분리주탑형 열복합 증류탑에서의 증류실험

Experimental Distillation Using a Fully Thermally Coupled Distillation Column with Separated Main Columns

박 영 민, 강 현 욱, 김 영 한*
(Young Min Park, Hyun Woog Kang, and Young Han Kim)

Abstract : In order to improve the operability in a fully thermally coupled distillation column the main column is separated into an upper and a lower column, and its design method is explained. With a distillation experiment using a two-inch column the operability of the proposed column is examined. Readily available methanol, ethanol and propanol are used as the feed, and the experimental result is compared with that of the HYSYS simulation. It is found from the experiment that the recovery ranges between 58.8% and 68% and the distillation efficiency is lower than that of the simulation. consumes less energy than an original column, it is not widely implemented in practice due to its operational difficulty. However, it is proved that the proposed distillation column can be operated without compressors and it can be practically utilized.

Keywords : thermally coupled distillation, distillation operation, operability improvement, distillation experiment

I. 서론

열복합 증류탑을 이용한 증류조작에서의 단점은 탑에서의 압력 설정이 어렵다는 것이다. 보통의 2탑 증류시스템에서는 탑의 압력을 각각 독립적으로 설정할 수 있지만, 열복합 증류탑은 전처리탑과 주탑 사이의 양방향 연결 때문에 독립적인 압력의 조작은 허용되지 않는다. 이 문제는 분리벽탑형 증류탑에서는 더욱 어려운 상황을 야기하는 원인이 된다. 예를 들어 기체농축공정의 경우[1], 두 탑들 사이의 압력 차이는 약 1,600kPa 정도로 크고, 열복합 증류탑의 응축기의 압력을 2탑 증류시스템의 첫 번째 탑의 설정하려면 냉매를 필요로 한다. 반면에, 두 번째 탑의 압력을 적용하면, 주탑에서 과도한 직경을 필요로 하게 된다.

열복합 증류탑에서 증기 흐름의 조작은 간단한 것이 아니며, 분리벽형은 종종 이런 문제들을 해결하기 위해 현장에서 널리 응용되고 있다. Agrawal와 Fidkowski [2]는 증기흐름을 쉽게 하기 위해서 압력 강하를 고려하여 열복합 증류탑의 전처리 탑과 주탑의 각 섹션을 분할하여 재배열하였다. 또, 열복합 증류탑에서 세 가지 제품의 조성제어는 증류시스템의 폭 넓은 활용에 많은 어려움을 야기한다. 이를 고려하여 부분적으로 분리된 주탑을 사용하여 운전성을 개선한 연구[3]가 발표된 바 있다. 여기서는 주탑이 분리되어 상부 주탑의 재비기와 하부 주탑의 냉각기가 1개의 열교환기로 연결되어 필요한 에너지 소요량을 최소로 하는 열복합 증류탑의 구조를 유지하면서 탑의 운전을 분리함으로써 운전성을 개선하려는 제안이었다.

본 연구에서는 기존의 열복합 증류탑의 증기흐름을 쉽게 하고 운전성을 개선하기 위하여 주탑을 분리한 구조를 사용한 열복합 증류탑의 운전성을 알코올 혼합물을 이용한 실험을 통하여 실제 탑의 분리성능을 조사해 보았다. 또 실험결과를 HYSYS를 이용한 시뮬레이션의 결과와 비교하여 해석하였다.

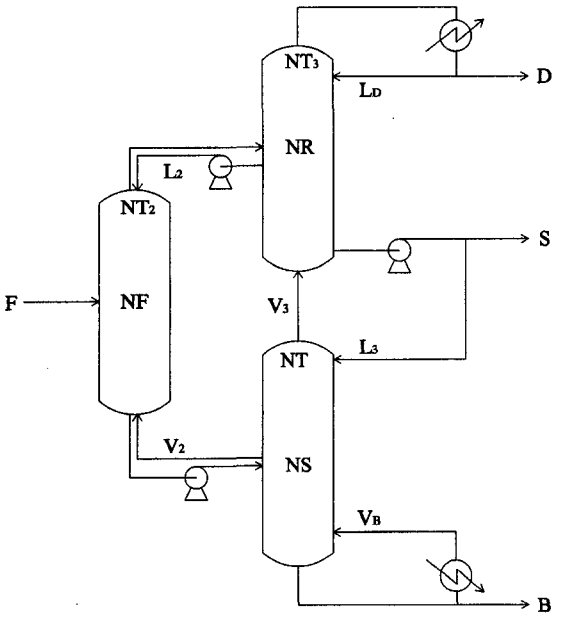


그림 1. 분리주탑형 열복합 증류탑의 개략도.
Fig. 1. A schematic diagram of a modified fully thermally coupled distillation column.

