

인산제조공정의 모사연구

An Intelligent Simulation of a Phosphoric Acid Plant

여 영 구*

Yeo, Yeong-Koo

Abstract

For the identification of the optimal operating conditions of phosphoric acid plant, an intelligent simulation was performed based on the dissolution reaction of phosphate rock. A phosphoric acid plant consists of three main processes: ball-mill grinding process, rock reaction process and slurry filtration process. The grinding and filtration processes are relatively simple processes and most of the simulation works are on the reaction process. The practical operation data of phosphoric acid plant at Namhae Chemical Corp. were utilized in the simulation. The operation of the phosphoric acid plant is highly dependent on the heuristics of operators and so the expert system technology was employed. The operation of phosphoric acid plant varies with the origin of phosphate rock. Results of the simulation showed the optimal values of major process variables and optimal operating conditions. The knowledgebase for the expert system was constructed based on the interview with the experienced plant operators.

1. 서 론

인산의 용도는 매우 다양하지만 특히 비료의 제조에 있어서 다량으로 소요되는 중요한 화합물이다. 인산의 제조 공정은 인광석의 용해반응에 따른 많은 복잡한 인자들로 인하여 그 조업은 상당부분 경험이 많은 조업자의 경험적 지식에 의존하며 공정에 대한 정확한 이론적 해석이나 공정의 모사에 대한 연구 결과들이 많이 나와 있지 않다. 그러나 인산제조공정의 모사연구는 아직 제대로 밝혀지지 않고 있는 인산제조공장의 최적 조업조건 및 안정조업 조건의 규명에 필수적이다.

인산 제조공정에 대한 모사연구는 국내외적으로 아직

제대로 이루어 지지 않고 있으며 인산 제조공정 전반에 대한 연구 및 실제 조업사항들이 정리되어 있을 뿐이다 [1]. 국내의 인산제조공장은 비료의 제조에 이용하기 위하여 비료공장 내에 하나의 단위공장으로 설치되어 있는 것이 대부분이며 실험용 시약으로 사용하기 위한 순수한 인산을 소량으로 제조하는 공장들이 약간 있다. 그러나 인산제조공정 조업의 종합적 전산화를 지향하기 위한 전단계로서 인산공정 조업모사 시스템에 대한 관심은 매우 지대하다.

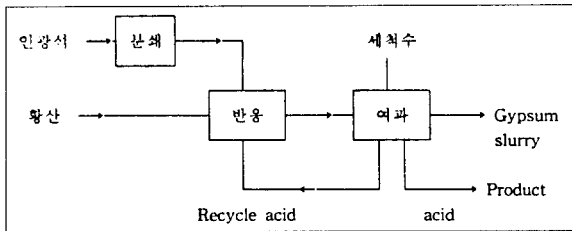
본 연구에서는 국내의 인산제조공장 가운데 그 규모가 가장 큰 남해화학의 인산공장을 대상으로 하여 실제 조업 자료를 바탕으로 모사연구를 수행하였다. 인산공정 조업

* 한양대학교 화학공학과

의 특성상 전문가 시스템을 활용한 인공지능적 모사 시스템의 구현을 목표로 숙련된 조업자의 경험적 조업지식들을 바탕으로 지식베이스를 구축하였다. 전문가 시스템 작성도구로는 미국 Neuron Data사의 NEXPERT Object 시스템을 사용하였으며 모사 시스템의 프로그램 언어로는 C와 C++를 이용하였다. 전체적인 모사 시스템의 운용구조는 NEXPERT 시스템을 중심으로 하여 사용자의 필요에 따라 조업자료를 바탕으로 한 모사작업을 수행하고 그 결과를 바탕으로 지식베이스를 활용하여 최적의 조업조건을 찾아 나가는 일련의 과정들로 이루어진다.

2. 인산 반응공정의 개요

인광석은 반응기로 이송되기 전에 분쇄기에 의해 고운 분말로 분쇄된다. 분쇄된 인광석 입자는 반응조로 이송되어 산과 반응하게 되는데 전체적인 인산제조공정은 <그림 1>에 보인 바와 같이 크게 인광석 분쇄공정과 반응 및 여과공정으로 나누어 볼 수 있으며 제조된 인산의 농축 및 저장과정이 따른다.

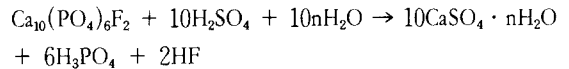


(그림 1) 인산 제조공정 개략도

여과나 농축 및 저장과정은 반응이 수반되지 않는 단순한 공정으로서 조업의 모사가 비교적 용이하나 인광석 분쇄반응 공정에는 매우 복잡한 여러가지 화학반응이 동시에 일어나므로 그 해석이 쉽지 않다. 인광석 분쇄과정에서는 주요 조업변수의 조그만 변화도 생성되는 인산의 품질에 매우 큰 영향을 미치므로 조업변수의 정확한 조절 및 공정의 세밀한 진단이 요구된다. <그림 2>는 인산제조공정의 유통도를 대략적으로 나타낸 것이다.

2.1. 인광석 반응구조

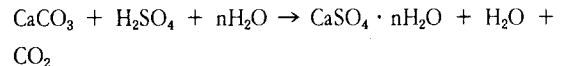
인광석의 성분은 전체 반응조업에 매우 큰 영향을 미친다. 인광석의 성분 자체는 원산지마다 달라지므로 원료 인광석의 산지에 따라 반응 조건이 달라져야 할 것이다. 인광석 중의 apatite의 구조는 $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{F}_2$ 인 것으로 알려져 있다. 인광석 반응조 내에서 일어나는 여러가지 반응 가운데에서 가장 중요한 반응은 apatite가 다음과 같이 도입된 황산과 반응하여 석고와 인산을 생성시키는 반응이다.



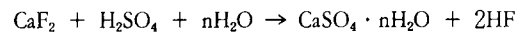
위의 반응에서 n은 황산칼슘 결정의 함수량에 따라 0, 1/2, 또는 2의 값을 갖는다. 위의 반응은 실제로는 여러 단계를 거쳐서 일어 나는데 우선 인산이 apatite와 반응하여 $\text{Ca}(\text{H}_2\text{PO}_4)_2$ 가 생성되고 이것이 다음에 황산과 반응한다.

