

용매 추출에 의한 조제 메틸나프탈렌유에 함유된 합질소화합물의 저감에 관한 실험적 연구(II)

강호철 · 김수진*,†

한국화학연구원 환경자원연구센터, *청운대학교 화학공학과
(2022년 8월 17일 접수, 2022년 8월 31일 수정, 2022년 9월 6일 채택)

Experimental Study on Reduction of Nitrogen-Containing Compounds Contained in Crude Methylnaphthalene Oil by Solvent Extraction (II)

Ho-Cheol Kang and Su Jin Kim*,†

Environmental Resources Research Center, Korea Research Institute of Chemical Technology, Daejeon 34114, Korea
*Department of Chemical Engineering, Chungwoon University, Incheon 22100, Korea
(Received August 8, 2022; Revised August 31, 2022; Accepted September 6, 2022)

초 록

조제 메틸나프탈렌유(CMNO)의 품질향상의 일환으로, 본 연구는 포름아미드 추출에 의한 CMNO에 함유된 합 질소화합물(NC)의 저감을 실험적으로 검토했다. 원료로서는 3종류의 NC [퀴놀린(QU), 이소퀴놀린(IQU), 인돌(IN)], 3종류의 2환 방향족화합물[BAC; 나프탈렌(NA), 1-메틸나프탈렌(1MNA), 2-메틸나프탈렌(2MNA)]과 비페닐(BP) 등이 함유된 CMNO를, 용매로서는 포름아미드 수용액을 각각 사용했다. 초기 용매에 함유된 물의 체적분율($y_{w,0}$)의 증가는 3종류의 NC의 분배계수와 수율을 급격히 감소시켰으나, 역으로 2MNA를 기준한 NC의 선택도를 증가시켰다. 일정한 조건 [$y_{w,0} = 0.1$, 초기 원료(CMNO)에 대한 용매의 체적분율 = 1, 조작온도 = 303 K, 액-액 접촉시간 = 72 h]하의 회분 병류 5단 평형추출을 통해 회수된 추잔유 중의 QU, IQU와 IN의 조성은 CMNO에 비해 각각 약 51.5%, 55.2%와 71.8% 저감되었다. 본 연구를 통해 나타난 우수한 NC의 저감율로부터 본 연구의 포름아미드 추출법은 CMNO에 함유된 NC의 저감법으로 기대되었다.

Abstract

As a part of improving the quality of crude methylnaphthalene (CMNO), this study was experimentally examined the reduction of nitrogen-containing compounds (NC) present in the CMNO by solvent extraction. The CMNO was composed of three kinds of NC [quinolone (QU), iso-quinoline (IQU), indole (IN)], three kinds of bicyclic aromatic compound [BAC; naphthalene (NA), 1-methylnaphthalene (1MNA), 2-methylnaphthalene (2MNA)] and biphenyl (BP) etc., in addition to an aqueous formamide solution, which were used as raw materials and a solvent, respectively. The increase in the volume fraction of water to the solvent in the initial state ($y_{w,0}$) caused a sharp decrease in the distribution coefficient and the yield of NC, but conversely raised the increased selectivity of NC based on 2MNA. The compositions of QU, IQU and IN in the raffinate oil recovered through the equilibrium extraction of batch co-current 5-stage under constant conditions [$y_{w,0} = 0.1$, volume fraction of solvent to feed (CMNO) at the initial state = 1, operating temperature = 303 K, liquid-liquid contacting time = 72 h] were reduced by about 51.5%, 55.2%, and 71.8%, respectively, when compared to those of CMNO. From the excellent reduction rate of NC, the formamide extraction method suggested in this study can be expected to be a useful reduction method for NC contained in the CMNO.

Keywords: Coal tar, Crude methylnaphthalene oil, Nitrogen-containing compounds, Formamide extraction, Equilibrium extraction

1. 서 론

콜타르의 증류로부터 추출된 나프탈렌유(bp 483-533 K)의 증류 잔사유인 조제 메틸나프탈렌유(CMNO)[1] 중에는 퀴놀린(QU), 이소퀴놀린(IQU), 퀴날딘과 인돌(IN)과 같은 유용한 합질소화합물(NC)이 함유되어 있다. 이들 NC의 각종 유도체들은 트립토판과 같은 필수아미노산, 알칼로이드 계열의 의약품, 자스민 및 네롤리 오일과 같은 향수,

† Corresponding Author: Chungwoon University
Department of Chemical Engineering, Incheon 22100, Korea
Tel: +82-32-770-8187 e-mail: sujkim@chungwoon.ac.kr