II. 증류탑의 설계

제안된 시스템은 변형된 열복합 증류탑이기 때문에 탑 설계는 구조설계 절차[4]를 사용하여 열복합 증류탑의 설계부터 시작하였다. 구조설계는 최소단 설계를 기초로 하고

* 책임저자(Corresponding Author)
논문접수 : 2006. 8. 30., 채택확정 : 2006. 10. 10.
박영민, 강현욱, 김영한 : 동아대학교 화학공학과
(ozkimini@hanmail.net/solid79@naver.com/yhkim@mail.donga.ac.kr)
※ 본 논문은 에너지관리공단과 한국과학재단의 지원을 받아 연구하였음.

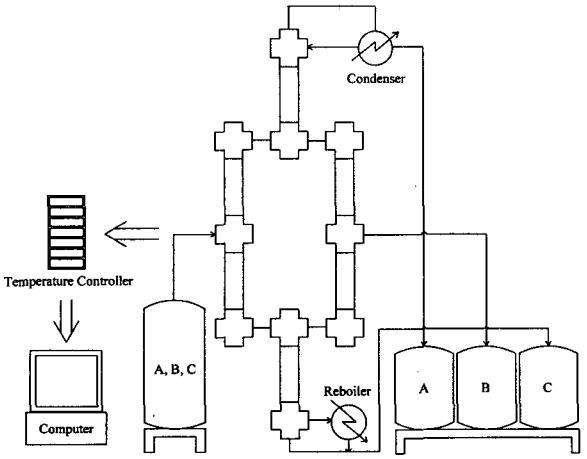


그림 2. 실험 장치도.
Fig. 2. Experimental setup.

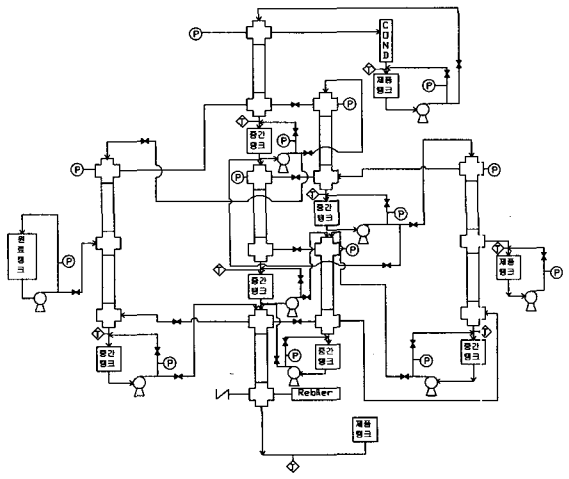


그림 3. 증류탑의 상세장치도.
Fig. 3. Detail of the distillation column.

있다. 삼성분계의 증류에서 가장 높은 증류탑 효율은 탑의 조성분포가 단증류의 잔류농도 곡선과 비슷할 때 최소단을 요구하는 전환류 조작 시 얻어진다. 그러므로 원료의 조성이 잔류농도 곡선에 근접하도록 전처리탑을 설계하고 중간제품의 조성이 또 다른 잔류농도 곡선에 유사하게 주탑의 증류곡선을 구성하면 증류탑의 효율을 극대화할 수 있다.

원료의 조성을 이용하여 전처리탑의 탑내 액조성 분포를, 중간제품의 조성을 이용하여 주탑의 액 조성분포를 각각 평형단 계산을 이용하여 실시한다. 공급단과 중간제품 생산단의 위치 또한 조성분포 계산결과로부터 단수를 읽어서 구할 수 있다. 전처리탑과 주탑 사이의 연결단은 두 연결단의 액조성의 차가 최소가 되는 단으로 결정하면 된다. 이렇게 구한 탑의 구조자료는 이상적인 최소단 탑의 구조정보이기 때문에 실제단의 단수는 최소단의 2배를 사용하였다. 원료의 공급단, 중간제품 생산단, 연결단의 위치도 동일하게 비례적으로 확장하였는데 이는 최소단 증류탑의 높은 열역학 효률을 유지하기 위함이다.