인광석의 반응 과정은 황산과 인산에서 비롯된 수소의 이동 매카니즘으로 설명될 수 있다. 분쇄된 인광석이 반응액 중에 도입되면 구형의 인광석 입자와 반응액 간의 계면에서 인광석 중의 각종 염들이 용해된다. 이 계면에서는 열역학적 평형이 이루어 진다고 가정할 수 있는데 평형조건은 용해도적에 따라 결정된다. 수소는 액상으로부터 고-액 간의 계면을 향해 확산되어 인광석의 여러 성분들과 반응하게 된다. 반응 생성물들은 액상쪽으로 다시 확산됨으로써 반응이 종결되는데 이온의 확산 속도에 비해 반응은 순간적으로 일어나는 것으로 여겨진다.

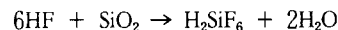
인광석 내의 불순물 가운데 가장 많은 부분을 차지하는 탄산칼슘은 황산과 반응하여 gypsum을 형성시킨다.



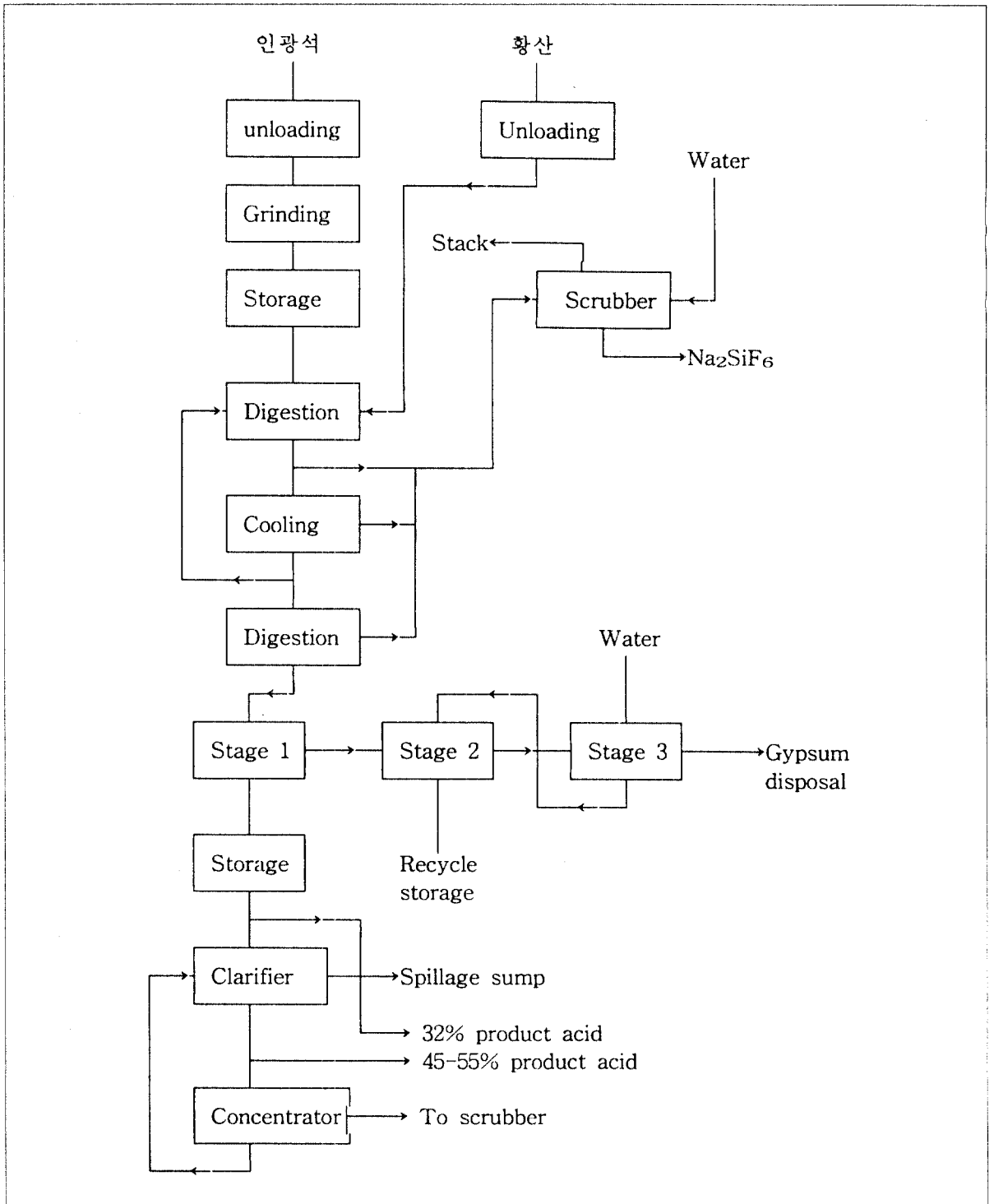
Apatite에 포함된 것 이상의 과량의 불소는 불화칼슘으로 존재하는데 이는 황산과 반응하여 gypsum을 생성시킨다.



반응성 실리카나 금속 실리케이트 들은 불화수소와 반응한다. 이 반응을 조절하는 것은 반응이 일어나는 부분의 용액중의 수소의 활성도이다. 실제로 수소의 활성도는 이 반응이 일어나기에 충분히 크다.

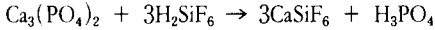
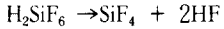


위의 반응에서 생성된 H_2SiF_6 는 SiF_4 와 불화수소로 분해되기도 하고 인광석과 다시 반응하여 인산을 생성시키기도

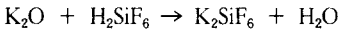
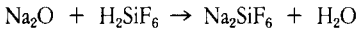
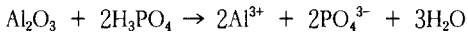
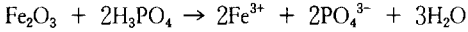


〈그림 2〉 인산 제조공정 유통도

도 한다.



