

Para 형 다단맥동 추출탑의 유동특성과 물질전달(I)

김우식 · 염경호 · 윤장호

연세대학교 공과대학 화학공학과
(1985년 4월 27일 접수, 1986년 8월 25일 채택)

The Hydrodynamic and Mass Transfer Characteristics of Para-type Plate Pulsed Extraction Column(I)

Woo-Sik Kim, Kyung-Ho Youm and Jang-Hyo Yoon

Department of Chemical Engineering, College of Engineering,
Yonsei University, Seoul, 120, Korea

(Received 27 April 1985; accepted 25 August 1986)

요 약

연속상의 나선형 흐름경로가 있는 para 형 다단맥동 추출탑의 유동특성 및 물질전달 효과에 관하여 실험하였다.

실험결과, 연속상의 축방향 혼합계수 및 분산상 체류량은 맥동속도보다 연속상 및 분산상의 유속변화에 각각 더 영향을 받았다.

아세톤 추출실험 결과, 탑효율은 맥동속도의 변화에 관계없이 0.8~0.9 정도로 안정하였으며, 연속상에서의 아세톤 농도분포는 확산모델보다 역혼합모델에 더 근접하였다.

Abstract—The hydrodynamic and mass transfer characteristics in the para-type plate pulse column was investigated.

The axial dispersion coefficients of continuous phase and the hold-up of dispersed phase were more influenced by the continuous and dispersed phase velocity than by the pulse velocity respectively.

As the experimental results of acetone extraction, the column efficiency slightly decreased with the increase of pulse velocity, but the efficiency was stabilized in the range of 80-90%. And the acetone concentration profiles at steady state approached to the backflow model.

1. 서 론

액액 연속추출 장치중 다단맥동 추출탑은 맥동에 의해 연속상과 분산상의 접촉효과를 향상시킬 수 있어 물질전달 효과가 크며, 비교적 낮은 HTU를 얻을 수 있는 장점(1)때문에 산업적으로 널리 이

용되고 있다. 그러나 맥동의 증가에 따른 축방향 혼합의 급작스런 상승으로 flooding capacity가 낮고, 탑효율이 안정하지 못한 단점때문에 조작범위가 한정되어 있어 이를 개선하기 위한 탑구조의 개량등이 시도(2, 3)되고 있다.

본 연구에서는 Canfield(4)에 의해 증류탑에서

효능이 입증된 바 있는 para 형의 다공판을 맥동추출탑에 적용, 축방향 혼합정도 및 분산상 체류량등의 유동특성과 물질전달 효과를 측정하고 이를 기존의 다단맥동 추출탑에서의 실험자료들[2, 5, 6]과 비교하여 para 형 추출탑의 액액 추출에의 이용 가능성을 제시하고자 하였다.

Para 형 다공판은 구조적으로 연속상의 경로를 두고 있어 맥동에 의한 축방향 혼합을 줄일 수 있고, 각상의 흐름이 서로 방해가 되지 않으므로 flooding capacity가 비교적 높고, 기존의 추출탑과 비교하여 두배의 단수효과로서 이중 접촉을 통해 높은 분리 효율을 기대할 수 있다.

2. 이론적 배경

2-1. 축방향 혼합계수

개방-개방계에서 충격입력 방식으로 추적자를 주입할 경우 추적자에 대한 물질수지식으로 부터 mean과 variance는 다음과 같이 표기된다[8].

$$\mu = 1 + \frac{2}{N_{pe}} \quad (1)$$

$$\sigma^2 = \frac{2}{N_{pe}} + \frac{8}{N_{pe}^2} \quad (2)$$

실험에 의하여 추적자의 체류시간 분포(RTD)를 측정하고, mean과 variance를 구한후 식(1), (2)로부터 N_{pe} 를 계산하여 다음식으로서 축방향 혼합계수를 구할 수 있다.

$$E = \frac{UL}{N_{pe}(1-\phi)} \quad (3)$$

이때 축방향 혼합계수는 mean과 variance에 의한 두가지 값이 존재하게 되나, Levenspiel과 Smith[8]는 축방향 혼합계수를 결정하는데 있어서 variance에 의한 방법이 더 타당함을 보인 바 있다.

