

삼상 슬러리 이중기포탑내 슬러리 순환류의 축방향 혼합특성에 관한 연구

박찬진** · 오광중* · 도동섭

고려대학교 공과대학 화학공학과

*부산대학교 공과대학 환경공학과

**인천전문대학 환경관리과

(1990년 1월 29일 접수, 1990년 9월 15일 채택)

On the Axial Mixing Characteristics of Circulating Slurry- Suspension in the Three Phase Slurry Bubble Column with a Draft Tube

C.J. Park**, K.J. Oh* and D.S. Doh

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

**Department of Environmental Engineering, College of Engineering, Pusan National University, Pusan, Korea*

***Department of Environmental Technology, Inchon Junior College, Inchon, Korea*

(Received 29 January 1990; accepted 15 September 1990)

요 약

우수한 혼합효과를 지닌 이중기포탑내 현탁액이 기포교반에 의하여 순환될 때의 축방향 혼합특성을 규명하기 위하여 평균입경이 100 μm 이하인 미세한 고체입자가 첨가된 현탁액에 대하여 실험을 행하였다. 실험결과 축방향 확산계수는 공탑기체속도와 입자농도의 증가에 따라 증가하였고, 실험범위 전반에 걸쳐서 순수용액의 경우보다 크게 나타났지만 입자크기에 대하여서는 뚜렷한 경향을 나타내지 않았다.

이를 설명하기 위하여 에너지 수지로부터 산출한 탑내 액상의 단위 질량당 에너지 소멸속도를 Kolmogoroff의 난류등방성이론과 조합하여 구한 축방향 확산계수의 계산값과 실험값을 비교한 결과 실험범위내의 전반적인 경향을 잘 설명할 수 있었다.

Abstract—Axial mixing characteristics in the circulating slurry suspension by bubble-agitation in a bubble column with a draft tube were studied in a 8.90 cm I.D. \times 150 cm high acryl column.

Axial dispersion coefficient increased with the rise of superficial gas velocity and the concentration of particles and was larger than that without the addition of particles. But tendency with the change of particle size was not clear. To explain these phenomena, the energy dissipation rate estimated from the energy balance was combined with Kolmogoroff's isotropic turbulence theory to predict the theoretical axial dispersion coefficient. This theoretical equation could explain the tendency of the experimental data of axial dispersion coefficient very well.

1. 서 론

삼상 슬러리 반응기(three phase slurry reactor)는

일반적으로 기체가 분산상을, 그리고 액체가 입자를 포함한 연속상을 형성하며 다상간의 혼합효과가 매우 좋고 열전달 및 물질전달속도가 매우 높다는 장점 때

문에 광범위한 응용성을 지니고 있어서 지금까지 많은 연구가 수행되어 오고 있다. 특히 최근에는 지구상의 환경오염이 매우 심각한 문제로 대두되면서 삼상 반응기의 환경공학적인 응용기술이 큰 관심의 대상이 되고 있다. 그 예로써 대기오염방지를 위한 석유잔류분의 탈황공정[1, 2]과 석탄의 액화에 의한 탈황공정[3, 4], 수질오염방지를 위한 생화학적 폐수처리공정 등[5-8]을 들 수 있다. 이와 같이 삼상 반응기가 특정한 공정을 수행할 때에 반응생성물의 수율이나 총괄 반응속도와 같은 반응기의 이력을 해석하기 위해서는 기포탑내 삼상류의 축방향 혼합특성이 매우 중요한 변수로 대두된다[3, 9, 10].

그러나 아직까지 삼상류의 혼합특성에 관한 체계적인 이론적 연구는 그 중요성에도 불구하고 아직 미비한 실정이며 특히 기체교반만으로도 유동화가 가능한 미세한 입자가 존재하는 삼상류의 혼합특성에 관한 연구는 거의 이루어지지 않은 실정이다. 본 연구에서는 비교적 작은 입자가 액상에서 기포의 교반에 의하여 유동화되는 경우를 실험조건으로 하여 삼상류에서의 혼합특성을 예견할 수 있는 이론적 배경을 제공하고 이에 의거하여 삼상반응기의 설계에 매우 중요한 축방향 혼합효율을 예측할 수 있게 하고자 한다.

2. 이 론

2-1. 축방향 확산 모델에 의한 혼합특성의 고찰

일반적으로 기포탑내 순환유체의 혼합특성은 축방향 확산계수, D_L 로 설명되는데 이에 대한 고찰을 위하여 축방향 확산 모델(Axial Dispersion Model)이 자주 이용되며[11-13], 이 모델은 다상간의 축방향 혼합을 매우 적절히 나타낸다[12, 14, 15]. 특히 본 실험계와 같이 유체가 이중기포탑내에서 일정한 경로를 통하여 계속적인 순환을 수행할 때에 유체의 순환은 다음식과 같이 표현된다.

$$C_r = \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{Pe}{4\pi\tau} \right)^{1/2} \cdot \exp \left[- \frac{(d/L_c + n - \tau)^2}{4\tau} \cdot Pe \right] \quad (1)$$

