

에너지 절약형 증류탑의 설계

김 영 한
동아대학교 화학공학과

1. 서론

석유화학공장에서의 에너지절약을 위한 시도는 모든 나라에서 공통적으로 관심을 갖고 있으나 에너지의 수입비중이 큰 국가에서 더 많은 관심을 가지고 있다. 특히 일본과 한국은 석유화학공업이 매우 발달하였으면서도 대부분의 석유를 수입에 의존하고 있기 때문에 이러한 에너지절약을 위한 연구가 시급하다고 할 수 있다.

화학공장의 분리공정 중 약 95%가 증류공정으로 이루어져 있으며 미국의 경우 약 40,000 개의 증류탑이 가동되고 있고 이는 미국의 전체 에너지 소모량의 3%에 해당된다[1]. 이러한 통계에 비추어 화학공장에서의 에너지절감 특히 증류공정에서의 에너지절감은 국가 전체의 에너지 소모량에 대한 비중이 크기 때문에 증류공정의 운전시 소모되는 에너지의 절약은 그 효과가 대단히 크다고 할 수 있다.

증류공정에서의 에너지절감을 위한 방안으로 기존의 공정에 최신의 제어기법을 도입하거나 최적화의 기법을 활용하면 에너지 절감효과를 얻을 수 있고 또 실제로 많은 공장에서 이러한 방법으로 에너지를 절감하고 있는 것이 현실이다. 그러나 공정자체를 개선하여 에너지를 절감한다면 그 절감효과는 최신의 제어기법이나 최적화의 활용에 의한 절감과는 비교도 할 수 없을 정도로 큰 에너지절감의 효과를 얻을 수 있다. 예를 들어 열복합형 증류탑의 경우 기존의 공정에 비해 약 30%의 에너지를 절감할 수 있으며[2] 이는 실로 대단한 절약이 아닐 수 없다. 이러한 이유 때문에 열복합형 증류공정의 개발을 위한 연구는 지속적으로 실시되어 왔으며 이미 외국에서는 일부 상업적 응용이 시작되어 독일의 BASF 사[3]와 일본의 Kyowa Petrochemical Co. [4,5]에서 실제 설치하여 가동한 사례가 발표된 바 있다. 또 Kellogg 사에서는 정밀화학공정에 활용한 사례 [6]를 발표한 바 있다. 특히 Kyowa Petrochemical Co.의 최근 현황을 알아본 바에 의하면 3기의 증류탑을 차례차례로 설치하여 많은 에너지 절감효과를 얻고 있으며 실제 설비를 담당한 Sumitomo 중공업에서는 장치설계의 노하우를 바탕으로 열복합형 증류탑의 설비광고를 많이 하고 있다.

에너지 절약형 증류탑에는 크게 나누어서 두가지가 있는데 하나는 내부열교환형 증류탑이고 다른 하나는 열복합형 증류탑이다. 내부열교환형 증류탑은 그림 1에서와 같이 회수부와 농축부가 분리되어 있다. 기존의 증류탑은 회수부 위에 농축부가 있으며 하나의 탑으로 이루어져 있다. 그러나 회수부에서 필요한 에너지를 농축부에서 회수된 에너지로 사용할 수 없다. 이는 회수부의 온도가 농축부에 비해 높기 때문에 열전달이 불가능하기 때문이다. 내부열교환형 증류탑은 농축부의 탑내 압력을 회수부보다 높게 유지하여 온도를 회수부보다 높게 한 것이다. 이렇게 하면 농축부에서 회수된 에너지를 회수부에서 재사용할 수 있어 증류탑에서 사용하는 전체에너지의 양을 줄일 수 있다. 이때 발생하는 문제점은 농축부의 압력을 높이기 위하여 부가적인 장치와 소요동력이 필요하다는 문제점과 농축부와 회수부 상이의 열전달효율을 높게하면서 통상의 증류공정이 유지되도록 탑의 구조를 적절히 제작하는 두가지의 해결하여야 할 문제가 있다.

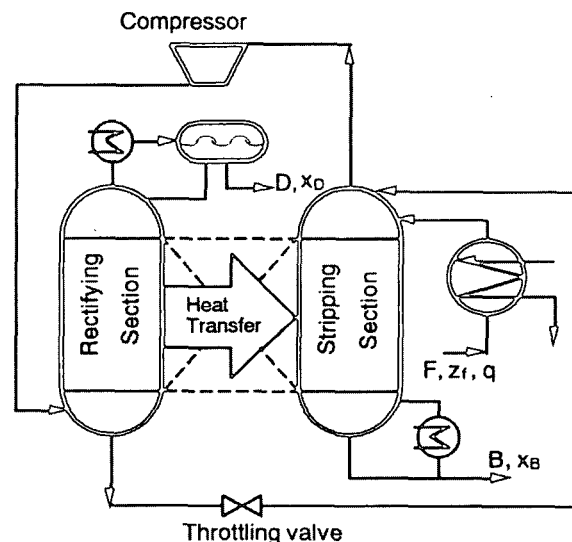


그림 1. Schematic diagram of a heat-integrated distillation column.

열복합형 증류탑은 그림 2에서와 같이 한 개의 증류탑에 전처리탑을 부가하여 3가지 성분을 분리하는 증

류공정에 활용하고 있다. 보통 3성분의 분리에는 두 개의 탑을 연속으로 사용하고 있으나 전처리탑이 부착된 1개의 탑으로 분리를 할 경우 에너지를 약 30% 절약할 수가 있어서 이를 이용하는 연구가 근년에 많이 시행되고 있으며 일본과 유럽을 중심으로 상용화가 일부 되고 있고 운전의 어려움 만 해결되면 훨씬 많은 공정에서 활용이 될 것으로 예상된다.