위의 반응들 이외에도 인광석 중에 함유되어 있는 불순물의 양 및 종류에 따라 다음과 같은 반응들이 일어난다.



인광석의 반응 중에는 많은 열이 수반되는데 이 열은 화학반응에서 발생하는 열과 황산의 회석열이 주류를 이루며 재순환되는 인산에 함유된 열이 그 일부를 이룬다. 따라서 반응기 내의 지나친 온도 상승을 막기 위해 반응 slurry의 일부를 빼내어 냉각시켜 주어야 한다. 반응기 내의 온도는 약 70-80°C에서 유지된다.

2.2. Gypsum의 형성

인광석 중의 칼슘이온과 황산으로부터의 황산이온은 결합하여 gypsum이 되고 이것이 반응용액 중에서 침전으로 분리된다. CaSO_4 가 물 2분자와 결합하게 되면 dihydrate가 되고 물 1/2분자와 결합하면 hemihydrate가 된다. Gypsum의 형성에 있어서는 칼슘이온과 황산이온의 양적 관계가 매우 중요하다. 황산은 반응액 중에서 수소이온과 황산이온으로 전리되며 전리된 수소이온은 반응 slurry 중에 현탁되어 있는 인광석 입자와 반응하여 인산과 칼슘이온을 생성시킨다. 통상의 반응조건 하에서는 반응액 중의 인산 분자의 양은 황산분자의 25배 정도가 된다. Gypsum 형성 과정을 보다 구체적으로 살펴 보면 다음과 같다.

1) 황산의 도입

황산은 93%의 농도로 반응조에 도입되는데 30% 인산 용액과 도입황산의 부피 비율은 90:1 이상이기 때문에 반응 slurry를 잘 교반시켜서 황산이 고루 분산되도록 해주어야 한다. 교반이 잘 이루어 지지 않으면 황산 이온의 국지적인 과포화 현상으로 인하여 결정 핵들이 순간적으로 형성된다.

2) Gypsum 결정의 형성

반응조 내에 도입된 인광석 입자들은 적절히 분쇄되었

을 경우 대략 10분 이내에 96% 이상이 용해된다. 인광석의 용해로부터 생성된 칼슘 이온은 액상에서 다수의 황산이온 및 결정들로 둘러 싸이게 되는데 결정은 그 표면의 격자구조 내에, 그리고 황산이온은 결정핵을 형성시킴으로써 각각 칼슘이온이 정착될 수 있는 장소를 제공하여 준다. 결정 사이의 거리는 약 10 - 20 μm 이며 칼슘이온이 결정격자 내에 자리잡는 속도는 칼슘이온이 인광석으로부터 용해되어 나오는 속도보다 상당히 느리다.

칼슘이온이 황산이온과 직접 결합하여 새로운 결정 핵을 형성시키는 경우에는 어느 수준의 에너지 준위가 충족되어야 한다. 이 에너지 준위는 어느 임계점 이상에서 충족되게 되는데 이 임계점은 황산이온과 칼슘이온의 최소한계 농도로 표시된다. 반응이 진행됨에 따라 액상 중에는 황산이온과 칼슘이온이 축적되고 시간이 경과함에 따라 어느 수준의 과포화 현상이 일어나게 된다. 과포화 정도가 커짐에 따라 결정의 성장도 비례하여 진행되지만 어느 한계를 넘어서면 결정핵의 형성이 순간적으로 이루어진다.

2.3. Gypsum 형성의 제약요인

인산의 제조에 있어서는 우선 여과하기가 용이하며 충분한 공극을 지니고 있어서 스며있는 인산이 쉽사리 빠져나올수 있는 적절한 크기와 모양을 갖는 황산칼슘 결정을 생성시키는 것이 가장 중요하다. 반응조의 slurry 중에서도 이루어 지는 결정의 모양과 크기에 영향을 미치는 요인으로는 입자크기분포, 인산농도, slurry 중의 고체함량, 황산이온 농도, 인광석 중의 불순물, 온도, 교반, 재순환, 그리고 반응기의 구조를 들 수 있다.

1) 입자 크기의 영향

인광석 입자의 크기가 작을수록 수소이온과 반응할 수 있는 인광석의 표면적은 그만큼 넓어진다. 그러나 입자가 너무 작으면 반응 속도가 지나치게 빨라지고 반대로 200 μm 이상으로 너무 크면 입자 표면에 코팅 현상이 일어나게 된다. 대체적으로 실제 작업에서 사용되는 인광석 입자는 160 μm 이상이 20 - 30%, 125 μm 이상이 30 - 40%, 그리고 80 μm 이상이 40 - 60% 인 분포를 보인다.

2) 인산 농도의 영향

인산농도가 높아지면 황산칼슘의 결정화가 불규칙적으로 일어나게 되고 결정의 크기가 작아진다. 습식 인산제조 공정에서 생산되는 인산의 농도는 사용 에너지, 원료 물질 등에 따라 달라진다. 대부분 인광석의 경우 dihydrate 공정에서 유지되는 인산농도는 28-32% 정도인데 결정화되는 성질이 좋지 않고 CaO:P₂O₅의 비율이 높은 저품질의 인광석을 사용하는 경우에는 인산농도를 24 - 26% 정도로 낮게 유지시켜 주기도 한다.

3) Slurry 중의 고체함량

Slurry 중의 액체에 대한 고체의 비율은 여과기로부터 재순환되는 인산에 의해 조절된다. Slurry 중의 고체함량이 감소하면 황산이온과 칼슘이온에게 반응 장소를 제공하여 주는 slurry 단위부피당 결정의 표면적도 아울러 줄어들게 되므로 과포화도가 증가하게 되고 결정의 성장은 더디어지게 되어 핵의 형성이 증가하고 결정의 크기가 작아지게 된다. 따라서 slurry 중의 고체함량은 어느 수준 이상으로 유지시켜 주는 것이 중요하며 대략 25%(by volume) 정도로 유지시키는 것이 가장 적합한 것으로 알려져 있다.

