

BTX 분리용 열복합 증류탑의 제어성능에 관한 연구

김미희 · 박창원 · 이주영** · 김영한* · 황규석†

부산대학교 화학공학과
609-735 부산시 금정구 장전동 산 30번지
*동아대학교 화학공학과
*604-714 부산시 사하구 하단동 840번지
**울산과학기술대학교 환경화학공학과
**680-749 울산시 남구 대학로 148번지
(2010년 5월 20일 접수, 2010년 5월 24일 채택)

Study on Control Efficiency of Fully Thermally Coupled Distillation Column for BTX Separation

Mi Hee Kim, Chang Won Park, Ju-Yeong Lee**, Young Han Kim* and Kyu Suk Hwang†

Department of Chem. Eng., Pusan Natl. Univ., San 30, Jangjeon-dong, Geumjeong-gu, Busan 609-735, Korea

*Department of Chem. Eng., Dong-A Univ., 840 Hadan-dong, Saha-gu, Busan 604-714, Korea

**Department of Environ. & Chem. Ind., Ulsan Col., 148 Deahakro, Nam-gu, Ulsan 680-749, Korea

(Received 2 May 2010; accepted 24 May 2010)

요 약

기존의 증류탑에 비해 열역학적으로 효율적인 열복합 증류탑은 그 설계와 운전의 어려움으로 인하여 실제 산업 현장에서 그 사용이 제한적이었다. 본 연구에서는 열복합 증류탑을 제어하기 위한 3×3 제어구조를 적용하여 4가지의 가능한 제어구조를 탐색하고, Aspen Hysys를 이용하여 동적모사 실험을 수행하여 동적거동을 비교하고 제어 가능성 평가를 수행하였다. 그 결과 제안된 4가지의 가능한 제어구조 중 제품의 조성제어가 가능한 제어구조를 찾을 수 있었으며, 제어 성능 테스트를 수행하였다.

Abstract – The fully thermally coupled distillation columns(FTCDC) are thermodynamically more efficient than conventional columns. Despite these advantages, industry has been reluctant to use FTCDC. This can be largely attributed to the lack of established design procedures and column operability. In this study, the 3×3 control structure was applied to control the FTCDC which was simulated using Aspen HYSYS on the possible control structure of 4 kinds and control performance was investigated. As the result of dynamic simulations, one of the proposed structures had better controllability of product compositions and control efficiency was evaluated.

Key words: Fully Thermally Coupled Distillation Column, 3×3 Control Structure, Distillation

1. 서 론

산업 현장에서는 3성분 혼합물을 분리하기 위해 주로 2기로 연결된 증류탑 구조를 사용하고 있다. 이는 중간비점의 재혼합 효과가 발생되어 불필요한 에너지가 요구된다. 열복합 증류탑(fully thermally coupled distillation column: FTCDC)은 3성분으로 이루어진 혼합물을 분리하는 공정에서 2개의 증류탑을 사용하는 대신 1개의 주 증류탑과 reboiler와 condenser를 가지지 않는 1개의 보조 증류탑(prefractionator)을 사용함으로써(Fig. 1), 2개의 reboiler와 condenser를 사용하는 기

존의 증류방식에 비하여 월등한 에너지 절약 효과를 가진다고 알려져 있다[1].

열복합 증류장치(FTCDC, Petlyuk column)는 50년 전에 알려졌으며[2], 약 30% 에너지 비용을 절약할 수 있음을 보였다[3,4]. 그런 장점에도 불구하고, 산업 현장에서는 열복합 증류탑의 사용을 기피해 왔으며, 그 이유는 열복합 증류탑의 설계 문제, 증류탑 운전의 어려움, 제품의 규격을 유지하기 위한 제어문제의 복잡함 등의 난제가 완전히 해결되지 못했기 때문이다. 이러한 이유로 열복합 증류탑의 운전방법을 개선하려는 많은 연구들이 수행되어 졌다.

Column구조를 간단하게 하기 위해서 수직분할 구조 증류장치(Fig. 2)가 제안되었으며[5], 에너지 절약효과를 높였으나, liquid와 vapor split의 제어의 문제가 더욱 복잡해진다.

†To whom correspondence should be addressed.

