

원유증류공정의 최적 설계

1. 최적 원료 도입단의 결정

서정원 · 김석준 · 김경현 · 오 민*† · 이태희

연세대학교 화학공학과

*국립한밭대학교 화학공학과

(1999년 2월 23일 접수, 2000년 3월 24일 채택)

An Optimal Design of Crude Distillation Unit

Part 1. Determination of Optimal Feed Tray Locations

Jung Won Seo, Suk Joon Kim, Kyung Hyun Kim, Min Oh*† and Tae Hee Lee

Department of Chemical Engineering, Yonsei University, Seoul, Korea

*Department of Chemical Engineering, Hanbat National University, Taejon, Korea

(Received 23 February 1999; accepted 24 March 2000)

요약

원유 정제 산업에서 중요한 위치를 차지하고 있으며 에너지 소비량이 큰 원유증류공정을 대상으로 최적 설계를 수행하였다. 현재 상업가동 중인 150,000 BPSD의 원유증류공정 중 상압 증류탑과 경질 납사 안정기에 대한 수학적 모델을 만들고, 에너지 소비를 최소화 하도록 목적함수를 설정함으로써 MINLP 문제를 구성하여 이에 대한 해를 구하였다. 최적화작업을 통하여 최적 원료단과 상압 증류탑의 응축기 및 pumparound의 최적 용량을 얻을 수 있었다. 새로운 설계조건의 경우 탑내의 기액 흐름이 감소되었으며 따라서 증류탑의 크기를 줄일 수 있었다. 상압 증류탑과 안정기의 최적 원료단은 각각 34단과 14 단이었으며 상압 증류탑의 응축기 용량이 약 15% 정도 감소할 수 있음을 알 수 있었다. 또한 고온의 열을 회수 가능하게 하는 pumparound 용량을 약 37% 증가 시킬 수 있었다.

Abstract – As a crude distillation unit(CDU) is one of the important processes in refinery industries and consumes enormous energy, an optimal design of a CDU was attempted. The target CDU is under commercially operated and its capacity is 150,000 BPSD. The mathematical models for an atmospheric distillation column(ADC) and naphtha stabilizer were established and we formulated the objective function so as to minimize the energy consumption. The optimal feed locations of both the atmospheric distillation column and stabilizer were obtained by solving mixed-integer nonlinear programming problems. The optimal duties of condenser and pumparound in the ADC were determined by the optimization task. In the case of optimal design, vapor and liquid load was apparently decreased and the size of the ADC and the stabilizer was accordingly decreased. The optimal feed tray of ADC and stabilizer were 34 and 14 respectively, and the condenser duty of the ADC was decreased by the amount of 15% and the duty of pumparound, which permits heat recovery, was increased by the degree of 37%.

Key words: Optimal Design, Crude Distillation, Feed Tray, Simulation, MINLP

1. 서 론

원유 정제공업은 1857년 원유의 발견[1] 이래로 가장 중요한 산업 중의 하나로서, 각종 연료 및 석유화학 공정의 원료를 생산하고 있다. 산업화된 국가에서의 원유 수요는 1995년에 일일 42.2 백만 배럴에서 2015년에 일일 52.3 백만 배럴로 증가할 것으로 전망되며, 수요 증가 분의 대부분을 수송부문의 연료가 차지하고 있다[2]. 국내의 경우 Table 1에 보인 바와 같이 1990-1996년 사이에 연평균 12.5%의 비율로 원유 수요

가 점진적으로 증가하고 있는 추세이며, 1997년 말 현재 우리나라의 원유증류 설비규모는 일일 2,438천 배럴에 이른다[3].

원유증류공정은 원유 정제공업의 시작단계로서 보다 정확한 설계와 경제적인 운전은 양질의 저렴한 연료 생산을 위하여 필수적이다. 최근의 화학 공정에는 에너지 및 원료 비용의 절감 그리고 환경 규제에 대한 대응 등의 어려운 문제들이 점차 심화되고 있는 추세이다. 따라서 대외 경쟁력을 높이고 최대 이득을 얻을 수 있도록, 기존 공정의 설비 및 장치를 최대로 이용하면서 에너지 소비를 최소화 할 수 있는 운전 조건을 설정해 주어야 한다.

화학 공정은 단위 조작의 집합체로서, 원료 물질을 생성물로 효과적

†E-mail: minoh@hanbat.ac.kr

Table 1. Trends of petroleum demand in Korea

	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	Average annual growth rate
Gross consumption[10 ⁶ bbl]	356.3	424.7	514.2	546.6	621.5	677.2	721.2	-
Growth rate[%]	24.1	19.2	21.1	9.8	10.1	9.0	6.5	12.5

으로 전환하도록 이들이 적절히 배치되어 있다. 공정 및 공장 설계는 창조적인 작업으로서 아이디어를 개발하고 이를 장치와 공정에 적용하여 새로운 물질을 생산하거나 기존 물질의 가치를 현저하게 향상시키도록 하는 것이다[4]. 이러한 공정 설계 혹은 합성은 정해진 목적을 만족시키는 설계 변수의 결정 뿐 아니라 공정 흐름도의 구조나 형태를 선택하여야 하는 최적화 문제로 환원할 수 있다. 다시 말하면, 한편으로는 어떤 장치들이 필요하며, 이를 어떻게 연결할 것인가를 결정하여야 하고, 다른 한편으로는 각 장치들의 크기나 운전 조건들을 결정하여야 한다는 것이다. 전자는 불연속 결정 변수를 포함하고 있으므로 수학적으로 혼합정수 비선형 계획법(MINLP) 문제로 나타난다. 원유증류공정은 에너지 소비가 큰 공정으로 여러 가지 복합 공정으로 이루어져 있어 전체 시스템에 대한 정량적인 이해하기가 쉽지 않으며 따라서 최적화 작업에 여러 문제점을 가지고 있다. 현재까지 원유증류공정의 설계 및 운전의 수행은 엔지니어의 경험이나 제안된 설계 조건 혹은 공정 모사의 반복에 의하여 이루어진 것이 일반적이었다. 최근 공정 시스템 공학의 빠른 발전으로 공정의 전산 모사 및 최적화에 대한 연구가 활발히 이루어졌지만 Liebmann 등[5]이 지적하였듯이 원유증류공정에 대하여는 상대적으로 그 수가 적으며, 그 이유는 거대 정유회사 및 그 계약 회사들에 의하여 이 분야의 대부분의 기술이 공개되지 않기 때문이라 할 수 있다. 원유증류공정의 최적 설계 기술의 확보는 에너지 절감의 효과는 물론 기술적 독립이라는 면에서도 그 의미가 크다고 할 수 있다.