4) 황산이온 농도의 영향

반응 slurry 중의 과량의 황산은 결정의 질을 지배하는 가장 중요한 요소이다. 황산이온 농도는 칼슘이온 농도를 조절하며 이들 이온들의 농도에 따라서 결정의 성장 속도와 결정의 크기가 좌우된다. 황산농도가 증가하면 결정은 더욱 커지게 되며 칼슘이온이 과량으로 존재하면 과포화정도가 비록 낮을 지라도 결정핵의 형성속도가 증가된다.

5) 불순물의 영향

반응액 중에 용해되어 있는 인광석의 각종 불순물 들은 결정 표면에 흡착되어 결정의 성장을 방해한다. 그러나 각기 다른 종류의 불순물 들이 미치는 영향들이 일률적으로 같지는 않기 때문에 쉽게 그들의 영향을 단정할 수는 없다.

인광석 중의 대부분의 알루미늄은 반응액 중에 용해되는데 알루미늄 이온은 결정의 크기 형성에 바람직한 영향을 미친다. 즉 비교적 알루미늄 함량이 높은 것으로 알려진 플로리다산 인광석은 그 결정의 여과 속도가 높은 것

으로 나타나 있다. 인광석 중의 철분은 인산용액의 점도에 다소 영향을 미치는데 인산용액의 점도가 높아지면 여과 속도가 느려지고 인산용액의 농축시에도 문제가 된다. 마그네슘 이온은 결정의 모양 및 크기와 용액의 점도를 증가시켜서 여과 속도를 떨어뜨리는 요인이 된다. 불소와 실리카는 모든 인광석에 존재하는 불순물인데 활성 실리카가 다량으로 존재할 경우, 즉 SiO₂ : F의 비가 0.53보다도 클 경우 불소는 모두 H₂SiF₆ 상태로 존재한다. 불소가 HF나 다른 혼합물이 아닌 H₂SiF₆ 상태로 존재하면 결정의 상태가 큰 영향을 받는다. 따라서 활성 실리카를 반응조에 주입시켜 SiO₂ : F의 비율 변화시킴으로써 결정의 상태를 조절할 수 있다. 유기물질들을 불활성화 시키거나 흡착시키기 위하여 실리카를 주입하기도 한다.

6) 온도의 영향

반응 온도가 결정화 과정에 미치는 영향은 다대하다. 온도는 반응액의 점도와 밀도, 황산이온 및 칼슘이온의 용해도, 반응속도, 물의 증기압, 황산칼슘 결정의 조성, 인산의 부식성등에 영향을 미친다. 온도가 지나치게 낮으면 안정된 거품이 생겨서 여과 속도가 크게 떨어지며 온도가 너무 높으면 코팅 현상이 일어나게 된다.

3. 인광석 반응공정의 모사

3.1. 모사방법

화학공정의 모사는 대상 공정에 대한 모델링과 주요 변수의 변화에 따른 sensitivity 규명으로 이루어 진다. 화학공정의 모델링은 대상 공정을 미분 방정식과 대수 방정식들을 이용하여 수학적으로 표현하는 것을 의미하는데 공정의 정상상태 조업 하에서는 공정 모델은 일련의 다변수 대수 방정식들만으로 이루어 진다.

본 연구에서 다루고 있는 인산 반응공정의 경우 gypsum 결정의 형성과정 및 반응액 중 slurry의 함량이 매우 중요한 요소이며 이들은 각각 일반 미분 방정식과 적분식 및 대수 방정식으로 주어진다.

화학공정의 실제 모사에 있어서는 기존의 개발되어 시판되고 있는 모사 tool package 를 활용하는 것이 일반적이다. 이들 가운데는 ASPEN PLUS, PROCESS, FLOWTRAN, PRO-II 및 DESIGN-II 등 주로 석유화학

(표 1) 반응공정모사 소모 data

Item	Value
황산의 농도	98 %
Slurry 고체함량	25 % (by volume)
Slurry 액상중의 인산농도	30 % (by wt.)
Gypsum의 비중	2.32 ton/m ³
Filter cake의 수분함량	27 %

공정을 대상으로 하는 다양한 범용성 모사 package 들을 들 수 있는데 이들은 실제로 널리 활용되고 있다. 그러나 인산 반응공정의 경우 반응과정의 복잡성과 주요 조업사항들이 조업 현장에서의 경험적 지식에 의해 결정되기 때문에 이를 위한 범용성 상용 모사 tool package는 아직 개발되어 있지 않은 실정이다.

따라서 본 연구에서는 구성된 반응공정의 모델식을 C와 C++ 언어를 사용하여 프로그램 함으로써 인산 반응공정의 모사 시스템을 구성하였다. 또한 이미 앞에서 언급한 바와 같이 반응공정의 주요 조업들이 경험에 의해 이루어 지고 있기 때문에 공정 조업의 실질적인 모사를 위해서는 모델식에 의한 sensitivity 연구 이외에도 경험적 조업 지식을 바탕으로 하는 전문가 시스템의 도입이 필수적이다. 따라서 본 연구에서는 시판되어 활용되고 있는 NEXPERT 전문가 시스템 tool을 이용하여 반응공정의 지식 베이스를 구축하여 모사에 적용하고자 하였다.

반응공정의 수식모델에 의한 모사 시스템은 NEXPERT에서 지식 베이스와 자연스럽게 상호 연결될 수 있어서 전체적인 모사 시스템의 구축에서는 NEXPERT에서 제공하는 사용자 interface를 바탕으로 지식 베이스로부터 모델식에 근거한 모사 시스템을 호출하거나 또는 용도에 따라 지식 베이스나 모사 프로그램 만을 단독으로 활용할 수 있도록 하였다.

현재까지 반응공정의 수학적 모델의 구현 및 이의 프로그램 화에 의한 모사 시스템 구축이 완료되었고 이와 별도로 인산공장 조업현장의 조업 기술자와의 인터뷰를 통한 조업지식 베이스의 구축이 이루어 졌다. 이들 두 시스템은 NEXPERT 전문가 시스템 tool 내에서 서로 자연스럽게 조합될 수 있는데 현재 이에 대한 작업이 진행중이다.