E-mail: kshwang@pusan.ac.kr

*이 논문은 부경대학교 천재기 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

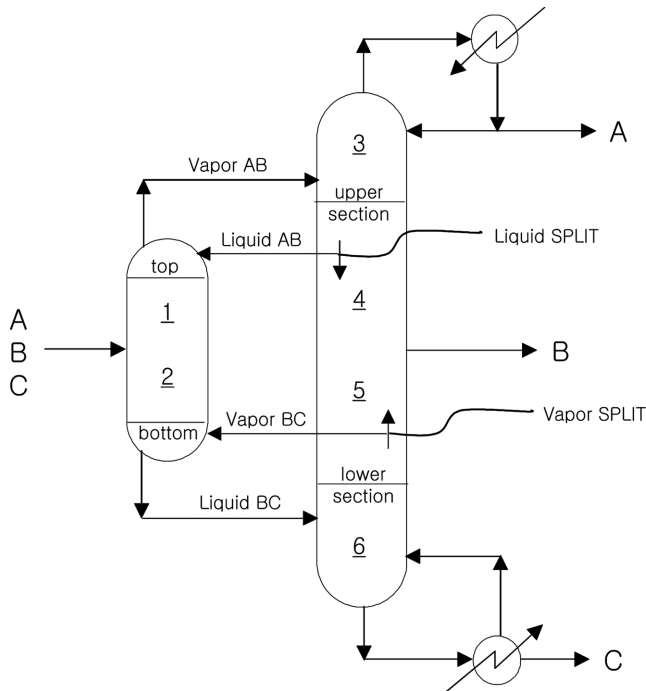


Fig. 1. Schematic diagram of a fully thermally coupled distillation column.

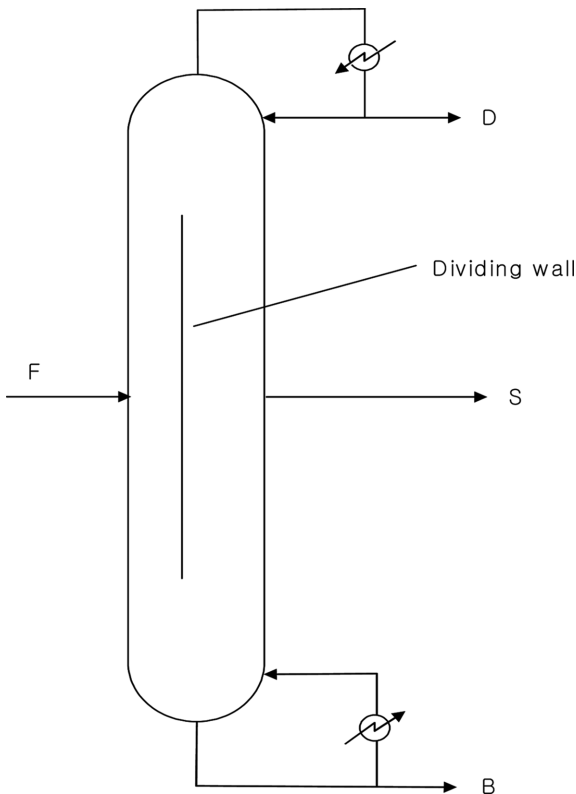


Fig. 2. Petlyuk column representation.

Glinos and Malone은 Petlyuk column design을 위한 해석적인 식을 유도하였고[4], Smith는 Petlyuk column의 design을 위한 short-cut method를 개발하였다[6]. Wolff and Skogestad는 열복합 증류탑의 운전 체계와 간단한 제어시스템을 제안하였다[7].

본 연구에서는 열복합 증류탑의 현장조업 시 발생하는 운전과 제어의 문제점을 해결하기 위하여, 석유화학 공장의 BTX 분리 공정에 열복합 증류탑을 적용했을 시의 운전특성을 상업용 공정 모사기 Aspen Hysys를 사용하여 동적 모사를 수행한다. BTX 분리 공정에서 적용 가능한 4가지의 제어구조의 동적거동을 해석하여 가장 효율적인 3×3 제어구조를 제안하고자 한다.

2. 열복합 증류탑의 구조설계

BTX 분리 공정은 방향족 화합물을 원료로 하여 고순도의 benzene, toluene, xylene을 생산하는 공정으로, Feed 성분이 18종류이며 비점과 함량에 따라 benzene을 포함한 저비점 혼합물, toluene을 포함한 중간비점 혼합물 및 나머지 xylene을 포함한 고비점 혼합물의 3가지로 분류한다.

열복합 증류탑 설계에 관한 연구는 최소 환류량을 계산하여 탑을 설계하는 연구[8,9]가 많았으며 탑의 구조적 설계에 관한 연구는 3-column 모델을 이용한 Smith 교수팀의 연구[6]가 처음이었다. 증류탑 내 액의 조성분포가 평형증류 조성곡선과 유사하면 탑 내에서 stream의 혼합이 최소가 되어 탑효율을 극대화할 수 있으며 국내의 Kim 교수팀이 다성분 평형증류곡선을 이용한 구조적 설계방법을 제시하였고[10], 본 연구에서는 이 설계법을 이용하여 열복합 증류탑을 설계한다.

