를 알 수 없는 블랙박스로써, 해석력(interpretability)의 문제를 간과한다[6]. 화학 공정 공학은 물리적 화학적 지식에 입각한 결정으로 공정의 효율성 및 안전성을 좌우하는 학문이기 때문에, 기계학습 기반의 대안모델을 실제 산업에서 적용하기 위해서는 모델의 해석력을 부여하는 것이 중요하다[7]. 최근 공정 데이터의 비선형성이 증가함에 따라 비선형적 관계를 정확하게 포착하기 위해서 더 심층적인(deeper) 대안 모델에 대한 수요가 증가하고 있다[8]. 그러나 모델의 성능이 증가할수록 해석력이 감소하는 상충 관계(trade-off relationship)는 기계학습 기반의 대안모델이 실제 산업에 적용되는 데 걸림돌이 되는 실정이다[6].

이러한 문제를 해결하기 위해선 모델 내부 구조와 작동 원리를 이해하고, 모델의 예측 결과에 대한 근거와 해석을 제공할 수 있는 방법이 필요하다. 이를 위한 연구 분야로 설명 가능한 인공지능(explainable artificial intelligence, XAI)의 개념이 제시되었다[6]. XAI의 개념은 모델 자체로 설명이 가능한 투명한 모델(transparent model)과 쉽게 해석할 수 없는 모델을 설명하는 사후 설명 가능성(post-hoc explainability)으로 나뉜다. 특히 post-hoc explainability에서의 모델 불가지론적(model-agnostic) 기술은 모델의 종류와 상관없이 어떠한 모델에도 적용되어 예측 과정에서의 일부 정보를 추출할 수 있다. Model-agnostic 기술에 해당하는 대표적인 방법론은 특성 관련성 설명 기법 중 하나인 SHAP(SHapley Additive exPlanations) [9]으로 모델의 예측에서 각 특성이 갖는 영향, 관련성, 그리고 중요도를 순위화하거나 측정 가능하게 한다는 점에서 화학 공정 공학 분야에서 적용 가치가 있다. 이상 감지를 판단하는 지표( $T^2$  또는 SPE값)에 영향을 가장 많이 미치는 센서의 정보를 표현하기 위하여, SHAP을 계산하여 해석력을 기존의 방법론(reconstruction error-based interpretation)보다 획기적으로 상승시켰다[10]. 또한 산업

공정의 이상 감지 및 진단 과정에 SHAP을 적용하여 실시간으로 공정변수들에 대한 중요도를 파악하고, 계층적 군집화(hierarchical clustering)를 이용하여 이상 지도를 제공할 수 있다[11]. 그러나 공정 설계 및 해석에 SHAP이 적용된 연구는 부족하다. 기존의 연구들은 대안 모델을 기반으로 기술·경제성 분석(techno-economic analysis, TEA) / 환경전과정평가(life-cycle assessment, LCA)를 수행하는 데에 멈춰있으며[4], 대안 모델을 활용하여 공정 변수와 평가지표에 대한 관계를 직관적으로 이해하는 연구는 전무하다.

본 연구에서는 암모니아 생산 공정을 대안공정으로 설정하여 tree 기반의 기계학습 모델을 구축하고 가장 성능이 좋은 모델에 대한 SHAP value를 계산하여 공정변수를 분석하는 방법론을 제안하였다. 공정의 복잡성과 비선형성을 해결하고자 대안 모델을 구축하는 것에 그쳤던 기존의 연구와 차별을 두어, 기계학습 대안 모델의 활용 범위를 확장시켜 설명 가능한 인공지능을 적용하여 모델을 해석하고자 한다. 이러한 방법론은 화학공학 산업에서 다양한 공정에 대한 기술경제성 및 전과정 평가에 대한 수요가 증가하고 있는 만큼 다양하게 확장되어 활용될 수 있을 것이다.

## 2. 설명 가능한 인공지능을 활용한기계 학습 기반의 대안모델 해석 방법론

해당 섹션에서는 본 연구가 제안하는 방법론이 갖는 독창성을 기존 연구들을 기반으로 설명한 후, 해당 방법론에서 사용되는 XAI의 기법 중 하나인 SHAP에 대하여 구체적으로 설명하고, 마지막으로 방법론에 대한 사례 연구로써 사용된 암모니아 합성 공정에 대하여 설명하고자 한다.

### 2-1. XAI를 활용한 대안 모델 해석의 시도

Table 1은 기존 연구에서 사용된 기계학습 기반 surrogate model을 활용해서 공정의 거동을 분석한 최신의 연구들을 분석하고, 본 연구에서 제안하는 방법론과 비교한 결과이다. 각 연구에서 사용된 대안 모델의 종류, 대상 공정, 모델의 해석 유무에 대하여 분류하고, 모델해석을 수행한 논문에 한하여 model agnostic 기법의 사용 유무와 입력 변수 간의 관계 분석 여부에 대하여 분류하였다. 가우시안 프로세스 회귀(Gaussian process regression) 모델을 사용하여 최적의 경제적 매개변수 파라미터를 제안한 연구 결과가 있지만, 모델에 대한 해석의 시도는 없었다[12]. 반면 아민 기반의 이산화탄소 포집 공정 연구에서 심층신경망(deep neural network, DNN)을 활용하여 특정 증기 소비율 및 총 장비 구매 비용을 예측했다[4]. 해당

Table 1. Lists of research papers of using machine learning based surrogate model

Paper	Surrogate model	Target process	Interpretation of model	Model agnostic method	Analysis for relations between process variables
Jung, et al. (2023)	Gaussian process regression	Non-oxidative and CO <sub>2</sub> co-feeding BTX production process from shale gas	×	-	-
Chung, et al. (2020)	DNN	Amine-based CO <sub>2</sub> capture processes	○	×	-
Chakkingal, et al. (2022)	ANN	Fischer-Tropsch synthesis process	○	○	×
Our methodology	XGBoost, RF	Ammonia synthesis process	○	○	○