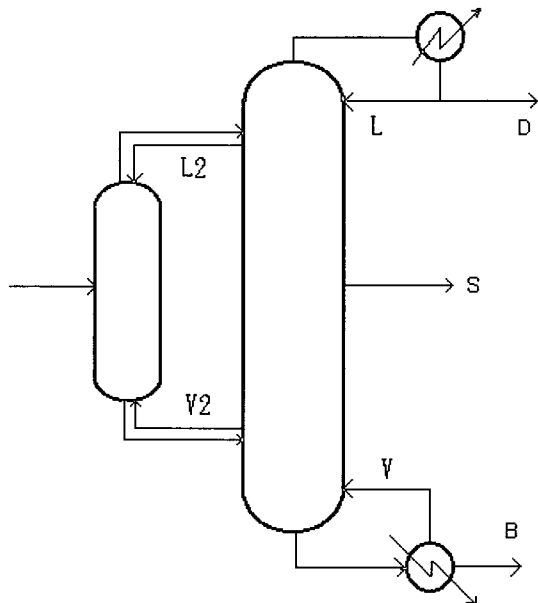


그림 2. Schematic diagram of a fully thermally coupled distillation column.

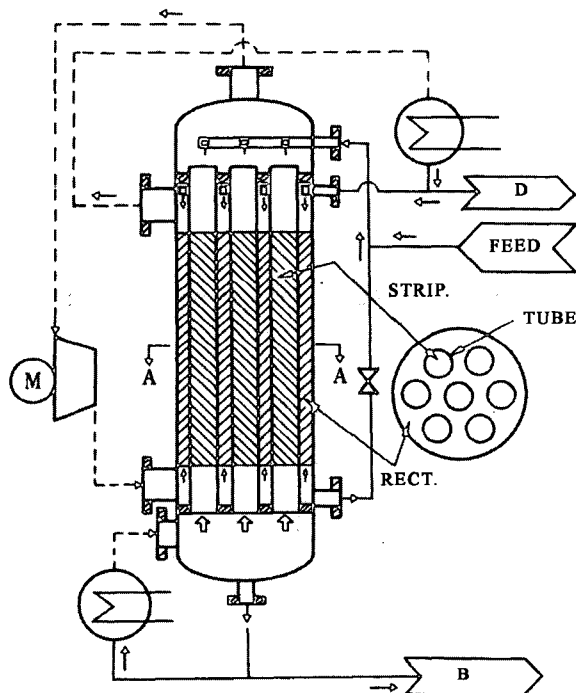


그림 3. Schematic of internal structure of a heat-integrated distillation column.

여기에서는 에너지절약형 증류탑의 두가지 형태인 내부열교환형 증류탑과 열복합형 증류탑의 개요와 설계방법 등에 관하여 구체적으로 발표하고자 한다.

2. 내부열교환형 증류탑의 개요

보통의 증류탑은 원료 공급단을 기준으로 상부를 농축부, 하부를 회수부라 부르고 회수부의 맨 밑에 재비기를 설치하여 증기를 상부로 보내면서 하부로 내려오는 액과 서로 접촉시켜 기액간 물질전달에 의한 증류조작이 일어나게 한다. 또 농축부의 최상단에 냉각기를 설치하여 증기의 냉각에서 얻어진 액을 다시 탑내로 공급함으로써 액이 지속적으로 탑내부를 흐를 수 있게 되어 있다. 그런데 농축부에서는 원료보다 저비점성분의 농도가 높고 회수부에서는 고비점성분의 농도가 높다. 이 탑을 최소환류상태로 운전할 때 에너지의 사용량이 최소가 되지만 무한대의 이론단수가 필요하고 최소환류상태에서도 핀치포인트를 제외하고는 비가역손실이 발생한다. 비가역손실이 전혀 없는 가역적 증류는 무한대 단수의 증류로서 기액평형선과 증류조작선이 일치하는 증류를 말하는데 이는 실현 불가능하다.

그런데 만일 농축부의 냉각에서 얻은 열을 회수부의 가열에 사용할 수 있다면 외부의 열원없이도 가역적 증류가 가능하다. 그러나 보통 탑의 상부로 올라갈수록 저비점성분의 농도가 높아져 탑내 온도가 낮아지게 되므로 냉각온도는 가열온도보다 낮아 상부에서 얻은 열을 하부에서 이용할 수가 없다.

이러한 문제를 해결하기 위하여 히트펌프의 개념을 이용할 수 있다. 히트펌프는 비점의 변화를 압력의 변화로부터 유도하는 공정이므로 증류탑을 2개의 부분 즉 농축부와 회수부로 분할하여 농축부의 조작압력을 회수부보다 높게 하는데 히트펌프 즉 압축기를 활용한다. 이렇게 하면 농축부의 비점 즉 탑내온도를 회수부보다 높게 유지할 수 있고 농축부에서 얻은 열량을 직접 회수부에 공급하는 것이 가능하게 된다. 이러한 내용이 그림 1에 표시되어 있다. 농축부의 탑내 압력을 적절히 유지함으로써 농축부의 각 단과 회수부의 각 단이 서로 대응하여 각 단 별로 전열이 일어나게 도니다. 이러한 전열에 따라 농축부에서는 기액의 유량이 하단으로 내려올수록 증가하고 회수부에서는 기액의 유량이 상단으로 갈수록 증가한다. 이러한 증류탑을 내부열교환형 증류탑이라고 한다.

히트펌프를 이용한 증류탑에서의 에너지 절약기술의 한가지로 증기재압축법이 있지만 증기재압축법은 기본적으로 증류탑의 탑상단과 탑하단 사이에 히트펌프를 설치하고 온도를 상승시켜 열을 재사용하는 것인데 반해서 내부열교환형 증류탑은 탑의 길이방향으로의 전체 온도분포를 이용하는 것이므로 증기재압축법에 비

하여 온도상승폭이 좁아도 전열이 가능하다.