기존 증류탑의 설계에서는 최소 환류의 1.2 내지 2.0 배 범위의 환류 값을 사용하여 단 수를 계산하며 최적 환류를 사용하면 증류탑의 단 수를 쉽게 얻을 수 있지만, FTCDC 설계의 경우 연결단의 위치와 연결스트림들의 조성이 불분명하여 사용할 수 없다.

열복합 증류탑은 전처리 탑과 주탑으로 이루어져 있으며 두 탑의 단에서 액체조성이 다성분계 평형증류 잔류곡선과 유사하면, 증류공정의 열역학적 효율은 최적이 된다. 먼저 전처리 탑의 구조설계는 일반적인 증류탑 설계 방법을 이용할 수 없는데 탑상부와 하부의 마지막 조성을 알 수 없기 때문이다.

원료 공급단의 조성에 원료조성을 맞추기 위해 원료 공급단에서 계산을 시작하고, stage-to-stage 계산법으로 원료 공급단의 위 단들의 액체조성을 하나씩 계산하여 전처리 탑의 upper section을 계산한다. Feed stage는 포화된 액체 feed 조성으로 같은 액체 조성을 가지고 단 효율은 이상적이라고 가정하면, feed 단의 위 stage의 액체조성을 식 (1)로부터 계산할 수 있다.

$$x_{n+1,i} = \alpha_{i,1} x_{n,i} / \sum_j \alpha_{j,1} x_{n,j} \quad (1)$$

하점자 n은 하부에서부터 n번째 tray를 표시하고 α 는 상대 휘발도이다. 유사하게, feed 단의 아래 stage인 lower section의 액체 조성은 식 (2)로부터 계산된다.

$$x_{n-1,i} = x_{n,i} / [\alpha_{i,1} \sum_j (x_{n,j} / \alpha_{j,1})] \quad (2)$$

통상적인 설계 가이드라인에 따라 시스템의 상대휘발도를 이용하여 구한 최소유량의 1.5배를 사용하여 액체, 기체유량을 구한다. 증기 조성은 HYSYS에서 Peng-Robinson 식으로 구한다. 전처리탑의 상부와 하부의 조성분포를 계산하여 두고 주탑과의 연결단은 주탑의 조성분포를 계산한 후에 결정한다. 주탑의 설계에서 최소단수는 Fenske 다성분 설계식으로 계산되었다(식 (3)).

$$N_{\min} = \frac{\log\{[x_{i,N+1}/x_{i,1}][x_{i,1}/x_{i,N+1}]\}}{\log\alpha_{i,j}} \quad (3)$$

주탑의 조성계산은 Side product 조성을 포함하는 잔류곡선을 따르기 위해 중간제품의 농도를 기준으로 upper section과 lower section의 조성을 전처리탑과 동일하게 계산한다. 전처리탑과 주탑의 연결단은 두탑의 조성분포를 비교하여 불순물의 양과 두탑의 조성이 어느 정도 근접하는지를 고려하여 결정한다. 이상과 같은 방법으로 전처리탑과 주탑의 단수, 원료 공급단과 side draw의 위치, 연결되는 단들을 알 수 있다. 실제탑에서는 원료 공급단의 액체조성이 원료의 조성과 다르기 때문에 설계 시 두 조성이 같다고 가정된 계산을 보정해야 한다. 본 연구에서는, 통상적인 설계 가이드라인에 따라 계산된 전처리 탑의 단수에 1.7을 곱하였다. 증류탑의 구조적 설계를 통한 결과가 얻어지면, 주어진 제품 조성을 생산할

Table 1. Results of structural design and operating conditions

Name	Prefractionator	Main Column
Structural Design		
number of trays	21(18)	89(92)
feed/side product	7	28
inter linking stages		6
		74(58)
Operating conditions		
feed(kg-mol/h)	801.8	
overhead(kg-mol/h)		86.8
bottom(kg-mol/h)		337.7
side(kg-mol/h)		377.7
reflux(kg-mol/h)	290.1	1792
vapor boilup(kg-mol/h)	492.9	1634
heat duty(Gcal/h)		14.18