DNN모델의 출력값은 일차다항식의 형태로 되어있으며, 각 항에 곱해진 계수에 대한 분석을 진행함으로써 모델을 해석하여 정보를 얻었다. 그러나 이러한 방법은 해당 공정에 특화된 방법으로, 다른 모델에는 적용 불가능하다. 본 연구에서 제안하는 방법론에 사용된 model-agnostic 기법인 SHAP을 활용한 연구에서는, 피셔-트로프시(Fischer-Tropsch) 합성 공정의 네가지 변수인 온도, 압력, 공간속도, 합성가스(syngas) 비율에 따른 올레핀(olefin) 선택도 데이터로 인공신경망(artificial neural network, ANN) 모델을 훈련시켜 전역적인 민감도 분석이 수행되었지만, 공정 변수 간의 관계를 분석하는 시도는 없었다[13]. 따라서 해당 연구는 기계 학습의 기반의 대안 모델로 설명 가능한 인공지능의 model-agnostic 기법 중 하나인 SHAP을 이용하여 공정 변수들의 전역적 민감도 분석 및 국소적 분석을 동시에 수행하여 공정의 거동 특성을 분석했다는 점에서 의의가 있다.

## 2-2. SHAP을 이용한 공정 분석

SHAP은 특성 각각에 부분적인 예측에 대한 중요도 값을 할당하는 방법으로, 모델의 조건부 기대 함수에 대한 샐플리 값(Shapely value)이다. Shapely value는 협력 게임 이론에서 파생된 개념으로, 회귀 분석에서 독립변수들 사이에 상관관계가 나타나는 다중 공선성(multicollinearity)이 있는 모델에 대한 특성 중요도의 값이며, 여기서 중요도는 특정 특성이 모델 예측에 미치는 영향을 나타낸다.

$$\phi_i = \sum_{S \subseteq F \setminus \{i\}} \frac{|S|!(|F|-|S|-1)!}{|F|!} [f_{(S \cup \{i\})}(x_{S \cup \{i\}}) - f_S(x_S)] \quad (1)$$

Eq. 1은 특성  $i$ 에 대한 Shapely value  $\phi_i$ 를 나타낸다[9]. 모든 특성의 집합인  $F$ 와  $F$ 의 부분집합인  $S$ 에 대하여, 모델  $f_{(S \cup \{i\})}$ 는 특성  $i$ 가 포함된 상태로 훈련되는 반면, 모델  $f_S$ 는 특성  $i$ 가 제외된 상태로

훈련된다. 두 모델의 예측에 대한 차이( $f_{(S \cup \{i\})}(x_{S \cup \{i\}}) - f_S(x_S)$ )는 가능한 모든 부분집합  $S \subseteq F \setminus \{i\}$ 에 대하여 가중합으로 계산된다. SHAP value는 단순화된 입력 매핑 함수  $h_x$ 와 입력의 부분집합  $S$ 에 포함되지 않은 특성들에 대한 예측값  $z_S$ 에 대하여  $h_x(z') = z_S$ 를 만족한다. 대부분의 모델은 예측값들의 임의적인 패턴을 인지할 수 없기 때문에  $f(z_S)$ 를 조건부 기대값( $E[f(z)|z_S]$ )으로 근사하여 계산한다. 따라서 모델  $f$ 와 입력값  $x$ 가 주어졌을 때의 특성  $i$ 에 대한 SHAP value는 단순화된 입력 특성의 수  $M$ ,  $x$ 의 매핑 형태인  $z'$ 에 대하여 특성  $i$ 가 포함되었을 때와 존재할 때의 모델의 예측차이며, Eq. 2와 같다[14].

$$\phi_i(f, x) = \sum_{z' \subseteq x'} \frac{|z'|!(|M|-|z'|-1)!}{|M|!} [f_x(z') - f_x(z' \setminus i)] \quad (2)$$

또한 게임이론에 등장하는 샐플리 상호작용 지수(shapley interaction index)의 개념을 기반으로, 변수 간의 국소적 상호 작용 효과를 정량화한 값을 SHAP interaction value라고 칭하며, Eq. 3과 같이 표현된다[14].

$$\phi_{i,j} = \sum_{S \subseteq M \setminus \{i,j\}} \frac{|S|!(|M|-|S|-2)!}{2|M-1|!} \nabla_{ij}(f, x, S) \quad (3)$$

모든  $M$ 개의 입력 특성 집합에서, 특성  $i$ 와 특성  $j$  사이의 SHAP interaction value는 동일하게 분할되므로 Eq. 4과 같이 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} \nabla_{ij}(f, x, S) &= f_x(S \cup \{i,j\}) - f_x(S \cup \{i\}) - f_x(S \cup \{j\}) + f_x(S) \\ &= f_x(S \cup \{i,j\}) - f_x(S \cup \{i\}) - f_x(S \cup \{j\}) - f_x(S) \end{aligned} \quad (4)$$

Fig. 1은 2-3절에서 언급되는 사례연구의 전체적인 과정을 나타내며, model interpretation부분이 본 연구가 제안하는 새로운 방법