일반적으로 정상상태 증류공정에 대한 최적화 문제를 몇 가지 유형으로 나눌 수 있다[6]. 첫째, 최소 비용 혹은 최소 에너지 사용으로 원하는 성능을 이루기 위한 최적 운전 조건을 결정하는 문제이다. 보통 독립변수로는 도입 열, 냉각 흐름, 생성물 흐름 등이다. 원하는 성능이란 일반적으로 성분의 정해진 농도 혹은 원료로부터의 회수율을 나타내며, 이와 같이 구성된 최적화 문제는 비선형 계획법(NLP) 문제로 귀결된다. 두 번째 문제로는, 조작 조건 뿐 아니라 분리에 필요한 최소 단수의 결정을 포함하는 문제로 단은 불연속 변수이기 때문에 MINLP 문제가 된다. 이런 유형의 문제에서는 설치비와 운전비가 모두 고려되며, 단수 및 탑 내부의 유량 증가에 따라 설치비가 증가하는 반면 운전비는 어떤 시점까지는 감소하는 것이 일반적인 경향이다. 마지막으로, 단수와 원료 도입 단 및 증류 배출 단의 최적 위치를 구하는 문제로서 이 경우 역시 MINLP 문제이다.

본 연구는 기존 공정의 설비를 최대한 유지하면서 에너지나 비용을 최적화 하려는 테에 중점을 두고 있으므로, 앞에서 언급한 증류공정에 대한 설계 유형 중 첫번째와 세번째의 경우에 해당된다. 최적화 기법을 이용하여 증류탑의 원료 단 위치와 공정 전체에 대하여 원하는 성능을 발휘하기 위한 최적 운전 조건을 결정하고자 하였다. 대상 공정은 현재 운전되고 있는 150,000 BPSD 규모의 원유증류공정으로서 원유 예열공정, 상압증류탑, 경질나프타 안정기, 감압증류탑 등으로 구성된다. 전체 공정에 대한 최적 운전 조건의 결정에 관한 문제는 제2부[7]에서 다루었다.

원유증류공정의 체계적인 설계를 위하여 여러 방법에 의해 연구가 지속되어 왔으며[8-11] 최적화 기법을 이용하여 설계 문제를 해결하려는 최초의 노력 중의 하나는 Srygley와 Holland[12]에 의하여 수행되었다. 이 연구에서는 주어진 공정 조건으로부터 증류탑의 최소 단수를 결정하였다. Sargent와 Gaminibandara[13]는 공정 흐름도의 선택 문제를 처음으로 다루어, 주어진 분리를 효율적으로 하기 위한 최적 증류탑의 구

성 형태를 결정하는 보다 일반화된 문제를 해결하였다. 최적 원료 도입 단을 결정하기 위하여 Viswanathan과 Grossmann[14]은 MINLP 문제를 제안하여 몇 가지 증류탑에 적용하였으며, Seo 등[15]은 이를 원유증류탑에 적용하였다.

본 논문에서는 원유증류공정 최적설계의 일환으로 원유 증류공정 중의 상압 증류탑과 경질나프타 안정기의 최적 원료단을 결정하였다. 증류탑의 에너지 소비를 최소화 하도록 목적함수를 설정하고 증류탑에 대한 수학적 모델을 세워오면서 MINLP 문제를 구성하였다. 계산에 필요한 자료는 상업 가동중인 실제 공정의 자료를 이용하였다. 또한 본 연구의 계산 결과의 검증을 위하여 상용 모사기를 이용한 모사 결과와 비교하였다.

2. 최적화 기법

최적화 문제는 응용에 있어 화학공정 뿐 아니라 물리, 경영, 교통 등 여러 분야에서 적용되고 있지만 문제의 수학적인 구성 및 해법은 서로 상당히 비슷한 구조를 지닌다. 실제에 있어 이러한 유사성이 최적화 기법의 발달에 크게 기여하였다. 화학 공정의 체계적인 설계나 개선을 위하여 사용되는 최적화 기법 일반적으로 두 가지 문제 유형으로 나눌 수 있다. 하나는 NLP로서, 목적함수 혹은 제한조건이 문제 변수들의 비선형 연속함수로 구성되어 있다. 다른 한 가지는 앞의 첫번째 경우에 더하여, 장치의 유무 혹은 비연속적인 성질(예를 들어 증류탑의 단수)을 표현하는 정수 혹은 0과 1의 두 가지 값을 취할 수 있는 변수가 포함되는데 이를 MINLP라고 하며 일반적인 형태는 다음과 같다[16, 17].

$$\begin{aligned}
 \text{min}_{\mathbf{x}, \mathbf{y}} &= \mathbf{c}^T \mathbf{y} + f(\mathbf{x}) \\
 \text{s.t.} \quad &\mathbf{h}(\mathbf{x}) = \mathbf{0} \\
 &\mathbf{g}(\mathbf{x}) \leq \mathbf{0} \\
 &\mathbf{Ax} = \mathbf{a} \\
 &\mathbf{By} + \mathbf{Cx} \leq \mathbf{d} \\
 &\mathbf{x} \in \mathcal{X} = \{\mathbf{x} | \mathbf{x} \in \mathbb{R}^n, \mathbf{x}^L \leq \mathbf{x} \leq \mathbf{x}^U\} \\
 &\mathbf{y} \in \mathcal{Y} = \{\mathbf{y} | \mathbf{y} \in \{0, 1\}^m, \mathbf{E}\mathbf{y} \leq \mathbf{e}\}
 \end{aligned} \tag{1}$$

여기서 \mathbf{x} 는 유량, 온도, 압력 등을 나타내는 연속변수 벡터이고, \mathbf{y} 는 장치의 존재를 0-1로 나타내는 벡터이다. MINLP 문제로부터 이전 변수 \mathbf{y} 를 제거하면 NLP 문제로 변환된다. $f(\mathbf{x})$, $\mathbf{h}(\mathbf{x})$ 그리고 $\mathbf{g}(\mathbf{x})$ 는 각각 목적함수, 방정식 그리고 부등 제한조건과 연관된 비선형 함수이다.

NLP 문제에서는 SQP(successive quadratic programming) 알고리즘이 가장 널리 쓰이는데, 뉴튼법 계열의 특성 때문에 반복계산의 수가 다른 여타의 방법에 비하여 월등히 적다는 특성을 가지고 있다. 보다 큰 규모의 문제를 풀기 위하여는 rSQP(reduced Hessian SQP)법이 이용된다. MINLP 문제에 대한 해법은 크게 branch and bound법, GBD(generalized Benders decomposition)법 그리고 OA(outer-approximation)법 등으로 나눌 수 있다[18].