Table 2. Compositions of feed and products

Component	FTCDC			
	Feed	Overhead	Side	Bottom
(Light)				
benzene	0.1096	0.9998	0.0028	0.0000
dimethyl c-pentane	0.0000	0.0001	0.0000	0.0000
(Intermediate)				
methyl c-hexane	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000
toluene	0.4217	0.0000	0.9935	0.0087
n-octane	0.0001	0.0000	0.0001	0.0000
(Heavy)				
ethylbenzene	0.0187	0.0000	0.0007	0.0390
p-xylene	0.0721	0.0000	0.0009	0.1520
m-xylene	0.1603	0.0000	0.0018	0.3383
o-xylene	0.0750	0.0000	0.0002	0.1592
n-nonane	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000
n-pentyl benzene	0.0004	0.0000	0.0000	0.0008
methyl-ethyl benzene	0.0324	0.0000	0.0000	0.0689
tri-methyl benzene	0.0947	0.0000	0.0000	0.2012
methyl-n-propyl bz	0.0007	0.0000	0.0000	0.0015
di-ethyl benzene	0.0004	0.0000	0.0000	0.0009
o-cymen	0.0051	0.0000	0.0000	0.0109
tetra-methyl benzene	0.0059	0.0000	0.0000	0.0126
penta-methyl benzene	0.0028	0.0000	0.0000	0.0059

수 있는 증류탑의 운전조건은 HYSYS 시뮬레이션을 통해 구할 수 있다(Table 1,2).

3. 열복합 증류탑의 동적모사 및 제어 특성 고찰

열복합 증류탑의 운전에서 가장 중요한 제어 변수는 상부, 중간, 하부제품(overhead, side product, bottom; D, S, B)의 주성분들의 조성이다. 3×3 제어에서 기본 구조는 상부 제품의 조절변수는 top flow rate, reflux flow rate이고, 중간 제품의 조절변수는 side flow rate, liquid draw rate, vapor draw rate, vapor boilup rate이고, 하부 제품의 조절변수는 vapor boilup rate, side flow rate이다. Fig. 3과 Table 3에서 보는 것처럼 3×3 제어는 x_D, x_S, x_B 출력과 L-S-V 입력의 구조를 사용하여 Wolff and Skogestad에 의해 제시되었고[7], 중간제품(x_S)의 set-point 변화를 제외하고는 만족스러운 조절이 가능함을 보였다.

본 연구에서는 기존의 LSV 제어구조를 바탕으로, BTX를 분리하기 위한 FTCDC 운전에서 적합한 제어구조, LVS, LL₂V, LV₂S 제어구조를 제안하고 동적모사를 통하여 각 제어구조의 동적특성을 평가하고 제어가능성을 검토하였다. 동적모사를 위하여, Fig. 4와 같이 9개의 제어루프를 설치하였으며, 증류탑의 안정한 운전을 위하여 주탑 상부에 압력제어 루프를 설치하였고, 냉각기 액위, 리보일러 액위, 리보일러 온도, reflux 유량, side flow rate, feed 유량, 주탑에서 전처리탑으로 가는 liquid draw rate와 vapor draw rate의 유량 제어루프를 설치하였다. 그리고 설치된 제어루프에 3개의 PI 제어루프를 연결하여 3가지 제품(상부, 중간, 하부)의 조성을 제어하였다.

기존의 LSV 제어구조에서 open loop test를 한 결과, side flow rate이 benzene과 xylene의 조성보다 중간제품인 toluene 조성변화에 훨씬 강한 영향을 준다는 것을 알 수 있고, toluene 조성의 제어에 side flow rate이 유효한 조절변수임을 알 수 있었다. 또한 주목할 점은 xylene의 조성응답이 역응답을 보인다는 것이다. 열복합 증류탑의 3×3 제어구조에서 초점은 중간제품의 제어에 있다. 그 이유는 중간제품의 제어가 어렵기 때문이다. 따라서 side product의 조성을 보다 쉽게 제어할 수 있는 제어구조를 본 연구에서 검토하고자 한다.

LSV 제어구조에 대한 동적모사를 실행한 결과 중간제품의 순도가 set point보다 약간 미치지 못하는 결과를 가져왔다(Fig. 5(a)). 3×3 제어구조에서 중간제품의 순도는 reboiler duty의 증가를 통하여 달