Table 1. Physical Property and Composition of Compound Contained in Feed (CMNO)

Compound	Physical property		Composition (wt%)
	b.p.*[K]	m.p.**[K]	
Naphthalene (NA, C ₁₀ H ₈)	491	351~353	2.88
Quinoline (QU, C ₉ H ₇ N)	511	257	6.72
Iso-quinoline (IQU, C ₉ H ₇ N)	515	299~301	4.15
Indole (IN, C ₈ H ₇ N)	526	325	4.36
2-Methylnaphthalene (2MNA, C ₁₁ H ₁₀)	514~515	307~309	38.93
1-Methylnaphthalene (1MNA, C ₁₁ H ₁₀)	513~516	251	15.11
Biphenyl (BP, C ₁₂ H ₁₀)	528	342	8.03
Others	-	-	19.82

*: boiling point, **: melting point.

항진균제, 살균제, 염료와 pH 지시약 등의 생산을 위한 중간체로 널리 활용되고 있다[2-11]. 한편, 위에서 언급한 NC는 대기오염 물질임과 동시에 불쾌한 냄새로 인해 CMNO에 함유된 불순물이다[1-3]. 현재 QU 및 0.1% 이상의 QU를 함유한 혼합물은 유해화학물질로 분류되고 있다. 따라서 본 연구의 원료로 사용된 CMNO는 약 6.72%의 QU가 함유되어 있는 관계로 유해화학물질로 분류되어 운송 및 취급에 많은 제약이 따른다. 이와 같은 이유로 CMNO에 함유된 NC의 저감을 통한 CMNO의 품질향상, 품질향상과정을 통해 회수된 메틸나프탈렌이 다량 함유된 추잔유의 모렘산업에의 활용과 추출유에 함유된 IN과 같은 유용 성분의 고순도 정제가 가능하게 되면 자원의 재활용 관점에서 그 의미가 매우 크다[2,3].

Table 1에 제시된 바와 같이, CMNO에 함유되어 있는 화합물들의 끓는점은 매우 근접하여 증류법에 의한 각 화합물 간의 분리는 곤란함을 알 수 있다. 지금까지 콜타르의 증류 부산물 중에 함유된 NC의 조분리는 주로 산과 염기물질을 사용한 반응추출에 의해 이루어지고 있으나[2,3,5,6], 이 조분리법은 공정이 매우 복잡하고, 용매의 회수 및 재활용이 매우 어렵다는 단점이 있다. 따라서 반응추출보다 간단하고 효율적인 화학적 조분리법의 개발이 필요하다[2,3,5].

현재 콜타르의 증류 부산물 중의 NC의 조분리는 위에서 언급한 산 및 염기 물질을 사용한 반응추출, 이온성 액체를 사용한 추출[12-14], 유기용매 추출[2-7,9-11], 초임계 추출[1,15], 포집 착물화[16,17], 흡착[18]과 액막투과[8] 등의 분리법에 의해 연구되고 있다.

저자 등은 이전 연구[2]에서 5성분계로 구성된 모델 CMNO를 원료로, 포름아미드 수용액을 용매로 각각 사용하여 분배평형을 행해, NC의 분배계수와 2-메틸나프탈렌(2MNA)을 기준한 NC의 선택도를 검토하여 포름아미드 추출이 CMNO 중의 NC의 저감에 매우 효율적인 분리법임을 보고했다.

본 연구는 콜타르 산업체에서 생산된 CMNO와 포름아미드 수용액 간의 분배평형을 행해 CMNO 중에 함유된 NC의 저감에 미치는 초기 용매 중에 함유된 물의 체적분율($y_{w,0}$)의 영향을 검토했으며, 또한 회분 병류 5단 평형 추출을 행해 NC의 저감성능을 실험적으로 검토했다.

2. 실험

2.1. 실험방법

회분 병류 5단의 평형추출방법에 대한 개략도를 Figure 1에 나타냈

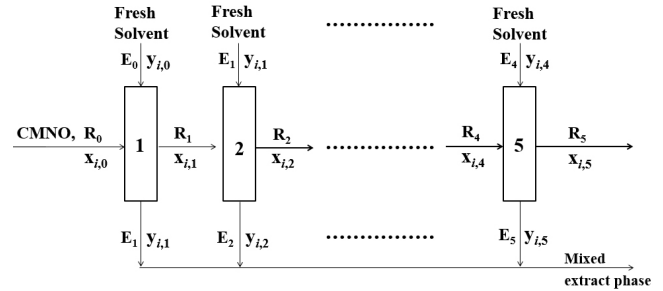


Figure 1. Schematic diagram for equilibrium extraction methods of batch co-current 5-stage[3]. R: raffinate phase, E: extract phase, CMNO: crude methylnaphthalene oil, i: component i, 1, 2, 3, 4, 5: number of equilibrium extraction.