Branch and bound 알고리즘은 가장 오래된 혼합정수 계획법(MIP)의 풀이법으로 Land와 Doig[19]에 의하여 제안되어 Dakin[20]에 의하여 공식화 되었다. GBD법과 OA법의 경우에도 해법의 중간과정에서 이 방법에 의존하므로, Branch and bound법은 MINLP 해법의 기초를 이루고 있다고 할 수 있다. 그러나 Branch and bound 방법에 의한 MINLP의 해법은 상대적으로 많은 수의 NLP 부문제의 해를 구해야 하며, 따라서

계산을 위한 비용이 많이 든다는 점이 단점으로 보고되고 있다. Benders [21]는 투사(projection)와 완화(relaxation)에 기초한 해법을 고안하였는데, 이 방법에서는 주어진 문제를 두 개의 독립적인 최적화 문제로 분할하여 그들 간의 반복 계산을 수행함으로써 해를 구한다. Geoffrion[22]이 이 방법을 일반화 하여 GBD법을 제안하였으며, 문제를 복잡하게 만드는 정수변수가 있는 MIP 문제를 xy -공간이 아닌 y -공간으로 해석함으로써 정수변수를 독립적으로 구할 수 있다. 이 알고리듬은 완화된 주 문제(master problem)와 컨벡스 비선형 부 문제(subproblem)의 해를 교대로 구하는데 다수의 반복 계산에 의해 수렴 속도가 느리다는 것이 단점으로 작용한다.

OA 알고리듬은 Duran과 Grossmann[23]에 의하여 처음 제안되었다. 이 방법은 GBD법과 같이 투사와 완화에 기초하며, 각 주된 반복 계산에서 정수변수가 고정된 NLP 부 문제 해법과 완화된 주 문제의 해법으로 구성된다. NLP 부 문제는 특정 공정 흐름도에 대한 연속 변수의 최적화로, MINLP 문제에 대한 목적함수의 상한값을 제공한다. MILP 주 문제는 나머지 흐름도 중에서 가장 낮은 하한 값을 갖는 구조를 선택하게 되며 이 값이 가장 좋은 상한값보다 클 경우 MILP 주 문제는 종료하게 된다.

비선형 방정식을 제거해야만 하는 OA 알고리듬의 단점을 보완하기 위한 방법론으로서 equality relaxation(OA/ER) 알고리듬이 개발되었다 [17]. 이 방법은 앞의 방법과 같은 계산 효율을 가지면서 명시적으로 나타난 비선형 등제한 조건을 다툴 수 있다. 그러나 이 방법 또한 단점을 가지고 있는데, MILP 주 문제의 크기가 GBD법의 경우보다 현저히 크다는 점이다.

OA/ER을 개선하기 위하여 확장된 페널티(augmented penalty) 함수를 결합한 새로운 MILP 주 문제가 Viswanathan과 Grossmann[24]에 의하여 제안되었다. 이 AP/OA/ER 알고리듬은 DICOPT++(Discrete Continuous OPTimizer)라는 패키지로 프로그램화되어 최적화 프로그램 언어인 GAMS[25]에서 사용할 수 있다. 현재의 최적화 기법의 발달을 고려하여, 다음 절에서 공식화된 MINLP 문제는 AP/OA/ER 알고리듬을 이용하여 GAMS와 그에 속한 solver를 이용하여 풀었다.

3. 설계방법

3-1. 공정설명

본 연구를 위한 대상 공정은 국내 엔지니어링 회사가 설계하여 현재 동남아에서 운전하고 있는 일일 생산량 150,000 BPSD 공정으로, 원유 증류공정의 기본이 되는 상압 증류공정, 감압 증류공정, 원유 액열공정 등 3개의 주요 공정으로 이루어졌다. 공정에 대한 자세한 기술은 본 논문의 2부[7]에 나타내었다.

상압 증류탑은 네 개의 pumparound와 네 개의 측류 탈거장치로 구성되며, 원유를 상압 하에서 연속적으로 증류함으로써 경질 나프타, 중질 나프타, kerosene, LGO(light gas oil), HGO(heavy gas oil) 등을 생산한다. 원유는 pumparound 및 생성물 흐름과 열교환을 통하여 가열되며, 최종적으로 가열기에서 원하는 온도로 가열되어 원유 증류탑으로 들어간다. 경질 나프타는 안정기를 통하여 가벼운 성분이 제거된다. Pump-around reflux는 탑으로부터 액상의 측류를 뽑아 내며 열교환을 통하여 냉각하여 측류단의 위의 부분으로 되돌리는 것이다. Pumparound는 원리상, 냉각된 액체가 탑의 중간 부분에 도입됨으로써 분리라는 측면에서는 불리하지만 높은 온도에서의 열이 원유를 가열하는 데에 쓰임으로써, 원유 가열기의 부하를 줄일 수 있으며, 탑 상부인 응축기의 부하를 감소시켜 응축기의 크기를 줄이는 데 매우 중요한 역할을 한다. 이에 더하여 탑 내부의 특정 영역에서의 기·액 흐름을 균일하게 유지시켜 줄 수가 있고, 이는 증류탑의 직경의 감소를 가져와 탑의 설치비용을 감소시키는데 결정적인 요소로 작용한다[11, 26]. 따라서 pumparound 용

량의 결정은 공정 설계에 가장 중요한 변수중의 하나로 작용하며 이를 설계변수로 하여 최적운전조건을 구하는 것은 매우 의의 있는 일이라 할 수 있다. 본 연구의 있어 탑의 구조와 운전 조건은 실제 공정의 자료로부터 구하였고 Table 2와 3에 나타내었다.