내부열교환형 증류탑의 실제모양이 그림 3에 나타나 있다. 마치 다관식 열교환기와 유사한 형태이지만 열교환기에 비해 관의 직경이 크고 관내부에 충전물은 채운 것이 다르다. 젖은벽막 형식의 것도 있지만 분리효율을 감안할 때 충전식보다 그 성능이 떨어진다. 그림 4에 이러한 구조가 상세히 묘사되어 있다. 충전탑 대신 단탑(그림 5)을 사용하는 것도 가능하지만 장치의 제작이 힘들고 전열면적이 앞의 것에 비해 현저히 적어지는 단점을 갖고 있다.

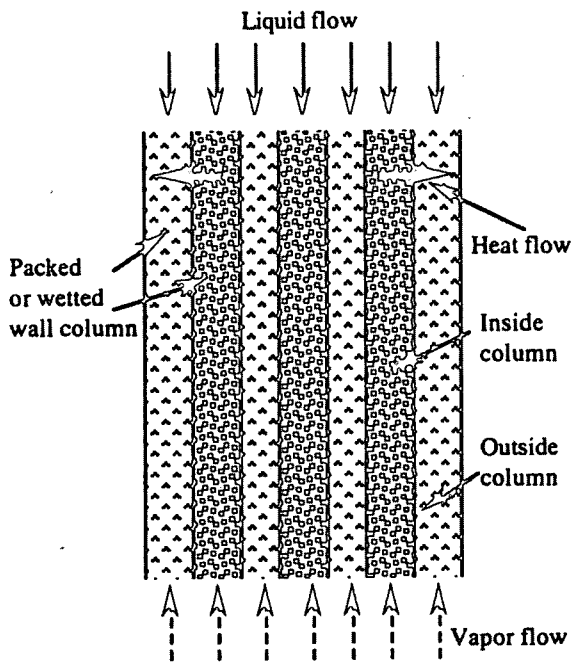


그림4. Detail of a packed heat-integrated distillation column.

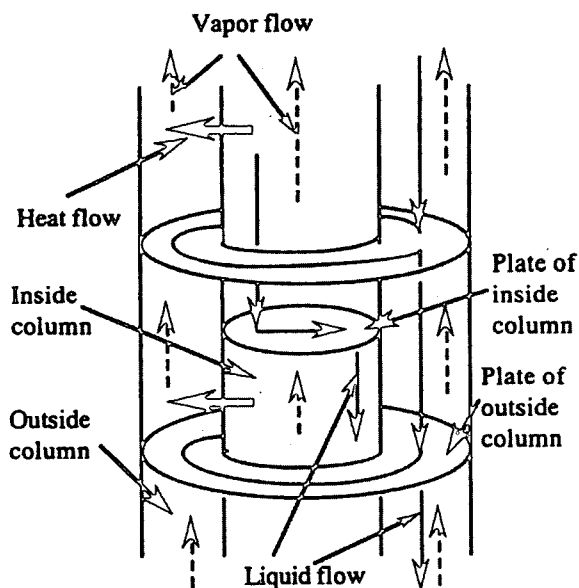


그림5. Detail of a trayed heat-integrated distillation column.

3. 내부열교환형 증류탑의 설계

내부열교환형 증류탑을 처음 해석한 Mah 등[7]의 연구에서 2성분계를 분리할 때 에너지소비와 유효에너지 소비량을 수치모사를 통하여 해석하였다. Takamatsu 등[8]과 Lueprasitsakul 등[9]은 농축부와 회수부 사이의 열교환이 미분접촉으로 일어나는 내부열교환형 증류탑에 관한 수식 모델을 제안하고 수치모사를 통한 에너지절약에 관해 연구하였다. Nakaiwa 등[10]은 최소이론단과 최소환류비를 고려한 증류탑설계 계산법을 제안하였다.

Nakaiwa 등[11]의 계단식 설계법을 살펴보면 우선 그림 6와 같은 1개의 단에서 기액접촉과 열전달이 동시에 일어난다고 할 때 왼쪽의 농축단에서 공급된 열량은 오른쪽의 회수단이 얻은 열량과 같다. 이때 열손실이 없다고 가정하고 보통의 증류탑설계에서와 같이 등몰기액교환 (equimolal overflow)의 가정을 사용하면

$$R_e = V_s \quad (1)$$

여기서 Re 는 농축부의 액체유속이고 V_s 는 회수부의 증기유속이다. 이때 탑으로부터의 열손실과 외부에서 공급되는 추가적인 열의 공급이나 냉각이 없다고 가정하였다. 또 원료의 공급량으로부터 상부제품과 하부제품의 양을 각각 다음과 같이 구할 수 있다.

$$P = F_y, W = F_x \quad (2)$$

여기서 상부제품의 유량 P 는 원료 중에 포함된 증기의 양과 같고 하부제품 유량 W 는 원료 중에 포함된 액의 유량과 같다. 또 원료의 조성 and 상부제품 및 하부제품의 조성 사이의 관계는

$$z_F = (1-q)y_p + qx_w \quad (3)$$

와 같이 쓸 수 있다. 여기서 q 는 공급선 파라미터이다 (그림 7 참조). 식 (1)-(3)이 이상적 내부열교환형 증류탑의 기본식이다.

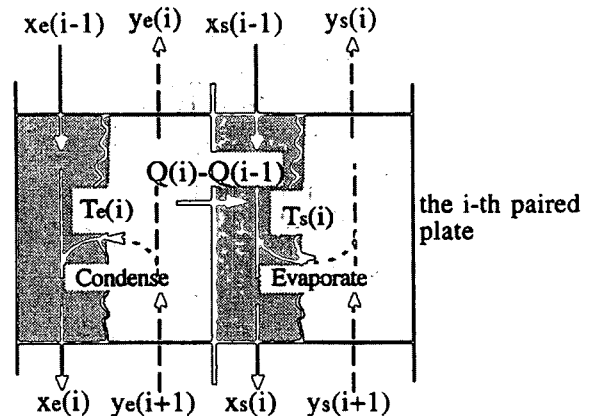


그림6. Schematic of heat transfer between retifying and stripping trays.

