

회분식 반응 증류탑의 프로필 위치 제어

Profile Position Control of Reactive Batch Distillation Column

임 채 용, 한 명 완
(Chaeyong Lim and Myungwan Han)

Abstract : A new control scheme is proposed for the control of reactive batch distillation (RBD) column. A nonlinear wave model captures the essential dynamic behavior of the RBD process. The proposed control scheme is based on both Generic Model Control (GMC) and nonlinear wave model. The control scheme uses a profile position of the column as a controlled variable. Ethanol esterification process using RBD is chosen as an example process. Tight control of the distillate purity is obtained with the use of the proposed control scheme.

Keywords : generic model control, reactive batch distillation, nonlinear wave model

I. 서론

최근 화학공업분야에서 화학 반응을 일으키는 혼합물의 증류가 널리 사용되고 있다. 원하는 생성물이 어떤 복합반응의 중간 생성물이거나 가역반응이 일어나서 생성물을 연속적으로 제거해야만 높은 전환율을 얻을 수 있는 경우 반응에 의해 생성되는 물질들을 증류에 의해 분리해냄으로써 반응과 증류의 두 가지 조작을 동시에 수행하는 공정을 반응 증류라고 한다. 이러한 반응 증류는 비점이 비슷한 혼합물들의 분리에 유용하게 쓰일 수 있다. 이 경우 혼합물의 구성 성분들의 비점이 서로 비슷하여 증류로 분리하기 어렵기 때문에 제 3의 물질을 첨가하여 혼합물의 일부 성분과 반응시켜 비점의 차가 큰 생성물을 만들어 증류에 의한 분리가 용이하게 한다. 여러 가지 혼합물로부터 에스테르화 반응을 동반한 생성물의 수율을 높이기 위한 에스테르화 반응/분리 공정이 석유화학 산업에서 사용되고 있다[1].

화학적 반응이 있거나 없는 회분식 증류는 고부가가치 제품의 소량 단품종 생산에 적합하다. 화학반응이 있는 증류는 한 생성물이 다른 생성물과 반응물보다 더 낮은 끓는점을 갖는 공정에 잘 맞는다. 그러나, 회분식 반응 증류와 같은 회분식 공정은 반응과 증류가 동시에 일어나기 때문에 둘간의 상호 간섭에 의해 기존의 반응기나 보통 증류탑에서 볼 수 없는 복잡한 거동을 보여준다[2]. 많은 연구들이 반응증류탑의 조업면에서 기본적인 열역학과 반응속도를 이해하기 위해서 행하여졌다. 그러나, 반응증류탑의 제어에 대해서는 연구들이 별로 이루어지지 않았다. 최근의 연구결과[2]에서 반응증류탑의 탑상농도를 일정하게 제어하는 것은 최적조업결과[3]와 거의 유사한 고무적인 결과를 보여주었다. 회분식 반응 증류탑에 대해 Cuille과 Reklaitis[4]는 효과적인 수학적 모사 전략을 설계하였고 Reuter 등[5]과 Sorensen과 Skogestad-[6]는 다양한 제어 전략을 분석하였다. Wajge과 Rekalitis[7][8]는 회분식 반응 증류 조작의 최적화를 위해 효과적인 구조를 제안하였다. Kumar과 Daoutidis[9]는 연속

식 반응증류탑의 제어를 위한 미분·대수 방정식의 기틀을 마련하였다. 반응 증류탑은 매개변수들에 대한 민감도, 동적 불안정성, 비선형 파동 현상등의 물리화학적 현상이 다양하여 제어하기 어렵다.

증류탑의 동적거동은 탑 안에서 농도나 온도 프로필이 일정한 형태를 유지하면서 이동하는 것으로 특징지워진다. 비선형 파동은 공간좌표를 따라 일정한 이동 속도와 일정한 형태를 가지고 움직인다[10]. Hwang[11]은 환류와 재비기의 효과를 포함하는 이성분 증류탑의 동적거동과 비선형 파동 모델을 제안했다. Han과 Park[12][13]은 비선형 파동 모델에 근거한 제어기를 개발하여 여러 증류탑에 적용하였다.