Table 2. System and Experimental Conditions

System	
Feed	crude methylnaphthalene oil (CMNO), raffinate phases*
Solvent	aqueous formamide solution
Experimental conditions	
Liquid-liquid contacting time, t (h)	24~96
Number of equilibrium extraction, n (-)	1~5
Operating temperature, T (K)	303
Volume of fresh solvent, E ₀ -E ₄ (ml)	400
Volume fraction of water to solvent in initial state, $y_{w,0}$ (-)	0~0.3
Volume fraction of solvent to feed in initial state, E ₀ /R ₀ (-)	1

*: raffinate phase recovered through extraction run of each stage (n = 1~5).

다[3]. 먼저 포름아미드에 수돗물을 혼합하여 규정 농도의 용매를 작성했다. 일정량의 원료(R₀: CMNO, R₁-R₄: 각 단의 평형추출을 통해 회수된 추잔상) 및 새로운 용매(E₀-E₄: 포름아미드 수용액)를 투입한 1 L의 삼각플라스크를 실험 온도로 유지시켜 놓은 진동 고온조 속에 넣어 진동을 개시했다. 일정한 시간이 경과한 후에 진동을 중지, 정치시켜 분-액 로드를 사용하여 추출상과 추잔상을 분리한 후에 각 상의 질량을 측정했다. 분리된 추잔상과 새로운 용매를 각각 다음 단의 원료와 용매로 사용하였다. 분리한 소량의 추출상과 추잔상에 아세톤을 각각 첨가한 후, 각 샘플을 GC분석하여 2상의 조성을 결정했다. 분석에는 불꽃 이온화 검출기(FID)가 장착된 GC [휴렛팩커드사, HP 6890: 캐필러리 컬럼, HP-1 (30 m × 0.25 mm I.D.)]를 사용했다. 각 샘플의 GC분석은 캐리어 가스 N₂ (유속 1 mL/min), 주입부 온도 523 K, 샘플량 1 μL, 분할비 40 : 1, 초기온도 393 K(유지시간 3 min), 승온속도 8 K/min, 최종온도 593 K(유지시간 3 min)의 조건으로 행했다[2].

2.2. 물질계 및 실험조건

본 연구에서 사용한 물질계와 실험조건을 Table 2에 나타냈다. 상술한 바와 같이 원료로서는 CMNO를, 용매로서는 포름아미드 수용액을 각각 사용했다. 본 연구의 분배평형실험은 각 단계에 투입되는 새로운 용매의 체적(E₀-E₄), 조작온도(T)와 초기 원료(CMNO)에 대한 용매의 체적분율(E₀/R₀)을 일정하게 유지시켜, 액-액 접촉시간(t), 평형추출 횟수(n)와 초기 용매 중에 함유된 물의 체적분율($y_{w,0}$)을 각각 변화시켰다.

