

규칙충전탑을 장착한 심랭식 공기분리장치 개발

용평순, 문흥만, 손무룡, 이성철*
대성산소(주) 초저온연구소,
한양대학교 화학공학과, 세라믹공정연구센터*

The Development of Cryogenic Air Separation Plant using Structured Packing Column

Pyeong Soon Yong, Hung Man Moon, Moo Ryong Son, Sung Chul Yi*
Daesung Cryogenic Research Institute,
Dept. of Chem. Eng., CPRC, Univ. of Hanyang*

1. 서 론

가스를 대규모로 분리·정제하기 위한 방법으로 심랭분리법은 오래전부터 사용되어 왔다. 공기의 심랭분리법은 20세기 초 유럽에서 개발된 기술로서 공기를 초저온으로 액화시킨 후 증류탑에서 물질의 비점차를 이용하여 질소, 산소 등으로 분리·정제하는 방법이다. 공기분리용 증류탑에는 지름 1~2mm의 hole size를 갖는 sieve tray가 주로 사용되고 있으나, 90년대에 들어서면서 아르곤탑이나 저압증류탑을 중심으로 규칙충전물(structured packing)의 사용이 늘어나기 시작했다. 그러나 규칙충전물은 압력손실이 작고, 분리효율은 높으며, hold-up은 작다는 장점에도 불구하고 증류탑내의 압력이 고압일수록 성능이 떨어진다는 이유로 고압탑에는 거의 사용되지 않고 있다. 한편 심랭분리 기술이 가스분리의 대표적인 기술이라는 것은 잘 알려져 있으나, 국내에서는 기술개발이 이루어지지 않아 현재 국내에서 필요한 심랭식 공기분리장치(cold box)를 전량 해외에서 수입하고 있다.

본 연구는 질소가스를 생산하는 심랭식 공기분리장치의 개발을 목적으로 이루어진 것으로 장치의 설계, 제작, 운전의 전 과정을 수행하였다. 이를 토대로 이론 설계치와 실제 운전데이터와의 차이를 조사하였고, 설계시 고려해야 할 안전율의 범위를 추정하였다. 또한 공기의 심랭분리에 있어서 규칙충전물을 고압탑에 장착시켜 운전할 경우 증류탑의 성능 및 에너지 절감효과 등에 대해서도 고찰하였다.

2. 이론

1) 장치의 구성

본 연구에서 개발한 공기분리공정의 개략도는 Fig.1과 같다. 본 공정의 구성은 공기를 전처리하여 불순물을 제거하는 상온부와, 전처리된 공기를 초저온으로 액화·분리시키는 저온부의 두 부분으로 나뉘어진다. 상온부는 공기여과기, 압축기, 냉동기, 분리기, 흡착탑, 전기히터 등으로 구성되어 있으며, 저온부는 주열교환기, 증류탑, 질소응축기, 액체공기분리기, 액체공기열교환기, 팽창터빈, 팽창밸브 등으로 구성되어 있다. 저온부의 장치는 -180°C 전후의 온도차를 유지해야 하므로 외부의 열이 장치내로 침투하지 못하도록 cold box라는 단열상자를 만들어 장치를 보호한다.

이 장치의 운전방식은 다음과 같다. 먼저 대기중의 공기를 압축기로 압축시킨다. 그리고 냉동기와 흡착탑을 거치면서 수분과 이산화탄소를 제거한다. 불순물이 제거된 공기는 주열교환기로 거치면서 노점 부근까지 냉각된채 증류탑으로 공급된다. 증류탑에는 규칙충전물이 장착되어 있으며 기체와 액체의 맞흐름에 의한 공기분리가 이루어진다. 그 결과 탑상부에는 순수한 질소가스가, 탑하부에는 산소분이 풍부한 액체공기가 모이게 된다. 탑하부의 액체공기는 팽창밸브를 통해 압력이 떨어진 상태로 질소응축기 외벽으로 보내지며 증류탑의 질소가스와 열교환하고 주열교환기를 거쳐 외부로 배출된다. 그리고 생산제품인 질소가스와 액체질소는 증류탑 상부에서 각각 얻는다