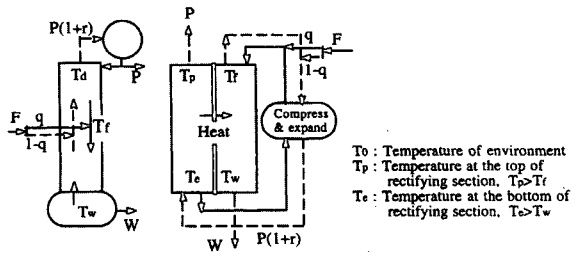


그림7. Temperature and flow distribution.

내부열교환형 증류탑의 설계를 위하여 수치모사를 통한 제품의 농도계산을 하고자 한다. 그림 5에서와 같이 농축부와 회수부의 1개의 단이 서로 연결되어 전열이 일어난다고 하고 이상적 단효율을 가정하면 $x(i)$ 와 $y(i)$ 는 평형상태에 있다. 여기서 i 는 탑상단으로부터 i 번째의 단을 의미한다. 농축단의 온도 $T_c(i)$ 가 회수단의 온도 $T_s(i)$ 보다 높다고 하면 에너지 수지식을 다음과 같이 쓸 수 있다. 이때 농축부의 단수와 회수부의 단수가 같음을 유의해야 한다.

$$Q(i) = UA[T_c(i) - T_s(i)] + Q(i-1) \quad (4)$$

여기서 $Q(i)$ 는 탑상부로부터 i 번째 단까지 농축부가 내어놓은 총열량이다. 또 U 는 총괄전열계수이고 A 는 전열면적이다. 농축부의 각단에서의 액의 환류비를 $r_c(i)$ 라하고 회수부에서의 증기의 환류비를 $r_s(i)$ 라고 하면 각각 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$r_c(i) = Q(i) / \lambda / P, \quad r_s(i) = (Q - Q(i)) / \lambda / W \quad (5)$$

여기서 Q 는 전체 회수부가 얻은 열량이다. 농축부에서의 물질수지식으로 부터 각단에서의 증기조성을 계산하면

$$y_c(i+1) = \frac{r_c(i)}{1+r_c(i)} x_c(i) + \frac{1}{1+r_c(i)} y_p \quad (6)$$

또, 회수부에서의 물질수지식으로 부터 각단에서의 증기조성을 계산하면

$$y_s(i+1) = \frac{1+r_s(i)}{r_s(i)} x_s(i) - \frac{1}{r_s(i)} x_w \quad (7)$$

위 식(6)과 (7)을 이용하여 다음과 같이 증류탑을 설계할 수 있다.

- 1) 원료의 유량과 상부제품의 조성 y_p 및 하부제품의 조성 x_w 으로 부터 전체 물질수지식을 이용하여 상부제품과 하부제품의 유량을 계산한다.
- 2) 식 (3)을 이용하여 q 의 값을 계산한다.
- 3) 농축부와 회수부의 압력을 적절 2 회 선정하여 농축부와 회수부 사이에 적당한 전열이 일어나게 한다.
- 4) 원료공급단에서의 환류비를 정하면 총전열량을 계산할 수 있다.
- 5) 회수부 최상단의 온도가 원료의 포화온도와 같다고

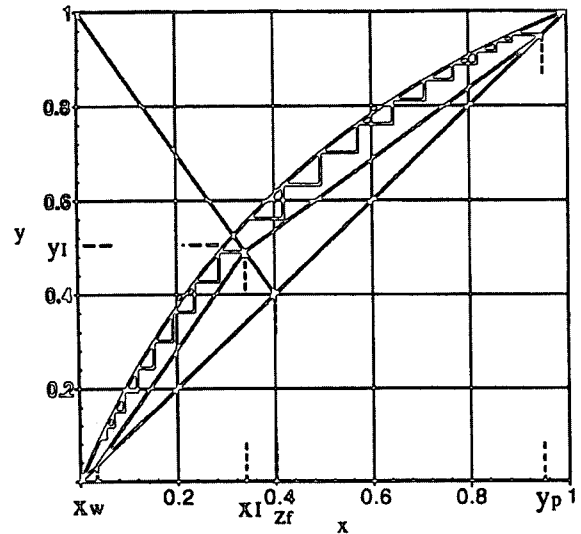
하면 탑의 상단으로부터 하단까지 계단식 계산법, 식 (6)과 (7),을 이용하여 각단에서의 조성을 계산할 수 있다.

6) n 번째 단에서 다음 식을 만족하면 계산을 끝낸다.

$$y_c(n+1) \leq y_l \quad \text{and} \quad x_s(n) \leq x_l \quad (8)$$

여기서 x_l 와 y_l 는 각각 농축부와 회수부의 연결부에서의 액과 증기의 조성이다. 만일 식 (8)의 조건을 만족시킬 수 없으면 U 와 A 또는 원료공급단에서의 환류비를 수정하여 다시 계산을 반복한다.

그림 8은 벤젠-톨루엔 이성분계의 분리를 위한 내부 열교환형 증류탑의 계단식 계산결과를 나타낸 것이다. 계산에서 10단이 필요한 것을 알 수 있으며 이는 이론 단수이다.



($a=2.4, z_f=0.4, y_p=0.95, \lambda=30000 \text{ kJ/kmol}, re(n)=3.03$)
 $UA=47000 \text{ kJ/h-K}, n=10$ were obtained

그림 8. Result of plate-to-plate calculation for benzene-toluene system.

4. 열복합형 증류탑의 개요

열복합증류탑, 일명 Petlyuk 탑[12]의 개발은 약 반세기 전에 이미 되었으나 설계와 운전의 어려움 때문에 상용화가 이루어진 것은 최근의 일이다. 3 성분의 분리에 열복합형 증류탑을 사용하면 여러 가지 원료의 조성에 대해 보통의 2탑분리에 비해 에너지를 절감할 수 있는데 [13], 이는 2탑분리공정의 제 1탑에서 발생하는 중간성분의 재혼합과 원료공급단에서 생겨나는 원료의 혼합효과 때문이다[14].