2-2. 분산상 체류량

분산상 체류량은 두상의 상대속도로서 다음과 같이 표현된다.

$$U_r = \frac{U_d}{\phi_d} + \frac{U_c}{1-\phi_d} \quad (4)$$

이때 분산상의 평균액적 입경에 대한 두상간의 상대속도를 Stoke의 법칙[15]으로 표현하고, 연속

상 유속에 대한 영향을 무시[3]하면 ϕ_d 는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\phi_d = \alpha U_d^a (Af)^y \quad (5)$$

2-3. 추출탑의 물질전달 효과

추출탑에서의 물질전달 효과 및 탑높이에 따른 용질의 농도분포는 확산모델(diffusion model)[12] 및 역혼합 모델(backflow model)[1]로서 표현된다. 이때 탑의 총괄 이동단위수 NTU_{oc} 는 용질농도가 희박하고 평형관계가 직선일 경우 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$(NTU_{oc})_p = \frac{\ln\left\{\frac{x_0 - y_1/m(1 - \frac{Q_c}{mQ_d}) + \frac{Q_c}{mQ_d}}{x_1 - y_1/m(1 - \frac{Q_c}{mQ_d})}\right\}}{(1 - \frac{Q_c}{mQ_d})} \quad (6)$$

또한 탑효율 $(NTU_{oc})_p / (NTU_{oc})_\tau$ 는 NTU_{oc} 와 탑 높이로부터 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{(NTU_{oc})_p}{(NTU_{oc})_\tau} = \frac{Z_p}{Z_\tau} = \frac{(N_{pe})_c (N_{pe})_d}{(N_{pe})_c (N_{pe})_d + [(NTU_{oc})_\tau F]} \quad (7)$$

3. 실험

3-1. 실험장치

본 연구에 사용된 para 형 다공판의 구조는 Fig. 1과 같다. 다공판의 재질은 304 stainless steel을 사용하였으며, 각 다공판에는 공경 0.3cm의 구멍을 0.6cm 간격으로 29개를 뚫고, 분산상 흐름을 두경로로 나누기 위한 분리판에 각각의 다공판을 5cm 간격으로 서로 어긋나게 부착하고, 추출탑 내벽과의 간격이 0.05cm 되도록 설치하여 각단의 개공율을 23%로 유지하였다. 또한 양쪽 다공판을 서로 연결시키는 연속상의 흐름경로를 두어 연속상이 나선형 흐름으로 양쪽 다공판을 통과하면서 분산상과 접촉할 수 있게 하였다.

본 연구에 사용한 para 형 다단맥동 추출탑을 Fig. 2에 나타내었다. 맥동탑의 본체는 내경 5cm, 외경 5.5cm의 pyrex glass로서 유효탑 높이를 100cm 되게 제작하였으며, 탑 상부 및 하부에 내경 7cm의 혼합조 및 분리조를 각각 설치하였다. 맥동은 공기맥동 방식을 사용하였으며, 맥동의 진폭은