3-2. 원료 및 열역학적 모델

정상상태 모사 및 최적화에 있어서 각 흐름의 열역학적 물성을 정확히 계산하는 것은 중요하다. 원유는 탄화수소 화합물들의 복잡한 혼합

Table 2. Column configuration

Numbers of trays		
Main column		35
LN stabilizer		30
HN side-stripper		4
Kerosene side-stripper		2
LGO side-stripper		2
HGO side-stripper		2
Locations		
Feed for main column		33
Feed for LN stabilizer		17
Stripping steam of main column		35
HN pumparound draw and return		9, 8
Kerosene pumparound draw and return		18, 17
LGO pumparound draw and return		24, 23
HGO pumparound draw and return		28, 27

Table 3. Operating conditions

Stripping steam		
Main column		
Temperature	[°C]	170
Pressure	[kg _f /cm ²]	4.63
Flow rate	[kmol/h]	555.1
Kerosene side-stripper		
Temperature	[°C]	170
Pressure	[kg _f /cm ²]	4.63
Flow rate	[kmol/h]	138.8
LGO side-stripper		
Temperature	[°C]	170
Pressure	[kg _f /cm ²]	4.63
Flow rate	[kmol/h]	238.7
HGO side-stripper		
Temperature	[°C]	170
Pressure	[kg _f /cm ²]	4.63
Flow rate	[kmol/h]	94.4
Pumparound		
HN		
Flow rate	[kmol/h]	3,333.8
Return temperature	[°C]	70
Duty	[10 ⁶ kcal/h]	-14.9381
Kerosene		
Flow rate	[kmol/h]	1,286.4
Temperature drop	[°C]	40
Duty	[10 ⁶ kcal/h]	-4.9884
LGO		
Flow rate	[kmol/h]	1,481.8
Temperature drop	[°C]	50
Duty	[10 ⁶ kcal/h]	-9.9891
HGO		
Flow rate	[kmol/h]	725.3
Return temperature	[°C]	286.5
Duty	[10 ⁶ kcal/h]	-8.0028

Table 4. Feed conditions

Component	Composition
H ₂ O	0.0000
Propane	0.0061
i-Butane	0.0052
n-Butane	0.0283
i-Pentane	0.0215
n-Pentane	0.0438
NBP114	0.1965
NBP227	0.2979
NBP377	0.2180
NBP537	0.1152
NBP667	0.0341
NBP824	0.0333
Flow rate	150,000 BPSD
Pressure	3.5 kg/cm ²
Temperature	370 °C

물로 이루어져 있어서 보통 끓는점의 온도 범위에 따라 가상적인 성분으로 나누게 된다. 이는 원유의 종류에 따라 다르기 때문에 정확한 분석이 필요하며 이러한 분석에는 TBP(true boiling point) 곡선, light end 분석, API(American petroleum institute) 비중 등을 통하여 이루어진다. 이외에 물질량, 밀도, 점도 등의 자료를 통하여 더욱 정확한 분석을 할 수 있다. 본 연구에서 사용한 원유는 아라비아 경질유로서 API 비중은 33.1이며 순수성분과 가상성분을 합하여 12개의 성분으로 나누어 계산하였다. 원료의 조건을 Table 4에 나타내었다.

열역학적 물성을 계산하기 위하여 SRK(Soave-Redlich-Kwong) 모델과 GS(Grayson-Streed) 모델[27]을 기상과 액상에 각각 적용하였다. SRK 모델은 RK(Redlich-Kwong) 상태방정식에 기초하여 Soave에 의하여 수정된 것으로, 주어진 계에 대한 혼합물의 물성치를 계산할 수 있다. GS 모델은 Chao-Seader 관계[28]를 보다 넓은 범위의 온도와 압력 범위에 확장한 것으로 혼합물의 평형 계수(K-value)를 계산하는 데에 쓰인다. SRK 상태방정식은 세 개의 실근을 갖는데, 이중 가장 큰 값이 기상의 압축인자가 되며, 이로부터 압축인자로 표현된 기상의 다른 열역학적 물성들을 계산할 수 있다.

혼합물 중 성분 i의 평형 계수 K_i는 다음과 같다.

$$K_i = \frac{y_i}{x_i} = \frac{\gamma_i \phi_i^l}{\phi_i^v} \quad (2)$$

Chao-Seader[28]는 탄화수소와 가벼운 기체의 혼합물에 대한 실험과 일반화된 대응상태의 원리를 이용하여 φ_i^l을 T, P, 그리고 ω의 항으로 나타내었다. 이때 액상의 활동도 계수는 Scatchard와 Hildebrand의 정규용액이론을 이용하였고 기상의 퓨가시티 계수는 RK(Redlich-Kwong)식으로 구하였다. Grayson-Streed[27]는 계수를 수정하여 보다 높은 온도와 압력에 적용할 수 있도록 하였다. 계산된 액상의 퓨가시티 계수와 다른 열역학 성질과의 상관관계식을 이용하여 액상의 다른 열역학적 물성들을 계산할 수 있다.

3-3. 증류탑의 수학적 모델

수학적 모델의 수립을 위하여 상압 증류탑을 일반 단, 스팀이 공급되는 최하단, 원료 공급단, 축류 배출단, 축류 도입단 그리고 응축기 등 6개의 부분으로 나누었으며 이는 Fig. 1에 나타내었다.

증류탑은 응축기를 포함하여 N_{max}개의 단으로 이루어져 있으며 단의 번호는 아래단을 향하여 증가한다. 각 단에 대하여 물질 수지 및 에너지 수지를 고려하였으며 열역학적 성질은 앞에서 논의한 SRK 모델과

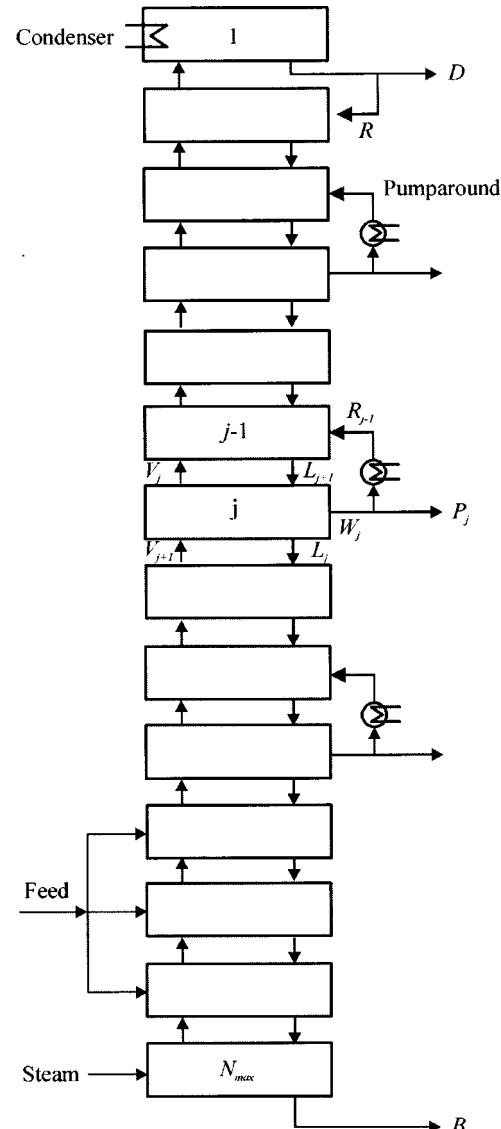


Fig. 1. Schematic diagram of atmospheric distillation column.