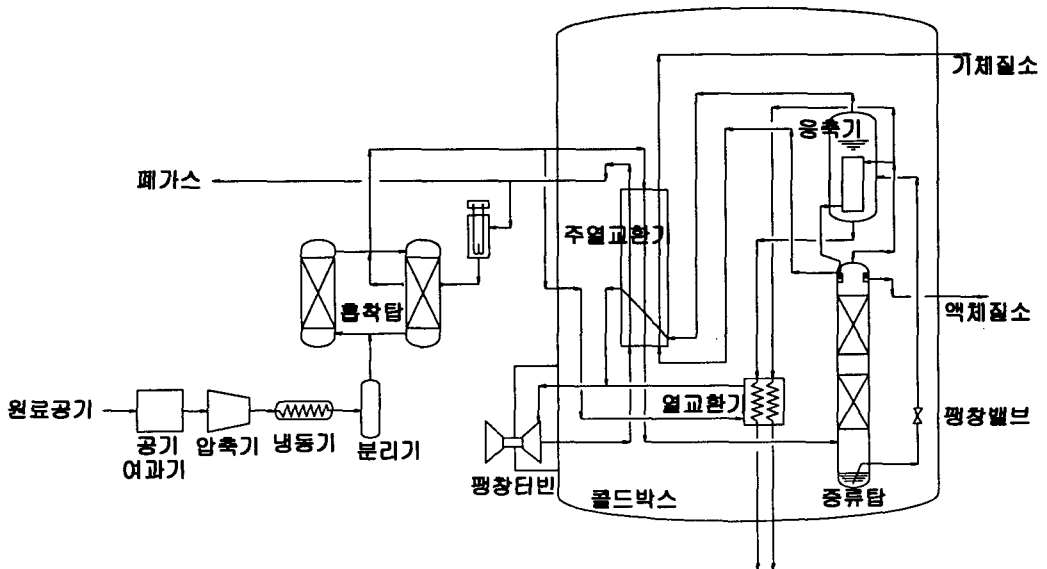


Fig.1 A schematic diagram of air separation for nitrogen gas producing.

2) 공정설계

가스의 액화분리공정에서는 가스의 압력변화로 온도를 조작하고 열교환을 일으키기 때문에 매우 엄밀한 물성계산과 공정계산이 필수적이다. 본 공정에서는 공기를 원료로 질소 1,600Nm³/h(가스 1,550Nm³/h, 액체 50Nm³/h)를 생산하고, 불순물로는 수분과 산소가 각각 1ppm 이하가 되는 것을 설계의 기본으로 삼았다. 먼저 cold box를 하나의 계로 놓고, 이 계의 물질수지 및 에너지수지를 세우면 식(1), 식(2)과 같이 된다.

$$\text{물질수지} \quad : \quad m_{air\ inlet} = m_{N_2\ outlet} + m_{waste\ gas\ outlet} \quad (1)$$

에너지 수지 :

$$m_{air\ inlet}H_{air\ inlet} + Q = m_{GN_2\ outlet}H_{GN_2\ outlet} + m_{LN_2\ outlet}H_{LN_2\ outlet} + m_{waste\ gas\ outlet}H_{waste\ gas\ outlet} \quad (2)$$

여기서, m_i 는 유량이며, H_i 는 엔탈피, Q 는 외부의 열침입량이며, 식(1), 식(2)을 이용하여 cold box 전체 및 각 단위기기에 대한 수지가 일치하도록 계산한다. 여기서 외부의 열침입량은 열교환기와 증류탑에서 주로 발생한다고 가정하여 이 양만큼 팽창터빈이 일을 하도록 하여 한랭을 계에 보충해 준다. 본 공정계산에 대한 순서도는 Fig.2와 같다. 증류탑 계산은 먼저 이론단수를 가정하고, 가정된 이론단수를 통해 증류탑 계산을 수행하였다. 이때 사용된 방법은 일반적으로 많이 쓰이는 MESH법으로 Material balance, Equilibrium equation, 물분율의 Summation equation, Heat balance를 tridiagonal matrix법을 사용하여 계산하였다. 본 공정을 모사함에 있어 중요한 물성은 엔탈피, 엔트로피, 기체의 증기압, 퓨가시티계수, 활동도 계수, 열용량, 밀도 등이며 이에 대한 계산에서 엔트로피 계산은 L'Air Liquide사의 엔트로피 table[4]을 이용하였으며, 혼합성분에 대한 엔탈피 계산은 mixing엔탈피를 고려하여 계산하였다 [2.3]. 그리고 상평형 계산은 van Laar의 활동도 계수식을 사용하였고, 퓨가시티 계수의 계산에는 제2, 제3 virial 계수가 포함된 virial식을 사용하였다[5].