본 연구에서는 공정의 비선형성을 파악하는 차수 감소 모델인 비선형 파동 모델을 적용하여 모델근거제어계를 구성하였다. 비선형 파동 모델과 Generic Model Control(GMC)를 결합하여 제어 시스템을 구성하였으며 이 제어 시스템은 반응 증류탑의 프로필 위치를 제어할 수 있다. 이 제어 시스템을 회분식 반응 증류탑에 적용하여 일정한 탑상 농도를 유지하도록 하였다. 또한, 제안된 제어계의 성능 비교를 위해 여러 가지 기존의 비례미분제어기와 비교하였다.

II. 반응 증류탑 모델의 구성

그림 1에 회분식 반응증류탑에 대한 개략도를 나타내었다. 모델은 물질수지식을 고려하고 액상 holdup과 액상에서의 반응을 포함한다. 그러나, 기상 holdup과 에너지수지는 무시하였다. 또한, 각 단은 완전혼합이 되고 상평형에 도달한다고 가정하였다. 계산상의 편의를 위해 단수는 탑정으로부터 응축기를 1단으로 재비기를 10단으로 하였다.

각 단에서 액체흐름의 수력학적 특성을 고려하기 위해 다음과 같은 선형화된 Francis weir 식을 사용하였다.

$$L_j = L_{0j} + \frac{M_j - M_{0j}}{\tau} \quad (1)$$

여기서, L_{0j} 와 M_{0j} 는 j단에서의 액체 유속 및 체류량의 설계치이며 τ 는 수력학적 시간 상수이다.

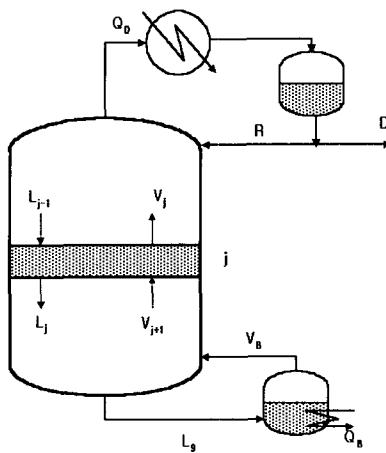


그림 1. 회분식 반응 증류탑의 구조.

Fig. 1. Schematic diagram of the reactive batch distillation column.

표 1. 회분식 반응 증류에 사용된 에스테르화 입력 데이터.

Table 1. Input data for esterification using reactive batch distillation.

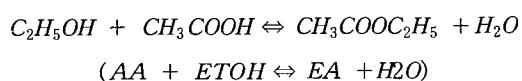
No. of ideal separation stages	8
Initial composition(mole fraction)	0.22, 0.22, 0.28, 0.28
Vapor flowrate	2300 mol/h
M_B	5000 mol
M_j ($j=2, \dots, 9$)	12.5 mol
M_D	100 mol

표 2. 에스테르화 반응속도 데이터.

Table 2. Kinetic data for esterification.

Rate of reaction, gmol/(L · min) ; $r = k_1 C_{AA} C_{ETOH} - k_2 C_{EA} C_{H2O}$	
Reaction Constants (L/gmol · min)	
k_1	$29100 \exp(-7150/T(K))$
k_2	$7380 \exp(-7150/T(K))$

선택된 공정은 다음 반응식에 나타낸 바와 같이 에틸 아세테이트와 물을 생성하기 위해 에탄올과 아세트산이 반응하는 에스테르화 공정이다.



여기서 x_i 는 액상물분율이고 k_1 과 k_2 는 반응속도상수이다. 반응 속도식은 다음과 같이 주어진다.

$$R = k_1 x_{AA} x_{ETOH} - k_2 x_{EA} x_{H2O}$$

에탄올, 아세트알데히드, 에틸아세테이트 그리고 물의 끓는점은 각각 391.1, 351.5, 350.3, 373.2 K이고 AA를 기준으로 휘발도를 계산하면 $\alpha_{AA}=1 < \alpha_{H2O}=1.72 < \alpha_{ETOH}=3.9281 < \alpha_{EA}=4.0286$ 이다. 주요 생성물인 EA는

표 3. Antoine 식.

Table 3. Antoine equation.

