

분리벽형 증류탑을 적용한 필름공정의 폐용매 회수공정 최적설계

Optimal Design of Solvent Recovery Process with Dividing Wall Column for Film Making Process

이 승 현, 조 문 신, 이 문 용*
(Seung Hyun Lee, Moon Shjn Zo, and Moon Yong Lee)

Abstract : This paper presents an application of Dividing Wall Column(DWC) to the recovery of the waste solvent from the film making processes. The waste solvent feed contains MEK(Methyl-Ethyl-Ketone), Toluene, Cyclohexanone, and water. The commercial software HYSYSTM was used for rigorous simulation and analysis. Sensitivity analysis for several major design variables were carried out to achieve the optimal design of the process. Distribution of the internal vapor and liquid flows to the prefractionator and main sections is shown to be the most dominant design factor for energy saving efficiency in the DWC process. The simulation results also show that the solvent recovery process using the DWC significantly improves both the energy efficiency and the compactness of the solvent recovery process.

Keywords : solvent recovery, dividing wall column, internal flow, optimal design, energy saving, film making process

I. 서론

필름공정이나 반도체/디스플레이 소재 공정에서는 엄청난 양의 다양한 용매가 사용되고 있다. 현재, 이들 공정에서 사용되어 나오고 있는 폐용매들은 대부분 간단한 전처리 과정을 거친 후 소각되거나 매립을 통하여 제거되고 있다. 이러한 과정은 여러 복잡한 절차 없이 폐용매를 제거할 수 있지만, 이 과정에서 환경오염을 수반하는 물질이 발생되고 있을뿐더러 공정의 경제성을 악화시키는 주된 요인이 되고 있다. 더구나 산업체에서 지불하는 환경부담금 비용은 이미 무시할 수 없는 수준에 도달하고 있다. 이러한 에너지와 자원의 낭비를 줄이기 위해 용매회수 공정을 사용하여 환경오염을 줄이고 사용된 용매를 고순도로 재회수하여 자원절약과 경제성을 달성하고자 하는 노력이 최근 들어 활발하게 모색되고 있으며 일부 산업현장에서는 이러한 용매회수 공정이 적용, 운용되고 있다. 그러나 용매회수 공정에 소요되는 장치설비비 및 에너지비용 또한 많이 소요되고 있으며 비효율적으로 운영되고 있어 회수 공정의 경제성을 저하시키는 요인으로 작용하여 이러한 용매회수 공정의 효율을 극대화하기 위한 연구가 필요한 실정이다.

본 논문에서는 일부 필름공정에서 실제로 운용되고 있는 기존 용매회수 공정의 에너지 효율성을 분석하고, 에너지 효율성이 뛰어나 최근 그 산업적 적용이 활발하게 시도되고 있는 분리벽형 증류탑을 이러한 용매회수 공정에 적용하는 연구를 수행하였다. 연구 대상이 된 필름공정에서의 폐용매는 Toluene, H₂O, Cyclohexanone, Methyl-Ethyl-Ketone

(MEK)의 4성분계 혼합물을 이루고 있으므로 개별 분리를 위해서는 최소 3기 이상의 증류탑이 필요하다. 또한 용매 회수공정 전체에서 소요되는 에너지 소요 중 절반이상이 분리를 위한 증류탑에서 이루어지고 있으므로 이러한 증류공정을 중심으로 용매회수 공정을 재설계하였다. 기존 용매 회수 공정과 분리벽형 증류탑[1-3]을 적용한 공정의 소요 에너지를 비교 및 분석하기 위하여 공급물의 조성도와 생산물의 순도를 같은 조건에서 실험하였다. 또한 분리벽형 증류탑 설계에 있어서 가장 중요한 설계 변수인 공급단 변화에 따른 소요 에너지 차이와 내부순환 흐름의 영향을 조사한 결과 공급단의 위치와 내부순환 흐름에 의한 소요 에너지 최적영역이 존재함을 확인됨에 따라 분리벽형 증류탑의 최적 설계 방법을 제안하는 것에 연구를 하였다.

II. 본론

기존의 필름공정 용매회수 공정은 그림 1과 같은 구성으로 표현된다.