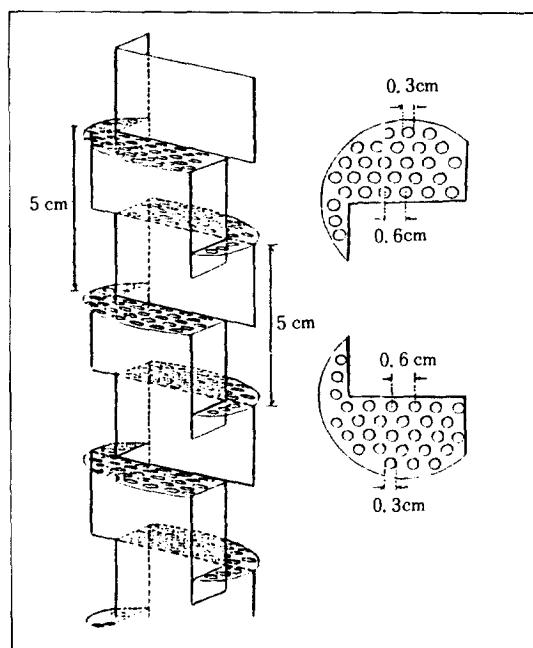
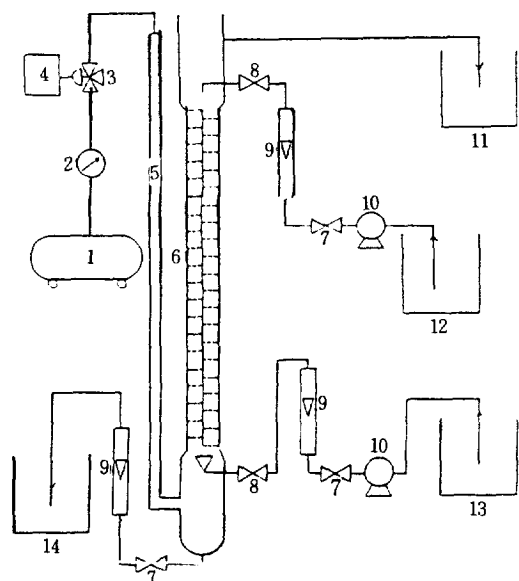


Fig. 1. Para-type perforated plates.



- | | |
|-----------------------------|-----------------------|
| 1. Air Compressor | 8. Stop Cock |
| 2. Regulator | 9. Rotameter |
| 3. Three Way Solenoid Valve | 10. Pump |
| 4. Timing Relay | 11. Overflow Tank |
| 5. Air Pulse Leg | 12. Aqueous Feed Tank |
| 6. Extraction Column | 13. Organic Feed Tank |
| 7. Needle Valve | 14. Drain Tank |

Fig. 2. Schematic diagram of experimental pulsed column system.

Table 1. Dimensions of para-perforated plate column.

Elements	Material	Dimension
Column	Pyrex Glass	I. D. 50 mm
		(O. D. 55 mm)
		Length 1000 mm
Pulse Leg	Pyrex Glass	I. D. 20 mm Length 1300 mm
Plate	304 - type Stainless Steel	Dia. 49.5 mm
		Thickness 1.5 mm
		Plate
		Spacing 50 mm (25/25)
		Hole Dia. 3 mm Hole No. 29 Pitch 6 mm

공기 압축기로부터 나온 공기를 regulator로 조절, 공기 압력으로서 변화시켰으며, relay를 solenoid valve와 연결하여 맥동빈도(frequency)를 조절하였다. 탑 본체에는 20 cm 간격으로 시료 채취구를 5개 설치하였으며, 탑 상부로부터 3.5 cm 하부에 연속상 추적자 주입구를, 탑 하부로부터 7 cm 상부에 분산상 추적자 주입구를 설치하였다.

Table 1에 탑 본체와 para형 다공판의 치수를 나타내었다.

3-2. 실험방법

축방향 혼합계수 및 체류량의 분산상 유동특성 실험은 Toluene-Water 계에서, 물질전달 실험은 Toluene-Acetone-Water 계에서 각각 행하였으며, Toluene-Acetone-Water 계의 물성치[7]를 Table 2에 나타내었다.

축방향 혼합계수는 추적자 사용에 의한 충격입력

Table 2. Physical properties of toluene-acetone-water system.(at 25°C)

Component	Molecular Weight (g/mole)	Specific Gravity	Interfacial Tension (dyne/cm)	Distribution Coefficient (Tol. Layer/Water Layer)
Toluene	92.14	0.870		
Acetone	58.08	0.797	32	0.835
Water	18.02	1.001		

Table 3. Experimental variables and operating range.

