

반응증류를 위한 체단탑의 수력학적 특성에 관한 연구

조성용[†] · 이윤용 · 김승재*

한국과학기술연구원 CFC 대체기술센터

*전남대학교

(1995년 1월 26일 접수, 1995년 9월 14일 채택)

A Study on the Hydraulic Characteristics of a Sieve Tray Column for the Reactive Distillation

Sung Yong Cho[†], Youn Yong Lee and Seung Jai Kim*

CFC Alternatives Center, KIST

*Chonnam National University

(Received 26 January 1995; accepted 14 September 1995)

요 약

직경이 20 cm이고 자유 면적비가 8.2%인 체단탑의 특성을 공기-물계에서 고찰하였다. 수력학적 특성으로는 체단의 건조 압력강하와 전체 압력강하, 그리고 체단위의 dynamic head와 froth height를 측정하였으며 실험 결과로부터 aeration factor를 계산하였다. 또한 반응증류 모사탑으로써 체단위에서의 액체 체류시간분포를 측정하였으며 성능 향상을 위한 개량된 체단탑을 제안하여 기존의 체단탑과 비교, 고찰하였다. 그 결과, 개량된 체단탑에서는 기존의 체단탑에 비하여 체단위에서의 액체 체류시간이 약 40% 정도 증가하였다.

Abstract—The characteristics of a sieve tray having the 20 cm diameter and 8.2% free area were studied in an air-water system. Hydrodynamics such as dry pressure drops, total pressure drops, dynamic heads and froth heights on the sieve tray were carried out. Aeration factors were estimated from the experimental results obtained from this work. In addition, the residence time distributions of liquid on the sieve tray as a simulated reactive distillation column were measured and compared with those of the modified sieve tray combined a meshed chamber for an improvement of the performance. As a result, mean residence times on the combined sieve tray are about 40% higher than those on the conventional sieve tray.

Key words: Reactive Distillation, Sieve Tray, Column, Residence Time

1. 서 론

체단(sieve tray)은 증류나 흡수 등에 흔히 사용되는 기-액 접촉 장치로서 다른 장치에 비하여 설치비가 적게 들고 처리용량이 크며 장치의 오염도가 낮은 잇점을 가지고 있어 화학공정에서 널리 사용되어 왔으며 이에 대한 연구도 지속적으로 수행되어 왔다[1-6]. 그러나 다른 기-액장치에 비하여 효율이 떨어지는 단점을 가지고 있다. 특히 최근들어 고효율의 구조 충전물(structured packing)의 개발로 인하여 상대적으로 그 유용성이 저하되고 있는 실정이다. 그럼에도 불구하고 반응 증류(reactive distillation)와 같은 영역에서는 독특한 장점을 가지고 있다.

체단탑의 특성은 크게 수력학적 특성과 물질전달 특성으로 나누어 생각할 수 있는데 이 중에서도 수력학적 특성은 체단탑(sieve tray column)의 처리용량과 운전의 안정성에 영향을 미치는 중요한 인자로서 체단탑 설계의 기본자료가 된다. 그런데 주로 실험실 규모의 작은 장치에서 얻어진 결과들은 벽면에 거품(foam)이 고착되는 현상이나 액체가 벽면을 타고 흐르는 벽면 효과(wall effect) 등이 너무

커서 설계자료로서의 신뢰도가 떨어진다고 볼 수 있다[7].

본 연구에서는 이러한 오차를 줄이기 위하여 pilot 규모의 체단탑을 제작하여 수력학적 특성을 측정하였으며, 실험결과로부터 체단탑 설계인자 중의 하나인 aeration factor를 제안하였고 탑내 현상을 사진촬영하여 실험결과와 비교, 고찰하였다.

체단탑에서의 물질전달은 기-액간의 유효계면적(effective interfacial area)이나 기-액의 접촉시간 등에 의하여 영향을 받게 되는데 특히 체단탑을 화학반응과 증류가 동시에 일어나는 반응증류장치로 사용할 경우에는 체단위에서 기-액간의 물질전달 특성이 탑의 효율에 매우 중요한 영향을 미치게 된다. 실제로 부탄올과 아세트산으로부터 에스테르화반응에 의하여 부틸 아세테이트를 합성하는 공정 등에서는 반응증류탑이 사용되고 있으며 다른 장치에 비하여 매우 유용한 것으로 알려져 있다[8]. 이와 같이 체단탑을 반응 증류에 사용할 경우에는 반응기와 증류탑을 별도로 쓰는 것에 비하여 장치비가 적게 들 뿐만 아니라 반응열을 증류에 이용할 수 있기 때문에 에너지 절감 측면에서도 매우 유리하다. 또한 평형 반응계에서는 생성물이 계속 다음 단으로 제거되기 때문에 혼합 반응기에서 보다 전환

율을 높일 수 있는 장점을 가지고 있다. 그러나 체단탑이 반응종류 장치로서 효율적으로 사용되기 위해서는 기존의 체단에 비하여 탑의 안정적 운전뿐만 아니라 체단위에서의 액체의 충분한 체류시간(residence time)과 충분한 기-액유효접촉면적(effective interfacial area)의 보장이 더욱 요구된다. 이와 같은 조건을 만족시키기 위하여 변형된 체단탑의 연구가 주목을 받아 왔다[9, 10].