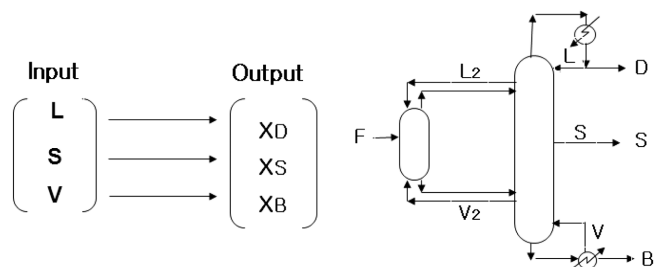
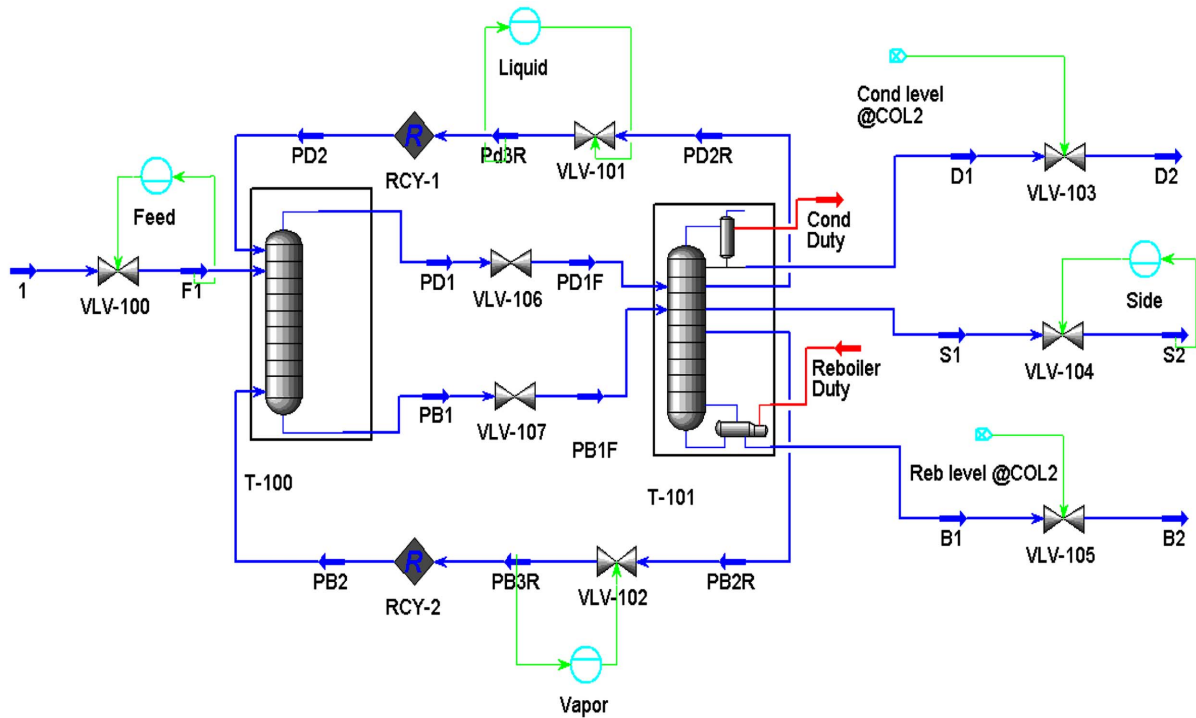


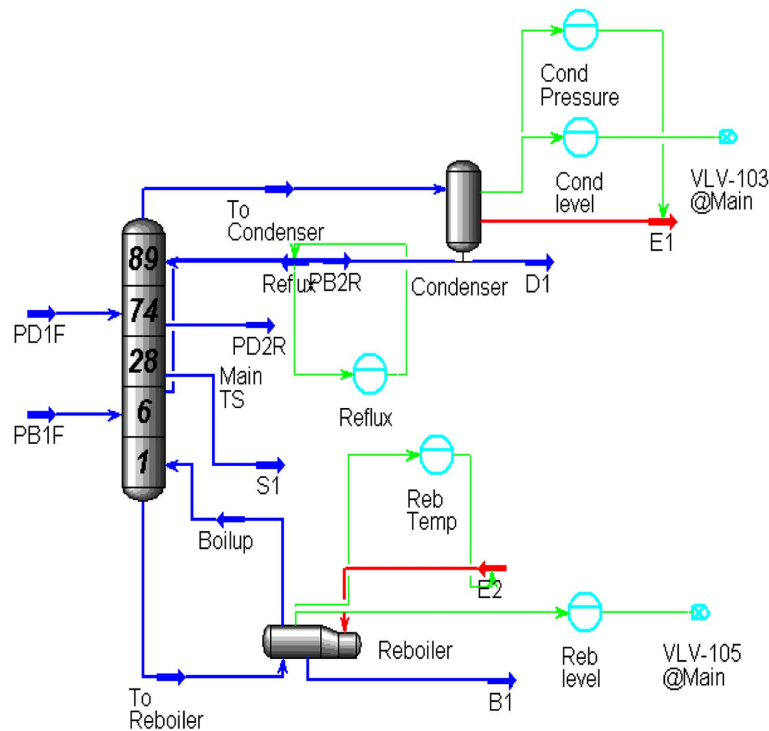
Fig. 3. LSV control structure for FTCDC.