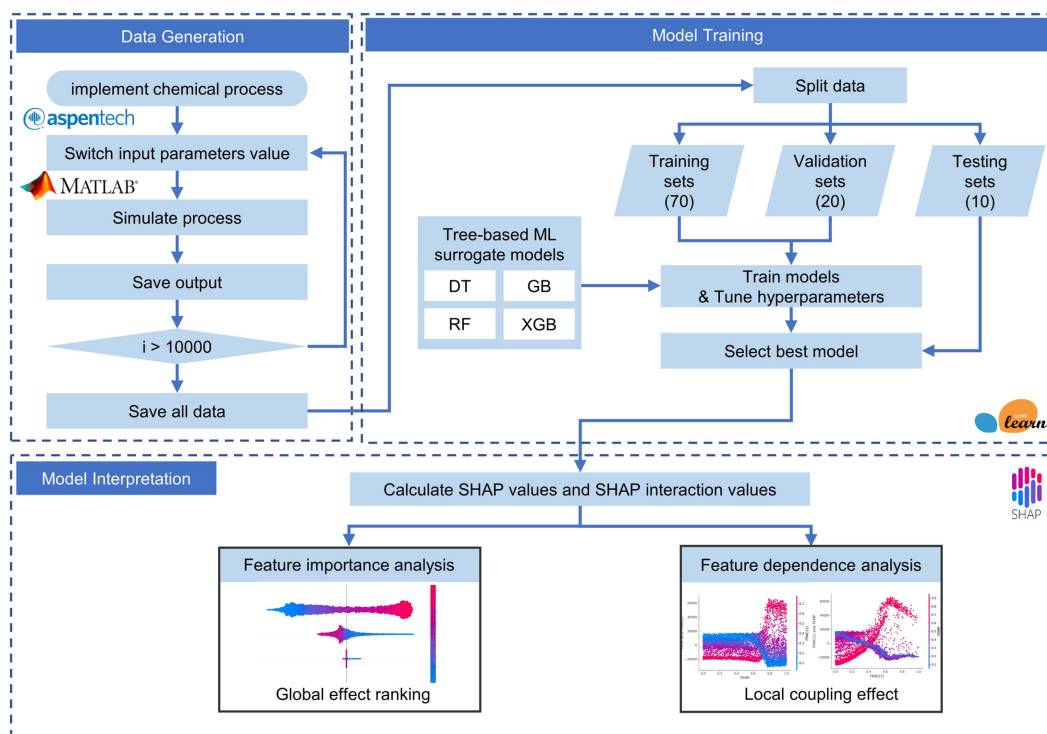


Fig. 1. Flow chart describing the chemical process model analysis using SHAP.

론에 대한 부분이다. SHAP으로 각 특성이 모델의 예측에 긍정적인(증가하는) 또는 부정적인(감소하는) 영향을 전역적, 국소적 관점에서 분석할 수 있다. SHAP value를 가지화한 그래프를 특성 중요도 그래프(feature importance plot)이라고 하며, 이는 각 공정변수가 출력에 미치는 영향과 영향력의 순위 보여줌으로써 직관적인 파악을 돕는다. SHAP interaction value 역시 가지화하여 특성 의존도 그래프(feature dependence plot)로 나타낼 수 있으며, 서로 다른 두 공정변수의 상호작용 효과(coupling effect)를 직관적으로 파악할 수 있다.

SHAP value 및 SHAP interaction value를 계산함으로써 공정 설계 및 분석에 활용할 경우, 국소적 해석을 정량적으로 제공하여 전역적 해석의 한계를 보완한다. 민감도 분석은 모델의 구조를 기반으로 모델의 행동에 대한 필수적인 통찰을 얻을 수 있기 때문에 공정 설계 및 분석 과정에서 중요하게 여겨진다. 기존의 민감도 분석 시 불확실성 기반의 계산법을 이용하며 전역적 민감도 분석(global sensitivity analysis, GSA)와 국소적 민감도 분석(local sensitivity analysis, LSA)로 나눌 수 있다[15]. GSA는 공정 시뮬레이션에서 확률 분포를 입력에 할당하여 모든 상황에서 확률적으로 분석하는 반면, LSA는 모델의 입력 공간에서 관심 있는 지점에 대해 분석할 때 사용된다. 공정 설계 및 분석 과정에서 두 분석 기법이 목적에 맞게 사용될 수 있으나, 한계가 존재한다. 전역적으로는 출력에 영향을 적게 미치는 입력 변수가 특정 지점에서 가장 중요한 입력변수로 작용하는 경우가 한계 사례이다[16]. SHAP을 적용하여 각각의 입력변수가 출력에 미치는 전역적인 영향을 분석하고 동시에 특정 지점에서의 변수 간의 상호작용을 분석함으로써, 공정 분석 시 요구되는 변수의 영향을 정량적 및 정성적으로 나타낼 수 있다.

### 2-3. 사례 연구의 대상 공정 개요 및 데이터 생성

대상 공정은 3단 고정층 촉매 반응기를 이용한 암모니아 합성 공정이다(Fig. 2)[17]. 암모니아 합성 반응은 가역 반응에 의해 제어되며 반응 속도는 Eq. 5과 같이 반응 중의 대기 중 분압으로 표현한 Tempkin 방정식으로 표현된다[18].

$$R_a = 10^4 e^{-91000/RT} P_{N_2}^{0.5} P_{H_2}^{1.5} - 1.3 \times 10^{10} e^{-140000/RT} P_{NH_3} \quad (5)$$

해당 반응은 발열 가역 반응(exothermic reversible reaction)이므로, 단열 환경에서 온도가 증가함에 따라 역반응 속도는 정반응 속도보다 더 빠르게 증가한다 [19]. 따라서 최대 반응 속도에 도달하기 위한 적절한 온도 제어가 필요하기 때문에, 일련의 반응기가 존재하는 해당 공정의 경우 콜드샷(cold-shot)이 흐르도록 설계하였다. Cold-shot은 반응기의 온도를 제어하여 지나친 촉매 비활성화 및 생산 효율성 저하를 예방할 수 있다.