열복합증류탑의 연구로는 최소환류비에 관한 연구가 많은 연구자에 의해 수행되었다 [13],[15],[16]. 이들 중 앞의 둘은 3성분의 분리에 관한 연구이고 마지막은 일반적인 경우에 대한 것이지만 모두 Underwood의 연구

[17],[18]에 기초한 것이다.

일반적으로 최소환류량에 대한 연구는 많이 있지만 다른 설계자료, 즉 전처리탑과 본탑의 단수, 원료공급단, 중간제품 유출단, 전처리탑과 본탑의 연결부위 등에 관한 연구는 거의 수행된 것이 없다. 구조적 설계를 위하여 3탑모델(three column model)을 이용한 간이설계법[14]이 소개된바 있는데 이는 본탑을 중간제품 유출부를 기준하여 2 개의 탑으로 분리함으로써 다성분 증류탑설계를 위한 간이 설계식을 활용한 방법이다. 이 연구에서는 설비비와 운전비의 합을 최소로 하는 최적화 단계를 거쳐 최종설계를 마치는 방법인데 분리된 두탑을 연결하는 과정에서 두탑의 증기와 액의 유량을 일치시켜야 하는 문제점 때문에 많은 반복계산이 필요하다. 또 간이설계식을 사용하기 때문에 정규모델 수치모사의 초기치로 활용하기에는 오차가 너무 큰 단점이 있다. 오차의 크기에 대해서는 당해 논문내의 계산내용을 비교하면 알 수 있다.

본 발표에서는 열복합증류탑 설계의 구조적 자료를 얻는 방법을 제안하고 이를 메타놀-에타놀-물의 3 성분계에 응용하여 그 성능을 검증하고자 한다.

5. 열복합형 증류탑의 설계

화학공정의 설계에 상업용 소프트웨어가 다양하게 소개되어 있고 또 실제로 많이 사용되고 있는 것이 현실이다. 그러나 열복합형 증류탑의 경우는 본탑과 전처리탑의 연결부분에 대한 구조적 설계자료가 없으면 수많은 반복계산을 하여야 필요한 제품을 얻을 수 있는 설계가 가능하다. 뿐 만 아니라 증류단의 단수와 액 및 증기의 흐름 사이에 연속적인 관계가 있지 않기 때문에 임의의 단수에 대해 증류탑계산이 수렴하지 않는 부분이 매우 많아 반복계산에 많은 문제점을 내포하고 있다. 이러한 이유로 열복합형 증류탑의 구조적 설계자료가 있으면 상용프로그램을 사용할 때에도 많은 도움을 얻을 수 있다.

보통 증류탑을 설계할 때 최소환류량을 계산하고 이 환류량의 1.2배 내지 1.5배를 실제환류량으로 하여 증류탑의 단수를 계산하거나 설비비와 운전경비의 합이 최소가 되도록 하는 최적화 단계를 거쳐 단수계산을 하는 것이 일반적인 순서이다. 그러나 여기서는 추가적인 자료 즉, 전처리탑과 본탑의 연결단에 관한 자료가 먼저 있어야 통상의 설계방법을 적용할 수 있기 때문에 최소환류량 대신 최소 소요단을 먼저 계산한다. 최적환류량을 이용한 통상의 증류탑 단수계산법은 매우 간단하지만 열복합형 증류탑의 연결단에 관한 계산은 불가능하므로 전처리탑과 본탑의 단수를 계단식 단수계산법으로 먼저 계산하여 연결단의 위치를 알아낼려고 한다. 또, 이 과정에서 원료공급단, 중간제품 유출단도 동시에 알아낼 수 있다. 이 계산결과를 최소단이므로 환

류비에 따라 비례적으로 이들 단수를 늘려 실제단수로 사용한다.

3성분 혼합물의 단증류에서 얻어지는 잔류조성 곡선(residue curves)의 예가 Fig. 9에 나타나 있다. 이들 곡선이 매우 넓게 분포되어 있는 것을 알 수 있으며 환류량이 그것을 결정한다. 즉 환류량이 많을수록 위쪽으로 올라가며 중간제품의 중간성분 농도가 증가한다. 원래 잔류조성 곡선은 충전탑이 전환류로 운전될 때의 조성분포이고 증류선(distillation lines)이 단탑의 조성분포를 나타내는 것이지만 여기서는 설명을 간단히 하기 위하여 잔류조성 곡선을 사용하였다.

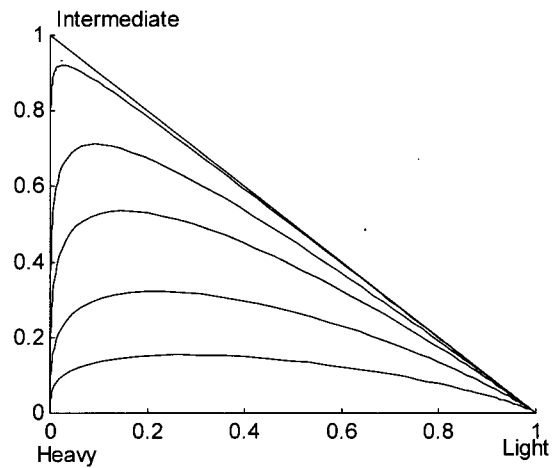


그림9. Residue curves for a ternary system.