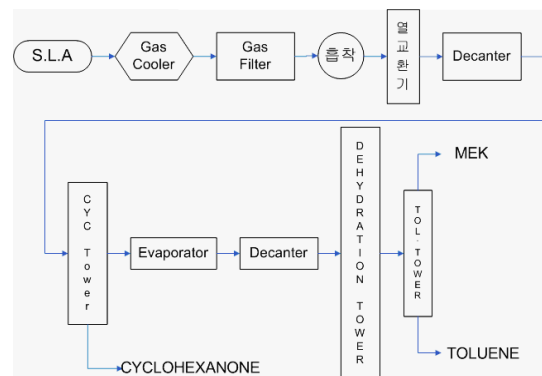


그림 1. 기존의 용매회수 공정 블록선도.

Fig. 1. Block diagram of existing solvent recovery process.

* 책임저자(Corresponding Author)

논문접수 : 2006. 8. 30., 채택확정 : 2006. 10. 10.

이승현, 조문신, 이문용 : 영남대학교 디스플레이화학공학과

(vvlis@yumail.ac.kr/mynlee@yu.ac.kr)

※ 본 논문은 2006 에너지자원 기술개발(에너지 관리공단)에서 지원하여 연구하였음.

표 1. DWC 적용 전·후 에너지 소요 비교.

Table 1. Comparison of the new process with DWC and the existing process.

Original Sol. Process	kJ/h	DWC Sol. Process	kJ/h
ST-3	750,000	DUTY_1	208,334
ST-4	581,322	REB_Q3	284,871
ST-5	241,152	COND_Q	717,641
ST-6	662,019	REB_Q	753,299
ST-7	157,000		
CW8	697,000		
CW10	96,415		
CW10_1	492,059		
CW11	150,288		
CW12	651,560		
CW17	157,722		
Total Energy	4,636,536	Total Energy	1,964,145
Energy Saving (%)	57%		

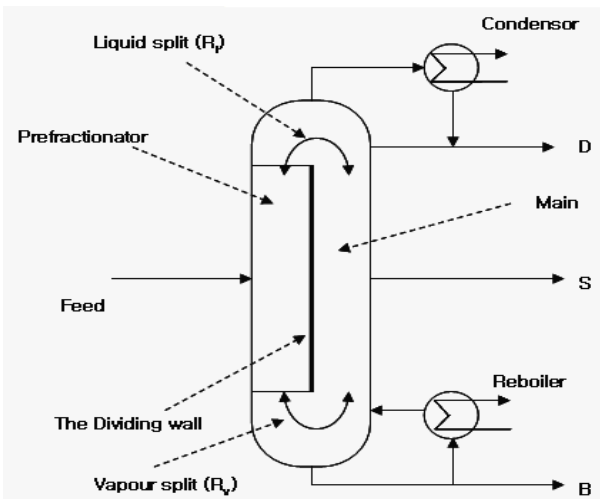


그림 5. 분리벽형 증류탑(DWC) 구성도.
Fig. 5. Structure of dividing wall column.

공정의 에너지 소비를 보면 1.96×10^6 kJ/h 로 기존 용매회수 공정(4.64×10^6 kJ/h)보다 57%의 에너지 절감 효과를 얻을 수 있다. 이와 같이 DWC 적용 전·후 비교 시 공정구성이 간결해지고 운용 효율성을 높일 수 있으며 에너지 효율측면에서도 많은 이점을 얻을 수 있음을 알 수 있다. 두 공정의 각 부분에서의 에너지 소요를 표 1에 비교하였다.

표 1에서 보는 바와 같이 분리벽형 증류탑 적용 전의 용매회수 공정은 Cyclohexanone을 제외한 나머지 3성분에서 물을 제거하기 위한 separator_1 (ST-3, CW8)과 MEK, Toluene을 분리하는 C-105 (ST-6, CW12)의 소요에너지가 전체 에너지소비의 50%이상을 차지하고 있다. 반면, 분리벽형 증류탑 적용 후의 공정을 비교해 보면 증류탑 자체의 에너지(COND_Q, REB_Q)가 전체공정의 70%를 차지하지만 separator_1과 C-105에 비해 소요에너지가 대폭 줄어들음을 알 수 있다.