3.2. 반응공정의 모사

인광석 반응공정은 인광석의 성분에 따라 조업조건을 달리 하여야 한다. 인광석의 성분은 광석의 원산지에 따라 다른 분포를 보이는데 대개는 서로 다른 산지의 광석을 일정 비율로 섞어서 쓴다. 따라서 인광석 반응공정의 이상적인 조업 진단을 위해서는 인광석의 성분 변화에 따른 조업 과정을 모사함으로써 주요 조업변수의 성분에 따른 변화 경향을 파악하는 일이 매우 중요하다. 반응공정의 모사에 있어서 규명하여야 하는 주요 변수들은 다음과 같다:

- 1) Slurry 중의 liquid phase의 비중
- 2) 반응에 의한 P₂O₅의 총 회수율
- 3) 여과과정 후의 P₂O₅ 회수율
- 4) 인광석 주입량
- 5) 황산 주입량
- 6) Gypsum cake 생성량
- 7) 생성되는 slurry 양
- 8) 재순환되는 인산량
- 9) 물 증발량
- 10) 소요되는 물의 양
- 11) 생성되는 인산의 양

한편 반응공정의 모사에 있어서 미리 주어지거나 정해 주어야 할 변수들은 표 1에 보인 바와 같다. 반응공정의 모사는 플로리다산 인광석(BPL = 68)과 요르단산 인광석(BPL = 75.9), 남아프리카산 인광석(BPL = 87.5), 그리고 중국산 인광석(BPL = 72.9)에 대해서 수행하였다. <표 2>는 이들 각 인광석의 성분분석 결과를 정리한 것이며 표 3 - 6에 이들 인광석을 사용한 반응공정의 모사 결과가 각각 나타나 있다.

모사결과로부터 인광석 1톤당 인산 생산량은 남아프리카산 인광석이 가장 높음을 알 수 있다. 그러나 남아프리카산 인광석의 경우에는 재순환 산의 양과 재공급시켜야 할 산의 양이 다른 인광석의 경우보다 많은데 이는 소요되는 펌프의 능력이 커짐을 의미하므로 동력비와 부대비용을 감안할 때 남아프리카산 인광석을 쓰는 것이 최선은 아님을 알 수 있다. 특히 고려해야 할 점은 석고의 생산량이다. 인산공장에서 부산물로 생산되는 석고는 극히 일부는 석고보드 등의 건축재료로 활용되기도 하지만 대부분은 그대로 폐기된다. 석고 중에는 불소, 유황등 환경을 오

(표 2) 인광석 성분분포

(단위 : wt.%)

성분	인광석 원산지			
	Florida	Jordan	S.Africa	China
P ₂ O ₅	31.26	34.70	40.00	33.38
CaO	45.56	50.60	54.50	43.65
SO ₃	0.90	1.39	0.17	0.00
CO ₂	3.67	4.14	0.46	0.00
F	3.70	2.77	1.51	1.81
Fe ₂ O ₃	1.44	0.18	0.21	1.43
Al ₂ O ₃	1.26	0.17	0.04	1.36
SiO ₂	9.55	1.94	0.40	9.23
Na ₂ O	0.22	0.73	0.11	0.32
K ₂ O	0.15	0.15	0.03	0.15
MgO	0.37	0.20	0.58	0.32
Cl	0.01	0.02	0.04	0.02
organ. water	0.75	0.75	0.75	0.75
	1.80	1.04	1.90	5.83

(표 3) 인광석 반응모사 결과 (플로리다산 인광석)

DIGESTER OPERATION : steady-state	
FEED ROCK : Florida, 68BPL	
BASIC DATA AND ASSUMPTIONS :	
Feed sulfuric acid : 98percent(wt.)	
Solid content of slurry : 25percent(vol.)	
P2O5 conc. in liq. phase : 30percent(wt.)	
Gypsum density : 2.32ton/cu.m.	
Water content of cake : 27percent(wt.)	
Slurry temperature : 72deg.C	
SIMULATION RESULTS :	
Feed materials :	
Phosphate rock = 3.5472 (ton rock/ton P2O5 produced)	
Sulfuric acid = 0.8067 (ton acid/ton rock)	
Filter = 1.4858 (cu.m/ton rock)	
Product :	
Acid produced = 0.9397 (ton P2O5/ton rock)	
Gypsum cake = 1.4688 (ton/ton rock)	
Process flow :	
Recycled acid = 1.6321 (cu.m/ton rock)	
Return acid = 6.7403 (ton/ton rock)	
Water evap'd = 0.3116 (ton/ton rock)	

염시키는 물질들이 함유되어 있어서 석고를 그대로 야적해 두면 환경오염 문제가 발생한다. 인광석 1톤당 부산물

(표 4) 인광석 반응모사 결과 (요르단산 인광석)

DIGESTER OPERATION : steady-stat	
FEED ROCK : Jordan, 75.9BPL	
BASIC DATA AND ASSUMPTIONS :	
Feed sulfuric acid : 98percent(wt.)	
Solid content of slurry : 25percent(vol.)	
P2O5 conc. in liq. phase : 30percent(wt.)	
Gypsum density : 2.32ton/cu.m.	
Water content of cake : 27percent(wt.)	
Slurry temperature : 72deg.C	
SIMULATION RESULTS :	
Feed materials :	
Phosphate rock = 3.1941 (ton rock/ton P2O5 produced)	
Sulfuric acid = 0.8960 (ton acid/ton rock)	
Filter water = 1.6620 (cu.m/ton rock)	
Product :	
Acid produced = 1.0436 (ton P2O5/ton rock)	
Gypsum cake = 1.5517 (ton/ton rock)	
Process flow :	
Recycled acid = 1.7081 (cu.m/ton rock)	
Return acid = 7.1239 (ton/ton rock)	
Water evap'd = 0.3463 (ton/ton rock)	

석고의 생산량은 역시 남아프리카산 인광석이 가장 많음을 모사 결과로부터 알 수 있다.