환류량에 따른 중간제품의 조성은 다양하게 변화하는 반면에 상부제품과 탑저제품의 조성은 크게 영향을 받지 않는다. 그러므로 중간제품의 조성이 본탑의 증류선 이동을 결정한다. 만일 원료의 조성이 원료공급단의 조성보다 크게 다르지 않다면 원료의 조성이 전처리탑의 증류선을 결정하게 되는 것도 마찬가지이다. 원료와 중간제품의 조성이 상당히 비슷하지 않으면 전처리탑과 본탑의 증류선은 서로 큰 차이를 보인다. 즉, 둘의 단수가 많이 차이가 난다. 보통 전처리탑의 단수가 본탑의 중간부(본탑의 상부연결부와 하부연결부의 사이부분)보다 적으며 원료의 중간성분의 조성이 낮을수록 그 차이는 크다. 지금까지의 많은 연구[14],[20]-[25]에서 이러한 점이 간과되고 분리벽구조(dividing wall structure)의 증류탑이 많이 되었으며 상업화 증류탑에서도 증류탑 제작의 간편성 때문에 이를 선호하여 왔다. 분리벽구조에서는 전처리탑과 본탑의 중간부분의 단의 수를 일치시켜야 하므로 원료의 조성과 원료공급단의 조성에 많은 차이가 야기되고 이는 결국 증류탑의 효율저하를 가져온다. Triantafyllou와 Smith의 연구[14]에서 전처리탑의 단수가 본탑의 중간단에 비해 단수가 적게 나옴을 알 수 있다. 이때도 간이설계에서는 단수를 동일하게 하였으나 실제로 필요한 단수는 적게 나타난 점으로

부터 앞에서 설명한 내용이 타당함을 입증한다. 그러나 또 다른 연구[25]에서는 앞의 설명과 상반되게 전처리탑의 단수가 더 많게 계산한 것도 있다.

증류탑의 최소단수는 전환류 운전에서 얻어지며 이때 어떤 단에서의 증기의 조성은 한 단 위의 액의 조성 과 같다. 만약 원료공급단의 조성이 포화액체상태의 원료의 조성 과 같다고 가정하고 단효율이 이상적이라면 원료공급단보다 위쪽의 단에서의 액체조성은 다음 식으로 계산된다.

$$x_{n+1,i} = \alpha_i x_{n,i} / \sum_j \alpha_j x_{n,j} \quad (9)$$

여기서 n은 탑하단으로 부터 n번째인 단을 나타내고 i와 j는 성분을 나타내며 α 는 상대휘발도이다. 여기서 계산의 간편함을 위해 이상적 평형관계를 가진다고 가정하였다. 같은 방법으로 원료공급단 보다 밑에 있는 단에서의 액의 조성은

$$x_{n-1,i} = x_{n,i} / [\alpha_j \sum_j (x_{n,j} / \alpha_j)] \quad (10)$$

와 같이 계산된다.

이와 같은 계단식 계산법은 중간제품의 조성으로부터 시작하여 본탑의 각단에서의 조성을 계산할 수 있다. 비이상형 평형관계를 가진 계의 경우는 식 (9)과 (10)의 계산에서 상대휘발도를 사용하는 대신 적절한 평형관계식을 사용하면 된다.

예의 시스템으로 메타놀-에타놀-물 계를 사용할 경우 실험자료[26]에서 부터 상대휘발도를 각각 2.76, 1.81과 1.0으로 근사하고 등몰 원료가 공급될 경우 최소단을 계산한 결과 그림 10의 결과를 얻었다. 여기서 +의 표시는 원료의 농도에서 시작하여 식 (9)과 (10)로 부터 계산된 전처리탑의 각 단의 액의 조성을 나타내고 o 표시는 중간제품의 농도를 시작으로 한 본탑의 각 단

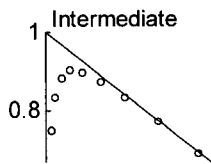


그림10. Liquid composition in a fully thermally coupled distillation system at the minimum number of trays.

에서의 액의 조성이다. 전처리탑과 본탑의 최소 소요단수는 그림에서 얻을 수 있는데 이 때 원료의 공급단과 중간제품의 단수도 얻을 수 있다. 동시에 본탑과 전처리탑의 연결단을 전처리탑의 양 쪽 끝단의 농도와 이에 상응하는 본탑의 조성을 비교하여 이에 맞는 본탑의 상부연결단과 하부연결단을 찾아낼 수 있다.

실제 열복합증류탑에서 사용하는 단의 수는 통상의 설계기준에 따라 위에서 계산한 최소단의 2배를 사용하기로 한다. 이렇게 하여 얻은 단의 수를 이용하여 필요한 환류량을 계산하고 이 실제환류량과 최소환류량을 비교한 예의 시스템의 경우 1.3의 값이 얻어졌고 이는 최소단의 2배를 사용한 기준이 적절함을 보여준다. 예의 시스템에 대하여 상부제품의 메타놀 분율이 0.95, 하부제품의 물분율이 0.95, 중간제품의 에타놀 분율이 0.9일 때 구조적 설계의 결과 본탑의 단수는 49단, 전처리탑은 14단, 원료의 공급단은 탑하부로 부터 7번째 단이고 중간제품의 유출단은 19번째 단이며 두 탑을 연결하는 단은 상부가 39번째, 하부가 7번째로 얻어졌다. 물론 에타놀과 물의 공비혼합물 형성은 여기서의 계산에 고려되지 않았다.

열복합형 증류탑의 구조적 설계자료를 바탕으로 증류탑의 운전설계를 할 수 있다. 여기서 구할 수 있는 자료는 환류량, 재비기로 부터의 증기의 양, 상부연결단에서 나오는 액의 본탑과 전처리탑과의 분리비율, 하부연결단에서 나오는 증기의 본탑과 전처리탑과의 분리비율 등이다. 이 중 정상상태 운전을 할 경우 등몰유출(equimolar overflow)의 가정을 사용하면 재비기로 부터의 증기량은 환류량과 상부제품의 양에서 구할 수 있고, 증기의 분리비는 액의 분리비와 중간제품의 생산량으로 부터 다음과 같이 계산해 낼 수 있다.