GS 관계를 이용하였다. 안정기의 경우도 같은 방식으로 모델을 만들었다. 안정기의 경우는 축류가 없으며 최하단은 재비기이다. 다음의 모델식들은 측정화 문제의 등 제한조건이 된다.

Component Material Balances

$$\begin{aligned} f_{st}z_c^s + L_{j-1}x_{c,j-1} - BX_{c,j} - V_jy_{c,j} &= 0 & \forall c, j \in RB \\ L_{j-1}x_{c,j-1} + V_{j+1}y_{c,j+1} - L_jx_{c,j} - V_jy_{c,j} &= 0 & \forall c, j \in NP \\ L_{j-1}x_{c,j-1} + V_{j+1}y_{c,j+1} + f_jz_c^f - L_jx_{c,j} - V_jy_{c,j} &= 0 & \forall c, j \in FT \\ L_{j-1}x_{c,j-1} + V_{j+1}y_{c,j+1} - L_jx_{c,j} - V_jy_{c,j} - W_jx_{c,j} &= 0 & \forall c \in C, j \in SP \\ L_{j-1}x_{c,j-1} + R_jx_{c,j-1} + V_{j+1}y_{c,j+1} - L_jx_{c,j} - V_jy_{c,j} &= 0 & \forall c \in C, j \in SR \\ V_{j+1}y_{c,j+1} - (L_j + D)x_{c,j} &= 0 & \forall c \in C, j \in CD \end{aligned} \quad (3)$$

Definition of Reflux Ratio (r)

$$R = rD \quad (4)$$

Side Products and Side Reflux Definition

$$P_j = W_j - R_{j-1} \quad j \in SP \quad (5)$$

$$\begin{aligned}
 R_{j-1} &= r_k p_j & \epsilon & \quad (6) \\
 \text{Energy Balances} \\
 f_{st} h^{st} + L_{j-1} h_{j-1}^l - B h_j^l - V_j h_j^v &= 0 & \notin \text{RE} \\
 L_{j-1} h_{j-1}^l + V_{j+1} h_{j+1}^v - L_j h_j^l - V_j h_j^v &= 0 & \notin \text{NF} \\
 L_{j-1} h_{j-1}^l + V_{j+1} h_{j+1}^v + f_j h_j^f - L_j h_j^l - V_j h_j^v &= 0 \quad j \in \text{FT} \\
 L_{j-1} h_{j-1}^l + V_{j+1} h_{j+1}^v - L_j h_j^l - V_j h_j^v - W_j h_j^l &= 0 \quad j \in \text{SP} \\
 L_{j-1} h_{j-1}^l + V_{j+1} h_{j+1}^v + R_j h_R^l - L_j h_j^l - V_j h_j^v &= 0 \quad j \in \text{SR} \\
 (L_j + D) h_j^l - V_{j+1} h_{j+1}^v &= Q_{con} & \in \text{CI} & \quad (7)
 \end{aligned}$$

Pumparound Heat Duty Definition

$$Q_k = R_{j-1} h_{R_{k-1}}^l - r_k p_j h_j^l \quad \forall \in \text{SP} \quad (8)$$

3-4. 최적화 문제

최적화 문제는 최대화 혹은 최소화 되어질 목적함수와 제한조건으로 구성된다. 이미 서술된 바와 같이 증류탑은 에너지 소비가 크므로 에너지 회수에 관한 식을 목적함수로 고려하였다. 열 회수는 pumparound를 통하여 이루어지며, 회수된 열은 탑에 도입되는 원유를 가열하는데 이용된다. 최적 원료 도입 단의 위치와 pumparound의 최적 용량을 결정하기 위하여 다음과 같은 목적함수를 만들었다.

$$\text{minimize} \sum_{k=1}^4 Q_k - Q_{con} \quad (9)$$

안정기의 경우는 다음과 같이 재비기의 용량을 최소화 하도록 목적함수를 정했다.

$$\text{minimize } Q_{reb} \quad (10)$$

3-3절에 나타낸 등 제한조건과 함께 최적화 문제의 완성을 위하여 설계 및 운전의 제한조건이 존재한다. 원료단이 될 수 있는 단의 범위는 $2 \leq j \leq TR-1$ 이며, 또한 가장 아래에 위치한 측류 위치(7단)보다 작아야 하므로 그 범위는 더 줄어들어 $2 \leq j \leq 6$ 이 된다. Fig. 1에 보인 바와 같이 원료는 각 후보 단으로 나뉘어 도입된다고 가정하며, 이 중 하나의 단이 원료단으로 결정된다.

각 분리된 흐름은 원료 유량을 초과할 수 없고, 그 합은 원료 유량과 같다. 이를 수식으로 표현하면 다음과 같다.

$$f_j \leq F z_j \quad j \in \text{FT} \quad (11)$$

$$\sum_{j \in TR} f_j = F \quad (12)$$

$$\sum_{j \in TR} z_j = 1 \quad (13)$$

위 식들은 단 하나의 원료단을 선택하는 의미이며 이로 인하여 MINLP 문제가 된다. 탑 내의 압력은 다음과 같이 선형으로 분포한다고 가정한다.

$$P_{j-1} - 2P_j + P_{j+1} = 0 \quad 3 \leq j \leq N_{max} - 2 \quad (14)$$

여기서 $P_{N_{max}}$, $P_{N_{max}-1}$, P_2 그리고 P_1 는 주어진 값이다.

그 밖에 실제 공정의 물리적인 제한 때문에 추가의 제한조건이 필요하다. 생성물들은 공정이 요구하는 범위 내의 값을 가져야 하고 탑 내의 기체 및 액체의 유량은 항상 양수의 값을 가져야 한다. 이상의 최적화 문제를 해결을 위해 SUN SPARCstation^o 사용되었으며 software로는 GAMS 페키지를 이용하였다.

4. 결과 및 고찰

원유 증류탑의 최적 원료 도입단을 구하기 위한 최적화 작업의 결과를 Table 5에 나타내었다. 또한 최적화 결과(optimal case)를 확인하기 위하여 여러 다른 경우(base case, Case I, Case II)에 대한 공정 모사를 수행하였으며 이를 Table 5에 함께 나타내었다. Table 5에 나타난 음수값은 탑의 내부의 열이 외부로 방출되는 것을 의미하며 그 절대값이 클수록 원유가열을 위한 preheat train에서의 원유와의 열교환이 많이 이루어짐을 나타낸다.