Table 3. 3×3 control structure for LSV control structure

Input variables	Output variables
Reflux flow rate (L)	Overhead product composition
Side flow rate (S)	Side product composition
Vapor boilup rate (V)	Bottom product composition



(a)FTCDC dynamic mode



(b)Internal controller positions of main column

Fig. 4. Process Diagram of the FTCDC in aspen hysys.

성될 수 있는데 이는 main column의 압력에 영향을 미치게 되어 tray flooding 등의 비정상 상태를 유발시킬 수 있다. 이를 이유로 중간제품에 대한 더 이상의 높은 순도를 얻을 수 없었다.

열복합 증류탑 제어구조에서 Side flow rate는 bottom product 조성, vapor boilup rate는 side product 조성과는 어느 정도 연관관계를 가지고 있다. LVS 제어구조는 상부 제품의 조절 변수로 reflux flow

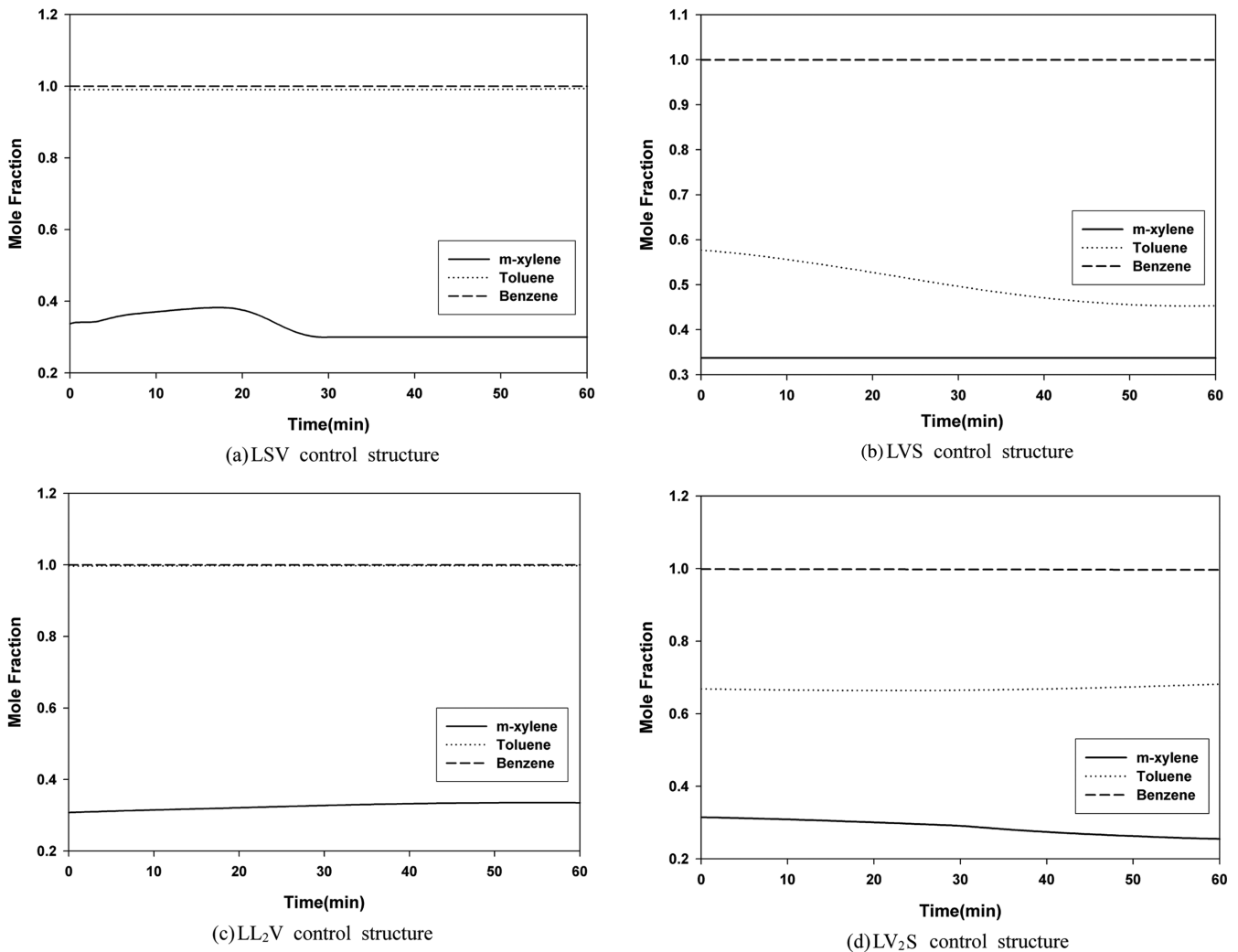


Fig. 5. Results of dynamic simulations from possible control structures.

rate을, 중간제품의 조절에 vapor boilup rate을, 하부제품의 조절에 side flow rate을 사용한 제어구조를 가진다. 동적모사를 실행한 결과 (Fig. 5(b)), LVS 제어구조에서는 bottom product 조성은 side flow rate를 통해 조절되므로, side flow rate의 변동이 계속 발생하고, 또한 중간제품의 순도를 얻을 수 없어 LVS 제어구조는 열복합 증류탑을 제어하기에 부적절한 구조라 사료된다.