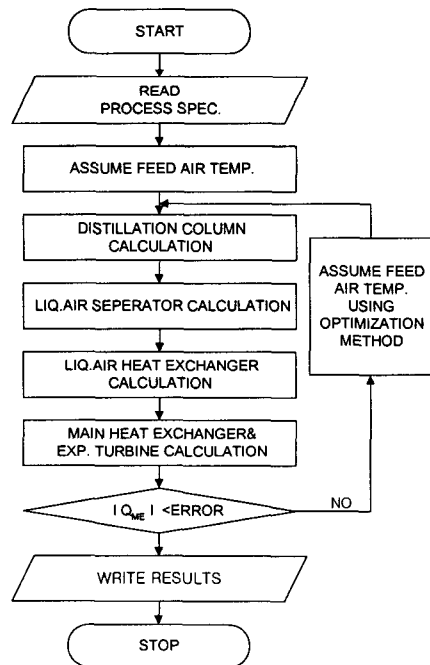


Fig.2 Block diagram of process design

공정설계의 결과 질소회수율 42%에서 이론적인 최고효율을 나타내고 있었으나 안전율을 고려하여 회수율 40.5%, 팽창터빈의 효율은 75%, 증류탑의 이론단수는 44단을 장치제작의 최적조건으로 삼았다.

3. 장치제작

공정설계를 바탕으로 제작한 cold box의 모습은 Fig.3과 같다. 장치의 총길이는 18m, 직경은 2.2m, 무게는 25톤으로 cold box 내부에는 증류탑, 열교환기, 응축기 등의 장치가 배관으로 연결되어 있다. 내부기기와 외조사이는 perlite 진공단열로 이루어져 있으며, 진공도는 0.04 torr 이하를 유지하고 있다. 증류탑 내부는 스위스 Sulzer사의 규칙층 전물인 Mellapak(Fig.4)를 사용하여 공기분리가 일어나도록 만들었다.

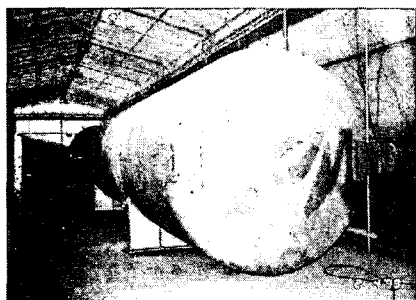


Fig.3 Cold box for cryogenic air separation

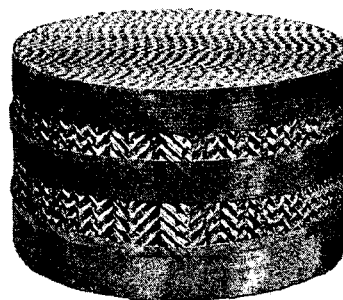


Fig.4 Structured packing (Sulzer Mellapak)

4. 성능평가와 결과

1) 성능평가

본 연구에서 개발된 cold box의 성능평가는 대성산소 자체 실험장에서 이루어졌다. Cold box 설치시 장치의 수직도는 1/2000 이하를 유지시켰으며, 실험에 앞서 장치내의 수분을 충분히 제거하기 위하여 cold box 내부기기를 건조공기로 20시간 이상 상온가온 하고 수분이 1 ppm 이하됨을 확인하였다. 운전중 평균대기온도는 24℃였으며 cold box 표면의 최고온도는 햇빛의 영향으로 48℃까지 상승하였다. 운전은 24시간 연속운전으로 진행되었고 각 stream별로 온도, 압력, 유량, 순도 측정이 이루어졌다. 공정제어는 DCS(Distributed Control System)를 채용하였으며, cold box의 진공도는 운전중 0.001 torr 이하임을 확인하였다.

2) 결과

공정설계치와 운전결과의 차이를 Table 1에 나타내었다. Table 1에서 Test I 은 제품질소 1,600Nm³/h을 기준으로 운전한 결과이고, Test II는 원료공기를 공정설계치와 같이 3,950 Nm³/h로 맞추어 운전한 결과를 나타내고 있다.

Test I의 결과를 보면 제품순도와 생산량이 설계치를 만족시키는 조건에서 원료공기량은 3,870Nm³/h로 설계치보다 적게 사용됐고 이로인해 질소의 회수율은 설계치보다 높은 41.3%를 얻었다. 또한 증류탑내의 압력손실은 규칙충전물 방식이 설계 예상치보다 작아져 압축기의 부하를 감소시켰으며, 증류탑 내의 운전압력도 낮아져 이로 인한 전력원단위는 기존의 0.24Nm³/h에서 0.23Nm³/h로 약 5% 절감됨을 알 수 있었다.