잘 알려진 바와 같이, 분리벽형 증류탑 공정이 일반적인 2기 연속 증류공정보다 에너지가 적게 소요되는 이유는 구

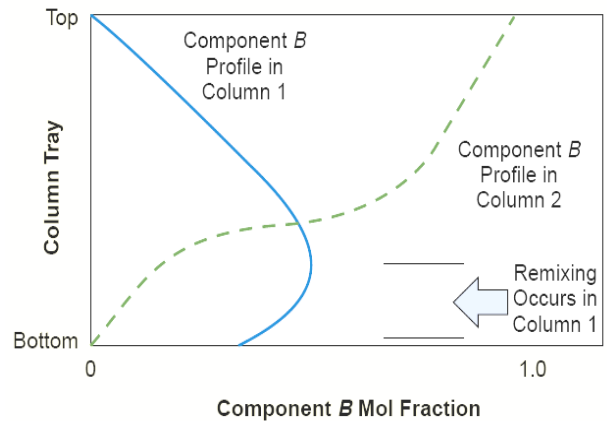


그림 6. 기존의 순차적인 증류탑에서 성분B의 재혼합 효과.
Fig. 6. Remixing of component B occurs in 2-column direct-sequence arrangement.

조적 차이로 인해 재혼합(remixing)효과를 제거하기 때문이다[4]. 그림 5는 분리벽형 증류탑의 내부 구성도를 나타낸 것이다.

재혼합(remixing)효과는 공급물이 2성분 이상으로 이루어져 있으며 3성분을 분리하기 위한 direct 또는 indirect 증류 구조에서 나타나고 있다. 이는 비효율적인 에너지를 소비하는 원인이 된다. 그림 6에서 보는 바와 같이 중비점 물질 B의 조성은 첫 번째 증류탑에서는 탑하부 부분으로 내려 갈수록 증가한 후 다시 감소 현상을 보이고 있다. 이는 두 번째 증류탑의 중비점 물질 B의 조성이 지속적으로 증가하게 되어 두 번째 증류탑의 공급단 조성과의 차이가 생겨 나타나는 현상으로 이러한 재혼합(remixing)효과에 의하여 중비점 물질 B를 분리하기 위해 많은 에너지를 필요하므로 열효율 측면에서 상당히 비효율적이다.

이에 비해 분리벽형 증류탑은 공급물의 3성분에서 상대적으로 비점차이가 큰 A와 C를 대부분 예비분리기에서 분리한 후 주분리기에서 B성분을 중간 성분물질(side product)로 생산하면 기존의 2기 연속 증류시스템에서 발생하는 재혼합(remixing)효과를 제거할 수 있다. 즉, 예비분리기에서 A와 C를 주 분리에 설치된 분리벽에 의해 1차적으로 분리하면 분리벽 상부와 하부에는 각각 A와 B, B와 C가 남아있게 되며 분리벽의 윗부분에서 A와 B의 분리가 이루어진다. 또한 분리벽 하부에서는 B와 C의 분리가 분리벽 상부와 동일하게 이루어진다. 이로 인해 예비분리기 탑상부와 탑하부에 있는 중비점 물질 B는 주 분리의 조성과 같게 되어 주 분리의 중간 단계에서는 B의 조성이 최대가 된다. 이것은 저비점 물질 A는 탑하부로 이동할 수 없고 고비점 물질 C는 탑상부로 이동할 수 없기 때문이다.

이러한 구조적 차이로 인해 고순도의 중간비점 물질 B를 생산할 수 있고 기존 2기 연속 증류구조에 비해 condenser 및 boiler와 같은 장치가 반으로 줄게 되어 장치비용을 줄일 수 있고 열적 비효율성을 제거할 수 있어 이론상으로 30% 이상의 에너지 절감효과를 가져올 수 있게 된다.

분리벽형 증류탑의 최적설계를 수행하기 위하여 자유도

를 분석한 결과, 5개의 자유도를 갖고 있는 것으로 확인되었다[2]. 최적화 연구에서 여러 최적 설계인자를 이용할 수 있지만 실제 실험모사에서는 2기 연속 증류공정과 분리벽형 증류탑 공정의 에너지 차이를 비교하기 위하여 3성분의 최종생산 순도는 동일 조건으로 이루어져야 한다. 따라서 분리벽형 증류탑의 성능에 영향을 미치는 것은 2개의 자유도(기상 및 액상 내부순환 흐름 분포량)가 남게 된다.