최소환류량의 계산에서 본탑의 최소환류량은 다음과 같이 얻어진다[13].

$$L = \max \left\{ \frac{A\phi_1}{\alpha_A - \phi_1}, \frac{A\phi_2}{\alpha_A - \phi_2} + \frac{\alpha_B B}{\alpha_B - \phi_2} \right\} \quad (11)$$

여기서 A와 B는 각각 원료 중 가장 가벼운 성분의 양과 중간성분의 양이고 ϕ 는 포화액의 경우에 대해 다음 식으로 계산된다.

$$\frac{\alpha_A A}{\alpha_A - \phi} + \frac{\alpha_B B}{\alpha_B - \phi} + \frac{\alpha_C C}{\alpha_C - \phi} = 0 \quad (12)$$

여기서 얻어지는 것은 본탑과 전처리탑 전부의 액의 양을 나타내며 전처리탑에서의 액의 유량은 다음 식으로 계산된다[13].

$$L_2 = \frac{\alpha_C F}{\alpha_A - \alpha_C} \quad (13)$$

여기서 F는 원료의 유량이다. 중간제품 중의 중간성분은 전처리탑으로부터의 일부는 위로 나와 본탑으로 공급되고 나머지는 밑으로 나와 본탑으로 공급되는데 이

때의 최적분리비는 다음식으로 주어진다[13].

$$\beta = \frac{\alpha_B - \alpha_C}{\alpha_A - \alpha_C} \quad (14)$$

만약 액의 분리비가 식 (11)에서 식 (13)까지를 이용하여 얻어진다면, 증기의 분리비는 식 (14)와 중간제품의 유량으로 부터 쉽게 얻어진다.

그러므로 환류량 만 계산하면 나머지는 위의 식들에서 계산이 가능하다. 위에서 얻은 구조적 설계자료를 이용하여 주어진 환류량에 대한 각 단의 액의 조성은 물질수지식을 이용하여 정상상태 수치모사를 하여 얻을 수 있다. 이들 액의 조성으로부터 제품의 조성을 알아낼 수 있고 얻어진 제품의 조성이 규격에 맞는 지 비교할 수 있다. 즉, 수치모사에서 환류량이 필요한 제품을 생산하는데 적당한 지를 알 수 있다. 이 때 앞에서 사용한 액의 분리비가 실제로 적당한 지를 점검할 필요가 있는 데 이는 앞의 계산식의 값이 실제보다 큰 값을 제공하기 때문이다[27].

다성분증류의 조성계산에 일반적으로 많이 사용하는 방법[28]을 여기서 열복합형 증류탑에 맞게 변형하여 사용하였다. 비정상상태에서 i 성분의 n 번째 단에서의 물질수지식은

$$M_n \frac{dx_{n,i}}{dt} = L_{n+1}x_{n+1,i} + V_{n-1}y_{n-1,i} - L_n x_{n,i} - V_n y_{n,i} \quad (15)$$

여기서 M 은 단에서의 액체체류량이고 x 는 액의 조성 y 는 증기의 조성이다. 정상상태에서 위 식의 왼쪽은 없어지고 증기의 조성은 상수의 상대휘발도를 이용한 다음의 평형관계식과 액의 조성으로부터 계산된다.

$$y_{n,i} = \alpha_i x_{n,i} / \sum_j \alpha_j x_{n,j} \quad (16)$$

이를 간단히 하면

$$y_{n,i} = K_{n,i} x_{n,i} \quad (17)$$

이고 이를 행렬식으로 바꾸면

$$\begin{bmatrix} A_{11} & A_{12} \\ A_{21} & A_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} X_1 \\ X_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_1 \\ C_2 \end{bmatrix} \quad (18)$$

여기서 X 행렬이 각 단에서의 액의 조성인데 전처리탑과 본탑의 두 부분으로 나누어져 있다. 계수 행렬 A 와 C 는 초기에 임의로 주어진 액의 조성에서 얻을 수 있는 값이며 반복적으로 계산하면서 수정되어 진다. 이 계산의 자세한 순서는 표 1에 나열되어 있다.

반복계산의 수렴속도를 빠르게 하기 위하여 다음의 수렴계수를 포함한 새로운 조성계산식을 도입하였다.

$$X_{k+1} = rX_{nw} + (1-r)X_k \quad (19)$$

여기서 r 이 수렴계수이며 0과 1 사이의 값을 가질 수

표 1. Procedures for the computation of liquid composition.

step	procedure
1	set reflux flow rate and liquid split ratio find liquid and vapor flow rates using steady state material balances and equimolal overflow assumption
2	assume initial composition profile in linear distribution
3	compute equilibrium relation using relative volatility
4	find new profile using matrix inversion
5	if total variation of composition is greater than limit, go to step 4
6	examine product specifications, if not satisfied, adjust reflux flow rate and go to step 2
7	check the liquid split ratio, if not optimum, adjust the ratio and go to step 2
8	

있으나 여기서 주어진 예의 시스템에 대해서는 0.3에서 비교적 빠른 수렴을 얻을 수 있었다. 수렴의 기준은 액의 조성변화의 절대치합이 1.0E-5에 성분의 수와 총단수를 곱한값보다 적을 때 수렴한 것하여 계산을 종결하였다.

메타놀-에타놀-물의 3성분계에서 등몰비의 원료 300 mol/h가 공급되었을 때 앞에서 정한 제품을 얻기 위해서는 554 mol/h의 환류량이 필요하며 본탑과 전처리탑의 액의 분산비는 4.5 대 1이 적당한 것으로 계산되었다. 그림 11에 각 단에서 계산된 액의 조성이 나타나 있다.

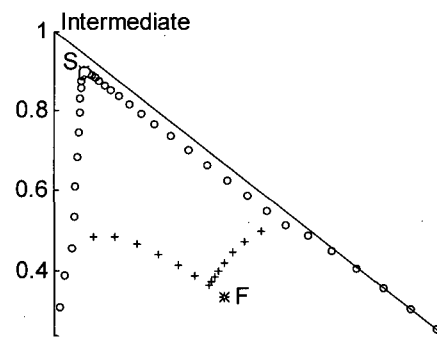


그림 11. Liquid composition in a fully thermally coupled distillation system at an actual number of trays.