에너지 절약형 증류탑의 prefractionator의 액체흐름은 main column 으로부터 오기 때문에, prefractionator와 main column 사이의 액체 분할비를 조절하여 liquid draw rate을 사용한 side product의 조성 제어가 가능한데, 상부 제품의 조절 변수로 reflux flow rate을, 중간제품의 조절에 liquid draw rate을, 하부제품의 조절에 vapor boilup rate을 사용한 구조를 LL₂V 제어구조라 한다. 중간제품 조성에 대한 조절변수를 liquid draw rate로 했을 경우 side product의 순도가 가장 높은 동적 모사가 이루어졌다(Fig. 5(c)). 비록 bottom product의 순도가 set point보다 낮지만 이는 조절가능하기 때문에 제어의 초점이 되는 side product의 제품의 순도를 고려해보면 BTX 분리를 위한 열복합 증류탑의 제어에 가장 적합한 구조가 LL₂V 제어구조임을 확인할 수 있다.

LV₂S 제어구조는 중간제품에 대한 조절변수를 vapor draw rate으

로 제한한 구조이다. 이 제어구조에서 side product의 순도는 reboiler duty의 증가를 통하여 이루어지는데 이는 main column의 압력에 영향을 미쳐 압력강하에 따른 column 내의 비정상 상태를 유발시킬 수 있어 더 높은 순도를 달성하지 못하였다(Fig. 5(d)).

열복합 증류탑을 제어하기 위한 가장 적절한 제어구조인 LL₂V 제어 구조에 대한 제어 성능 검사를 실시하였다. 중간 제품의 제어가 초점이기 때문에 중간 제품 조성의 변화를 주어 성능평가를 수행한 결과, 중간 제품 순도의 변화에 따라 상부 제품과 하부 제품의 농도 역시 변화였으나, 하부 제품의 농도 변화에 비해 상부 제품의 농도 변화는 매우 작았으며 중간 제품의 농도가 설정값 변화에 어느 정도 잘 따라감을 알 수 있다(Fig. 6). 중간제품의 제어 성능 검토에서 농도 조절이 어려웠으나 열복합 증류탑에서 중간제품의 제어가 어려운 점을 감안하면 LL₂V 제어구조를 사용하여 증류탑의 운전이 가능하다는 것을 알 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 열복합 증류탑의 가능한 제어 구조를 찾기 위하여 BTX 분리공정을 대상공정으로 공정을 설계하고 범용 공정 모사가

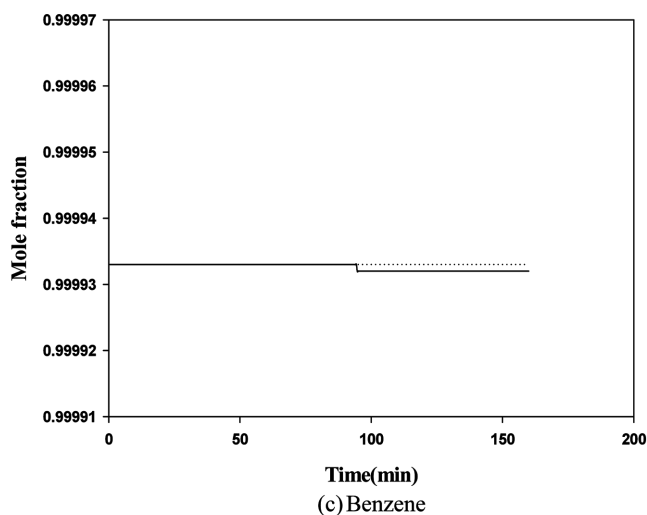
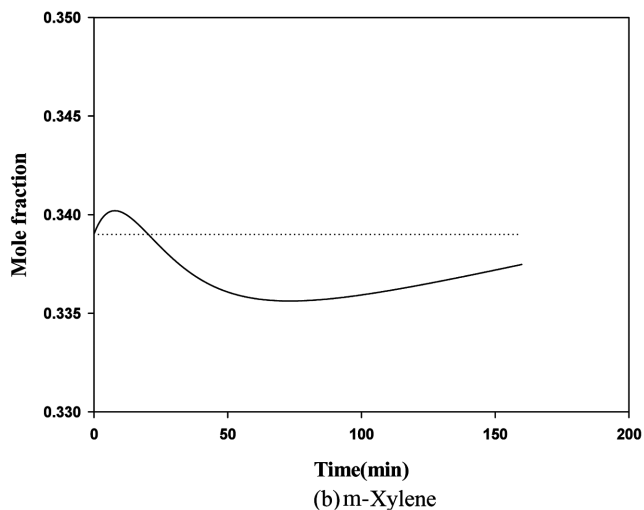
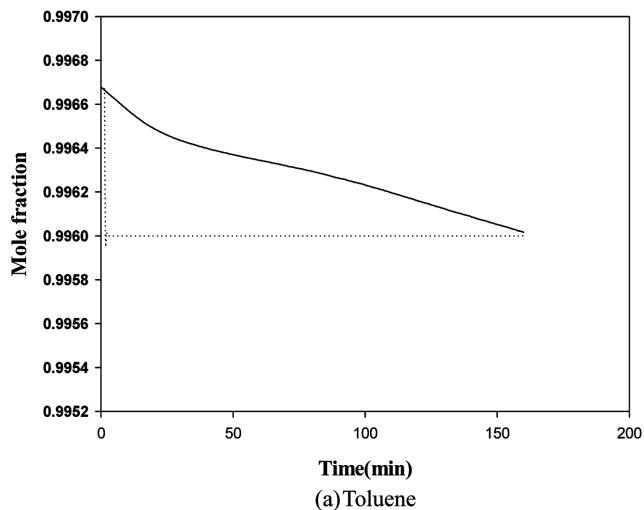