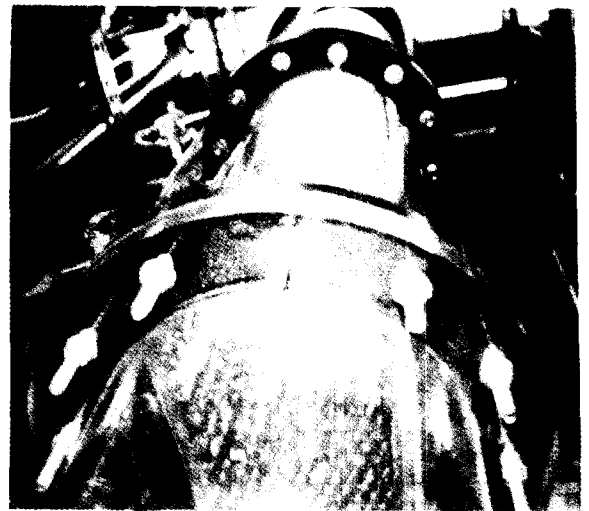
본 연구에서는 체단탑을 반응종류 장치로서 사용할 때 그 성능을 높이기 위한 Cho 등[9]의 과거 연구의 연장으로써 기존의 체단탑위에 균일한 기공을 가진 그물구조물을 설치하여 기-액간의 유효접촉면적뿐만 아니라 액체의 체류시간을 증가시켜서 반응 전환율을 높일 수 있도록 하였다. 체단위에서 액체의 체류시간분포를 측정하기 위해서는 KCl 추적자를 사용하였으며 일반적인 체단과 그물구조물이 결합된 체단에서의 액체의 체류시간분포를 같은 실험조건에서 비교, 고찰하였다.

2. 실험장치 및 방법

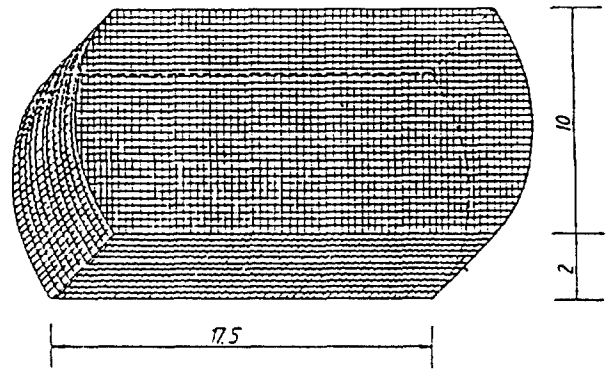
Fig. 1은 본 연구에서 사용한 장치의 전체 흐름도이며 체단의 제원을 Table 1에 나타냈다. 체단탑은 직경이 20 cm이고 단간 거리(tray spacing)가 50 cm이며 운전 중 탑내 현상을 육안으로 관찰하고 사진 촬영을 할 수 있도록 투명한 아크릴로 제작하였으며 체단탑의 상세 사진과 성능향상을 위한 그물 구조물(32 mesh wire)을 Fig. 2에 도시하였다. 체단위의 dynamic head를 측정할 때 위치에 따른 오차를 줄이기 위하여 Fig. 3에 표시한 바와 같이 4개의 탭을 설치하여 실험하였으며 그 평균값을 취하였다. 또한 체단위에서의 액체 체류시간을 측정하기 위하여 Fig. 4a와 같은 장치를 사용하였으며 추적자로는

0.1N의 KCl용액을 사용하여 충격 입력에 의한 출류 농도곡선(Fig. 4b)을 얻었다.

본 실험은 체단에서의 수력학적 특성치들을 측정하기 위하여 먼저 송풍기에서 나온 공기를 오리피스미터에서 그 유량을 측정하고 기체분배기를 거쳐 탑의 하부에 균일하게 공급하였다. 약 30분 정도 경과하여 탑이 정상상태에 도달하였을 때 수주 마노미터를 사용하여 건조 압력강하를 측정하였으며 기체의 유량을 변화시키면서 반복하여 실험하였다. 건조압력강하의 측정이 끝난 후 항온조에 저장



(a) Sieve tray column



(b) Meshed chamber



(c) Combined sieve tray

Fig. 2. The sieve tray column and a meshed chamber.