일단 구조적인 정보들이 결정이 되면, 주어진 제품 조성에 관한 액과 증기의 유량과 같은 조작변수들은 HYSYS 수치모사로부터 찾아내었다. 열복합 증류탑에 대한 구조 설계 절차에 대한 보다 상세한 설명은 아래에 나타내었다.

전환류 조작에서 단의 증기 조성은 그 윗 단의 액의 조성과 동일하다. 그러므로 전처리탑에서 원료공급단 상부의 단들의 액 조성은 공급단의 조성으로부터 시작되는 평형단 계산법의 평형 관계로부터 계산되어 질수 있다. 포화상태로 액체원료가 공급되고, 원료 공급단의 조성이 원료의 조성과 같을 때, 공급단 바로 윗 단의 액체 조성은 공급단의 증기의 조성과 같을 것이다. 공급단 상부의 단에서의 액 조성은 다음과 같이 순차적으로 계산된다.

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

여기서 K는 평형상수이다. 이 계산은 전처리탑의 최상단까지 연속적으로 행하여진다. 전처리탑의 최상단 조성은 아래에 설명하는 주탑의 조성 분포와의 비교를 통해서 연결단 사이의 조성차이가 최소가 되도록 결정되어진다. 공급단 하부의 단들에 대해서는 같은 방식이 (1)의 변형된 식에 의해서 계산되어진다. 공급단 아래의 단들의 액체 조성은 다음의 식을 사용하여 평형단 계산에 의해 구해진다.

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

(1)과 (2)의 비교에서 알 수 있는 바와 같이 (2)의 평형상수가 함축적 정보를 가지고 있으며 이것은 간단한 최적화 계산을 이용하여 알아낼 수 있다. 원료의 조성이 공급단의 바로 아랫단의 증기 조성과 같기 때문에 공급단의 액조성은 평형관계를 이용하여 하부단의 증기의 조성으로부터 얻어진다. 이렇게 전처리탑의 최하단까지 연속적으로 계산을 진행한다.

주탑의 설계에 있어 계산은 중간제품의 조성에서부터 시작되며, 그리고 전체 계산과정은 전처리탑의 설계에서 사용되었던 것과 같은 방법을 사용하여 반복된다. 최상단과 최하단에서의 조성은 상부제품과 하부제품의 조성과 일치해야 한다. 이때의 단수는 주탑의 최저단수이다. 실제적인 증류탑에서는 증류탑의 설계의 일반 설계기준[5]을 이용하여 최소단의 2배를 사용하였다. 주탑과 전처리 탑의 연결단에서의 조성의 차이는 비가역 혼합을 일으키고, 이것은 열복합 증류탑의 열역학적 효율을 저하시킨다. 그러므로 연결단의 조성은 비슷한 것이 좋다. 조성차이를 최소로 하기 위해 전처리 탑과 주탑의 탑내 액체조성을 비교하여 연결단들을 결정하였다. 최소단의 증류탑 구조를 유지하고 증류 곡선이 전환류 조작의 조성 프로파일과 유사할 때 증류탑은 높은 증류효율을 가지게 된다. 최소단의 구조로부터 실제적인 탑 구조로 적절히 단수를 늘리는 것에 의해 높은 열역학적 효율의 증류탑구조가 유지된다. 최소단 구조로부터 실제적인 탑 시스템으로의 확장에 대한 2의 확장계수는 실무적인 증류탑 설계에서 보통 사용하는 기준이다[5]. 주탑과 전처리 탑의 총단수는 이 계수를 사용하여 얻어지며, 원료공급단의

위치, 중간제품 생산단과 연결단들도 탑의 상부로부터 단수를 계산하여 얻는다.