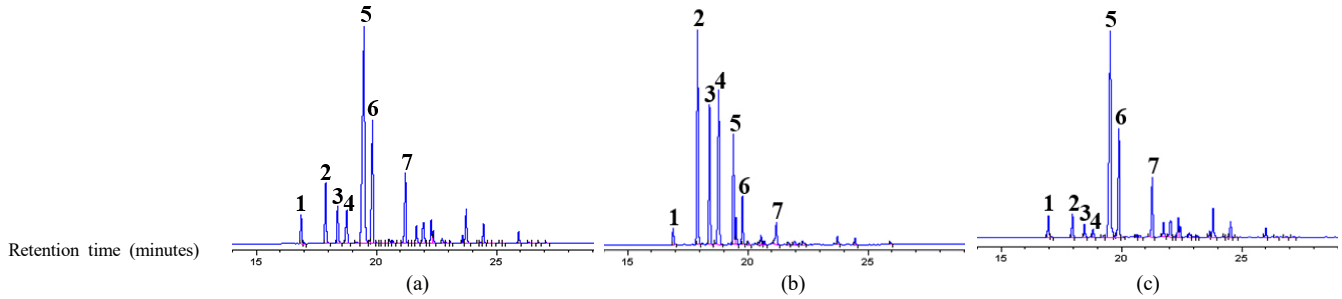


Figure 2. Gas chromatograms of (a) feed (*CMNO*), (b) mixed extract phase which is a mixture of each extract phase recovered through formamide extraction run of $n = 1 - 5$, (c) raffinate phase (R_5) recovered through formamide extraction run of $n = 5$. Peak number; 1: naphthalene (*NA*), 2: quinoline (*QU*), 3: iso-quinoline (*IQU*), 4: indole (*IN*), 5: 2-methylnaphthalene (*2MNA*), 6: 1-methylnaphthalene (*1MNA*), 7: biphenyl (*BP*). Experimental conditions: $n = 1 - 5$, $y_{w,0} = 0.1$, $E_0/R_0 = 1$, $T = 303$ K and $t = 72$ h.

3. 결과 및 고찰

3.1. 정의식

n 번째 단($n = 1-5$)의 분배평형조작 후의 추잔유의 잔존율(RR_n), 성분 i 의 분배계수($m_{i,n}$) 및 수율($Y_{i,n}$)과 *2MNA*를 기준한 성분 i 의 선택도 ($\beta_{i,2MNA}$) $_n$ 는 다음의 식에 의해 각각 산출했다.

$$RR_n = R_n / R_0 \times 100\% \quad (1)$$

$$m_{i,n} = y_{i,n} / x_{i,n} \quad (2)$$

$$Y_{i,n} = (\sum_{n=1}^n E_n \times y_{i,n}) / (R_0 \times x_{i,0}) \times 100\% \quad (3)$$

$$(\beta_{i,2MNA})_n = m_{i,n} / m_{2MNA,n} \quad (4)$$

여기서 R 과 E 는 각각 분배평형 조작 후에 회수된 추잔상 및 추출상의 질량을, x 와 y 는 각각 분배평형 조작 후에 회수된 추잔상 및 추출상 중의 성분 i 의 질량분율을 나타낸다. 아래첨자 i 와 0는 성분과 분배평형 조작 전($t = 0$ s)을 각각 나타낸다.

3.2. 원료(*CMNO*)의 가스크로마토그램

본 연구에 사용된 원료의 가스크로마토그램과 표준시약을 사용하여 동정한 성분명을 Figure 2(a)에 나타냈다. 피크 번호 2, 3과 4가 본 연구의 농도 저감 목적성분인 3종류의 *NC* (*QU*, *IQU*, *IN*)를 각각 나타낸다. 본 연구에 사용된 *CMNO* 중에는 3종류의 *NC*와 3종류의 2환방향족 화합물(*BAC*; *NA*, *2MNA*, *1MNA*)이 각각 합계 약 15.23%와 56.92% 함유되어 있었다(각 성분의 조성은 Table 1 참조).

3.3. 평형도달시간의 확인

일정한 실험조건하에서의 액-액 접촉($t = 24, 48, 72, 96$ h)을 통해 회수한 추잔상과 추출상을 각각 분석하여 평형도달시간을 확인한 결과, $t = 72, 96$ h에서 회수된 2상의 조성이 거의 같음이 확인되었다. 따라서 본 연구에 사용된 계의 평형도달시간은 72 h 이내에 존재함을 알 수 있어 본 연구의 전체 분배평형 실험은 동일하게 $t = 72$ h 동안 액-액 접촉시켰다.

3.4. 분배평형

Figure 3(a)-(d)에 $n = 1$ 의 일정한 조건($E_0/R_0 = 1$, $T = 303$ K, $t = 72$ h)하에서 $y_{w,0}$ 가 RR_1 , $m_{i,1}$, $Y_{i,1}$ 와 $(\beta_{i,2MNA})_1$ 에 미치는 영향을 각각 나타냈다. (a)로부터, $y_{w,0}$ 의 증가는 추출상의 극성을 증가시켜 $y_{w,0}$ 가 증가함에 따라 RR_1 이 감소하는 경향을 나타냄을 알 수 있었다. $0 <$