대상 공정의 반응기로의 공급물은 2개의 공급원인 보충 공급 흐름(makeup feed stream)과 재사용 흐름(recycle stream)으로 구성된

**Table 2.** Lists of input parameters for ammonia synthesis process

Variables	Description	Range
$r_1$	Ratio of the first bed to inlet stream	$0.05 \leq r_1 \leq 0.95$
$r_2$	Cold-shot ratio of the second bed to second bed reactant	$0.05 \leq r_2 \leq 0.95$
$T_{in}$	Preheating temperature of inlet stream (°C)	$150 \leq T_{in} \leq 300$

다. Makeup feed stream은 3:1의 화학양론적 물비로 수소와 질소를 포함하며, 150 atm에서 20,000 kmol/hr로 흐른다. 암모니아 합성 가스는 나프타와 공기에서 생성되기 때문에 나프타에서 나오는 메탄과 공기에서 나오는 아르곤 농도가 적다. 이 두 종은 모두 reagent의 분압을 감소시켜 반응 속도에 영향을 준다. 따라서 recycle stream은 암모니아 생성물을 제거한 뒤 회수된 미반응 합성 가스로 구성된 25 °C 및 150 atm에서 40,000 kmol/hr의 재순환 흐름이다. 3개의 반응기는 각각 1.5 m, 2 m 및 2.5 m의 길이로, 모두 축매로 채워진 3개의 원통형, 2.0 m 직경의 단열 고정층 반응기이다. 반응기의 공급물은 splitter 통과 후 3개의 흐름으로 나뉜다. 한 흐름은 예열된 후 첫 번째 고정층 반응기로 들어가는 주 공급물이며, 나머지 두 흐름은 각각 밸브로 조절되어 첫 번째 및 두 번째의 effluent에서의 냉각을 돕는다. 해당 공정은 Aspen Plus V12를 이용하여 모사하였다.

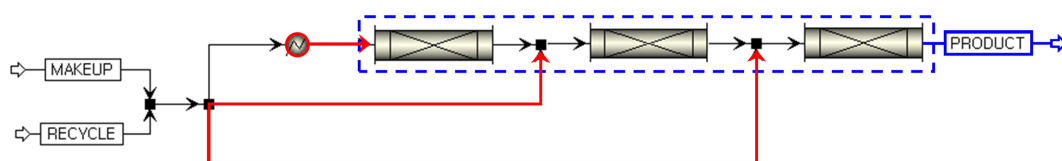
본 연구에서는 암모니아로의 변환을 최대화하기 위하여 by-pass 비율의 할당( $r_1$ ,  $r_2$ ) 및 첫번째 반응기로 향하는 흐름에 대한 예열기의 온도( $T_{in}$ )를 공정변수로 설정하였다(Table 2).  $r_1$ 과  $r_2$ 의 합은 1 이하여야 하며 해당 제한식은 Eq. 6에 나타내었다. 공정 모사 프로그램인 Aspen plus 12와 수치 해석 및 프로그래밍 소프트웨어인 MATLAB R2022a를 연동하여 범위 내 무작위 샘플링된 세 공정변수에 대한 시뮬레이션을 반복적으로 수행하여 결과를 저장하였다. 10,000번의 공정 시뮬레이션을 진행하여 세 반응기의 최고 온도( $T_{out}$ [°C])와 암모니아 생산량( $m_{NH_3}$ [kmol/hr]) 데이터를 얻었다. 최종적으로 추출한 데이터세트에 대한 SHAP value 및 SHAP interaction value를 계산하여 과도한 발열 반응으로 인한 역반응 촉진 및 암모니아 생산량에 대한 변수 중요도 분석을 수행하였다.

$$r_1 + r_2 \leq 1 \quad (6)$$

생성된 데이터의 입력값들은 가장 작은 값은 0, 가장 큰 값은 1로 변환하여 스케일링한 후, 계층적 샘플링으로 훈련 세트(7), 검증 세트(2), 테스트 세트(1)의 비율로 나누어 모델의 과대적합(overfitting)을 방지하였다.

### 2-4. 대안 모델의 학습 파이프라인

Tree 기반의 기계 학습 모델 4가지를 이용하여 label을 각각  $m_{NH_3}$ ,  $T_{out}$  인 두 개의 데이터세트를 만들어 총 8개의 모델을 훈련하였다. 모델의 종류는 decision tree regressor (DT), random forest



**Fig. 2.** Process flow diagram of three-bed cold-shot ammonia synthesis process. Red lines mean input variables and blue lines mean output variables.

regressor (RF), gradient boosting regressor (GB), XGBoost regressor (XGB)이다 [20-23]. 평균 제곱근 오차(Root Mean Square Error, RMSE)로 모델의 성능을 비교하는 방식으로 검증 세트를 이용하여 최적의 hyperparameter를 찾았다. 최종적으로 테스트 세트를 이용하여 가장 성능이 좋은 모델을 선정하였다. 해당 파이프라인은  $T_{out}$  값을 예측하는 모델(이하  $T_{out}$  모델)과  $m_{NH_3}$  값을 예측하는 모델(이하  $m_{NH_3}$  모델)에 대하여 진행되었다.

### 3. 결과 및 분석

#### 3-1. 기계 학습 모델 훈련 결과

Table 3는 머신 러닝 모델 훈련 결과 실제값과 예측값의 차이에 대한 RMSE를 나타낸다. 모델의 알고리즘과 하이퍼파라미터 SHAP 기반 공정 해석은 모델의 예측 결과에 대해 각 입력 변수가 얼마나 영향을 미치는지를 측정하는 방법이기 때문에 오차가 작은 모델일수록 입력 변수와 출력 변수 사이의 관계를 더 정확하게 반영하므로 SHAP value도 더 신뢰할 수 있다. 따라서 오차가 작은 모델을 선택하면 공정 해석의 품질이 향상된다.  $m_{NH_3}$  모델의 성능은 XGB가 가장 좋았으며,  $T_{out}$  모델은 RF의 예측오차가 가장 적었다. 두 모델에 대한 parity plot은 Fig. 3에 나타내었다.