그림 1의 분리주탑 시스템은 중간제품 생산단의 위치를 기준으로 상부와 하부탑으로 분리된다. 원래의 열복합 증류탑의 주탑은 상부와 하부탑으로 분리되어 있고, 증기와 액체의 이동으로 서로 연결되어 있다. 상부 주탑의 바닥에 중간제품의 생산단을 설치하였기 때문에 중간 제품의 조성제어가 원래의 열복합 증류탑보다 용이하다. 제안된 시스템의 구조적 정보는 원래의 열복합 증류탑의 구조설계로부터 쉽게 구할 수 있다. 제안된 시스템의 구조설계의 결과를 표 1에 나타내었다. 상부주탑이 원래의 열복합 증류탑의 주탑의 중간제품 생산단 윗 부분으로부터 설계되며 하부탑은 주탑의 나머지에 해당됨을 알 수 있다. 주어진 조성의 제품을 얻기 위해서 위에서 구한 구조의 증류 시스템에 대한 운전조건의 계산이 필요하다. 운전 변수는 계산된 제품 조성이 주어진 값에 도달할 때까지 반복계산의 시뮬레이션으로부터 얻어진다. 상업적인 설계 프로그램인 HYSYS가 여기서 사용되었기 때문에 알고 있는 증류탑 구조로부터 운전변수의 계산은 비교적 간단한 절차이다. 하부탑의 압력을 가장 높게 하였으며, 전처리탑은 그 다음으로 하였고, 그리고 상부의 주탑은 용이한 증기흐름을 위해 가장 낮게 설정하였다. 반면에, 액의 흐름은 증기흐름과 반대의 방향이므로 압력이 높은 곳으로 흘러간다. 그러므로 증기의 흐름에 반대방향의 액체흐름을 위해 펌프가 필요하다. 증기 이동을 위한 응축기의 압력증가를 위한 배치는 비용이 많이 들고 유지도 어렵다. 그림 1에 액의 이동을 위한 3개의 펌프를 나타내었으나 실험에서는 실제로 이보다 많은 펌프를 사용하였다. 증류탑 운전의 변수들은 원하는 제품조성이 구해질 때까지 시뮬레이션을 하여 얻었으며, 시뮬레이션의 결과인 운전변수들은 표 1에 요약 되었다.

III. 결과 및 고찰

제안된 증류시스템의 성능평가를 위하여 실험공정이 활용되었다. 알코올 분리공정은 실험실에서 취급하기 용이한 압력범위에서 적절한 비점을 가지므로 증류실험에 적당하여 본 연구에서 사용하였다. 알코올 혼합물은 메탄올, 에탄올, 1-프로판올의 3 성분계이고 원료의 조성은 표 2에 나타내었다. 실험에서 얻어진 3가지 제품의 조성과 원료의 조성은 기체 크로마토그라프를 사용하여 측정하였다. 그림 2는 전체 실험장치를 보여주며 증류탑의 주요부분에서의 온도를 측정하여 PC에 자료가 실시간으로 입력되게 장치하였다. 증류탑 부분의 실제 설비 구조는 그림 3에 자세히 나타내었다. 실험용 증류탑에는 온도계와 압력계가 부착되어 탑 운전을 보다 쉽게 관리할 수 있게 하였다. 증류단은 2인치 칼럼을 사용하였으며 내부는 간격 3mm, 폭 1.2m의 스텐 철망을 감아서 충전물로 사용하였다. 재비기에는 증기를 공급하여 가열하였으며 유량의 조절은 측정온도를 참고하여 수동조작을 하였다. 증기관은 1/2 인치의 동관을 사용하였고 액의 흐름관은 3/8 인치 동관을 사용하였다. 표 1의 증류단수는 시뮬레이션에 사용한 단수이며, 실제 실험에서는 이에 비례하여 전처리탑은 1m, 상부주탑은 2.4m, 하부주탑은 1.6m의 충전탑을 사용하였다. 충전탑의 높이가 충분하지 않아 실제 필요한 소요단수를 충족하지 못할 것으로 예상하였다. 그림 4에 냉각기에서의 응축액과 재비기에서의 증기온도를 측정한 결과를 나타내었다. 증기온도가 정상상태까지 상승되고 약 20 분후 상부제품의 온도가 상승한 것은 증류탑의 하단에서 상부 주탑까지 가열하는데 소요된 시간을 의미하며 보일러의 특성상 주기적인 용수공급에 따라 증기의 압력이 변화하고 이에 따른 가열량의 변화에 따라 상부제품의 온도변화가 큼을 보여주고 있다. 메탄올의 표준비점이 65도임을 감안하면 상부제품이 부분적으로 과냉각 상태임을 보여준다. 그림 5에는 상부주탑과 하부 주탑에서의 온도변화를 나타내었다. 에탄올과 프로판올의 표준비점이 각각 78도, 97도이므로 측정된 온도로부터 제품의 조성이 대략 어느 정도인지예측이 가능하다. 상부주탑의 온도상승이 하부주탑의 온도 상승에 비해 느린 것은 증기가 하부

표 1. 알콜 공정의 제안된 열복합 증류탑과 원래 시스템의 구조설계 결과로 부터의 단수. 단수는 탑최상단에서 계산.