각 원산지별 인광석을 일정비율로 섞어 쓰는 문제도 생각할 수 있는데 인광석 원산지까지의 거리에 따른 운송비용 및 원광석 가격등 수반되는 사항들이 많으므로 추후 고려해 볼 문제이다. 인산제조공장의 최적 조업조건을 완벽하게 구하기 위해서는 비용을 산출하는 목적함수를 구성하여 최적화 작업을 실시해야 하는데 이는 공장에서의 단가 및 제반비용 산출작업이 이루어 지는 대로 향후 수행될 것이다.

4. 인광석 반응공정의 지식베이스

4.1. 반응기의 주요 조업인자

인광석 용해반응에서 반응 효율을 좌우하는 가장 중요한 인자는 반응기 온도와 황산의 농도이다. 반응기의 온도에 변화가 있을 경우, 특히 온도가 기준치 이하로 떨어질 경우 그 요인들은 다음과 같이 분석해 볼 수 있다.

〈표 5〉 인광석 반응모사 결과 (남아프리카산 인광석)

DIGESTER OPERATION : steady-state
FEED ROCK : South Africa, 87.5BPL
BASIC DATA AND ASSUMPTIONS :
Feed sulfuric acid : 98percent(wt.)
Solid content of slurry : 25percent(vol.)
P2O5 conc. in liq. phase : 30percent(wt.)
Gypsum density : 2.32ton/cu.m.
Water content of cake : 27percent(wt.)
Slurry temperature : 72deg.C
SIMULATION RESULTS :
Feed materials :
Phosphate rock = 2.7529 (ton rock/ton P2O5 produced)
Sulfuric acid = 0.9666 (ton acid/ton rock)
Filter water = 1.8930 (cu.m/ton rock)
Product :
Acid produced = 1.2109 (ton P2O5/ton rock)
Gypsum cake = 1.6616 (ton/ton rock)
Process flow :
Recycled acid = 1.8011 (cu.m/ton rock)
Return acid = 7.6162 (ton/ton rock)
Water evap'd = 0.3736 (ton/ton rock)

〈표 6〉 인광석 반응모사 결과 (중국산 인광석)

DIGESTER OPERATION : steady-state
FEED ROCK : China, 72.9BPL
BASIC DATA AND ASSUMPTIONS :
Feed sulfuric acid : 98percent(wt.)
Solid content of slurry : 25percent(vol.)
P2O5 conc. in liq. phase : 30percent(wt.)
Gypsum density : 2.32ton/cu.m.
Water content of cake : 27percent(wt.)
Slurry temperature : 72deg.C
SIMULATION RESULTS :
Feed materials :
Phosphate rock = 3.2886 (ton rock/ton P2O5 produced)
Sulfuric acid = 0.7747 (ton acid/ton rock)
Filter water = 1.4313 (cu.m/ton rock)
Product :
Acid produced = 1.0136 (ton P2O5/ton rock)
Gypsum cake = 1.4165 (ton/ton rock)
Process flow :
Recycled acid = 1.5421 (cu.m/ton rock)
Return acid = 6.3594 (ton/ton rock)
Water evap'd = 0.2993 (ton/ton rock)

- 1) 반응기 내의 인광석 분해속도가 낮아지는 경우 온도가 저하된다.
 - 2) 재순환 반응 slurry의 온도가 낮을 경우 반응기 온도가 떨어진다.
 - 3) 재순환 인산의 온도가 낮을 경우 반응기 온도가 저하되며 이 경우에는 재순환 인산 탱크로 steam을 공급해 준다.
 - 4) 반응기로부터 유출되는 exhaust gas의 양이 과다할 경우 반응기 온도가 저하되는데 이 경우에는 반응기의 damper의 유출구를 조정해 준다.
 - 5) 반응기 slurry의 온도는 vacuum cooler로부터 재순환되는 냉각 slurry의 온도에 따라 큰 영향을 받으므로 vacuum cooler의 압력을 조절해 줌으로써 반응기 온도를 조절한다.
- 한편 인광석 반응기 내 반응액 중의 황산의 양은 인광석의 정상적인 분해반응과 여과성이 좋은 결정의 형성에 큰 영향을 미치기 때문에 조업범위 내에서 정확하게 조절되어야 한다. 반응기 내에서 황산농도가 변동을 보이는 요인을 분석해 보면 다음과 같다.

- 1) 재순환 인산중의 황산 함량이 기준치를 벗어난 경우
 - 2) 재순환되는 반응 slurry 중의 황산 함유량이 기준치를 벗어난 경우
 - 3) 인광석의 분쇄 정도가 달라지는 경우
 - 4) 인광석 주입 및 산의 주입비율에 착오가 야기된 경우
- 반응기의 온도와 황산 함유량 이외에도 인광석의 반응에 있어서 특히 고려해야 할 사항은 생성인산의 농도와 반응 slurry 중의 고체 함량이다. 생성 인산의 농도가 원하는 값을 유지하는 지를 조사하는 것은 이후의 농축 및 최종제품의 품질 관리를 위해 필수적이며 반응 slurry 중의 고체 함량의 조절은 여과기로의 slurry feed 주입량의 일정화와 각 반응기 내에서의 체류시간 조정을 위해서 필요하다.