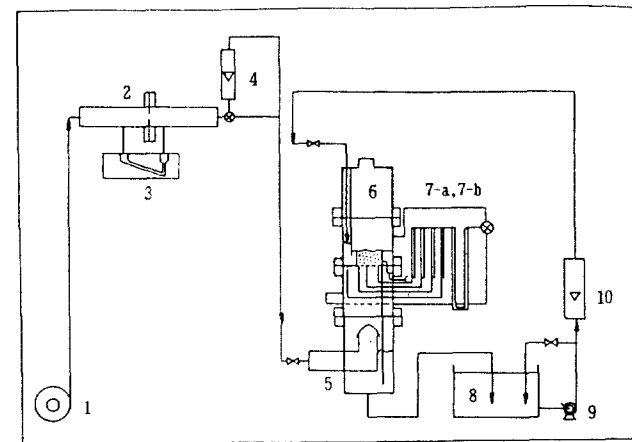


Fig. 1. The schematic flow diagram of experimental apparatus.

- 1. Air blower
- 2. Orifice meter
- 3. Inclined manometer
- 4. Air rotameter
- 5. Sieve tray column
- 6. Gas distributor
- 7a, b. Manometer
- 8. Constant temperature reservoir
- 9. Pump
- 10. Liquid rotameter

Table 1. Specifications of a sieve tray

Material	Acryl tube
Tray diameter	20 cm
Tray thickness	6 mm
Hole diameter	3 mm
Pitch distance(Triangular)	1 cm
Free area %	8.2%
Tray spacing	50 cm

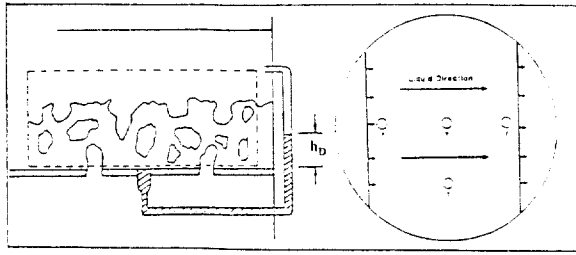


Fig. 3. The measuring apparatus of dynamic head.

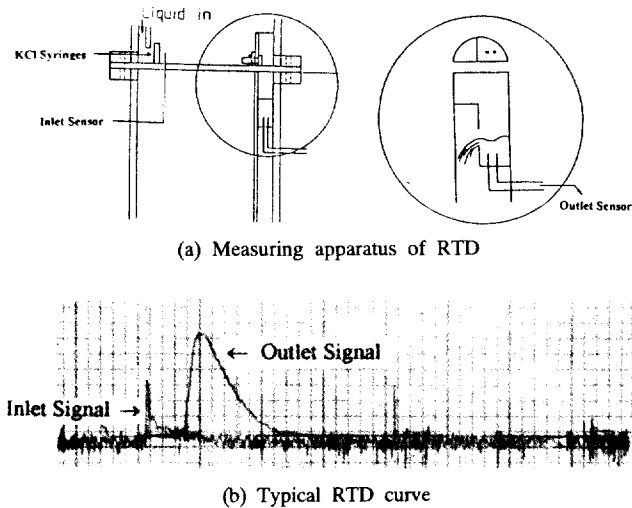


Fig. 4. The measuring apparatus and an example of RTD.

된 20°C의 중류수를 액체 로우티미터를 거쳐 일정 유량으로 탑의 상부에 공급하여 탑내에서 공기와 물이 향류로 접촉하도록 하고 탑이 정상 상태에 도달하였을 때 탑내현상을 관찰하고 사진촬영하였으며 그때 체단의 전체 압력강하와 dynamic head, 그리고 froth height를 측정하였다.

또한 체단위의 체류시간을 측정하기 위하여 체단의 입구부에 병렬로 3개의 주사기를 설치하여 충격입력으로 KCl용액을 주입하고 체단의 출구에서 백금 센서를 사용하여 capacitance를 측정함으로써 체단위에서의 액체 체류시간분포곡선을 시간에 따라 기록지에 기록하였다. 기체와 액체의 유량을 변화시키면서 위와 같은 실험을 반복하였으며 기존 체단탑과 combined sieve tray에 대하여 각각 실험을 수행하였다. 본 연구의 실험 범위는 Table 2에 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 5는 hole의 직경이 3mm이고 자유면적비(A_h/A_w)가 8.2%인 체단에서 $F_a(=U_h \cdot \rho_v^{0.5})$ 값의 변화에 따른 건조 압력강하와 전체 압력강하의 실험결과를 도시한 것이다. 일반적으로 체단에서의 건조 압력강하는 orifice에서의 압력강하를 나타내는 식과 유사한 (1)식으로 표시할 수 있으며 이때 방출계수(C_w)는 기공(hole)을 통과하는 기체의 유속, Reynolds number, 그리고 hole 직경과 체단의 두께비(d_h/t_w) 등과 같은 여러 가지 lip condition에 의하여 영향을 받게 되며 (1)식에서 지수(n)는 2 근처의 값을 갖는 것으로 알려져 있다[3].