분리벽형 증류탑은 주 분리기 내부에 예비분리기가 통합되어 있는 복합구조로서 이를 모사도구인 HYSYS로 모델링하기 위하여 분리벽형 증류탑과 열역학적으로 동일한 Petlyuk 증류탑(그림 8)을 바탕으로 모델링하였다. 이때, 예비분리기와 주 분리기의 분리벽 사이의 열전달은 단열로 가정하였다.

HYSYS로 분리벽형 증류탑을 모델링한 공정도를 그림 9에 나타내었다. 이때 분리벽에 의한 기상 및 액상 내부순환 흐름은 그림 5와 같이 각각 Liquid split(Ri), Vapor split(Rv)로 표현된다. 예비분리기와 주 분리기의 단수는 2기 연속 증류구조의 각각의 단수와 동일하게 설정하였다.

분리벽형 증류탑의 기상 및 액상 내부순환 흐름의 영향을 조사하기에 앞서 공급단의 위치에 따른 에너지 차이를 조사하였다. 예비분리기와 주 분리기의 단수는 각각 40단, 70단으로 설정하였으며 운전압력은 각각 101.3kPa, 124kPa로 고정하여 모사하였다. 그림 10에서와 같이 분리벽형 증류탑은 공급단의 일정영역에서는 에너지 차이가 거의 같으므로 공급단의 위치가 분리성능에 크게 영향을 끼치지 못

하는 것을 알 수 있다. 이러한 단검도는 실제 DWC 구현시 원료 조성의 변동이나 불확실성에 대하여도 공급단 위치에 따라 분리탑의 성능이 크게 변하지 않게 되어 구현상의 장점으로 작용하게 된다.

분리벽형 증류탑에서 여러 가지 최적 설계인자를 이용할 수 있지만 분리성능에 가장 큰 영향을 끼치는 기상 및 액상 내부순환 흐름은 일반 증류탑에서의 내부 환류량과 재비량에 해당되며 예비분리기에서의 분리 정도를 결정해 준다[1]. 또한 예비분리기에서의 분리성능의 변화는 주어진 제품 순도를 만족하기 위한 주 분리기에서의 내부 환류량의 변화를 가져오므로 내부순환 흐름을 최적설계 요소로 이용할 수 있다. 그러나 Petlyuk 증류탑에서는 운전 중에도 예비분리기와 주 분리기 간의 순환흐름 분포를 임의로 제어할 수 있지만, 분리벽형 증류탑의 경우에는 예비분리기가 주 분리기 내부에 통합된 구조이므로 설치가 끝나면 운전 중에 내부 순환흐름의 분포를 임의로 조정하는 것이 실제적으로 불가능하므로 설계 단계에서 가능한 정확하게 최적의 분포 구도를 결정해야만 한다.

따라서 내부순환 흐름의 최적점을 찾기 위해 그림 9에서 보는 바와 같이 기상 내부순환 흐름은 Bot_Liq1, 액상 내부순환 흐름은 Over_Vap1으로 설정하고 그림 11과 같이 case study로 모사를 하였다.

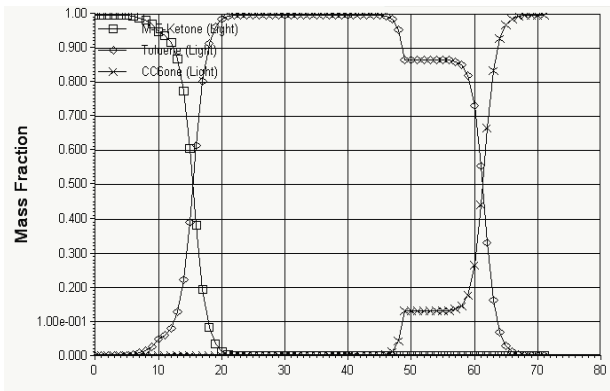


그림 7. 분리벽형 증류탑의 조성 분포.
Fig. 7. Composition of dividing wall column.

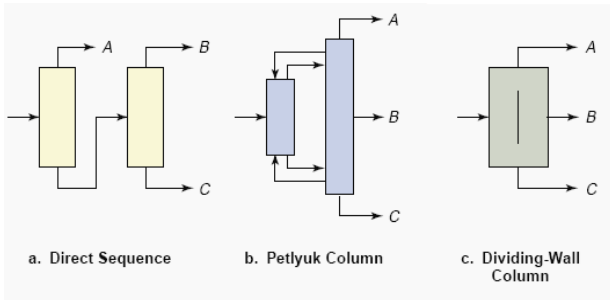


그림 8. 3성분 분리를 위한 증류구조.
Fig. 8. Distillation process for ternary mixture separation.