#### 3-2. 전역적 민감도 분석

SHAP value 계산 결과  $m_{NH_3}$  모델에 대하여 전역적으로  $T_{in}$ ,  $r_1$ ,  $r_2$ 의 순서로 영향을 미친다(Fig. 4(a)).  $m_{NH_3}$ 을 극대화하기 위해서 반응물의 주입온도를 상승시키는 것이 좋으며, 이는 cold-shot의 열적 분배를 이용하여  $m_{NH_3}$ 을 최대화하는 영향보다 크다. 이는 촉매의

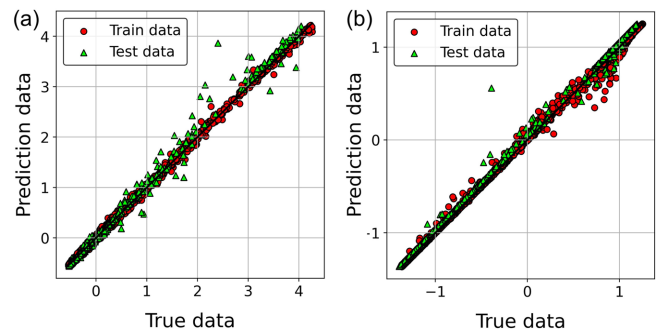


Fig. 3. Parity plots of the best performance for the (a) ammonia production rate using XGboost regressor and the (b) maximum temperature for three reactors using random forest regressor.

비활성화(deactivation)에 따른 생산량 감소가 온도의 영향을 가장 지배적으로 받기 때문에, 비교적 낮은 온도에서는 암모니아 합성 반응이 진행되기 위한 최소한의 활성화 에너지가 공급되지 못하기 때문이다. Fig. 4(c)의 결과에 따라 또한  $r_1$ 과  $r_2$ 의 영향이 서로 반대로 작용함을 알 수 있다.  $m_{NH_3}$ 을 극대화하기 위해서는  $r_1$ 이 증가하는 영향과  $r_2$ 가 감소하는 영향을 주로 고려해야 한다. 이는 두번째 반응기로의 주입량이 많이 보장됨과 동시에, 상대적으로 적은 주입량이 세번째 반응기로 향할 경우, 첫번째 반응기에서 반응결과 생성된 열을 분배하여 cold-shot 효과를 효과적으로 누릴 수 있음을 나타낸다.

$T_{out}$  모델도 마찬가지로  $m_{NH_3}$  모델과 동일한 특성 중요도 순위를 보인다(Fig. 4(d)). 그러나  $m_{NH_3}$  모델과 달리  $r_1$ 과  $r_2$ 의 상대적인 영향이  $m_{NH_3}$  모델 보다 작는데(Fig. 4(e)), 반응 결과 발생하는 에너지가 cold-shot에 의한 온도 제어 효과보다 훨씬 크기 때문이다. Fig. 4(f) SHAP value 계산 결과에 대하여  $r_1$ 과  $r_2$ 의 상대적인 영향의 방향이 동일하며,  $T_{in}$ 과는 반대이다. 첫번째 반응기로 향하는 주입량이 많을수록 나머지 반응기에서 충분한 주입량을 얻지 못하여 고온의 환경 형성이 불가능하고, 첫번째 반응기에서 지배적으로 최대 온도에 도달하기 때문이다.

Table 3. Training results for tree-based machine learning models

	RMSE for $m_{NH_3}$ models		RMSE for $T_{out}$ models	
	Training	Testing	Training	Testing
DT	0.106	0.168	0.053	0.064
RF	0.074	0.112	0.053	0.061
GB	0.110	0.124	0.065	0.071
XGB	0.077	0.097	0.048	0.065

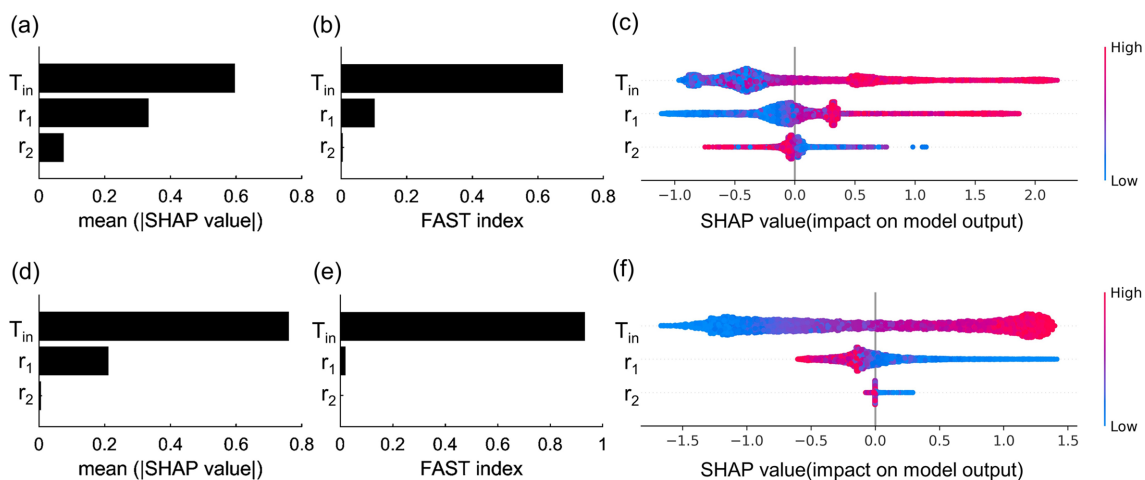


Fig. 4. Results for global sensitivity analysis. (a) bar chart of mean absolute SHAP values for ammonia production rate model. (b) FAST indices for ammonia production rate model. (c) feature importance plot for ammonia production rate model. (d) bar chart of mean absolute SHAP values for maximum temperature of three reactors model. (e) FAST indices for maximum temperature of three reactors model. (f) feature importance plot for maximum temperature of three reactors model.



특히 Fig. 4(c)와 Fig. 4(f)를 비교하면,  $r_1$ 의 경향이 서로 반대인데,  $r_1$ 이 증가함에 따라 암모니아의 생산량을 증대에 영향을 미치며, 동시에 반응기의 최대 온도 감소에 영향을 미친다고 해석할 수 있다. 전체적으로 가장 많은 영향을 미치는 변수가  $T_{in}$ 이지만, 만약 공정의 효율성과 안전성을 동시에 고려하기 위해서는  $r_1$ 의 영향을 간과할 수 없음을 시사한다.