Variable	Operating Range
Aqueous Phase Flow Rate	75 - 350 (ml/min)
Organic Phase Flow Rate	75 - 350 (ml/min)
Amplitude (half scale)	1 - 2 (cm)
Frequency	40 - 120 (min ⁻¹)

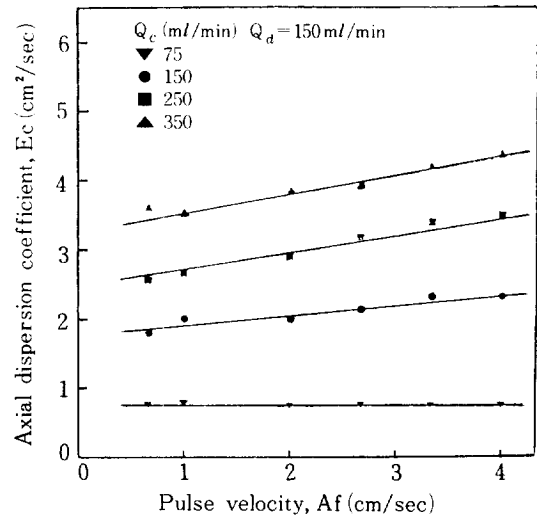
방법으로 체류시간 분포 (RTD) 곡선을 구하여 측정하였다. RTD 실험은 탐상단까지 연속상을 채워 맥동을 주고, 연속상 및 분산상을 도입하여 각상이 수력학적 평형에 도달되도록 한후, 추적자 주입구를 통해 순간적으로 10ml의 추적자를 주입하고 매 3분 간격으로 응답시료 채취구에서 10ml의 시료를 취하여 추적자 농도를 분석하였다. 연속상의 추적자는 Methylene Blue를 사용(8,9)하였다. 시료중의 각 추적자 농도는 분광광도계로 측정하였으며 실험에서 얻은 RTD 곡선을 계수화하여 식(2)로부터 variance를 구한 후, 식(3)에 의해 축방향 혼합계수를 구하였다. 이때 RTD 곡선의 tailing 현상의 보정은 Edward [14]가 제시한 지수 감소함수를 사용하여 처리하였다.

분산상 체류량은 displacement 방법 [10]에 의해 분산상의 용적을 측정, 유효탐내 용적에 대한 비율로서 계산하였다.

물질전달 실험은 정상상태에서 연속상의 시료를 탐내에 20cm 간격으로 설치된 5개의 시료 채취구로부터 5ml 씩 분리 채취하여 아세톤 농도를 측정하였다. 아세톤 농도는 Hydroxylamine-Hydrochloride 방법 [11]에 의해 분석하였다. 유동특성 및 물질전달 실험의 조작조건을 각각 Table 3 및 Table 4에 나타내었다.

Table 4. Operating conditions of toluene-acetone - water extraction experiments.

Aq. Phase Concentration	4wt% Acetone	150ml/min			
Org. Phase Concentration	0wt% Acetone	250ml/min			
Amplitude (half scale)	2 cm				
Run	1	2	3	4	5
f (min ⁻¹)	40	60	80	100	120

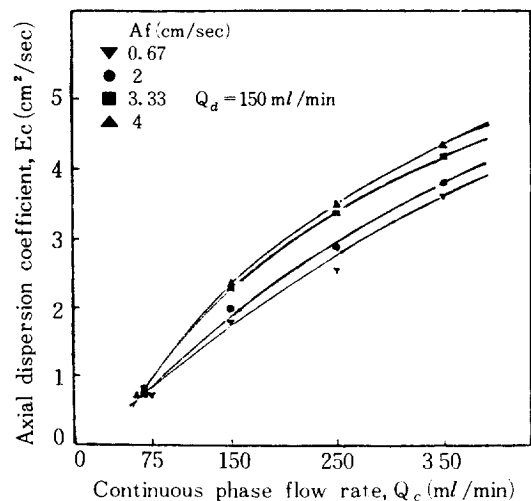
**Fig. 3. Effect of pulse velocity on axial dispersion coefficients.**