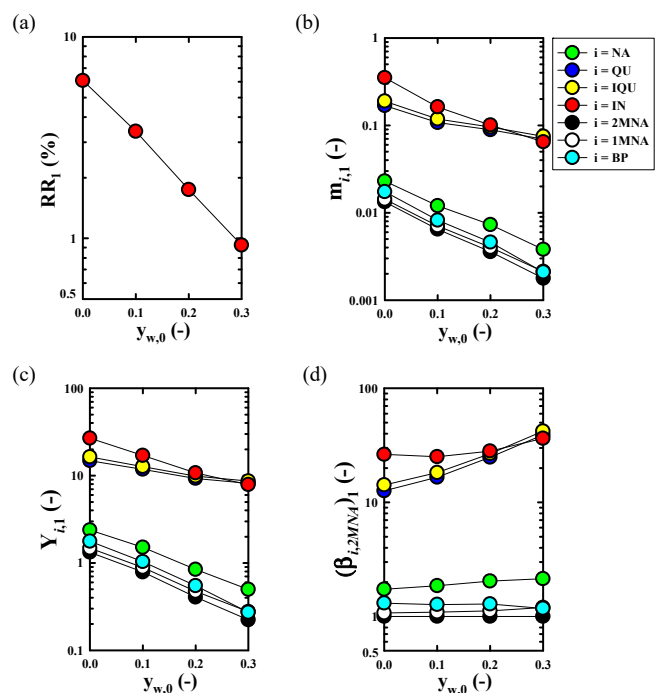


Figure 3. Effect of volume fraction of water to solvent in initial state ($y_{w,0}$) on (a) residual rate of raffinate oil (RR_1), (b) distribution coefficient ($m_{i,1}$), (c) yield ($Y_{i,1}$) and (d) selectivity in reference to 2-methylnaphthalene ($\beta_{i,2MNA}$) $_1$, obtained through equilibrium extraction run of $n = 1$, of component i . Experimental conditions: $n = 1$, $E_0/R_0 = 1$, $T = 303$ K and $t = 72$ h.

$y_{w,0} < 0.3$ 의 범위에서 RR_1 은 약 $0.93\% < RR_1 < 6.08\%$ 의 범위를 보였다. $y_{w,0}$ 의 증가는 추출상의 극성의 증가를 초래하여 $y_{w,0}$ 가 증가함에 따라 본 연구의 전체 성분에 대한 $m_{i,1}$ 와 $Y_{i,1}$ 를 급격히 감소시켰으며, 극성이 큰 3종류의 *NC*의 $m_{i,1}$ 와 $Y_{i,1}$ 는 *NC*에 비해 극성이 적은 3종류의 *BAC*와 *BP*의 그것에 비해 훨씬 큼을 (b)와 (c)로부터 알 수 있었다. (d)로부터, 상기 $y_{w,0}$ 에 따른 $m_{i,1}$ 의 경향으로부터 예측되었듯이 3종류의 *NC*의 $(\beta_{i,2MNA})_1$ 는 역으로 $y_{w,0}$ 가 증가함에 따라 증가하는 경향을 보였다. 각 성분의 극성을 반영하여 본 연구의 전체 성분의 $m_{i,1}$, $Y_{i,1}$ 와 $(\beta_{i,2MNA})_1$ 는 $IN > QU = IQU > NA > BP > 1MNA > 2MNA$ 의 순서를 나타냈다. $0 < y_{w,0} < 0.3$ 의 범위에서, *NC*의 $m_{i,1}$, $Y_{i,1}$ 와 $(\beta_{i,2MNA})_1$ 는 각각 $0.065 < m_{i,1} < 0.35$, $7.9\% < Y_{i,1} < 26.8\%$ 와 $12.6 < (\beta_{i,2MNA})_1$