6. 결과

에너지 절약형 증류탑의 두가지 형태인 내부열교환형 증류탑과 열복합형 증류탑을 소개하고 그 설계방법을

자세히 설명하였으며 각각의 경우에 예의 시스템을 하나씩 들고 이들 시스템에 대한 설계결과를 제시하였다.

두가지 형태의 증류탑이 매우 다른 특성을 갖고 있지만 에너지 절약의 효과가 매우 크기 때문에 화학공장에서 활용하면 그 절약효과가 매우 대단할 것으로 예상된다. 내부열교환형 증류탑의 경우 증류탑 내부구조의 개량에 의한 증류효율 향상에 많은 진전이 있어야 할 것으로 예상되며 열복합형 증류탑의 경우는 적절한 제어방법의 개발에 의한 증류탑 운전의 문제를 해결하면 많은 상용화 공정이 개발될 것이다.

참고문헌

- [1] Lee, P. L., "Nonlinear Process Control: Applications of Generic Model Control," p. 67, Springer-Verlag, London, 1993.
- [2] Triantafyllou, C. and R. Smith, "The Design and Optimization of Fully Thermally Coupled Distillation Columns," *Chemical Engineering Research and Design*, 70, part A, 118-132, 1992.
- [3] Wolff, E. A. and S. Skogestad, "Operation of Integrated Three-Product (Petlyuk) Distillation Columns," *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 34, 2094-2103, 1995.
- [4] Yoitsumi, S., "Problems in Design and Operation of Distillation Processes," *Preprints of SCEJ Fall Meeting*, 31(3), 183-184, 1998.
- [5] Midori, S. and A. Nakahashi, "Industrial Application of Continuous Distillation Columns with Vertical Partition," *Proceedings of the Fifth International Symposium on Separation Technology Between Korea and Japan*, 5(1), 221-224, 1999.
- [6] Lestak, F., D. Egenes, H. Yoda and C. Hamnett, "Kellogg Divided Wall Column Technology for Ternary Separation," *Proceedings of the Fifth International Symposium on Separation Technology Between Korea and Japan*, 5(1), 233-236, 1999.
- [7] Mah, R. S. H., J. J. Nicholas and R. S. Wodnik, "Distillation with Secondary Reflux and Vaporization: a Comparative Evaluation," *AIChE J.*, 23, 651-658, 1977.
- [8] Takamatsu, T., V. Leuprasitsakul and M. Nakaiwa, "Modeling and Design Method for Internal Heat-Integrated Packed Distillation Column," *J. Chem. Eng., Japan*, 21, 595-601, 1988.
- [9] Leuprasitsakul, S. Hasebe, I. Hashimoto and T. Takamatsu, "Study of Energy Efficiency of a Wetted-Wall Distillation Column with Internal Heat Integration," *J. Chem. Eng., Japan*, 23, 580-587, 1990.
- [10] Nakaiwa, M., M. Owa, T. Akiya, S. Kawasaki, V. Leuprasitsakul and T. Takamatsu, "Design Procedure for a Plate-to-Plate Heat-Integrated Distillation Column," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 12, 535-541, 1986.
- [11] Nakaiwa, M., K. Huang, M. Owa, T. Akiya, T. Nakane, M. Sato, T. Takamatsu and H. Yoshitome, "Potential Energy Savings in Ideal Heat-Integrated Distillation Column," *Applied Thermal Engineering*, 18, 1077-1087, 1998.
- [12] Petlyuk, F. B., V. M. Platonov and D. M. Slavinskii, "Thermodynamically Optimal Method for Separating Multicomponent Mixtures," *Int. Chem. Eng.*, 5, 555-561, 1965.
- [13] Fidkowski, Z. and L. Krolkowski, "Thermally Coupled System of Distillation Columns: Optimization Procedure," *AIChE J.*, 32, 537-546, 1986.
- [14] Triantafyllou, C. and R. Smith, "The Design and Optimization of Fully Thermally Coupled Distillation Columns," *Trans. IChemE* 70, Part A, 118-132, 1992.
- [15] Glinos, K. N. and M. F. Malone, "Minimum Vapor Flows in a Distillation Column with a Sidestream Stripper," *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 24, 1087-1090, 1985.
- [16] Carlberg, N. A. and A.W. Westerberg, "Temperature-Heat Diagrams for Complex Columns. 3. Underwood's Method for the Petlyuk Configuration," *Ind. Eng. Chem. Res.*, 28, 1386-1397, 1989.
- [17] Underwood, A. J. V., "Fractional Distillation of Multicomponent Mixtures," *Chem. Eng. Prog.* 44, 603-614, 1948.
- [18] Underwood, A. J. V., "Fractional Distillation of Multicomponent Mixtures: a Numerical Example," *Chem. Eng. Prog.*, 45, 609-618, 1949.
- [19] Cerda, J. and A.W. Westerberg, "Shortcut Methods for Complex Distillation Columns. 1. Minimum Reflux," *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 20, 546-557, 1981.
- [20] Wolff, E. A. and S. Skogestad, "Operation of Integrated Three-Product (Petlyuk) Distillation Columns," *Ind. Eng. Chem. Res.*, 34, 2094-2103, 1995.
- [21] Chavez C. R., J. D. Seader and T. L. Wayburn, "Multiple Steady-State Solutions for Interlinked Separation Systems," *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 25, 566-576, 1986.
- [22] Annakou, O. and P. Mizsey, "Rigorous Comparative Study of Energy-Integrated Distillation Schemes," *Ind. Eng. Chem. Res.*, 35, 1877-1885, 1996.
- [23] Abdul Mutalib, M. I., A. O. Zeglam and R. Smith, "Operation and Control of Dividing Wall Distillation Columns, Part 1: Degrees of Freedom and Dynamic Simulation," *Trans IChemE*, 76, Part A, 308-318, 1998.

김영환

1976년 동아대학교 화학공학과 학사, 1980년 한국과학기술원 화학공학과 석사, 1984년 미국 Lamar Univ. 화학공학과 박사. 관심분야는 화학공정설계, 화학공정제어, 화학공정센서