4. 실험결과 및 고찰

4-1. 축방향 혼합계수

Fig. 3에 맥동속도 변화에 따른 연속상의 축방향 혼합계수 변화를 Fig. 4에 연속상의 유량변화에 따른 축방향 혼합계수의 변화를 나타내었다.

Fig. 3, 4에 나타난 축방향 혼합계수의 변화를 비교할때 연속상의 유량이 맥동속도보다 축방향 혼합에 더 큰 영향을 미쳤다. 이는 특정된 연속상의 흐

**Fig. 4. Effect of continuous phase flow rate on axial dispersion coefficient.**

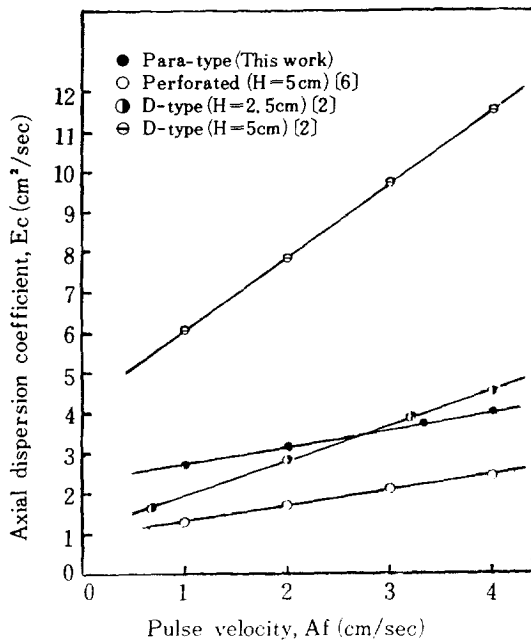


Fig. 5. Comparison of axial dispersion coefficients.

를 경로를 갖는 para형 구조때문으로 사료된다.

Fig. 5에 본 추출탑과 다른 맥동추출탑과의 축방향 혼합계수를 비교하여 나타내었다.

이 결과 para형 맥동 추출탑은 구조상 D형 판과 다공판 맥동탑의 조합된 유동특성을 나타내고 있음을 알 수 있다. 즉, para형 탑에서의 연속상 흐름 경로는 D형판의 경우와 유사하며, 또한 각판이 다공판으로 되어 있어 액적 분산의 효과를 얻을 수 있다. 본 실험범위에서 para형 탑의 축방향 혼합계수는 $1-4 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 로서 기존의 다공판 추출탑에 근접한 결과를 나타내었다. 실험결과 분산상 유속에 따른 혼합계수의 변화는 거의 없는 것으로 나타나, 본 para형 탑의 축방향 혼합계수는 다음의 상관관계로 나타낼 수 있었다.

$$E_c = 16.607 (U_c)^{1.147} (A_f)^{0.134} \quad (8)$$

4-2. 분산상 체류량

Fig. 6에 Toluene-Water계에서 맥동속도 및 분산상 유속변화에 따른 para형 맥동 추출탑의 분산상 체류량 변화를 나타내었다. 이 결과 mixer-settler 구간인 맥동속도 1.5 cm/sec 이하의 범위에서는 체류량이 일정하나, 1.5 cm/sec 이상의 범위에서

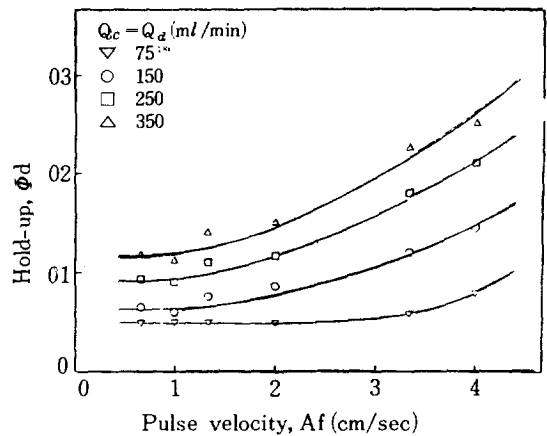


Fig. 6. Effect of pulse velocity on dispersed phase hold-up for toluene-water system.