추가적으로 해당 결과의 유효성을 검증하기 위해, 기존의 전역적 민감도 분석의 방법 중 하나인 Fourier Amplitude Sensitivity Test (FAST) [24] 기법을 이용하여 비교 및 분석하였다(Fig 4(b), (e)). 공정 시뮬레이션 샘플링수와 동일하게 10,000번의 샘플링으로 FAST index를 계산한 결과, SHAP 결과와 차이가 있었으나, 전반적으로 동일한 순위 경향을 보였다. SHAP은 FAST와 달리 다른 변수들과의 상호작용 효과를 반영하기 때문에 발생하는 차이로 여겨진다. SHAP은 FAST 기법과 비교 시, 공정의 각 변수뿐만 아니라, 변수들 간의 상관관계와 영향력을 시각화할 수 있다는 점에서 공정의 특성과 동작 원리를 깊이 이해할 수 있다.

### 3-3. 국소적 민감도 분석

일반적으로 LSA결과를 가시화하기 위해서 토네이도 다이어그램(tornado diagram)이나 비선형 스파이더 차트(nonlinear spider chart)가 사용된다[15]. 반면 SHAP을 이용하면 한 변수의 증가에 따라서 변화하는 특정 개별 변수의 영향의 추이를 분석할 수 있기 때문에 보다 확기적으로 local sensitivity를 가시화할 수 있다. 앞선 절에서 GSA로 변수 영향에 대한 전체적인 직관(intuition)을 얻었다면, 해당 절에서는 구체적인 정량적 수치를 통해 최적 설계 및 분석에 적

용하기 위한 결과를 추출하고자 SHAP interaction value를 계산하여 분석하였다.

$m_{NH_3}$  모델 분석 결과, Fig. 5(a)는  $T_{in}$ 이 높을 경우,  $r_1$ 이 0.46 이상일 때 SHAP value가 양수임을 나타낸다. 고온의 환경에서 촉매 비활성화를 최소화할 만큼의 첫번째 반응기로 향하는 반응물의 양이 보장된 상태에서, 두번째 반응기에서 상대적으로 열을 많이 발생시키도록 운전해야 생산량 증가에 기여할 수 있다. 다량의 발열량과 cold-shot 효과 사이의 적절한 조화로 세번째 반응기에서의 반응을 최대화할 수 있는 cold-shot 분배가 요구되기 때문이다. 이 때의 고온의 환경은 Fig. 5(b)의 결과에 따라  $T_{in}$ 이 260 이상일 때  $r_1$ 의 SHAP값이 양수로 전환되기 때문에 260도 이상의 환경이라고 구체적으로 해석할 수 있다. 그러나 고온의 환경에서  $r_2$ 가 최소 0.19 이상의 값을 가져야  $r_1$ 이 충분히 클 때 생산량 증가에 기여할 수 있다(Fig. 5(c)). 또한  $T_{out}$  모델 분석 결과,  $r_1$ 이 클 때  $212 < T_{in} < 264$ 의 범위에서  $T_{out}$  감소에 기여한다(Fig. 5(e)).  $m_{NH_3}$  모델에 대한 앞선 분석 결과에서 260도 이상의 주입온도가 암모니아 생산량 증가에 기여할 수 있었지만,  $T_{out}$  모델의 분석 결과에 따라 264도를 초과할 경우 세 반응기의 최대 온도가 증가하여 과열의 위험 또는 촉매 비활성화의 가능성에 대하여 고려해야 한다. 특히  $245 < T_{in} < 272$ 의 범위에서  $r_2$ 가 작을 때 최고 온도 감소에 기여한다(Fig. 5(f)). 해당 범위에서는 첫번째 및 두번째 반응기에서 암모니아의 생산이 지배적으로 이뤄지기 때문이다. 종합적으로 해석해보면,  $r_1$ 이 큰 경우,  $260 < T_{in} < 264$ 의 범위에서 암모니아의 생산량의 최대에 도달하면서 세 반응기의 최고온도가 과열되지 않을 것이다. 이때  $r_2$ 의 값이 충분히 작다면,  $r_2$ 도 세 반응기 최고온도 감소에 기여할 것이다.