기본 경우(base case)는 상업 공정 설계 시 사용되었던 자료에 기초한 것으로 PRO/II[29]를 사용하여 정상상태 모사를 수행한 결과이다. 또한 경우 Case I과 Case II는 최적화 경우와의 비교를 위하여 운전 조건을 변화시켜 정상상태 모사를 한 결과이다. 모든 경우 생성물의 조건은 동일하게 유지하도록 하였다. 대상 공정의 실제 원료 도입단은 33단인데 반하여, 최적화 결과 원료단은 34단으로 계산되었다. 목적함수 값은 비교하여 보면 최적화된 경우가 실제 공정인 기본 경우 보다 향상되었음을 분명히 알 수 있다. 최적화된 경우는 기본 경우에 비하여 증축기 용량을 15% 정도 줄일 수 있으며, 고온의 열회수를 가능하게 하는 제일 아래쪽의 pumparound 용량을 약 37% 증가시켜 이에 대한 열 회수를 가능하게 해 준다. 원료 도입단을 32단(Case I), 31단(Case II)으로 변화시켜 모사한 결과 역시 최적화된 결과에 비하여 목적함수의 값이 향상되지 않았을 뿐 아니라 pumparound의 용량 또한 증가되지 않음을 알 수 있다.

탑 내부의 기체와 액체의 흐름에 대한 결과를 Fig. 2에 나타내었는데, 최적화된 경우의 흐름이 기본 경우(base case)에 비하여 작게 나타나며, 이에 따라 탑의 크기를 줄일 수 있다. 이는 또한 증류탑 자체의 장치비 및 주변 장치 등의 비용 절감에 기여하게 된다.

Fig. 3은 최적화된 결과에 따라 탑의 직경을 계산하였을 때와 기본 경우를 비교한 결과를 보여주고 있다. 최적화된 경우 앞에서 살펴본 바와 같이 탑 내부의 흐름이 감소하여 탑의 직경이 감소하였다.

최적화된 경우와 기본 경우 탑의 온도 분포를 Fig. 4에 나타내었다. 이들은 서로 거의 일치하는 결과를 보여주고 있으며, 이는 탑의 온도 분포에 영향을 받는 생성물이 차이를 보이지 않는다는 것을 나타낸다.

Table 5. Optimal solutions for atmospheric distillation column

Design variable [10^6 kcal/h]	Optimal case	Base case	Case I	Case II
Objective function	-3.2975	11.5550	6.3870	2.9433
Duty of pumparound 1	-15.3742	-14.9381	-15.1433	-15.0669
Duty of pumparound 2	-5.7817	-4.9884	-5.8042	-6.9571
Duty of pumparound 3	-13.3646	-9.9891	-10.7678	-11.4332
Duty of pumparound 4	-10.9739	-8.0028	-8.8162	-8.8159
Duty of condenser	-42.1984	-49.4739	-46.9258	-45.2158
Feed tray	34	33	32	31

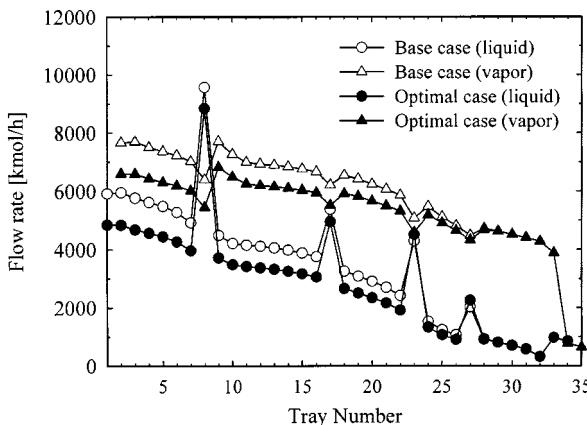


Fig. 2. Internal vapor and liquid flow in atmospheric distillation column.

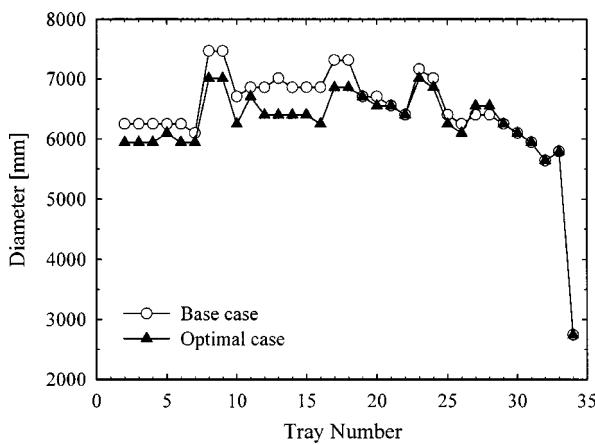


Fig. 3. Diameter of atmospheric distillation column at each tray.

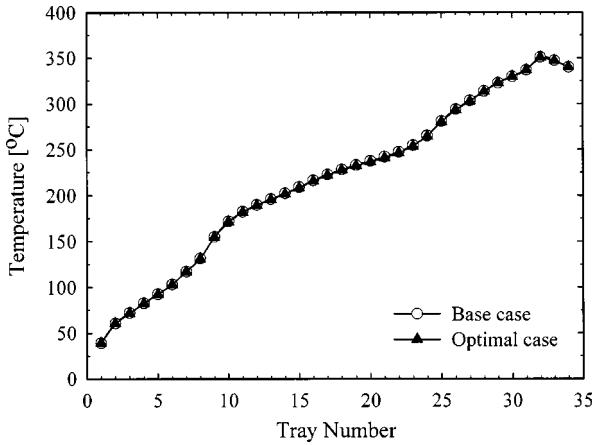


Fig. 4. Temperature profiles of atmospheric distillation column.

위의 언급된 최적화 기법을 사용하여 중류탑의 원료 도입단을 결정할 수 있었다. 탑의 온도 분포 혹은 생성물에 영향을 주지 않으면서 최적화 작업을 수행하여 응축기의 용량과 pumparound의 용량의 최적 운전값을 얻을 수 있었고 탑내의 흐름을 감소시켜 탑의 크기도 줄일 수 있었다.