는 emulsion영역으로 되어 분산상 체류량의 증가를 나타내고 있다. 실험결과 연속상 유속에 따른 분산상 체류량의 변화는 거의 없는 것으로 나타났다. 이상의 결과를 연속상 유속의 영향이 없는 상태에서 유도한 식(5)로서 나타내면 다음과 같다.

$$\phi_d = 0.279 (U_d)^{0.666} (A_f)^{0.433} \quad (9)$$

4-3. 물질전달 실험

Fig. 7에 맥동진폭 2 cm 하에서 진동수에 따른

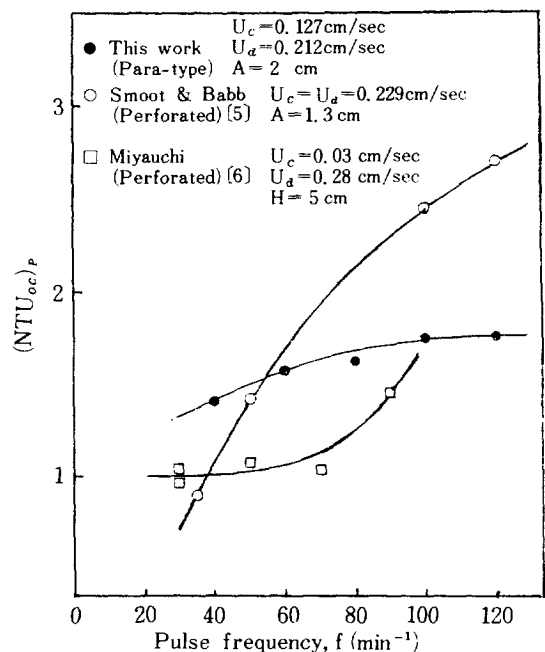


Fig. 7. Effect of pulse frequency on $(NTU_{oc})_p$.

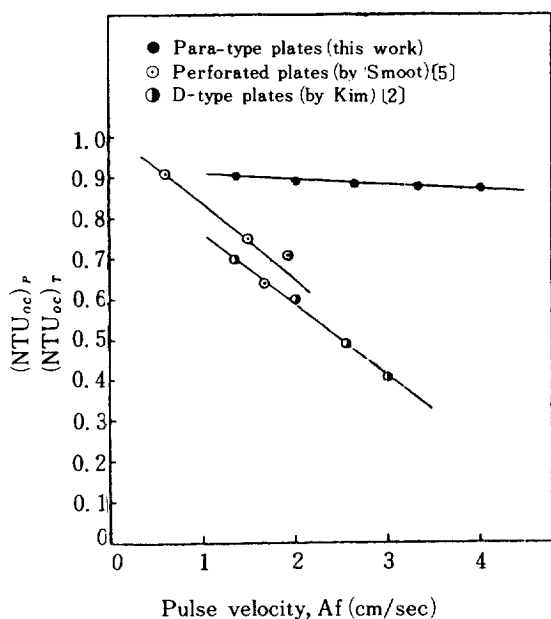


Fig. 8. Effect of pulse frequency on $(NTU_{oc})_p / (NTU_{oc})_r$ for toluene-acetone-water

para형 탑의 $(NTU_{oc})_p$ 변화를 개공율이 20-25%인 다공판탑의 연구결과[5,6]와 비교하여 나타내었다. 이 결과 para형 맥동탑은 진동수의 증가에 따라 $(NTU_{oc})_p$ 의 증가폭이 완만하였는 바, 이는 다공판의 경우보다 탑구조상 분산상 흐름에 대한 방해가 없어 분산상의 체류시간이 짧기 때문으로 사