Components	Antoine's Constants		
	A_p	B_p	C_p
Acetic Acid	8.02100	1936.010	258.451
Ethanol	8.11220	1592.864	226.184
Ethyl acetate	7.10179	1244.951	217.881
Water	8.07131	1730.630	233.426

혼합물 중에서 가장 낮은 끓는점을 갖고 결과적으로 휘발성이 가장 크다. 증류에 의한 이 생성물의 연속적인 제거는 정반응으로 화학 평형이 이동할 것이고 반응물의 전환율이 증가할 것이다. 탑의 형태를 정의한 자료, 원료, 원료의 구성 등은 표 1에 주어졌다. 반응속도 데이터는 표 2 각 물질의 증기압 계산을 위한 Antoine 상수들을 표 3에 나타내었다[14]. 본 모사에서는 기체 유속은 일정하다고 가정하고 조작변수로 환류 유속이 사용되었다. 산업적으로는 다음과 같이 기체 유속을 일정하게 할 수 있다. 즉, 다음 근사식에 나타낸 바와 같이 기체 유속은 탑의 양단에서의 압력차로 구할 수 있기 때문에 이 압력차를 일정하게 유지하도록 재비기의 가열량을 조정하면 기체 유속을 일정하게 할 수 있다.

$$p_N = p_0 + \epsilon \sum_{j=1}^N V_j^2$$

여기서, p_0 는 탑상 압력이고 p_N 은 N단의 압력이며 ϵ 는 실험적으로 결정되는 상수이다.

III. 제어기 설계

1. 프로필 위치 제어기 설계

비선형 파동 모델에 근거한 제어기 구성을 위해 다음과 같은 가정들을 도입하였다.

- 비슷한 상대휘발도를 갖는 성분을 합하여 유사이성 분계(x_{l_1}, x_{l_2})로 가정.

$$x_{l_1} = x_{EA} + x_{ETOH}$$

$$x_{l_2} = x_{AA} + x_{H2O} = 1 - x_{l_1}$$

· 반응평형.

· x_{l_1} 의 일정한 형태의 농도 프로필.

그림 2는 네 가지 성분을 두 성분(EA+ETOH, AA+H₂O)으로 축합하여 L=2150, V=2300 mol/h일 때 시간에 따른 탑의 농도 프로필의 동적인 변화를 나타낸 것이다.

그림 2에서 보듯이 회분식 반응 증류탑의 농도 프로필에 대한 동적거동은 비선형 파동 모델을 이용하여 잘 설명될 수 있다. 즉, 탑의 프로필은 공간좌표를 따라 일정한 형태를 가지고 움직인다.

증류탑에 존재하는 농도나 온도 프로필은 외란이나 제어동작에 의해 그 위치가 변화하게 된다. 그림 2에 나타난 바와 같이 프로필 위치는 탑상제품의 순도와 직접적

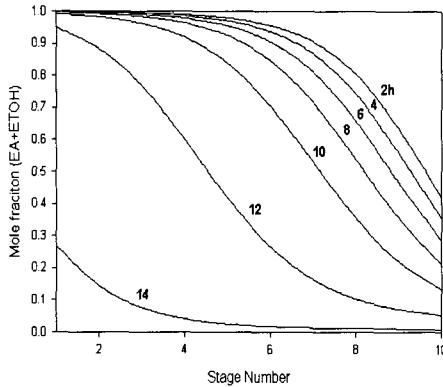


그림 2. 프로필의 시간에 따른 전파 (에틸아세테이트+에탄올).

Fig. 2. Propagation of column composition Profile (Ethyl acetate + Ethanol).

인 관계를 갖는다. 따라서, 프로필 위치 제어는 탑상제품 농도를 빠르게 안정화 시킬 수 있다. 이 제어기는 비선형 파동 모델을 generic model control이란 틀과 결합시켜 개발하였다. 또한, 이 프로필 위치를 추정할 수 있는 프로필 위치 관측기(observer)가 제안되었다.

GMC식은 프로필 위치 S 를 제어 변수로 하였을 때 다음과 같이 나타난다.

$$\frac{dS}{dt} = K_1(S^* - S) + K_2 \int_0^t (S^* - S) dt' \quad (2)$$

여기서, K_1 , K_2 는 tuning 상수, S 는 정규화된 프로필 위치 ($S=0$: 탑저, $S=1$: 탑정), S^* 는 설정치, dS/dt 는 프로필의 이동속도이다.