Table 1. Tray numbers from structural design and operating conditions for the proposed and original fully thermally coupled distillation columns of alcohol process. Tray numbers are counted from top.

Name	Proposed			Original	
	Prefract	Upper	Lower	Prefract	Main
Structural					
number of trays	10	24	16	10	40
feed/side product	6	7	10	6	24
interlinking stages					7,34
Operating					
feed (kmol/h)	100.0	232.7	242.3	100.0	
overhead (kmol/h)		33.32	220.0		33.29
bottom (kmol/h)		133.4	33.34		33.37
side (kmol/h)		33.34			33.26
reflux (kmol/h)	155.0	307.6	100.3	290.1	282.9
vapor boilup (kmol/h)	220.0	89.33	294.2	492.9	272.1
heat duty (GJ/h)			12.3		11.4

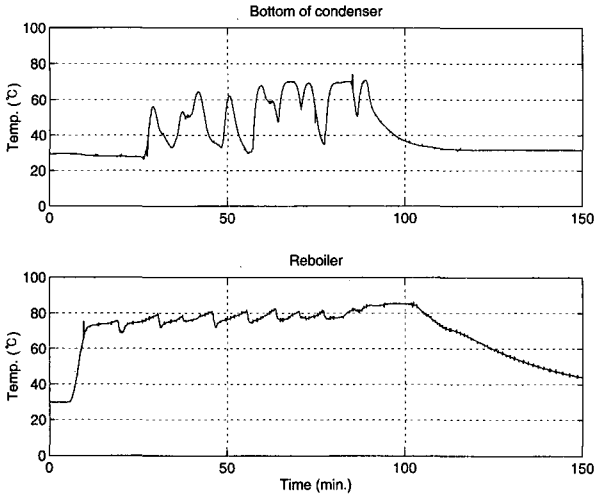


그림 4. 냉각기와 재비기에서의 온도 변화.

Fig. 4. Temperature variations of condenser and reboiler.

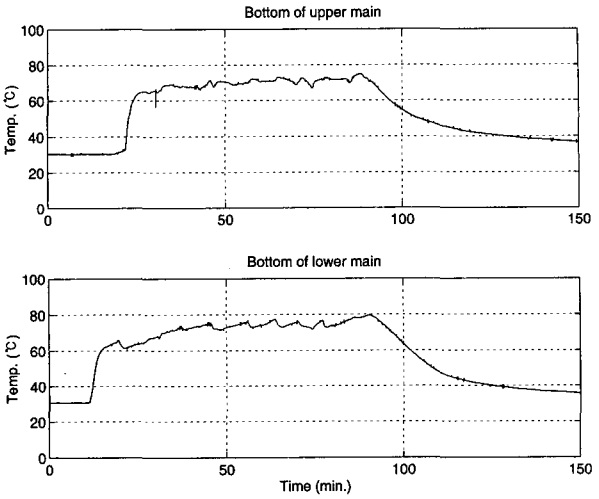


그림 5. 상부주탑과 하부주탑의 온도 변화.

Fig. 5. Temperature variations of upper and lower main columns.

표 2. 원료와 제품의 조성, 회수율의 실험결과 단위는 mol %.

Table 2. Experimental results of feed and product compositions and recovery. Units are in mol %.

Component	Feed	Overhead	Bottom	Side	% Recovery
methanol	52.9	75.1	33.3	22.7	61.0
ethanol	26.5	20.6	47.2	19.1	58.8
1-propanol	20.5	4.3	19.5	58.1	68.0
total amount		43	33	24	

에서부터 증류단을 가열하기 때문임을 보여준다.