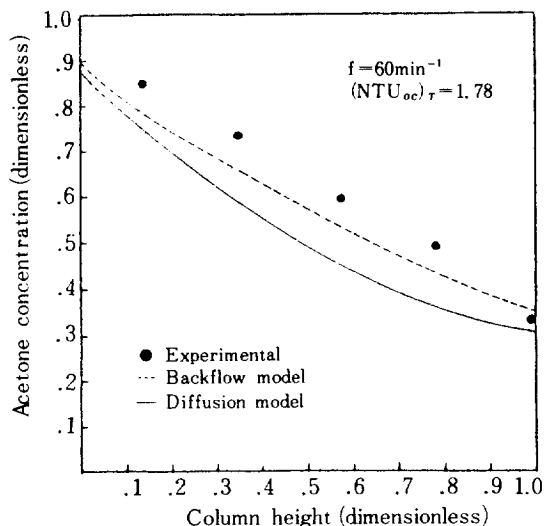


Fig. 9. Acetone concentration profiles in continuous phase.

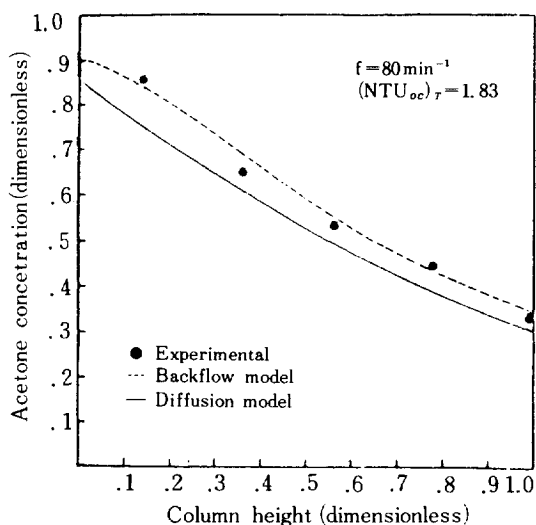


Fig. 10. Acetone concentration profiles in continuous phase.

료된다.

Fig. 8에 진동수에 따른 탑효율 $[(NTU_{oc})_p / (NTU_{oc})_r]$ 의 변화를 다공판탑 및 D형 판탑의 결과와 비교하여 나타내었다. Smoot와 Babb[5] 및 Kim[2]의 경우 탑 효율이 맥동의 증가에 따라 급속히 감소하고 있으나, para형 탑의 경우에는 거의 영향이 없는 것으로 나타났다. 따라서 para형 다단맥동 추출탑은 다른탑에 비해 안정된 탑효율을 갖는 것으로 나타나 액액추출에 효과적으로 이용될 수 있으리라 사료된다.

Fig. 9 및 Fig. 10은 탑높이에 따른 연속상에서의 아세톤 농도 변화를 확산모델[12] 및 역혼합모델[1]에 의한 이론치와 비교한 것으로서 이론치와 실험치의 편차를 보이고 있는바, 이는 두 모델이 이론상 축방향 혼합에 의한 초기농도의 점프(concentration jump)를 내포하고 있으나, 본 탑에서는 앞에서도 고찰한 바와같이 구조적 특성으로서 연속상의 축방향 혼합이 맥동에 별로 영향을 받지 않는 현상과 일치하고 있다. 전체적으로 본 탑의 추출실험 결과는 확산모델보다 역혼합 모델에 더 근접하였다.