비선형 파동모델로부터 프로필의 이동속도[11]를 표현하면

$$\frac{dS}{dt} = u_A = \frac{V \frac{\Delta y}{\Delta x} - L}{1 + r(\frac{\Delta y}{\Delta x})} \quad (3)$$

여기서 $\Delta y/\Delta x$ 는 기액평형 곡선상의 대표농도에서 기울기이며, 대표농도는 (3)에서 u 가 0이 되는 농도이다[11].

(2)에 비선형 파동모델(3)을 대입하면 다음의 제어식을 얻는다.

$$\begin{aligned} & \frac{V \frac{\Delta y}{\Delta x} - L}{1 + r(\frac{\Delta y}{\Delta x})} - K_1(S^* - S) \\ & - K_2 \int_0^t (S^* - S) dt' = 0 \end{aligned} \quad (4)$$

프로필의 위치를 직접 측정할 수 없으므로 다음의 프로필 위치를 추정하는 관측기가 제안되었다.

$$\begin{aligned} \dot{S} = \frac{dS}{dt} = & \frac{V \frac{\Delta y}{\Delta x} - L}{1 + r(\frac{\Delta y}{\Delta x})} \\ & + \sum_{j=1}^m K_1(\hat{x}_j)(\hat{x}_j - x_j) \end{aligned} \quad (5)$$

$$\frac{\Delta y}{\Delta x} = \frac{\dot{S} + L}{V - r\dot{S}} \quad (6)$$

여기서, j 는 종류탑의 측정 단수이고 1은 처음 측정 단수, m 은 마지막 측정 단수이다. 프로필 위치 관측기는 (7)와 같이 대표농도 근처에서 선형의 프로필을 가진다고 가정한다. 따라서, 프로필 위치에 따라 각 단의 농도들이 계산될 수 있다.

$$\hat{x}_j = K_2(S_j - S) + x_s \quad (7)$$

여기서, S_j 는 j 단에 위치한 정규화된 거리, \hat{x}_j 는 j 단에서의 농도, x_s 는 대표농도이다. weighting factor $K_1(x_j)$ 은 다음과 같이 나타난다.

$$K_1 = K_0 \exp[-b(\hat{x}_j - x_s)^2] \quad (8)$$

여기서, K_0 는 weighting function의 이득이고 b 는 weighting의 범위이다. K_0 는 관측기가 공정보다 빠르게 움직일 수 있도록 정해져야 한다. 보다 자세한 내용은 Han과 Park[12][13]의 논문을 참조한다.

2. 농도/프로필 위치 다단 제어

프로필 위치가 탑내 어느 한 위치에 고정될 경우 원하는 제품 순도와 offset이 발생하므로 이를 제거하기 위하여 농도/프로필 위치 다단 제어가 도입되었다. 주 제어기인 농도 제어기는 다음과 같은 PI 정지형 제어기를 사용하였다.

$$p_n = \bar{p} + K_c [e_n + \frac{\Delta t}{\tau_I} \sum_{k=1}^n e_k] \quad (9)$$

Δt 는 샘플링 주기(피제어변수의 연속되는 샘플 사이의 시간), p_n 은 n 번째 샘플링 시점의 제어기 출력, e_n 은 n 번째 샘플링 시점의 오차이다.

IV. 결과 및 고찰

표 4와 표 5는 제안된 제어구조와 다른 제어구조의 매개 변수들을 나타내었다. 관측기의 K_0 는 공정보다 빠르게 움직일 수 있도록 하고 b 는 프로필의 모양을 고려하여 결정하였다. K_1 , K_2 는 Lee 와 Sullivan[15]의 조율규칙을 적용하였다. 즉, 다음과 같이 설정치에 대한 응답이 원하는 2차 전달함수의 형태로 나타나도록 하고 이를 구현하기 위한 K_1 값과 K_2 값을 계산하였다.

표 4. 제안된 제어구조의 매개변수들.