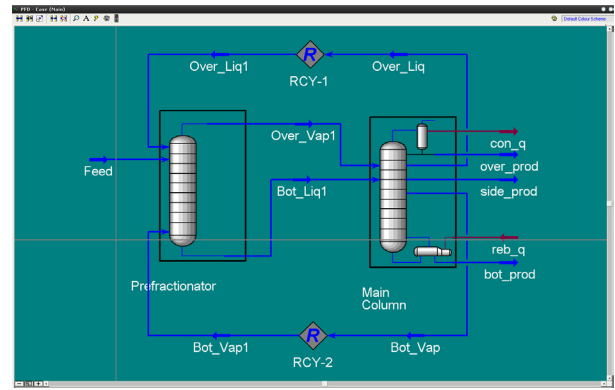


그림 9. HYSYS를 이용한 분리벽형 증류탑 구성도.
Fig. 9. Modeling of dividing wall column by HYSYS.

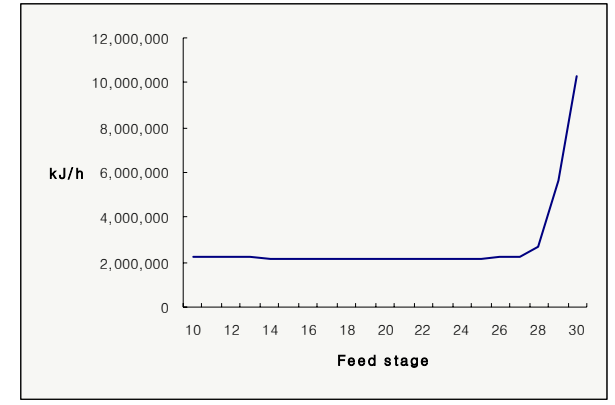
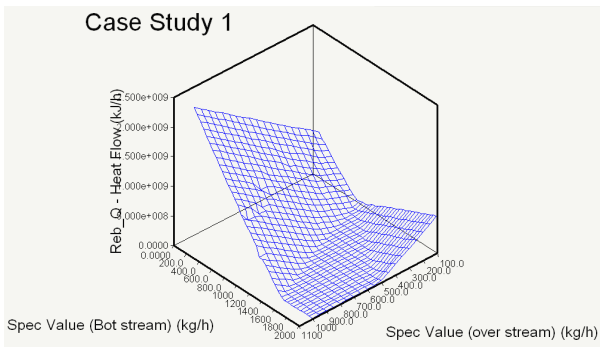
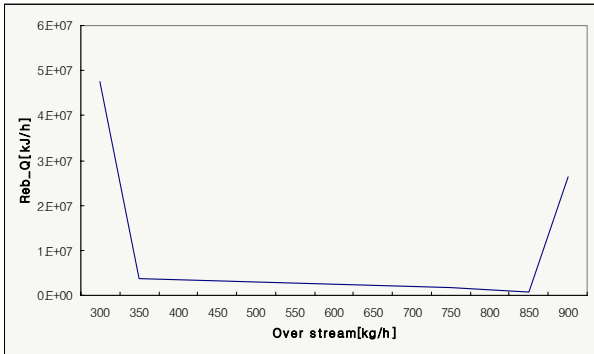


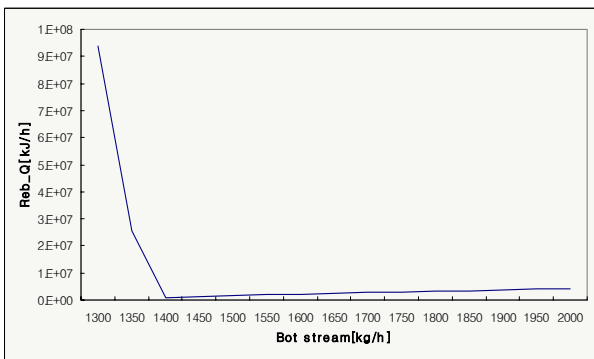
그림 10. 공급단에 따른 소요에너지 변화.
Fig. 10. Changing of energy consumption for feed stage.