5. 결 론

para형 다단맥동 추출탑의 유동특성 및 물질전달

실험결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 연속상의 축방향 혼합계수 및 분산상 체류량은 맥동속도보다 각상의 유속에 더 민감하였으며, 본 실험범위에서 다음의 상관관계식으로 나타낼 수 있었다.

$$E_c = 16.607 (U_c)^{1.147} (Af)^{0.134}$$

$$\phi_d = 0.279 (U_d)^{0.666} (Af)^{0.433}$$

2. 축방향 혼합계수는 $1-4 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 의 범위로 비교적 낮은 값을 나타내었고, NTU_{oc} 는 다공판의 경우보다 맥동에 따른 증가폭이 낮았으며, 탑효율은 맥동변화에 거의 영향없이 80~90%로 안정하였다.

3. 아세톤 추출실험결과 본 탑의 연속상에서의 농도분포는 확산 모델보다 역혼합 모델에 더 근접하였다.

NOMENCLATURE

- A : pulse amplitude, cm
 Af : pulse velocity, cm/sec
 E : axial dispersion coefficient, cm^2/sec
 F : coefficient in Eq. (7) determined by N_{pe} , NTU_{oc}
 H : plate spacing, cm
 HTU_{oc} : overall height of transfer unit based on continuous phase, cm
 L : effective column height, cm
 m : solute distribution coefficient, —
 N_{pe} : Peclet number defined by $UL/E(1-\phi)$, —
 NTU_{oc} : overall number of transfer unit based on continuous phase
 $(NTU_{oc})_p/(NTU_{oc})_T$: column efficiency defined by Eq. (7)
 Q : volumetric flow rate, ml/sec
 U : linear velocity, cm/sec
 x : solute concentration in continuous phase, gmole/l
 y : solute concentration in dispersed phase, gmole/l
 z : dimensionless distance, —

Greek Letters

- α : constant in Eq. (5)
 β : constant in Eq. (5)
 γ : constant in Eq. (5)
 σ : variance (2nd. moment), —

ϕ : hold-up, —

μ : mean (1st moment), —

Subscripts

- C : continuous phase
 d : dispersed phase
 P : apparent
 T : true

REFERENCES

- Hanson, C.: "Recent Advances in Liquid-Liquid Extraction", Pergamon Press (1971).
- Kim, J.H.: "A Study on the Dynamic Behavior of a D-type Plate Pulse Column for Extraction", Ph. D Thesis, Yonsei University (1981).
- Kim, W.S. and Kim, B.S.: *Proceedings of PACHEC '83*, Vol. I, 411 (1983).
- Canfield, F.B.: *Chem. Eng. Prog.*, 58 (February, 1984).
- Smoot, L.D. and Babb, A.L.: *Ind. Eng. Chem. Fund.*, 1, 93 (1962).
- Miyauchi, T., Kikuchi, T., Ohya, H., Hashizume, H. and Kagawa, K.: *Kagaku Kogaku*, 30, 895 (1966).
- Othmer, D.F., White, R.F. and Trueger, E.: *Ind. Eng. Chem.*, 33, 1240 (1941).
- Levenspiel, O. and Smith, W.K.: *Chem. Eng. Sci.*, 6, 227 (1967).
- Kagan, S.Z., Aerov, M.E., Lonik, V. and Volkava, T.S.: *Int. Chem. Eng.*, 5, 656 (1965).
- Bibaud, R.E. and Trdybal, R.E.: *AIChE*, 12, 472 (1966).
- Sehmel, G.A. and Babb, A.L.: *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.*, 2, 38 (1963).
- Marasco, M.: *Ind. Eng. Chem.*, 18, 701 (1926).
- Miyauchi, T. and Vermeulen, T.: *Ind. Eng. Chem. Fund.*, 2, 113 (1963).
- Edward, M.F. and Richardson, J.F.: *Chem. Eng. Sci.*, 23, 109 (1968).
- Nazem, M.: "Analysis of Backmixing and Mass Transfer in Solvent Extraction Columns", M.S. Thesis, Iowa State University (1979).