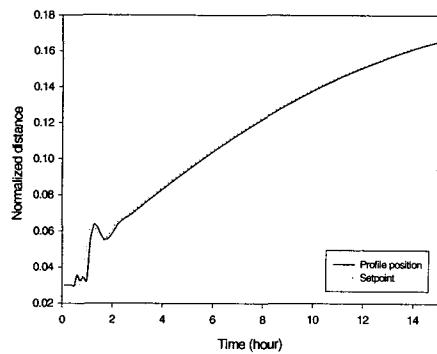
Table 4. Parameters for the proposed control scheme.

Estimator	$K_0 = 40.0$
	$b = 10.0$
GMC control constant	$K_1 = 2.0$
	$K_2 = 2.0$
PI control constant	$K_c = 2.0$
	$\tau = 0.3$

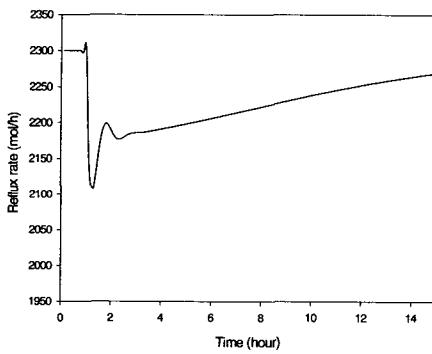
표 5. 다른 제어 구조의 매개변수들.

Table 5. Parameters for the other control schemes.

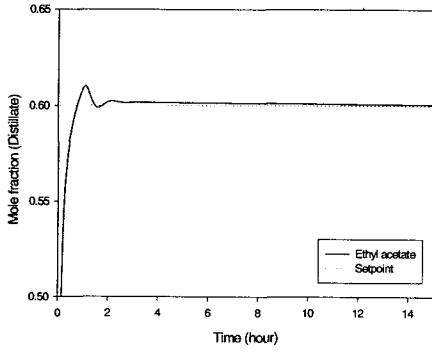
Distillate purity control	$K_c = 2000.0$
	$\tau = 1.0$
Tray temperature control	$K_c = 100.0$
	$\tau = 1.0$
Composition/temperature cascade control	$K_{c1} = 10.0$
	$\tau_1 = 1.0$
	$K_{c2} = 100.0$
	$\tau_2 = 1.0$



(a)



(b)



(c)

그림 3. 제안된 제어 방법. (a) 프로필 위치, (b) 환류 유속, (c) 탑상농도.

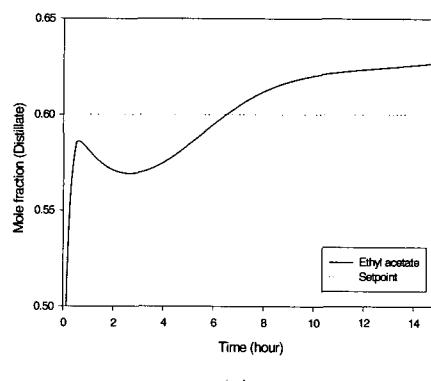
Fig. 3. Proposed control scheme. (a) Profile position, (b) Reflux rate, (c) Distillate concentration.

$$\frac{S}{S^*} = \frac{2\tau\xi s + 1}{\tau^2 s^2 + 2\tau\xi s + 1}$$

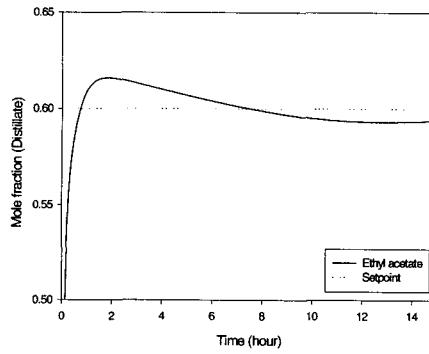
여기서, $\tau = \frac{1}{\sqrt{K_2}}$, $\xi = \frac{K_1}{2\sqrt{K_2}}$ 이다.

비교되는 각 PI 제어구조에 쓰인 제어이득은 시스템이 불안정해지는 값의 절반정도를 기준으로 하고 시행착오법을 사용하여 제어이득과 적분상수를 정하였다[10][12][13].