4.2. 지식베이스의 구성

화학공정에서의 지식베이스 구성에 대해서는 여러 다양한 공정들에 대해서 많은 연구 결과들이 나와 있다([2]-

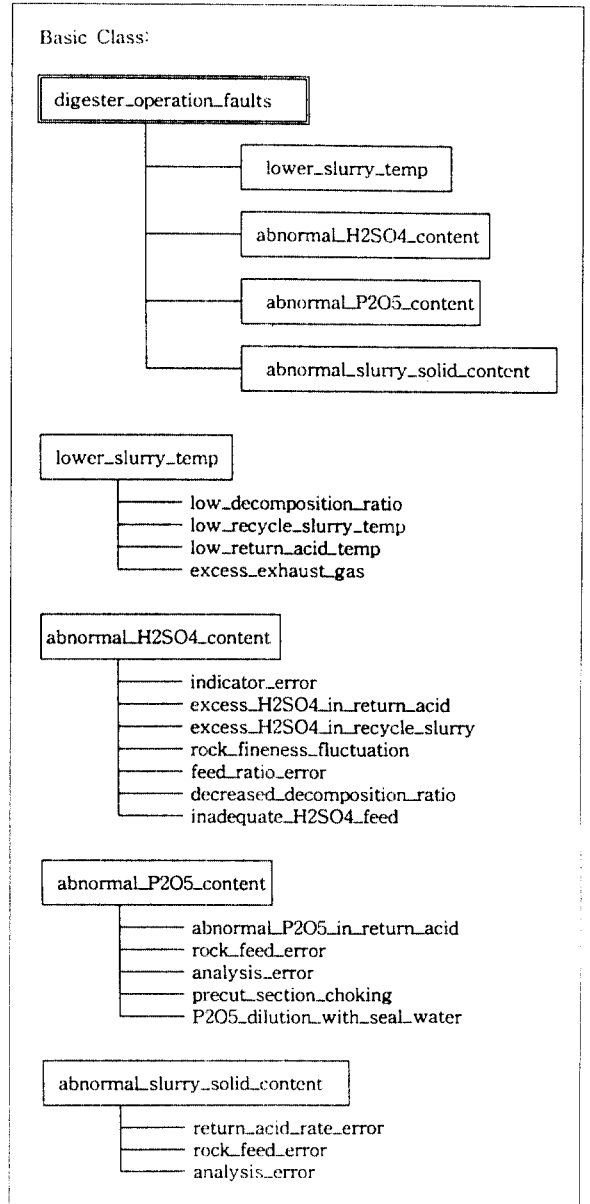
[5]). 인산반응공정의 조업을 위한 전문가 시스템에서 지식베이스는 남해화학 인산공장 조업현장의 숙련된 전문 조업기술자들과의 인터뷰와 공장에 축적되어 있는 조업지식들을 근거로 하여 작성되었다. 정리된 조업사항 및 조업지식들을 NEXPERT Object의 class object 형식으로 정리해 보면 다음과 같다.위에서 “——”로 나타낸 box는 basic class를 의미하며 “——”로 나타낸 box는 공정의 이상증상 class를 의미한다. 각각의 이상 증상에 대해서 공정 조업자가 취해야 할 correction action은 전문 조업기술자의 조업경험 및 조업사항에 따라 IF-THEN Rule 형태의 지식 베이스로 구성할 수 있는데 부록에는 대표적인 22개의 rule 들을 소개하였다. Rule의 작성 및 편집은 NEXPERT Object 전문가 시스템 도구의 기능을 활용하였다.

5. 결론

인산제조공정은 크게 인광석 분쇄공정과 반응공정으로 나누어 볼 수 있다. 인광석 분쇄공정에 대한 모사연구는 현재 진행중이며 본 연구에서는 인광석 반응공정을 대상으로 모사연구를 수행하여 주요 조업변수의 영향에 대한 분석이 조업 현장에서 가능하도록 하였다. 현재까지 반응공정의 수학적 모델의 구현 및 이의 프로그램 화에 의한 모사 시스템 구축이 완료되었다. 인광석 반응공정의 조업 특성상 경험에 의존하는 부분이 많기 때문에 전문가 시스템을 도입하여 모사 시스템을 구성하는 것이 조업 현장에서의 활용에 도움이 될 것이다. 본 모사연구에서는 NEXPERT Object 전문가 시스템 작성도구를 사용하여 실제의 조업자료와 조업자의 경험적인 조업 지식을 바탕으로 IF-THEN rule의 형식으로 지식 베이스를 구성하였다.

반응공정의 수식모델에 의한 모사 시스템은 NEXPERT에서 지식 베이스와 자연스럽게 상호 연결될 수 있어서 전체적인 모사 시스템의 구축에서는 NEXPERT에서 제공하는 사용자 interface를 바탕으로 지식 베이스로부터 모델식에 근거한 모사 시스템을 호출하거나 또는 용도에 따라 지식 베이스나 모사 프로그램 만을 단독으로 활용할 수 있도록 하였다.

반응공정의 모사 결과 인광석의 원산지에 따른 인산의 생산량과 소요 황산량 및 부산물인 석고의 산출량을 얻을 수 있었는데 남아프리카산 인광석의 경우 인산 생산량은



많으나 환경오염 문제를 유발시키는 석고의 산출량 또한 가장 많음을 알 수 있었다. 원산지에 따른 인광석의 선택 문제는 거리 및 수입가격등 수반되는 요인이 많으므로 좀 더 연구되어야 할 사항이다. 반응공정의 모사 프로그램은 지식 베이스의 rule 들과 결합되어 조업자가 필요에 따라

주요 조업변수의 변동에 따른 상황을 미리 예측하여 볼 수 있으며 해당 rule의 수행시 자동적으로 관련 변수의 모사 결과를 제시하여 주므로 공정 이상의 진단이나 주요 조업상황의 검지가 매우 효과적으로 이루어 질 수 있다.

참고문헌

- [1] P. Becker, Phosphates and Phosphoric Acid, Dekker, New York, 1989.
- [2] J. F. Davis, "A Task-Oriented Framework for Diagnostic and Design Expert System", FOCAP0-87, July 5-10, Utah, 1987.
- [3] R. Milne, "Artificial Intelligence for Online Diagnosis", IEE Proc., Vol.134, Pt.D, No.4, 238-244 (1987).
- [4] S. K. Shum, J. F. Davis, W. F. Punch III, and B. Chandrasekaran, "An Expert System Approach to Malfunction Diagnosis in Chemical Plants", Comput. Chem. Eng., Vol.12, No.1, 27-36 (1988).
- [5] T. S. Ramesh, S. K. Shum, and J. F. Davis, "A Structured Framework for Efficient Problem Solving in Diagnostic Expert Systems", Comput. Chem. Eng., Vol. 12, No.9/10, 891-902 (1988).

부 록 : 인광석 반응공정 지식베이스

Rule: digester—operation—faults

IF lower—slurry—temp is true,

THEN digester—operation—faults is true.