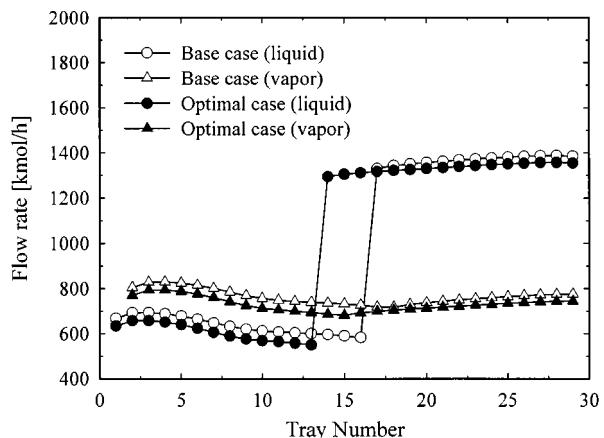


Fig. 5. Internal vapor and liquid flow in light naphtha stabilizer.

Table 6은 안정기에 대한 최적화 결과(optimal case)를 보여 주고 있으며 주탑과 마찬가지로 기본 경우(base case) 및 두 개의 모사결과(Case I, Case II)와 비교하였다.

안정기의 실제 원료 도입단은 17단(base case)이었는데, 최적화 결과 원료 단은 14단으로 계산되었다. 목적함수 값을 비교하여 보면 최적화된 경우가 실제 공정인 기본 경우 보다 향상되었음을 알 수 있다. 원료 도입단을 15단(Case I), 16단(Case II)으로 변화시켜 모사한 결과 역시 최적화된 결과에 비하여 목적함수의 값이 향상되지 않았음을 알 수 있다. 안정기 내부의 흐름을 Fig. 5에 나타내었는데 기본 경우보다 최적화된 경우에 유량이 감소하였음을 볼 수 있다. 이는 주탑의 경우와 같은 경향으로서 탑의 직경을 줄일 수 있다.

안정기 직경에 대한 비교를 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 7은 안정기 내부의 온도 분포를 보여 준다. 원료 도입단이 위치하는 단에서는 온도 차이를 약간 보이지만 생성물이 배출되는 상단과 하단부는 온도의 일치를 보인다. 따라서 생성물의 변화가 두 경우에 대하여 없음을 보여 주는 결과이다.

이상으로 안정기의 경우에 있어서도, 온도 분포 혹은 생성물에 영향을 주지 않으면서 최적화 작업을 통하여 안정기의 원료 도입단을 결정할 수

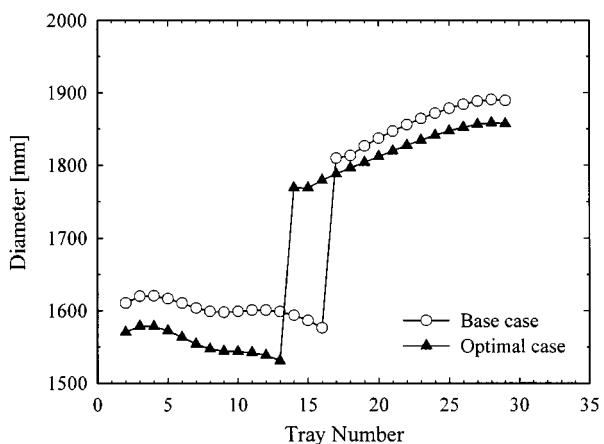


Fig. 6. Diameter of light naphtha stabilizer at each tray.

Table 6. Optimal solutions for light naphtha stabilizer

Design variable[10^6 kcal/h]	Optimal case	Base case	Case I	Case II
Objective function	3.60166	3.7477	3.6284	3.6774
Feed tray	14	17	15	16

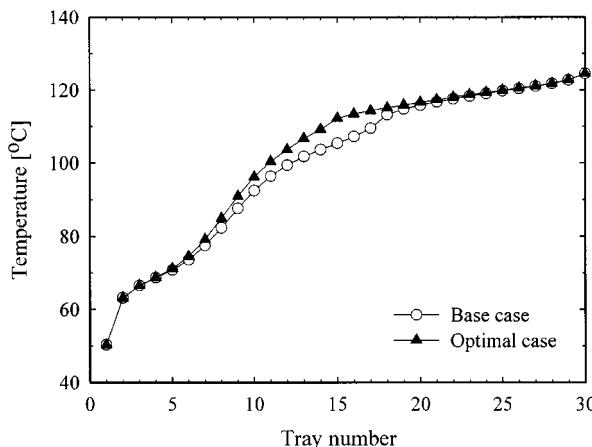


Fig. 7. Temperature profile of light naphtha stabilizer.

있음을 보였다. 탑 내의 흐름을 감소시켜 탑의 크기도 줄일 수 있었다.

5. 결 론

본 논문에서는 원유증류공정 최적설계의 일환으로 현재 상업 가동중인 150,000 BPSD 규모의 원유증류공정 중 상압 증류탑과 경질 나프타 안정기의 최적 원료단을 결정하였다. 증류탑의 에너지 소비를 줄이는 것이 현 산업계의 문제로 대두되고 있는바, 에너지 소비를 최소화 하도록 목적함수를 설정하고 증류탑에 대한 수학적 모델을 세움으로써 MINLP 문제를 구성하였다.

상압 증류탑의 온도 분포 혹은 생성물에 영향을 주지 않는 범위에서 최적화 작업을 수행하였으며, 이에 따라 최적 원료단과 응축기의 용량, pumparound의 용량의 최적 운전값을 얻을 수 있었다. 이와 같이 최적화 작업을 통하여 얻어진 결과는 증류탑의 최적 설계 및 최적 운전에 직접적으로 기여한다.

상압 공정의 원유증류공정의 원료 도입단은 33단이었는데, 최적화 결과 원료단은 34단으로 계산되었다. 최적화된 경우는 기본 경우에 비하여 응축기 용량을 15% 정도 줄일 수 있으며, 고온의 열 회수를 가능하게 하는 제일 아래쪽의 pumparound 용량을 약 37% 증가시켜 이에 대한 열 회수를 가능하게 해 준다. 또한 상압 증류탑과 마찬가지로 경질 나프타 안정기에 대한 최적화를 통하여 온도 분포 혹은 생성물에 영향을 주지 않는 최적 원료단을 결정할 수 있었으며 이는 기본 설계시 사용된 원료단에 비하여 증류탑 및 안정기 내의 기체 및 유체의 흐름을 감소시켜 탑의 크기를 줄일 수 있었다.