$$h_{DP} = A(\rho_v/\rho_L)(U_h/C_w)^n \quad (1)$$

본 연구에서 측정된 건조 압력강하의 실험치를 power regression

Table 2. Operating conditions

System	Air-Water
Liquid flow rate	0.46-0.92 m ³ /h
F _a -factor	0.4-4.0 kg ^{0.5} /s · m ^{0.5}
Weir height	6 cm

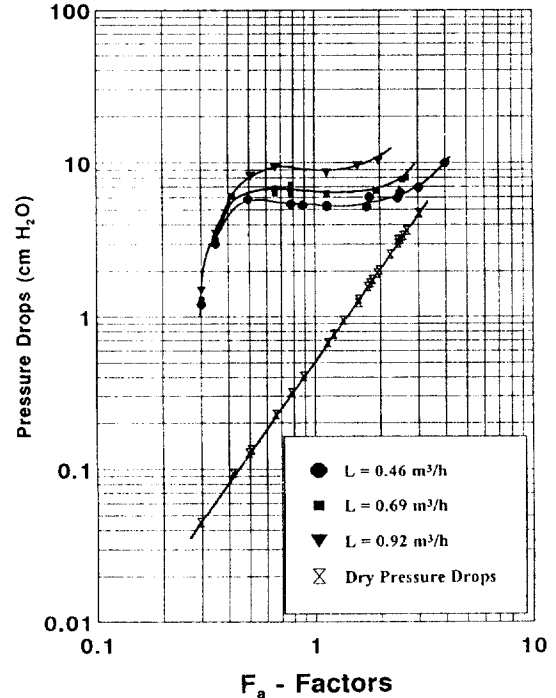


Fig. 5. Dry pressure drops and total pressure drops with F_a-factors.

하여 (1)식의 계수와 지수를 각각 구하여 보면 아래와 같은 식을 얻을 수 있었으며 Fig. 5에서 보여 주는 바와 같이 오차 범위 약 4% 내에서 매우 잘 일치함을 알 수 있다.

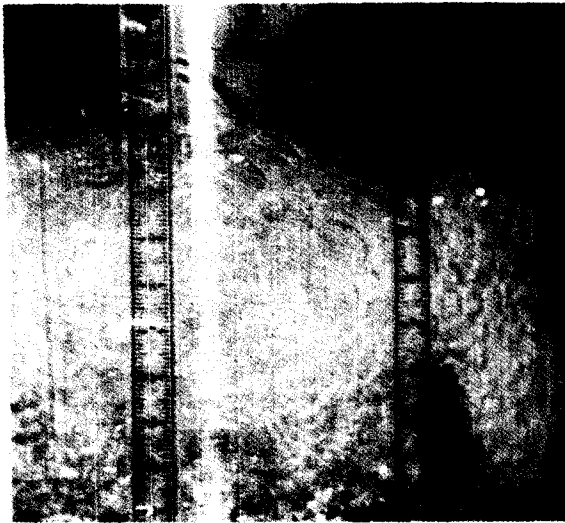
$$h_{DP} = 5.08(\rho_v/\rho_L)(U_h/C_w)^{1.82}, C_w = 0.926 \quad (2)$$

$$= 5.08(\rho_v/\rho_L)(F_a/\rho_v^{0.5} \cdot \phi \cdot C_w)^{1.82}, C_w = 0.926 \quad (2-1)$$