Test II에서는 설계조건대로 원료공기유량을 비롯한 질소생산량, 질소의 압력을 설계치에 맞추고 운전한 결과 질소의 회수율과 내부환류비는 설계치와 일치하였으나 순도는 설계치나 Test I 결과 보다 오히려 더 좋아짐을 알 수 있었다.

Table 1. Comparison of design and operating results

Contents	Design	Test I (product base)	Test II (feed base)
Flow of Feed(Nm ³ /h)	3950	3870	3950
Column Press.: bottom (atm)	6.6	6.42	6.63
top(atm)	6.56	6.40	6.61
press. drop(atm)	0.04	0.02	0.02
Prod. Nitrogen Flow GN ₂ (Nm ³ /h)	1550	1550	1550
LN ₂ (Nm ³ /h)	50	50	50
Total flow	1600	1600	1600
Prod. Nitrogen purity			
- impurity O ₂ (ppm)	max. 1	0.25	0.15
- Moisture (ppm)	max. 1	0.10	0.10
Nitrogen Recovery ratio(GN ₂ /AIR)	40.5	41.3	40.5
Reflux ratio(L/V of column top)	0.62	0.61	0.62
Power(KW)	385.17	367.13	-
Unit Power(kW/Nm ³)	0.24	0.23	-

Fig.5는 질소회수율을 39.5%에서 42%까지 점차적으로 증가시키면서 제품질소의 순도 변화추이를 고찰한 결과로, ▼는 이론단수 44단의, ■은 40단의 계산결과이다. 이 그래프에서 보면 실험치와 이론단수 44단의 계산치는 회수율 40.5%~41.8%에서 일치하고 있다. 이는 설계시의도한 대로 장치가 제작되었음을 뜻하는 것이며, Test I의 결과인 회수율 41.3%가 이 공정의 최적 운전조건임도 확인 할 수 있다. 한편 Test I의 결과와 설계치와의 차이는 설계시 안전율로서 추후 새로운 장치제작에 참고할 수 있다. .

5. 결론

이러한 결과를 종합적으로 검토하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있다.

- 1) 공기분리장치는 설계의도대로 제작되었고 질소회수율 41.3%에서 최적운전이 이루어진다.
- 2) 기존의 인식과는 달리 규칙충전물을 고압 증류탑에 도입한 결과 에너지 절약 측면이나 운전의 안정성 면에서 매우 유용한 방법임이 확인되었다.

감사의 글

이 연구는 에너지관리공단 에너지절약기술개발사업 과제로 수행되었으며, 관계기관에 감사의 뜻을 표합니다.

참고문헌

1. 문홍만, 박두선, 손무룡, "공기분리기술과 전망", 화학공업과 기술,15(3),211(1997)
2. 용평순, 문홍만, 손무룡, 이성철, "질소,산소,아르곤에 대한 상태방정식의 신뢰도" ,KIGAS,1(1), 41(1997)
3. 용평순, 문홍만, 손무룡, 이성철, "초저온공기분리공정설계의 공정변수 영향", 한국가스학회발표회논문집, p.3(1998)
4. L'Air Liquide, "Gas Encyclopaedia", Elsevier(1976)
5. Reid,R.C.,Prausnitz,J.M., "The Properties of Gases & Liquids", McGrawHill(1986)

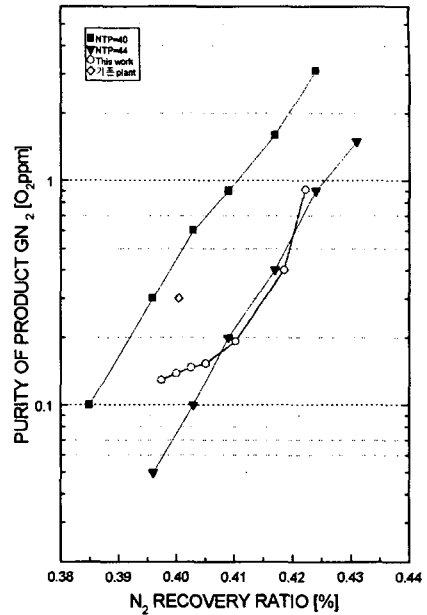


Fig.5 Purity of nitrogen by N₂ Recovery Ratio