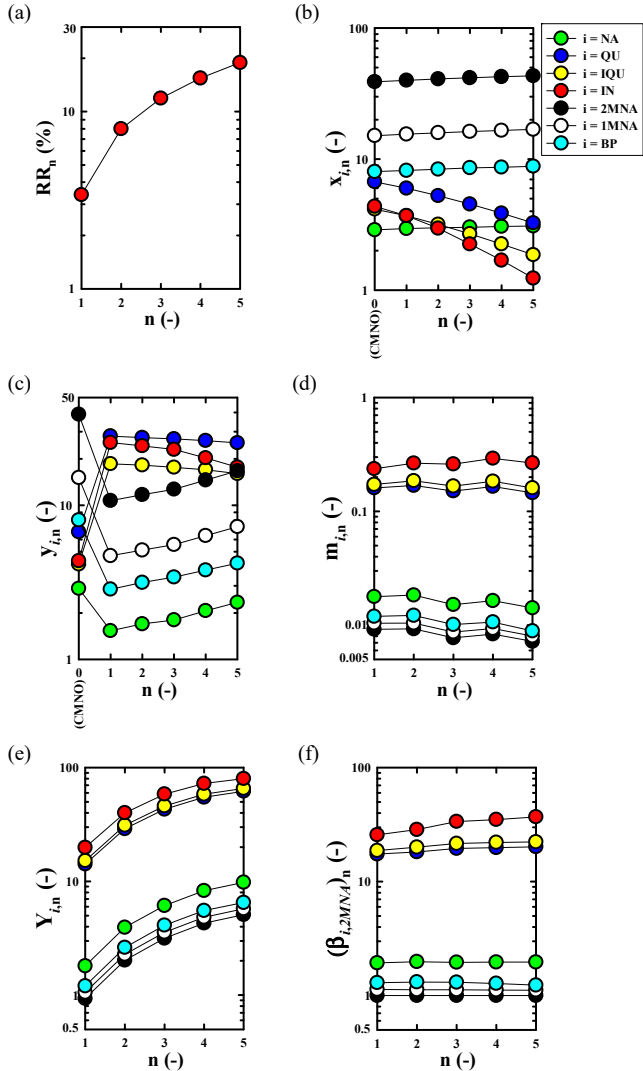


Figure 4. Effect of number of equilibrium extraction (n) on (a) residual rate of raffinate oil (RR_n), (b) mass fraction of component i in raffinate oil ($x_{i,n}$, solvent-free), (c) mass fraction of component i in extract oil ($y_{i,n}$, solvent-free), (d) distribution coefficient ($m_{i,n}$), (e) yield ($Y_{i,n}$) and (f) selectivity in reference to 2MNA ($\beta_{i,2MNA,n}$), of component i , obtained through equilibrium extraction run of n th stage. Experimental conditions: $n = 1 - 5$, $y_{w,0} = 0.1$, $E_0/R_0 = 1$, $T = 303$ K and $t = 72$ h.

< 42.1을 나타냈다. NC의 $y_{w,0}$ 에 따른 $m_{i,1}$ 와 $(\beta_{i,2MNA})_1$ 의 밸런스를 고려할 때, 포름아미드 수용액을 용매로 사용한 CMNO 중의 NC의 저감에는 $y_{w,0} = 0.1$ 인 추출이 NC의 저감효능 측면에서 유리할 것으로 판단되었다.

Figure 4(a)-(f)에 일정한 조건($y_{w,0} = 0.1$, $E_0/R_0 = 1$, $T = 303$ K, $t = 72$ h)하에서 회분 병류 5단 평형추출($n = 1 - 5$)의 n 가 RR_n , $x_{i,n}$, $y_{i,n}$, $m_{i,n}$, $Y_{i,n}$ 와 $(\beta_{i,2MNA})_n$ 에 미치는 영향을 각각 나타냈다. (b)와 (c)의 x축에 나타난 $n = 0$ 은 본 연구에서 원료로 사용된 CMNO를 의미한다. (a)로부터, 평형추출이 진행됨에 따라 RR_n 는 급격히 증가하여, $n = 1$ 에서의 RR_1 은 약 3.4%이었으나, $n = 5$ 에서는 약 18.9%의 높은 값을 보였다. (b)로부터, Figure 3에서 예측된 바와 같이 극성이 큰 NC가 추출상으로 추출되어, n 가 증가함에 따라 추잔상 중의 NC의 $x_{i,n}$ 이 급격히