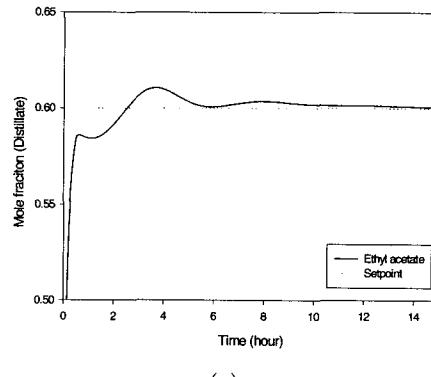
제안된 농도/프로필 위치 다단 제어구조가 프로필 위치를 조절하여 일정한 탑상농도를 갖도록 에스테르화 회



(a)



(b)



(c)

그림 4. 다른 제어 방법들. (a) 단온도제어기, (b) 탑상 농도제어, (c) 단온도/탑상농도다단 제어.

Fig. 4. The other control schemes. (a) Tray temperature control, (b) Distillate concentration control, (c) Tray temperature/composition cascade control.

분식 반응 증류탑에 적용하였다. 0.5시간 동안 전환류 시킨 후 제안된 제어구조를 사용하였다.

그림 3(a)에서 실선은 정규화된 프로필 위치로 탑상농도 주 제어기로부터 주어지는 설정치인 점선을 잘 추적하여 간다. 그림 3(b)의 조작변수인 환류 유속은 급격한 변화 없이 부드럽게 조작되는 것을 볼 수 있다. 그림 3(c)에서 보듯이 제안된 제어구조는 제품의 농도를 빠르게 안정화시켜 일정한 농도의 탑상제품을 생산할 수 있는 것을 볼 수 있다.

그림 4는 제안된 제어구조의 성능비교, 검토를 위한 것으로 PI 되먹임 제어를 이용하였으며 조작변수로 환류 유속이 사용되었다. (a)는 탑하부 8단의 온도를 일정하게 유지하게 한 것인데 예상대로 탑상제품에 offset이 나타나는 것을 볼 수 있다. (b)는 탑상의 EA의 농도를 조절하는 경우를 나타낸 것이다. (c)는 탑하부 8단의 온도를 제어하고 단온도제어기의 설정치를 탑상 농도 제어기가 조절하도록 한 것이다. 이들 결과들은 제안된 제어구조에 비하여 안정한 제어가 되지 않고 제품의 순도도 일정하지 않음을 알 수 있다.

V. 결론

비선형 파동 이론과 Generic Model Control에 근거한 프로필 위치 제어기를 에스테르화 회분식 반응 증류탑에 적용하였다. 이 공정의 동적 거동은 비선형 파동 이론에 의해 잘 나타낼 수 있다. 이 제어구조는 제어변수로 탑 안에서의 프로필 위치를 사용하였다. 프로필 위치 제어는 전체 탑을 빠르게 안정화 시켰으며 조작변수인 환류 유속도 급격한 변화 없이 부드러운 변이를 보여 주었다. 또한, 다른 일반적인 비례미분 제어기들보다 제품 농도를 빠르게 안정화 시켜 일정한 탑상 제품 농도를 유지시키는 것을 볼 수 있었다.