본 연구의 결과로 나타난 바와 같이 원유증류공정의 설계에 있어 수학적 모델에 기초한 최적화 기법을 사용함으로써 최적설계를 이를 수 있으며 이에 따라 장치비용 및 운전비용을 상당부분 절감할 수 있다. 점차 심화되고 있는 엔지니어링 시장에서의 국제 경쟁력 강화를 위하여 서도 이와 같은 시도는 계속 지속되어야 하며 이를 위한 산업계와 학계의 공동연구가 매우 바람직한 것으로 사료된다.

감 사

본 연구의 수행을 위하여 연구비를 지원하여 주신 STEPI와 LG Engineering사에 감사 드립니다.

사용기호

a, A : constant

- b : constant
- B : constant, bottoms molar flow rate [kmol/h]
- c : component
- C : set of components in feed
- CD : condenser, {1}
- d : constant
- D : distillate molar flow rate
- e, E : constant
- f : flow rate of entering stream [kmol/h]
- F : feed molar flow rate [kmol/h]
- FT : set of all possible feed trays, { $N_{max}-1, N_{max}-2, \dots, N_{SP}^{k_{max}}-1$ }
- g : function
- h : function, specific enthalpy [J/mol]
- K : equilibrium ratio
- L : liquid molar flow rate leaving the stage
- N : number of trays
- NP : the set of trays within column which excludes PA and FT
- p : side product molar flow rate
- P : pressure [Pa]
- PA : the set of SP \cup SR
- Q : heat duty [kcal/h]
- r : internal or side reflux ratio
- R : internal or side reflux molar flow rate
- RB : bottom tray, { N_{max} }
- SP : the set of side product trays, { $N_{SP}^1, N_{SP}^2, \dots, N_{SP}^{k_{max}}$ }
- SR : the set of return side reflux stream trays, { $N_{SP}^1-1, N_{SP}^2-1, \dots, N_{SP}^{k_{max}}-1$ }
- T : temperature [K]
- TR : set of stages within the column including the trays, condenser and reboiler, {1, 2, ..., N_{max} }
- V : vapor molar flow rate [kmol/h]
- W : side withdrawal molar flow rate [kmol/h]
- x : continuous variable, liquid phase mole fraction
- X : set of continuous variables
- y : discrete variable, vapor phase mole fraction
- Y : set of discrete variables
- z : objective function, mole fraction of entering stream, binary variable(1, if the feed enters on the stage)

그리아스 문자

- ϕ_i^l : fugacity coefficient of pure liquid component i
- γ_i : activity coefficient of component i in the equilibrium liquid mixture
- $\hat{\phi}_i^v$: fugacity coefficient of component i in the equilibrium vapor mixture
- ω : acentric factor

상첨자

- f : feed
- k : index of side withdrawal trays
- l : liquid
- st : steam
- v : vapor

하첨자

- i : index of components

j	: index of stages
k	: index of side withdrawal trays
con	: condenser
max	: maximum
r	: reduced property
reb	: reboiler
st	: steam

참고문헌

1. Uhl, W. C.: in W. F. Bland and R. L. Davidson(Eds), "Petroleum Processing Handbook: Section 1. Introduction," McGraw-Hill, New York (1967).
2. Butler, G. D., Knight, L. L. and Peabody, G. E.: "The World Oil Market: International Energy Outlook," Energy Information Administration, Washington D.C.(1997).
3. Korea Petroleum Association: "The Petroleum Industry in Korea," Seoul Korea(1997).
4. Douglas, J. M.: "Conceptual Design of Chemical Processes," McGraw-Hill, New York(1988).
5. Liebmann, K., Dhole, V. R. and Jobson, M.: *Trans IChemE*, **76**, Part A, March, 335(1998).
6. Edgar, T. F. and Himmelblau, D. M.: "Optimization of Chemical Processes," McGraw-Hill, New York(1988).
7. Seo, J. W., Kim, S. J., Kim, K. H., Oh, M. and Lee, T. H.: *HWA-HAKKONGHAK*, following paper in this issue.
8. Badhwar, R. K.: *Chem. Eng. Prog.*, **66**(3), March(1970).
9. Nelson, W. L.: "Petroleum Refinery Engineering," 4th ed., McGraw-Hill, New York(1958).
10. Packie, J. W.: *AIChE Trans*, **27**, 51(1941).
11. Watkins, R. N.: "Petroleum Refinery Distillation," Gulf Publishing Company, Houston(1973).
12. Srygley, J. M. and Holland, C. D.: *AIChE J.*, **11**(4), July, 695(1965).
13. Sargent, R. W. H. and Gaminibandara, K.: in L. D. W. Dixon(Ed), "Optimization in Action: Optimum Design of Plate Distillation Columns," Academic Press, New York(1976).
14. Viswanathan, J. and Grossmann, I. E.: *Ind. Eng. Chem. Res.*, **32**, 2942 (1993).
15. Seo, J. W., Kim, S. J., Kim, K. H., Oh, M. and Lee, T. H.: ASME/JSME Joint Pressure Vessels and Piping Conference, San Diego, California, July 26-30, PVP-Vol. 363, 177(1998).
16. Biegler, L. T., Grossmann, E. I. and Westerberg, A. W.: "Systematic Methods of Chemical Process Design," Prentice Hall(1997).
17. Kocis, G. R. and Grossmann, I. E.: *Ind. Eng. Chem. Res.*, **26**(9), 1869 (1987).
18. Mei, D.: M.Sc Dissertation, Imperial College, London(1995).
19. Land, A. H. and Doig, A. G.: *Econometrica*, **28**, 497(1960).
20. Dakin, R. J.: *Computer Journal*, **8**, 250(1965).
21. Benders, J. F.: *Numer. Math.*, **4**, 238(1962).
22. Geoffrion, A. M.: *J. of Optimization Theory and Applications*, **10**(4), 237(1972).
23. Duran, M. A. and Grossmann, I. E.: *Math Programming*, **36**, 307(1986).
24. Viswanathan, J. and Grossmann, I. E.: *Computers and Chemical Engineering*, **14**(7), 769(1990).
25. Brooke, A., Kendrick, D. and Meeraus, A.: "GAMS: A User's Guide," Boyd & Fraser Publishing Company, Danvers, MA(1992).
26. Golden, S. W.: Hydrocarbon Technology International, Autumn(1994).
27. Grayson, H. G. and Streed, C. W.: 6th World Congress, Frankfurt am Main, June, 19(1963).
28. Chao, K. C. and Seader, J. D.: *AIChE J.*, **7**(4), 598(1961).
29. Simulation Science: "PRO/II: Keyword Input Manual," March(1996).