체단에서의 전체 압력강하를 F_a-factor값에 따라서 대수좌표에 도시하면 Fig. 5에서와 같이 두 개의 변곡점이 나타나게 되는데 이 두 개의 변곡점을 GDP(graphical dump point)와 GWP(graphical weep point)로 표시할 수 있다. F_a-factor가 GDP 이하인 영역에서는 체단 위의 액체가 기공을 통하여 아래로 일시에 흘러 내리는 dumping 현상을 관찰할 수 있으며 F_a-factor가 점점 증가함에 따라서 일부 기공에서는 액체가 아래로 흘러 내리고 일부 기공에서는 기체가 기공을 통과하여 Fig. 6a와 같은 정체 흐름영역(static flow regime)을 보이다가 기체의 유속이 더욱 커져서 GWP 이상이 되면 모든 기공에서 기체가 통과하는 거품영역(froth regime)(Fig. 6b)을 형성하게 된다. 그러나 기존의 연구결과[3]에서도 지적된 바와 같이 체단탑에서의 진동현상(oscillation)으로 인하여 실험결과에서 얻은 GDP와 GWP가 육안으로 관찰한 실제 현상과 항상 일치하지는 않는 것을 발견할 수 있었으며 이러한 오차를 줄이기 위하여 같은 조건에서 여러 번의 실험을 수행하여 그 평균을 취하였다. 실험결과, 액체의 유량이 0.23-0.92 m³/h인 범위에서 GWP는 F_a-factor값이 2.1-3.3 kg^{0.5}/s · m^{0.5}일 때였다.



(a) Static regime



(b) Froth regime

Fig. 6. The flow regimes on the sieve tray.

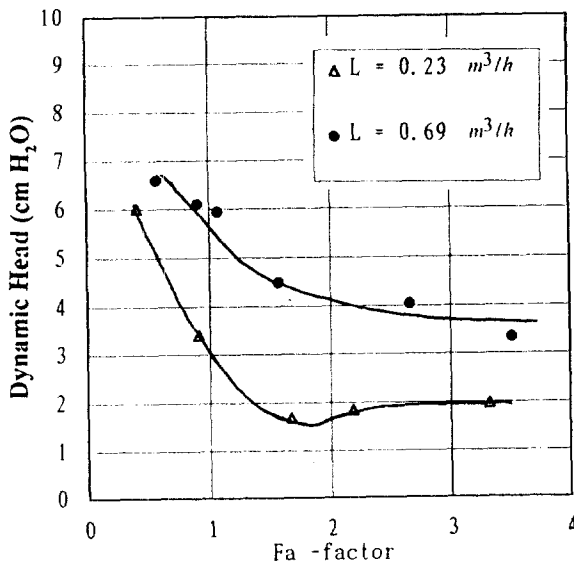
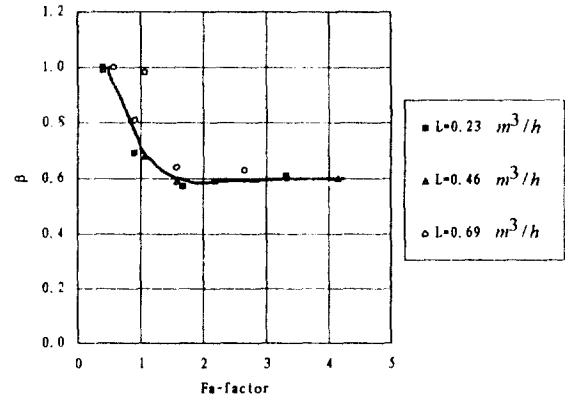
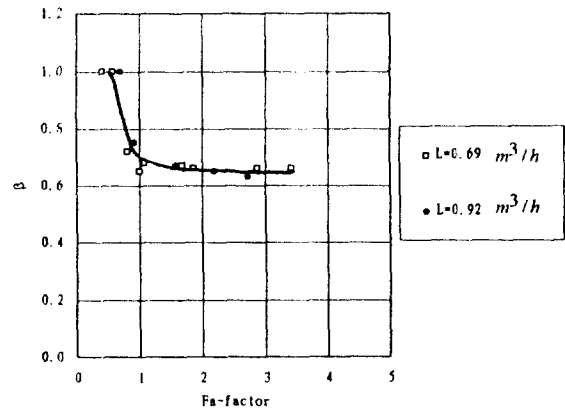


Fig. 7. Clear liquid heads with F_a -factors.



(a) Conventional sieve tray



(b) Combined sieve tray

Fig. 8. Aeration factors with F_a -factors.

Sargent와 Bernard[11]는 체단에서의 clear liquid head를 dynamic head와 momentum head의 합으로 나타내었는데 이때 dynamic head는 실험으로부터 얻어진 값이며 momentum head는 기체가 기공을 지날 때 손실되는 것으로서 아래 식으로 계산하였다.

$$h_M = 99.84(\rho_v/\rho_L) \cdot U_a \cdot (U_k - U_a)/g \quad (3)$$

$$= 99.84 F_a (1 - \phi) [1/(\rho_L \cdot g \cdot \phi)] \quad (3-1)$$

Fig. 7은 액체의 유량이 일정할 때 기체의 F_a -factor값에 따른 clear liquid head를 도시한 것으로써 거품영역에서 F_a -factor가 증가함에 따라서 clear liquid head가 감소하는 것을 볼 수 있는데 이는 기공을 통과하는 기체가 체단위의 froth mass를 균열(disruption)시켜서 체단 위에 액체체류량을 감소시키기 때문이다.