Fig. 6. Step response of side product with 0.003 mole fraction change.

인 HYSYS를 이용하여 대상공정을 모델링 하였으며 동적 모사를 통한 증류탑의 제어성능을 검토하였다.

기존의 LSV 제어구조를 바탕으로 LVS, LL₂V, LV₂S 제어구조의 동적모사를 수행한 결과 가능한 제어구조 중에서 가장 만족스러운 제어구조는 LL₂V 제어구조이고, 3×3 제어구조를 바탕으로 benzene의 조성제어는 reflux flow rate을, toluene의 조성제어는 liquid draw rate을, xylene의 조성제어는 vapor boilup rate을 조절변수로 사용하는 것이 가장 효율적인 제어구조임을 알 수 있었다.

감 사

본 연구는 두뇌한국 21(BK21)사업의 지원과 부산대학교 자유과제 학술연구비(2년)에 의하여 연구되었습니다.

사용기호

x : liquid composition (mole fraction)[-]

y : vapor composition (mole fraction)[-]

α : relative volatility

참고문헌

- Schultz, M. A., Stewart, D. G., Harris, J. M., Rosenblum, S. P., Shakur, M. S. and O'Brien, D. E., "Reduce Costs with Dividing-Wall Columns," *Chem. Eng. Prog.*, **98**, 64-71(2002).
- Petlyuk, F. B., Platonov, V. M. and Slavinskii, D. M., "Thermodynamically Optimal Method for Separating Multicomponent Mixtures," *Int. Chem. Eng.*, **5**, 555(1965).
- Kim, Y. H., "An Alternative Structure of a Fully Thermally Coupled Distillation Column for Improved Operability," *J. Chem. Eng., Japan*, **36**, 1503(2003).
- Glinos, K. and Malone, M. F., "Optimality Regions for Complex Column Alternatives in Distillation System," *Chem. Eng. Res. Des.*, **66**(3), 229(1988).
- Mutalib, M. I. A. and Smith, R., "Operation and Control of Dividing Wall Distillation Columns, Part 1: Degrees of Freedom and Dynamic Simulation," *Trans. IChemE, Part A*, **76**, 308-318 (1998).
- Triantafyllou, C. and Smith, R., "The Design and Optimisation of Fully Thermally Coupled Distillation Columns," *Trans. IChemE*, **70**, part A, 118-132(1992).
- Wolff, E. A. and Skogestad, S., "Operation of Integrated Three Product (Petlyuk) Distillation Columns," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **34**, 2094-2103(1995).
- Fidkowski, Z. and Krolikowski, L., "Thermally Coupled System of Distillation Columns: Optimization Procedure," *AIChE J.*, **32**, 537-546(1986).
- Glinos, K. N. and Malone, M. F., "Minimum Vapor Flows in a Distillation Column with a Sidestream Stripper," *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **24**, 1087(1985).
- Kim, Y. H., Nakaiwa, M. and Hwang, K. S., "Approximate Design of Fully Thermally Coupled Distillation Columns," *Korean J. Chem. Eng.*, **19**, 383-390(2002).