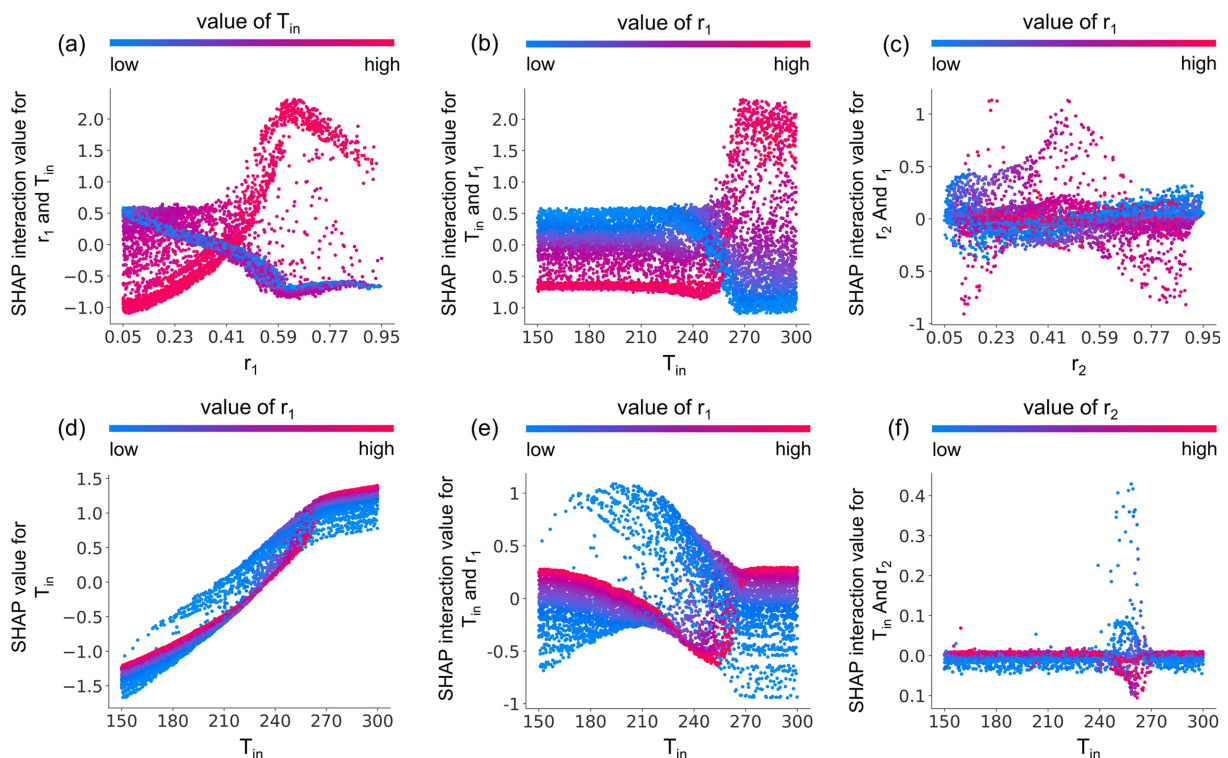


Fig. 5. Results for local sensitivity analysis. (a)  $m_{NH_3}$  model feature dependence plot for SHAP interaction values of  $r_1$  with  $T_{in}$ . (b)  $m_{NH_3}$  model feature dependence plot for SHAP interaction values of  $T_{in}$  with  $r_1$ . (c)  $m_{NH_3}$  model feature dependence plot for SHAP interaction values of  $r_2$  with  $r_1$ . (d)  $T_{out}$  model feature dependence plot for SHAP values of  $T_{in}$  with  $r_1$ . (e)  $T_{out}$  model SHAP interaction plot for SHAP interaction values of  $T_{in}$  with  $r_1$ . (f)  $T_{out}$  model SHAP interaction plot for SHAP interaction values of  $T_{in}$  with  $r_2$ .

## 4. 결 론

본 연구에서는 기계 학습 기반의 화학공정 모델을 해석하기 위하여 XAI를 이용한 새로운 방법론을 제안하고 사례 연구를 수행하였다. 암모니아 합성 공정을 대상 공정으로 설정하여 주반응물 예열기의 온도, cold-shot의 비율을 임의로 조작하고 공정 시뮬레이션 프로그램을 이용하여 데이터를 수집하였다. Tree 기반의 다양한 기계 학습 모델을 훈련시켜 암모니아 생산량과 세 반응기의 최고 온도를 예측하는 대안 모델을 구축하였다. 성능이 가장 좋은 모델에 대하여 XAI 기법 중 하나인 SHAP 기법으로 계산된 SHAP value 및 SHAP interaction value를 계산하여 전역적, 국소적 민감도 분석을 수행하였다. 기존의 공정 민감도 분석 기법들은 추가적인 계산 비용이 들고, 단순히 하나의 공정 변수를 변화시켜 국소적 민감도를 평가하거나, 전역적 민감도 지수를 구하여 공정 변수 간의 순위를 보는 수준에 그쳤다. 본 연구에서 제안한 방법론은 국소적, 전역적 민감도 분석의 동시 수행이 가능하며, 변수 간의 상호작용에 의한 국소적인 영향 분석이 가능하다는 점에서 학술적 기여가 있다.

본 연구에서 제안한 방법론은 XAI를 화학공학공학 분야의 다른 시스템에 활용될 수 있는 프레임워크를 제공한다는 점에서 확장 가능성이 있으며 두 항목 1)최적화 문제의 가이드(guide), 2) TEA / LCA 분석 측면으로 나누어 설명할 수 있다. 최적화 과정에서 XAI를 활용하면, 최적점이 왜 최적인지를 이해하고, 올바른 방향으로 유도할 수 있는 indirect surrogate model-based derivative-free optimization 알고리즘을 구현할 수 있다. 따라서 기존의 공정 최적화, 반응기 최적화, 물질 최적화 등의 과정에서 획기적으로 계산비용 감소시킬 것이다. 또한 공정 설계 과정에서 해당 방법론을 사용하여 경제적, 환경적 요소를 동시에 고려하기 위해 주목해야 할 공정변수를 직관적으로 식별할 수 있을 것이다.

그러나 본 연구가 제안한 방법론은 두 가지의 한계점을 갖는다. 먼저, 공정 변수 및 최종 평가 지표까지의 인과관계를 밝혀내지 못한다. 화학 공정을 분석할 때 근본 원인을 밝혀내고, 최종 평가지표와의 직관적인 인과흐름을 파악한다면 더 효율적인 공정 분석 도구로 사용될 수 있을 것이다. 또한, 변수가 많은 경우 다수의 민감도 분석 결과를 직관적으로 해결할 수 있을지에 대한 의문이 해결되지 않는다. 우리의 궁극적인 목표는 특정 변화를 설명하기 위하여 어떤 공정변수 변화가 근본 원인(root cause)인지 규명하고, 중간 변수에 대한 인과적 흐름을 구성하는 방법론 개발이며, 이에 대한 예비 연구 결과로서 본 방법론을 제안하는 바이다. 따라서 해당 연구의 후속 연구로, 공정 변수와 최종 지표 간의 인과관계를 도식화하여 직관적으로 파악 가능한 방법론을 연구할 예정이다.

요약하자면, XAI 기법 중 하나인 SHAP을 이용하여 공정을 분석하는 방법론은 기계학습 기반의 대안모델을 해석하는 도구로써 추가적인 계산비용 없이 전역적 민감도 및 국소적 민감도 분석을 동시 수행을 가능케 하고, 공정 변수 간의 상호작용 효과를 포착을 가능케 한다. 해당 방법론은 다양한 시스템의 최적화 문제에서 주목해야 할 포인트들을 가이드하여 계산비용 감소에 도움이 되고, 공정 설계 시 경제적, 환경적 측면을 동시에 고려한 분석에 도움을 줄 것이다. 마지막으로 해당 방법론의 한계를 보완할 후속 연구로 변수 간의 인과관계를 도식화하는 방법론을 개발하여 보다 직관적이고 비용 효율적인 분석도구를 개발할 예정이다.