Smith와 Fair[12]는 체단에서의 전체 압력강하(h_T)를 (4)식과 같이 hydrostatic head(h_s)와 건조 압력강하(h_{DP})의 합으로 표시하였으며 이때 hydrostatic head를 (5)식으로 정의하였다.

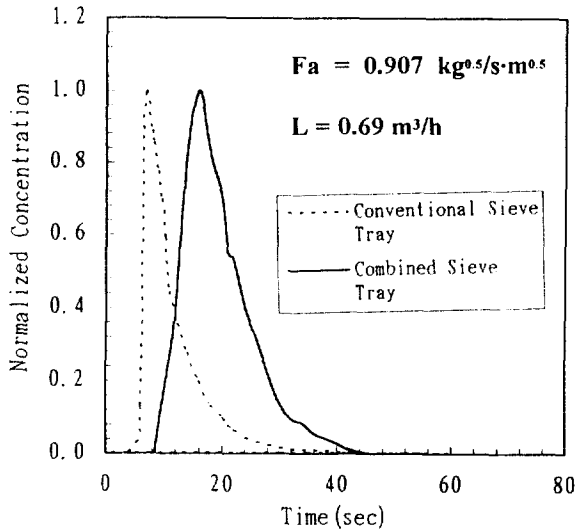
$$h_T = h_{DP} + h_s \quad (4)$$

$$h_s = \beta(h_w + h_{ow}) \quad (5)$$

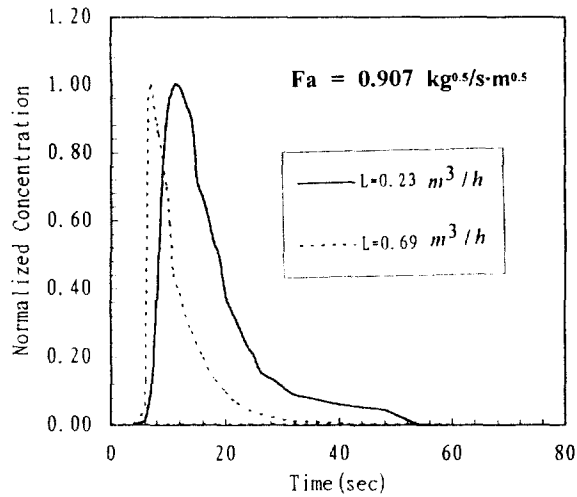
여기서 $\beta = 0.5(1 + \Phi)$

$$\Phi = Z_c/Z_f$$

(5)식에서 β 는 aeration factor로서 Smith와 Fair[12]는 Foss와 Gerster[13]의 연구결과를 기초로 하여 이 값이 액체의 유량에는 무관하게 F_a -factor값에 의해서만 관계됨으로서 체단의 설계에 유용하게 사용될 수 있다고 보고하였다[12].



(a) The effect of liquid flow rate on RTD in conventional sieve tray

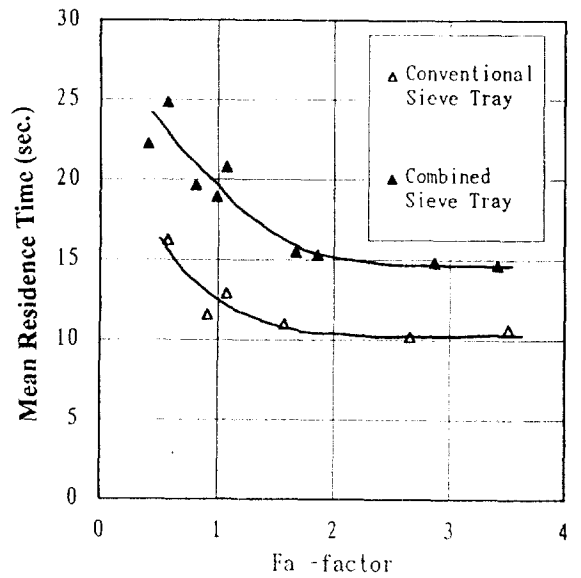


(b) The comparison of RTD on the combined sieve tray with that on the conventional sieve tray