Rule: 1

IF low—decomposition—ratio is true,

THEN lower—slurry—temp is true

AND lower—slurry—temp.cause is "decomposition ratio in digester I is low"

AND lower—slurry—temp.correction is "check the slurry fluidity and rock fineness"

Rule 2:

IF low—recycle—slurry—temp is true,

THEN lower—slurry—temp is true

AND lower—slurry—temp.cause is "the temperature of recycle slurry is low"

AND lower—slurry—temp.correction is "check the slurry temperature of digester II"

Rule 3:

IF low—return—acid—temp is true,

THEN lower—slurry—temp is true

AND lower—slurry—temp.cause is "the temperature of return acid is low"

AND lower—slurry—temp.correction is "supply steam to return acid tank"

Rule 4:

IF excess—exhaust—gas is true,

THEN lower—slurry—temp is true

AND lower—slurry—temp.cause is "excessive exhaust gas from digester I"

AND lower—slurry—temp.correction is "adjust the opening of damper"

Rule 5:

IF abnormal—H₂SO₄—content is true,

THEN digester—operation—faults is true

Rule 6:

IF indication—error is true,

THEN abnormal—H₂SO₄—content is true

AND abnormal—H₂SO₄—content.cause is "error in indicator" AND abnormal—H₂SO₄—content.correction is "check each flow meter"

Rule 7:

IF excess—H₂SO₄—in—return—acid is true,

THEN abnormal—H₂SO₄—content is true

AND abnormal—H₂SO₄—content.cause is "H₂SO₄ content in return acid is too high"

AND abnormal—H₂SO₄—content.correction is "check H₂SO₄ content of hydration tank"

Rule 8:

IF excess—H₂SO₄—in—recycle—slurry is true,
 THEN abnormal—H₂SO₄—content is true
 AND abnormal—H₂SO₄—content,cause is “H₂SO₄ content in recycle slurry is too high”
 AND abnormal—H₂SO₄—content,correction is “adjust flow rate of recycle slurry”

Rule 9:

IF rock—fineness—fluctuation is true,
 THEN abnormal—H₂SO₄—content is true
 AND abnormal—H₂SO₄—content,cause is “there is fluctuation in rock fineness”
 AND abnormal—H₂SO₄—content,correction is “analyse ground rock and adjust mill operation time”

Rule 10:

IF feed—ratio—error is true,
 THEN abnormal—H₂SO₄—content is true
 AND abnormal—H₂SO₄—content,cause is “error in rock feed ratio”
 AND abnormal—H₂SO₄—content,correction is “correct and repair rock weigher”

Rule 11:

IF decreased—decomposition—ratio is true,
 THEN abnormal—H₂SO₄—content is true
 AND abnormal—H₂SO₄—content,cause is “decomposition ratio in digester is decreasing”
 AND abnormal—H₂SO₄—content,correction is “check condition of agitator and acid mixer”

Rule 12:

IF inadequate—H₂SO₄—feed is true,
 THEN abnormal—H₂SO₄—content is true
 AND abnormal—H₂SO₄—content,cause is “error in flow rate of H₂SO₄ feed”
 AND abnormal—H₂SO₄—content,correction is “adjust H₂SO₄ flow rate to digester II”

Rule 13:

IF abnormal—P₂O₅—content is true,
 THEN digester—operation—faults is true

Rule 14:

IF abnormal—P₂O₅—in—return—acid is true,
 THEN abnormal—P₂O₅—content is true
 AND abnormal—P₂O₅—content,cause is “P₂O₅ content in return acid is fluctuating”
 AND abnormal—P₂O₅—content,correction is “check density of return acid”

Rule 15:

IF rock—feed—error is true,
 THEN abnormal—P₂O₅—content is true
 AND abnormal—P₂O₅—content,cause is “abnormal rock feed rate”
 AND abnormal—P₂O₅—content,correction is “check zero point and calibrate rock weigher”

Rule 16:

IF analysis—error is true,
 THEN abnormal—P₂O₅—content is true
 AND abnormal—P₂O₅—content,cause is “error in analysis”
 AND abnormal—P₂O₅—content,correction is “repeat analysis of same sample”

Rule 17:

IF precut—section—choking is true,
 THEN abnormal—P₂O₅—content is true
 AND abnormal—P₂O₅—content,cause is “choking of precut section in filter”
 AND abnormal—P₂O₅—content,correction is “inspect the scaling condition of filter”

Rule 18:

IF P₂O₅—dilution—with—seal—water is true,
 THEN abnormal—P₂O₅—content is true
 AND abnormal—P₂O₅—content,cause is “dilution of

P2O5 content with seal water for pumps”

AND abnormal—P2O5—content,correction is “inspect seal of pump”

Rule 19:

IF abnormal—slurry—solid—content is true,
THEN digester—operation—faults is true

Rule 20:

IF return—acid—rate—error is true,
THEN abnormal—slurry—solid—content is true
AND abnormal—slurry—solid—content,cause is “error of flow rate of return acid”
AND abnormal—slurry—solid—content,correction is “check flow meter and correct”

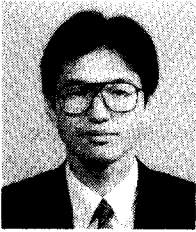
Rule 21:

IF rock—feed—error is true,
THEN abnormal—slurry—solid—content is true
AND abnormal—slurry—solid—content,cause is “error of flow rate of phosphate rock”
AND abnormal—slurry—solid—content,correction is “check zero point and calibrate rock weigher”

Rule 22:

IF analysis—error is true,
THEN abnormal—slurry—solid—content is true
AND abnormal—slurry—solid—content,cause is “error in analysis”
AND abnormal—slurry—solid—content,correction is “repeat analysis of sample”

● 저자소개 ●



여영구

1979년 8월 서울대학교 화학공학과 졸업(공학사)
1982년 2월 서울대학교 대학원 화학공학과 졸업(공학석사)
1986년 9월 Auburn대학교 화학공학과 졸업(공학박사)
1987년 1월~1992년 2월 한국과학기술연구원 선임연구원
1992년 3월~1993년 2월 한국과학기술연구원 책임연구원
1993년 3월~현재 한양대학교 화학공학과 조교수
관심분야: 공정제어 및 모사, 공정최적화, 공정인공지능