## References

1. Nentwich, C. and Engell, S., "Application of Surrogate Models for the Optimization and Design of Chemical Processes," *2016 International Joint Conference on Neural Networks (IJCNN)*, IEEE, 1291-1296(2016).
2. McBride, K. and Sundmacher, K., "Overview of Surrogate Modeling in Chemical Process Engineering," *Chemie Ingenieur Technik* **91**(3), 228-239(2019).
3. Murphy, K. P., *Machine Learning: A Probabilistic Perspective*, MIT press(2012).
4. Chung, W. and Lee, J. H., "Input-output Surrogate Models for Efficient Economic Evaluation of Amine Scrubbing co2 Capture Processes," *Industrial & Engineering Chemistry Research* **59**, 18951-18964(2020).
5. Shokry, A., Baraldi, P., Zio, E. and Espuña, A., "Dynamic Surrogate Modeling for Multistep-ahead Prediction of Multivariate Nonlinear Chemical Processes," *Industrial & Engineering Chemistry Research* **59**, 15634-15655(2020).
6. Gunning, D. and Aha, D., "Darpa's Explainable Artificial Intelligence (xai) Program," *AI Magazine* **40**, 44-58(2019).
7. Arrieta, A. B., Díaz-Rodríguez, N., Del Ser, J., Bennetot, A., Tabik, S., Barbado, A., García, S., Gil-López, S., Molina, D. and Benjamins, R., "Explainable Artificial Intelligence (xai): Concepts, Taxonomies, Opportunities and Challenges Toward Responsible Ai," *Information Fusion* **58**, 82-115(2020).
8. Dobbelaere, M. R., Plehiers, P. P., Van de Vijver, R., Stevens, C. V. and Van Geem, K. M., "Machine Learning in Chemical Engineering: Strengths, Weaknesses, Opportunities, and Threats," *Engineering* **7**(9), 1201-1211(2021).
9. Lundberg, S. M. and Lee, S.-I., "A Unified Approach to Interpreting Model Predictions," *Advances in Neural Information Processing Systems* **30**, 4765-4774(2017).
10. Antwarg, L., Miller, R. M., Shapira, B. and Rokach, L., "Explaining Anomalies Detected by Autoencoders Using Shapley Additive Explanations," *Expert Systems with Applications* **186**, 115736(2021).
11. Jang, K., Pilario, K. E. S., Lee, N., Moon, I. and Na, J., "Explainable Artificial Intelligence for Fault Diagnosis of Industrial Processes," *IEEE Transactions on Industrial Informatics*(2023).
12. Jung, W., Kim, H., Ryu, H. W., Lim, Y. H., Kim, D. H. and Lee, J., "Process Analysis for the Simultaneous Production of Aromatics and Syngas from Shale Gas and CO<sub>2</sub>," *Energy Conversion and Management* **276**, 116480(2023).
13. Chakkingal, A., Janssens, P., Poissonnier, J., Virginie, M., Khodakov, A. Y. and Thybaut, J. W., "Multi-output Machine Learning Models for Kinetic Data Evaluation: A Fischer-tropsch Synthesis Case Study," *Chemical Engineering Journal* **446**, 137186(2022).
14. Lundberg, S. M., Erion, G., Chen, H., DeGrave, A., Prutkin, J. M., Nair, B., Katz, R., Himmelfarb, J., Bansal, N. and Lee, S.-I., "From Local Explanations to Global Understanding with Explainable ai for Trees," *Nature Machine Intelligence* **2**(1), 56-57(2020).
15. Borgonovo, E. and Plischke, E., "Sensitivity Analysis: A Review of Recent Advances," *European Journal of Operational Research* **248**(3), 869-887(2016).
16. Na, J., Lim, Y. and Han, C., "A Modified Direct Algorithm for Hidden Constraints in An Lng Process Optimization," *Energy* **126**, 488-500(2017).

17. Seider, W. D., Lewin, D. R., Seader, J., Widagdo, S., Gani, R. and Ng, K. M., *Product and Process Design Principles: Synthesis, Analysis, and Evaluation*, John Wiley & Sons(2017).
18. Temkin, M., "Kinetics of Ammonia Synthesis on Promoted Iron Catalysts," *Acta physiochim. URSS* **12**, 327-356(1940).
19. Modak, J. M., "Haber Process for Ammonia Synthesis," *Resonance* **7**, 69-77(2002).
20. Breiman, L., Friedman, J., Olshen, R. and Stone, C., "Classification and Regression Trees. Wadsworth Int," *Group* **37**(15), 237-251(1984).
21. Svetnik, V., Liaw, A., Tong, C., Culberson, J. C., Sheridan, R. P. and Feuston, B. P., "Random Forest: A Classification and Regression Tool for Compound Classification and Qsar Modeling," *Journal of Chemical Information and Computer Sciences* **43**, 1947-1958 (2003).
22. Friedman, J. H., "Greedy Function Approximation: A Gradient Boosting Machine," *Annals of Statistics* **29**(5), 1189-1232(2001).
23. Friedman, J. H., "Greedy Function Approximation: A Gradient Boosting Machine," *Annals of Statistics*, 1189(2001).
24. McRae, G. J., Tilden, J. W. and Seinfeld, J. H., "Global Sensitivity Analysis—a Computational Implementation of the Fourier Amplitude Sensitivity Test (FAST)," *Computers & Chemical Engineering* **6**, 15-25(1982).

#### Authors

**Yuna Ko:** M. S. Student, Department of Chemical engineering and Materials Science, Ewha Womans University, Seoul 03760, Republic of Korea; yuna826@ewhain.net

**Jonggeol Na:** Assistant Professor, Department of Chemical Engineering and Materials Science, Ewha Womans University, Seoul 03760, Republic of Korea; jgna@ewha.ac.kr