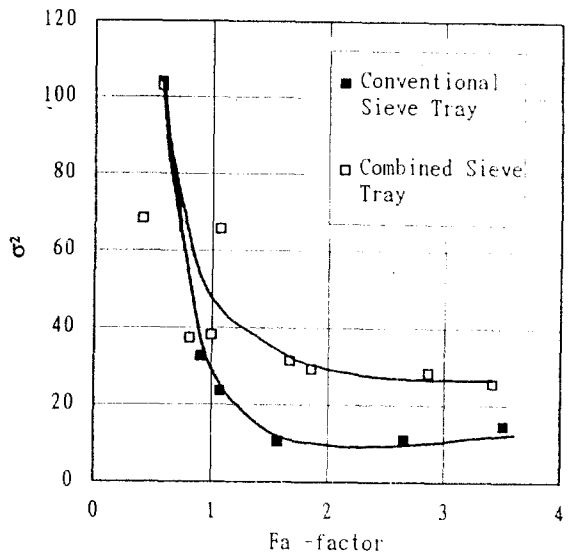
Fig. 9. RTD curves under the various conditions.

Fig. 8은 F_a -factor값에 따른 aeration factor를 기존 체단탑과 combined sieve tray에 대하여 각각 도시한 것으로서 기체의 유속이 증가함에 따라서 aeration factor값이 감소하는 경향을 보여 주고 있다. 이는 dumping영역에서 froth height값이 clear liquid head값과 거의 같다가 기체의 유속이 커짐에 따라서 froth height값은 커지고 clear liquid head값은 작아지기 때문이다. 또한 Fig. 8에서 combined sieve tray의 aeration factor값이 기존 체단탑에서의 경우보다 크게 나타났는데 이는 일정한 기체 유속에서 froth height에 대한 clear liquid head의 비가 커짐을 의미한다. 이는 같은 조건에서 combined sieve tray가 기존 체단탑에 비하여 액체의 entrainment가 적고 탑의 안정적 운전에 유리하며 기-액의 유효접촉면적도 커짐을 보여준다[9]. Fig. 8에서 aeration factor값은 액체의 유량에 대하여 거의 영향을 받지 않으며 이는 Smith와 Fair[12]의 연구결과와 유사하다.

체단위에서 액체의 체류시간분포(RTD: residence time distribution)는 체단탑을 반응증류장치로 사용할 때 그 특성을 고찰하는데 유용한 변수 중의 하나이다. 즉 체단위에서의 RTD 곡선은 기-액간의 혼합정도와 접촉시간을 결정할 수 있는 정보를 제공해 준다. 실험에서



(a) Mean residence time



(b) Variance of distribution

Fig. 10. Comparable plots of combined sieve tray with conventional sieve tray in mean residence time and variance($L=0.69 \text{ m}^3/\text{h}$).

얻어진 RTD곡선으로부터 평균체류시간(mean residence time)과 분포의 편차(variance of distribution)는 다음 식으로 정의할 수 있다 [14].

$$t_m = \frac{\int_0^\infty tE(t) dt}{\int_0^\infty E(t) dt} \quad (6)$$

$$\sigma^2 = \int_0^\infty (t - t_m)^2 E(t) dt \quad (7)$$

실험 데이터로부터 Simpson's three-eighths rule을 이용한 수치 적분법을 사용하여 평균체류시간과 편차를 구하였다[15].

Fig. 9는 체단에서 액체의 유량(Fig. 9a)과 체단의 변형 유무(Fig. 9b)가 체류시간분포에 미치는 영향을 도시한 것이다. Fig. 9a에서 기체의 유속이 일정할 때 액체의 유량이 증가할수록 체류시간은 감소

하였으며 플리그흐름에 가까워지는 경향을 보여주었다. 또한 Fig. 9b에서는 기체와 액체의 유량이 일정할 때 combined sieve tray가 기존 체단탑에 비하여 체류시간이 길게 나타났으며 혼합흐름에 가까워짐을 보여주었다.

Fig. 10에는 액체의 유량이 일정($L=0.69 \text{ m}^3/\text{h}$)할 때 combined sieve tray에서의 평균체류시간과 분포편차를 기존의 체단탑과 비교하여 도시하였다. Fig. 10a에서 액체의 유량이 일정할 때 기체의 유속이 커짐에 따라서 평균체류시간은 감소하다가 일정해지는 경향을 보였다. 이는 기체의 유속이 커짐에 따라서 액체층에 존재하는 기포(bubble)가 많아져서 체단위의 액체체류량이 적어지기 때문이라고 볼 수 있다. 또한 combined sieve tray에서의 경우가 기존 체단탑의 경우에 비하여 평균 체류시간이 같은 운전조건에서 약 40% 정도 크게 나타났다. 이는 combined sieve tray에서 액체 체류량이 증가하기 때문이며 반응이 일어날 경우 기존 체단탑에 비하여 반응시간이 길어짐을 의미한다. Fig. 10b에서 분포곡선의 편차는 combined sieve tray가 기존 체단탑에 비하여 크게 나타났는데 이는 같은 조건에서 combined sieve tray가 기존 체단탑에 비하여 혼합정도가 좋으며 혼합 반응계에서 유리한 반응에 적용하는 것이 적합하다는 것을 의미한다. 이러한 결과는 Fig. 6b에서 볼 수 있듯이 체단위에 설치한 균일 기공의 그물 구조물이 액체내에 기포들을 균일하게 부수어 주고 액적의 entrainment를 막아 주어 탑의 안정적 운전과 반응기로서의 성능향상을 가져온다고 볼 수 있다.