감소함을 알 수 있다. 반면, NC를 제외한 나머지 4개 성분은 n 에 관계없이 $x_{i,n}$ 값이 거의 일정함을 보였다. 이는 CMNO에 포함된 3종류의 NC의 조성이 3종의 BAC와 BP에 비해 매우 낮아 평형추출이 진행됨에 따라 극성이 큰 NC이 다량 추출되어도 BAC와 BP의 조성변화에 크게 영향을 미치지 않기 때문이라 사료된다. $n = 5$ 에서 회수된 R_5 에는 본 연구의 저감 목적성분인 3종류의 NC의 조성이 원료인 CMNO에 비해 훨씬 낮았다. $n = 5$ 에서 QU, IQU와 IN의 $x_{i,n}$ 은 각각 약 3.26%, 1.86%와 1.23%를 보여 포름아미드 추출에 의한 CMNO 중의 NC의 저감효과를 확인할 수 있었다. 이로부터 다단 탐식 추출장치를 사용할 경우 NC가 거의 함유되지 않은 추잔유의 회수가 가능하여 CMNO의 품질향상이 기대된다. 또한 (c)로부터 n 가 진행됨에 따라 NC의 $y_{i,n}$ 은 약간의 감소 경향을 보였으나, 나머지 4가지 성분의 $y_{i,n}$ 은 역으로 증가하는 경향을 보였다. $n = 5$ 에서 QU, IQU와 IN의 $y_{i,n}$ 은 각각 약 25.4%, 16.1%와 17.6%를 보였다. NC의 $m_{i,n}$ 은 n 에 상관없이 거의 동일한 값을 나타내어 $m_{i,n}$ 에 대한 n 의 영향은 인정할 수 없음을 (d)로부터 알 수 있었다. (e)에 나타난 NC의 $Y_{i,n}$ 은 당연히게도 n 가 증가함에 따라 급격히 증가하여, $n = 5$ 에서의 QU, IQU와 IN의 $Y_{i,n}$, 즉 $Y_{QU,5}$, $Y_{IQU,5}$ 와 $Y_{IN,5}$ 는 각각 약 62%, 66%와 80%를 나타냈다. n 에 따른 $m_{2MNA,n}$ 의 감소로 인해 NC의 $(\beta_{i,2MNA})_n$ 은 n 가 증가함에 따라 약간 증가하는 경향을 보였다. (f)에 나타난 $n = 5$ 에서의 $(\beta_{QU,2MNA})_5$, $(\beta_{IQU,2MNA})_5$ 와 $(\beta_{IN,2MNA})_5$ 은 각각 약 20.2, 22.3과 37.0의 비교적 높은 값을 보였다.

Figure 2(b), (c)는 일정한 조건($y_{w,0} = 0.1$, $E_0/R_0 = 1$, $T = 303$ K, $t = 72$ h)하에서 $n = 1 - 5$ 의 포름아미드 추출을 통해 회수된 각 추출상을 혼합한 혼합 추출상($\sum_{n=1}^5 E_n$)과 $n = 5$ 에서 회수한 추잔상(R_5)의 가스크로마토그램을 각각 나타낸다. (b)의 혼합 추출상의 가스크로마토그램을 (a)의 원료(CMNO)의 그것과 비교했을 때, 포름아미드 추출에 의해 3종류의 NC가 다량 추출되어 각 NC 성분의 피크 높이가 매우 증가했지만, 3종류의 BAC와 BP의 피크 높이는 상당히 감소하였음을 알 수 있었다. (c)의 R_5 의 가스크로마토그램은 NC가 다량 추출되어짐에 따라 추잔상 중의 각 NC 성분의 피크 높이가 매우 감소하여 CMNO의 가스크로마토그램과 매우 다름을 보였다. 이로부터 포름아미드 추출에 의한 CMNO 중에 함유된 NC의 저감효과를 재차 확인할 수 있었다.

CMNO 중에 함유된 NC의 저감에 미치는 $y_{w,0}$ 와 n 의 영향을 검토한 본 연구의 실험적 결과로부터, 본 연구의 포름아미드 수용액을 사용한 추출법은 CMNO 중에 함유되어 있는 NC의 저감을 위한 하나의 유용한 방법으로 기대되었다.

4. 결 론

지금까지 CMNO 중에 함유된 NC의 저감법으로서 산과 염기 물질을 사용한 반응추출법이 적용되고 있으나, 오늘날에는 반응추출법을 대체할 공정이 간단하고 효율적인 NC 저감법의 개발이 요구되고 있다. 이러한 관점에서, 본 연구는 CMNO를 원료로, 포름아미드 수용액을 용매로 사용한 액-액 평형추출에 의해 CMNO에 함유된 NC의 저감을 실험적으로 수행하였다. 본 연구에서 적용한 포름아미드 추출법은 CMNO 중에 함유된 NC의 높은 저감효능을 보여 지금까지 적용되고 있는 반응추출법의 대안으로 기대되었다.

감 사

본 논문은 2022년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업입(No. 2020R111A3061492).