실험에서 얻어진 제품의 조성을 비교하기 위하여 원료와 3가지 제품의 조성을 표 2에 정리하였다. 원료의 조성과 비하여 상부제품에서는 메탄올의 조성이 22.2% 증가하였고, 중간제품은 에탄올이 20.7% 증가하였으며 하부제품은 프로판올이 37.6%가 증가하였음을 보여주고 있다. 시뮬레이션에서 중간제품의 에탄올 조성이 90%이므로 실험에서의 증류탑 효율이 이론적인 탑효율에 훨씬 모자람을 알 수 있다. 회수율을 계산하면 메탄올, 에탄올, 프로판올이 각각 61%, 58.8%, 68%에 해당한다. 실험실에서의 증류탑 설치 높이가 제한적이고 충전탑의 내부구조가 적절한 탑효율을 유지하기에는 부적당하여 실험결과가 시뮬레이션 결과를 만족시키지 못한 것으로 판단된다. 그러나 실험을 통하여 본 연구에서 제안한 분리주탑형 열복합 증류탑이 압축기를 사용하지 않고 분리조작이 가능함을 보여주고 있어 열복합 증류탑의 변형에 따라 운전성을 개선할 수 있음을 보여주고 있다.

IV. 결론

본 연구에서는 열복합 증류탑의 운전성을 개선하기 위하여 주탑을 상부와 하부로 분리한 구조를 제안하고 그 설계방법을 설명하였으며 실제 운전이 가능한지를 2인치 증류탑으로 실험한 결과를 제시하였다. 실험은 메탄올, 에탄올, 프로판올의 3가지 알코올 혼합물을 사용하여 실시하였으며 실험결과는 HYSYS를 이용한 시뮬레이션 결과와 비교하였다. 실험의 결과로부터 각각 성분의 회수율이 58.8%에서 68% 범위임을 알았으며, 시뮬레이션 결과와의 비교에서 실험의 탑효율이 충분하지 못함을 알 수 있었다. 그러나 본 제안의 열복합 증류탑을 압축기를 사용하지 않고 운전이 가능함을 보여 차후 실제 공정에 응용할 수 있음을 보였다.

참고문헌

[1] J. Y. Lee, Y. H. Kim, and K. S. Hwang "Design of gas concentration process with thermally coupled distillation column using HYSYS simulation," *J. Control Auto. Syst. Eng.*, (in Korean) 8, pp. 842-846, 2002.

[2] R. Agrawal and Z. T. Fidkowski; "More operable arrangements of fully thermally coupled distillation columns," *AIChE J.*, 44, pp. 2565-2568, 1998.

[3] Y. H. Kim, "An alternative structure of a fully thermally coupled distillation column for improved operability," *J. Chem. Eng., Japan*, 36, pp. 1503-1509, 2003.

[4] Y. H. Kim, "Structural design and operation of a fully thermally coupled distillation column," *Chem. Eng. J.*, 85, pp. 289-301, 2002.

[5] K. N. Glinos and M. F. Malone "Design of sidestream distillation columns," *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 24, pp. 822-828, 1985.

기호

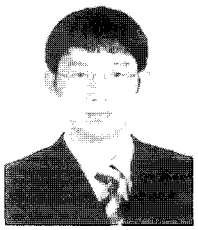
B = bottom product
D = overhead product
F = feed
L_2 = prefractionator liquid flow rate [kmol/h]
L_3 = lower main column liquid flow rate [kmol/h]
L_D = upper main column liquid flow rate [kmol/h]
NF = feed tray
NR = interlinking tray at upper main column
NS = interlinking tray at lower main column
NT = total tray number at lower main column
NT_2 = total tray number at prefractionator
NT_3 = total tray number at upper main column
S = side product
V_2 = prefractionator vapor flow rate [kmol/h]
V_3 = upper main column vapor flow rate [kmol/h]
V_B = vapor boilup rate [kmol/h]

박 영 민

1974년 4월 2일생. 1999년 경성대학교 학사. 2000년 동아대학교 석사. 2006년~현재 동아대학교 화학공학 박사 과정. 관심분야는 분리기술.

김 영 한

1952년 8월 21일생. 1976년 동아대학교 화학공학과 학사. 1980년 한국과학기술원 화학공학과 석사. 1984년 미국 Lamar Univ. 화학공학과 박사. 현재 동아대학교 화학공학과 교수. 관심분야는 화학공정설계, 화학공정제어, 화학공정센서.



강 현 욱

1979년 3월 3일생. 2005년 동아대학교 화학공학과 학사. 2005년~현재 동아대학교 화학공학과 석사과정. 2005년~2006년 일본 효고현립대학 교환과정. 관심분야는 화학공정설계, 화학공정측정.