참고문헌

- [1] J. D. Seader and E. J. Henley, "Separation process principles", John Wiley & Sons, Inc., New York.
- [2] R. Monroy-Loperena and J. Alvarez-Ramirez, "Output-feedback control of reactive batch distillation columns", *Ind Eng. Chem Res.*, vol. 39, pp. 378-386, 2000.
- [3] I. M. Mujtaba and S. Macchietto, "Efficient optimization of batch distillation with chemical reaction using polynomial curve fitting techniques", *Ind Eng. Chem Res.*, vol. 36, pp. 2287-2295, 1997.
- [4] P. E. Cuille and G. V. Reklaitis, "Dynamic simulation of multicomponent batch rectification with chemical reactions", *Comput. Chem. Eng.*, vol. 10, pp. 389-398, 1986.
- [5] E. Reuter, G. Wozny, and L. Jeromin, "Modeling of multicomponent batch distillation processes with chemical reacton and their control systems", *Comput. Chem. Engng.*, vol. 13, pp. 449-510, 1989.
- [6] E. Sorensen and S. Skogestad, "Control strategies for reactive batch distillation", *J. Proc. Cont.*, vol. 4, pp. 205-217, 1994.
- [7] R. M. Wajge and G. V. Reklaitis, "Campaign optimization of multicomponent reactive batch distillation", *AICHE Spring Meeting*, New Orleans, LA, 1996.
- [8] R. M. Wajge and G. V. Reklaitis, "Design of optimal reflux policy for multicomponent reactive distillation in packed bed", *AICHE Annual Meeting*, Miami, FL, 1995.
- [9] A. Kumar and P. Daoutidis, "A DAE framework for modeling and control of reactive distillation columns", in *Symposium on Dynamics and Control of Chemical Reactors*, Distillation Columns, and Batch Processes, IFAC, 1995.
- [10] W. Marquardt, "Nonlinear model reduction for binary distillation", *IFAC symposium : DYCORD 86-Dynamics and Control of Chemical Reactors and Distillation Columns*, Bourne mouth, U. K., December, 1986.
- [11] Y. L. Hwang, "Nonlinear wave theory for dynamics of binary distillation columns", *AICHE J.*, vol. 37, no. 5, pp. 705-723, 1991.
- [12] M. Han and S. Park, "Control of high-purity distillation columns using a nonlinear wave theory", *AICHE J.*, vol. 31, no. 5, pp. 787-796, 1993.
- [13] M. Han and S. Park, "Startup of distillation columns using profile position control based on a nonlinear wave model", *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol. 38, pp. 1565-1574, 1999.
- [14] L. S. Balasubramhanya and F. J. Doyle III, "Nonlinear model-based control of a batch reactive distillation column", *Journal of Process Control*, vol. 10, pp. 209-218, 2000.
- [15] P. L. Lee, and G. R., Sulivan, "Generic model control", *Comput. Chem. Eng.*, vol. 12, pp. 573-580, 1988.

부록

I. 반응증류탑 모델에 사용된 가정들

- 기상 holdup 무시.
- 기상에서의 화학반응 무시.
- 탑의 초기상태는 반응이 없는 정상상태 전환류 조건.
- 각 단의 액상 holdup은 일정.
- 조업하는 동안 단의 압력강하와 탑의 효율은 일정.

II. 모델식

1. 응축기

$$\begin{aligned} \frac{dM_D}{dt} &= V_2 - L_1 - D + h_D \sum R_{D,i}(x_D, T_D) \\ \frac{d(M_D x_D)}{dt} &= V_2 y_2 - L_1 x_D - D x_D \\ &+ h_D R_D(x_D, T_D) \end{aligned}$$

2. 단 j, $2 \leq j \leq 9$

$$\begin{aligned}\frac{dM_j}{dt} &= V_{j+1} + L_{j-1} - V_j - L_j \\ &\quad + h_j \sum R_{j,i}(x_j, T_j) \\ \frac{d(h_j x_j)}{dt} &= V_{j+1} y_{j+1} + L_{j-1} x_{j-1} \\ &\quad - V_j x_j - L_j y_j + h_j R_j(x_j, T_j)\end{aligned}$$

3. 재비기

$$\begin{aligned}\frac{dM_B}{dt} &= L_9 - V_B + h_B \sum R_{B,i}(x_B, T_B) \\ \frac{d(M_B X_B)}{dt} &= L_9 x_9 - V_B y_B \\ &\quad + h_B \sum R_B(x_B, T_B)\end{aligned}$$

사용기호

D : overhead product flow rate

GMC : generic model control

K : GMC tuning constant

L : liquid flow rate

M : molar mass

PI : proportional-integral

R : vector of reaction rates

r : molar holdup ratio of vapor to liquid

T : thermodynamic temperature

t : time

u_d : normalized shock wave velocity

V : vapor flow rate

x : vector of mole fractions (liquid)

x_s : representative liquid mole fraction

y : vector of mole fractions (vapor)

α : relative volatility

* : setpoint

': derivative

^ : observer prediction

첨자

B = reboiler

D = condenser

i = component i

j = tray j

한명완

1982년 고려대 화학공학과 졸업. 한국 과학기술원 석사(1984), 한국과학기술원 박사(1993). 1997년~현재 충남대학교 화학공학과 교수. 관심분야는 프랜트제어 및 응용, 모델링.



임채용

1999년 군산대 화학공학과 졸업.
1999년~현재 충남대학교 화학공학과 석사과정. 관심분야는 프랜트제어 및 응용, 모델링.