(a) 기상 및 액상 내부순환 흐름의 최소에너지 분포



(b) 액상 내부순환 흐름 최적영역

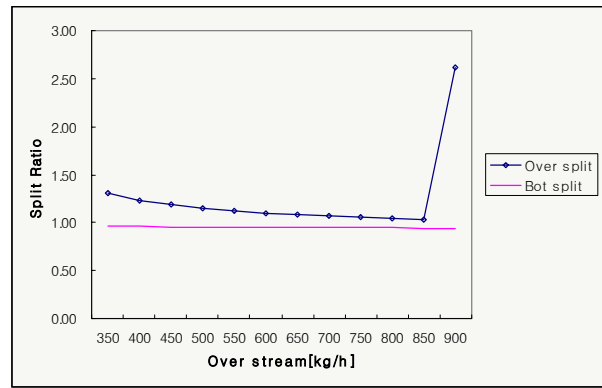


(c) 기상 내부순환 흐름 최적영역

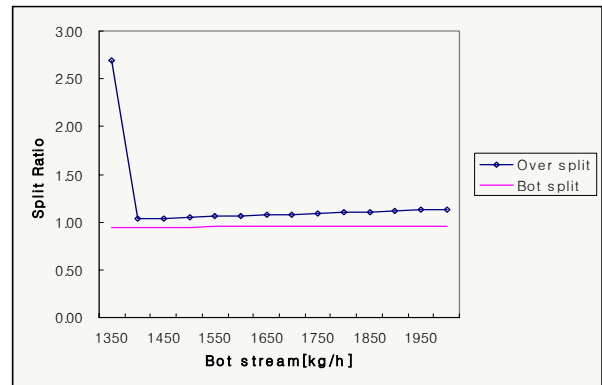
그림 11. 기상 및 액상 내부순환 흐름 최적 분포영역.
Fig. 11. Optimal distribution zone of vapor & liquid internal flow.

그림 11(a)를 살펴보면 최소 에너지를 필요로 하는 분리벽형 증류탑의 기상 및 액상 내부순환 흐름 최적 분포영역을 나타내고 있다. 이때 기상 및 액상 내부순환 흐름량은 각각 1400kg/h, 850kg/h이며 최소 에너지량은 1.96×10^6 kJ/h이다. 그리고 탐색 구간 범위에서 가장 높았던 에너지 소비량은 1.6×10^9 kJ/h이나 되어 전체 에너지 소요량의 변동 폭이 매우 크다. 이러한 내부순환 흐름량에 대하여 예비분리기와 주분리기 사이의 물질 흐름관계를 보다 정밀하게 조사하기 위하여 그림 12에서와 같이 Liquid split(R_l), Vapour split(R_v)를 알아보았다.

최적지점에서의 주분리기에서 예비분리기로 넘어가는 액상에 대한 Liquid split(R_l)비는 약 1.03를 나타내고 있으며 기상에 대한 Vapour split(R_v)비는 약 0.94를 나타내었다. 이



(a) 액상 내부순환 흐름의 최적 분리비(기상흐름: 1400kg/h)



(b) 기상 내부순환 흐름의 최적 분리비(액상흐름: 850kg/h)

그림 12. 내부순환 흐름의 최적 분포비.
Fig. 12. Optimal split ratio of internal flow.

는 용매회수 공정에서의 분리벽형 증류탑 설계 시 기상 및 액상 분리비가 이론적으로 대략 1일 때 최적설계의 조건으로 볼 수 있다. 그러므로 그림 12의 기상 및 액상의 분리비가 1에서 크게 벗어나지 않으므로 분리벽형 증류탑의 기계적 구현성도 매우 좋음을 확인할 수 있다. 한편, 그림 11(a)에서 최적 분포 영역은 평탄한 구조를 나타내고 있어 원료 성상이나 조건 변화에 대하여 어느정도 강건한 효율 유지가 기대되며 분리벽 설치의 기계적 제한 조건을 만족시키기 위하여 분리벽형 증류탑 설계 시 분리효율의 큰 저하 없이 내부순환 흐름량 및 분리비의 적절한 조정이 가능하다.