References

1. K. Sakanishi, H. Obata, I. Mochida, and T. Sakaki, Removal and recovery of quinoline bases from methylnaphthalene oil in a semi-continuous supercritical CO₂ separation apparatus with a fixed bed of supported aluminum sulfate, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **34**, 4118-4124 (1995).
2. H. C. Kang and S. J. Kim, Experimental study on reduction of nitrogen-containing compounds contained in crude methylnaphthalene oil by solvent extraction (I): Reduction of nitrogen-containing compounds contained in model crude methylnaphthalene oil of 5 components system, *Appl. Chem. Eng.*, **33**, 431-435 (2022).
3. S. J. Kim, Upgrading of wash oil through reduction of nitrogen-containing compounds, *Processes*, **9**, 1869-1877 (2021).
4. K. Ukegawa, A. Matsumura, Y. Koderu, T. Kondo, T. Nakayama, H. Tanabe, S. Yoshida, and Y. Mito, Solvent extraction of nitrogen compounds from a coal tar fraction. (Part 1). Effect of extraction conditions on the extraction rate and the selectivities of nitrogen compounds. *J. Jpn. Pet. Inst.*, **33**, 250-254 (1990).
5. R. Egashira and M. Nagai, Separation of nitrogen heterocyclic compounds contained in coal tar absorption oil fraction by solvent extraction, *J. Jpn. Pet. Inst.*, **43**, 339-345 (2000).
6. R. Egashira and C. Salim, Solvent extraction of nitrogen heterocyclic compounds contained in coal tar absorption oil fraction - Improvement of separation performance by addition of aluminum chloride to solvent-, *J. Jpn. Pet. Inst.*, **44**, 178-182 (2001).
7. S. J. Kim, and Y. J. Chun, Separation of nitrogen heterocyclic compounds from model coal tar fraction by solvent extraction, *Sep. Sci. Technol.*, **40**, 2095-2109 (2005).
8. S. J. Kim, H. C. Kang, Y. S. Kim, and H. J. Jeong, Liquid membrane permeation of nitrogen heterocyclic compounds contained in model coal tar fraction, *Bull. Korean Chem. Soc.*, **31**, 1143-1148 (2010).
9. S. J. Kim, Y. J. Chun, and H. J. Jeong, Separation and recovery of indole from model coal tar fraction by batch cocurrent 5 stages

equilibrium extraction, *J. Korean Ind. Eng. Chem.*, **18**, 168-172 (2007).

10. K. Ukegawa, A. Matsumura, Y. Koderu, T. Kondo, T. Nakayama, H. Tanabe, S. Yoshida, and Y. Mito, Solvent extraction of nitrogen compounds from a coal tar fraction (Part I) Effect of extraction conditions on the extraction rate and the selectivities of nitrogen compounds, *J. Jpn. Pet. Inst.*, **33**, 250-254 (1990).
11. Y. Koderu, K. Ukegawa, Y. Mito, M. Komoto, E. Ishikawa, and T. Nagayama, Solvent extraction of nitrogen compounds from coal liquids, *Fuel*, **70**, 765-769 (1991).
12. D. Xu, M. Zhang, J. Gao, L. Zhang, S. Zhou, and Y. Wang, Separation of heterocyclic nitrogen compounds from coal tar fractions via ionic liquids: COSMO-SAC screening and experimental study, *Chem. Eng. Commun.*, **206**, 1199-1217 (2019).
13. T. Jiao, X. Zhuang, H. He, L. Zhao, C. Li, H. Chen, and S. Zhang, An ionic liquid extraction process for the separation of indole from wash oil, *Green Chem.*, **17**, 3783-3790 (2015).
14. L. Zhang, D. Xu, J. Gao, S. Zhou, L. Zhao, and Z. Zhang, Extraction and mechanism for the separation of neutral N-compounds from coal tar by ionic liquids, *Fuel*, **194**, 27-35 (2017).
15. K. Sakanishi, H. Obata, I. Mochida, and T. Sakaki, Capture and recovery of indole from methylnaphthalene oil in a continuous supercritical CO₂ extraction apparatus over a fixed bed of anion-exchange resin, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **35**, 335-337 (1996).
16. I. Uemasu, Effect of methanol-water mixture solvent on concentration of indole in coal tar using β -cyclodextrin as complexing agent, *J. Jpn. Pet. Inst.*, **34**, 371-374 (1991).
17. I. Uemasu and T. Nakayama, Concentration of indole in coal tar using α -cyclodextrin as the host for inclusion complexation, *J. Inclusion Phenom. Molec. Recogn. Chem.*, **7**, 327-331 (1989).
18. I. Mochida, Y. Q. Fei, and K. Sakanishi, Capture and recovery of basic nitrogen species in coal tar pitch, using nickel sulfate as adsorbent, *Chem. Lett.*, 515-518 (1990).

Authors

Ho-Cheol Kang; Ph.D., Environmental Resources Research Center, Korea Research Institute of Chemical Technology, Daejeon 34114, Korea; hckang@kriect.re.kr

Su Jin Kim; Ph.D., Professor, Department of Chemical Engineering, Chungwoon University, Incheon 22100, Korea; sujkim@chungwoon.ac.kr