4. 결 론

(1) 본 연구에서 사용한 체단의 건조압력강하는 (2-1)식으로 표시할 수 있으며 체단에서의 전체 압력강하는 액체의 유량이 증가할수록 증가하며 액체의 유량이 $0.46\text{-}0.92 \text{ m}^3/\text{h}$ 인 범위에서 graphical weep point는 F_a 값이 $2.1\text{-}3.3 \text{ kg}^{0.5}/\text{s} \cdot \text{m}^{0.5}$ 일 때였다.

(2) 액체유량이 $0.46\text{-}0.92 \text{ m}^3/\text{h}$ 인 범위에서 aeration factor는 액체 유량의 변화에 대하여 거의 무관하였으며 같은 조건에서 aeration factor값은 기존의 체단탑에 비하여 개량된 증류탑이 높게 나타났다.

(3) 반응증류에 좀더 적합한 개량된 체단탑(combined sieve tray)을 제안하였으며 같은 조건에서 combined sieve tray의 평균체류시간이 기존 체단탑에 비하여 약 40% 증가하였다. 또한 본 연구에서 제안한 개량된 체단탑은 혼합 반응기에서 유리한 반응에 적합함을 보여주었다.

사용기호

A_a	: active area of tray [m^2]
A_h	: hole area [m^2]
C_w	: hole discharge coefficient
D	: column diameter [cm]
d_h	: hole diameter [mm]
$E(t)$: exit-age distribution function
F_a	: F-factor for active area [$\text{kg}^{0.5}/\text{s} \cdot \text{m}^{0.5}$]
h_p	: dynamic head [cm of water]
$h_{p,p}$: dry pressure drop [cm of water]

h_M	: momentum head [cm of water]
h_T	: total pressure drop [cm of water]
h_w	: weir height [cm]
h_{ow}	: crest over the weir [cm]
L	: liquid flow rate [m^3/h]
t	: time [s]
t_m	: mean residence time [s]
t_o	: tray thickness [mm]
U_h	: air velocity through holes [m/s]
U_a	: air velocity based on active area [m/s]
Z_c	: clear liquid head [cm of water]
Z_f	: froth height [cm]

그리스 문자

β	: aeration factor
Φ	: froth density
ϕ	: free area percentage [%]
ρ_L	: density of liquid [kg/m^3]
ρ_g	: density of gas [kg/m^3]
σ^2	: variance of distribution

참고문헌

- Hughmark, G. A. and O'Connell, H. E.: *Chem. Eng. Prog.*, **53**, 127(1957).
- Liebson, J., Kelly, R. E. and Bullington, L. A.: *Pet. Refiner*, **36**, 127(1957).
- Thomas, W. J. and Ogboja, O.: *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.*, **17**, 429(1978).
- Hag, M. A.: *Hydrocarbon Processing*, April, 165(1982).
- Lockett, M. J.: "Distillation Tray Fundamentals", 1st ed., Cambridge University Press, London(1986).
- Prince, R. G. H. and Chan, B. K. C.: *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, **43**, T49(1965).
- Thomas, W. J. and Haq, M. A.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **15**(4), 509(1976).
- Suter, H.: *Chem. Ing. Tech.*, **11**(17), 971(1969).
- Cho, S. Y., Choi, D. K. and Lee, Y. Y.: *The Korean Journal of Chemical Engineering*, **28**(3), June, 350(1990).
- Chen, G. X., Afacan, A., Xu, C. and Chuang, K. T.: *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, **68**, June, 382(1990).
- Sargent, R. W. H. and Bernard, J. D. T.: *Trans. Inst. Chem. Eng.*, **44**, 314(1966).
- Smith, B. D. and Fair, J. R.: "Design of Equilibrium Stage Process", McGraw-Hill, New York(1963).
- Foss, A. S. and Gester, J. A.: *Chem. Eng. Prog.*, **52**, 28(1956).
- Fogler, H. S.: "Elements of Chemical Reaction Engineering", Prentice-Hall, Englewood Cliffs(1986).
- Carnahan, C., Luther, H. A. and Wilkes, J. O.: "Applied Numerical Methods", Wiley, New York(1969).