이러한 기상 및 액상 내부순환 흐름량과 흐름비에 대하여 최적 분포 영역을 나타내는 현상은 다음과 같이 설명될 수 있다. 예비분리기에서의 기상 및 액상 내부순환 흐름의 증가는 예비분리에서의 분리 성능 향상을 가져오게 되므로 주어진 순도의 생산물 분리를 위한 주 분리기의 내부 환류량을 감소시키는 효과를 불러오게 된다. 그러나 한편으로 내부순환 흐름의 증가는 직접적으로는 주 분리기의 내부 흐름량 증가를 유발하므로 분리부하 증가효과도 가져오게 된다. 이 두 가지 효과는 서로 경쟁적으로 일어나기 때문에 내부순환 흐름량이 증가하는 경우 어느 조건까지는 순환량 증가에 따른 분리 성능 향상 효과가 우세하다가 그 조건 이후에는 주 분리기 내부 흐름량을 증가시키는 효과가 우

세해 지게 되며 결국 내부순환 흐름의 총량에 따른 최적점이 나타나게 된다. 따라서 내부순환 흐름을 최적화 하지 않은 상태와 비교해 보면 에너지 차이가 큰 것을 알 수 있으므로 기상 및 액상 내부순환 흐름이 분리벽형 증류탑의 분리 성능에 결정적 역할을 하고 있는 것을 알 수 있다.

III. 결론

용매회수 공정의 에너지 효율성을 극대화하고 공정의 간결성을 구현하기 위하여 분리벽형 증류탑(dividing wall column) 기술을 적용한 새로운 공정을 제안하였다. 기존 공정과 제안된 공정의 에너지 절감효과를 비교하기 위하여 공급물의 조성과 최종 생산물의 조건을 동일하게 설정하여 실험한 결과 기존 용매회수 공정에 비해 57% 이상의 에너지 절감효과 향상을 얻었으며 장치비용 측면에서도 많은 절감효과를 달성할 수 있었다. 또한 분리벽형 증류탑의 최적설계 인자로 기상 및 액상 내부순환 흐름을 설정하여 전산모사 한 결과 내부순환 흐름량의 변화에 따라 분리벽형 증류탑의 전체에너지 소비가 크게 변한다는 것을 알 수 있었고 이러한 내부순환 흐름분포는 주분리기에서 예비분리기의 기상 및 액상 내부순환 분리비가 대략 1 부근일 때

최적분포영역을 나타낸다는 것을 확인하여 제안된 DWC 기술의 실제적 구현에 큰 문제가 없음을 확인할 수 있었다.

참고문헌

- [1] I. J. Halvorsen and S. skogestad, "Optimal operation of Petlyuk distillation: steady-state behavior," *Journal of Process Control* 9, pp. 407-424, 1999.
- [2] M. I. Abdul Mutalib & R. Smith, "Operation and control of dividing wall column distillation column, Part 1: Degrees of freedom and dynamic simulation," *Trans IChemE*, vol. 76. part A, March 1998.
- [3] J. G. Segovia-Hernández, S. Hernández, V. Rico-Ramírez, and A. Jiménez : "A comparison of the feedback control behavior between thermally coupled and conventional distillation schemes," *computers and Chemical Engineering*, 28, 811-819(2004).
- [4] M. A. Schultz, D. G. Stewart, J. M. Harris, S. P. Rosenblum, M. S. Shakur, and D. E. O'Brien, "Reduce costs with dividing-wall columns," *CEP*, pp. 64-71, May, 2002.



이 승 현

2004년 영남대학교 디스플레이화학공학부(공학사). 2006년 영남대학교 디스플레이화학공학부(공학석사). 2006년~현재 영남대학교 디스플레이화학공학부 박사과정. 관심분야 공정설계 및 모델링.



조 문 신

1987년 연세대학교 물리학과(이학사). 1989년 연세대학교 물리학과(이학석사). 2001년~현재 영남대학교 디스플레이화학공학부 박사과정. 관심분야 공정설계 및 모델링.



이 문 용

1982년 서울대학교 화학공학과(공학사) 1984년 한국과학기술원 화학공학과(공학석사). 1991년 한국과학기술원 화학공학과(공학박사). 1994년~현재 영남대학교 디스플레이화학공학부 교수. 관심분야 공정제어 및 감시, 공정설계

및 모델링.