여기에서 C_r 은 순환유체내 추적자의 상대농도, τ 는 상대시간, d 는 추적자 주입부와 검출부간의 거리, L_c 는 평균순환경로 그리고 n 은 유체의 순환횟수이다. 또한 Pe 는 Peclet수으로써 $U_L \cdot L/D_L$ 로 표현되며 여기에서 순환유체의 유속, U_L 과 유체의 평균순환길이, L_c 를 계산하면 축방향 확산계수, D_L 을 다음과 같이 산출해낼 수 있다.

$$D_L = U_L \cdot L_c / Pe \quad (2)$$

2-2. 축방향 확산계수의 이론적 산출

기포탑내의 유체혼합은 연속상인 액상을 통하여 상승하는 기포에 의한 유체의 안정된 순환에 기인하며 이 때에 상승기포는 유체에 큰 에디를 형성시키면서 에너지를 전달하고 생성된 큰 에디는 다시 작은 크기의 에디로 전환되며 궁극적으로는 전단응력에 의하여 소멸된다. 이 때에 유도되는 액상의 축방향 혼합효과는 축방향 확산계수, D_L 로 표현되는데 기포탑내 순환유체의 기포교반에 의한 혼합효과를 설명하는데에는 일반적으로 isotropic turbulence 모델[16, 17]이 이용되며 이를 토대로 하여 축방향 확산계수는 다음과 같은 상관관계식으로 표현된다[18].

$$D_L = k \cdot L^{4/3} \cdot \epsilon^{1/3} \quad (3)$$

여기에서 L 은 주어진 계의 length parameter이며 ϵ 는 기포탑내 순환유체의 단위 질량당 에너지 소멸속도, 그리고 k 는 주어진 계에 따른 실험상수이다. 기포탑의 경우 에디의 최대크기를 결정하는 것은 탑경이며[19], 이에 따라 (1)식의 length parameter는 기포가 상승하는 탑경이 되고, 유체의 단위질량당 에너지 소멸속도, ϵ 는 다음과 같이 표시된다[20].

$$\epsilon = \frac{1}{m_L} \left\{ P_h \cdot Q_G \cdot \ln \left(\frac{P_h + \rho_{SL} g H_{SL}}{P_h} \right) - \frac{1}{2} \rho_{SL} L_{SLi}^3 A_i \cdot \left[\frac{f_{ob}}{(1 - \epsilon_{co})^2} \left(\frac{A_i}{A_o} \right)^2 + 4h_D \left(\frac{f_i}{d_i} + \left(\frac{A_i}{A_o} \right)^2 \frac{f_o}{d_e} \right) \right] \right\} \quad (4)$$

여기에서 P_h 는 탑상부의 압력이고 Q_G 는 기체의 부피 유속, H_{SL} 은 슬러리 유동상의 높이 그리고 ρ_{SL} 은 슬러리의 평균밀도이며 m_L , U_{SLi} , h_D , d_i , d_e 는 각각 순환유체의 단위질량, 현탁액의 공탑속도, 내관의 수직길이 그리고 내관의 직경 및 순환관의 상당직경이다.

3. 실험

3-1. 실험장치 및 방법

본 연구에서 내부순환식 이중기포탑에서의 기포교반에 의한 현탁액의 축방향 혼합특성을 해석하기 위하여 사용한 실험장치는 순환특성 보문[21]과 동일하다. 이중기포탑은 주탑이 내경 8.90 cm, 길이 150 cm 이고 내관은 내경 5.63 cm, 길이 90 cm인 아크릴수지로 제작하였다. 기포탑내 현탁액의 RTD 측정을 위한 conductivity probe는 가로 세로가 각각 7 mm인 정사각형 백금판 2장을 7 mm 간격으로 평행하게 두었고 백금

Table 1. Experimental conditions

Variables	Condition of operations
Mean diameter of glass beads (μm)	47.0, 69.0, 91.0
Slurry concentration (vol %)	2.0, 4.0, 6.0
Superficial gas velocity (cm/s)	1.60, 2.10, 3.10 4.20, 5.20

전극은 표면이 검게 되도록 platinization시킨 후 분산판에서 높이 8 cm 되는 지점에 순환관 측으로 부착하여 추적자를 검지하도록 하였다. 그리하여 각 실험조건에 대하여 추적자를 분산판으로부터 84 cm 상부지점의 순환관에 설치된 syringe를 이용하여 1회에 5 cc를 가능한 한 impulse input 형태로 주입하고 conductivity probe로 conductivity를 읽어 들여 conductivity meter에 연결된 recorder를 이용하여 시간에 대한 추적자의 농도 변화를 기록하였고 이 곡선에서 현탁액내 추적자의 확산 정도를 산출하였다. 이 때 conductivity 값과 농도값은 미리 calibration하였고 실험범위 내에서 두 측정치간에 선형관계가 성립됨을 확인하였다. 추적자로는 3M의 sodium chloride 용액을 이용하였고 이 같은 추적자의 존재가 탑내 기포의 거동에 거의 영향을 주지 않음을 확인하였다. 한편 추적자를 주입하여 얻은 RTD곡선을 Newton-Raphson의 iteration method에 의하여 (1)식과 비교분석하여 Peclet수를 구한 다음 (2)식에 의하여 축방향 확산계수를 산출하였다.

3-2. 실험재료 및 실험변수 범위

실험에 사용된 시료는 Union 및 Ferro사의 glass beads이며 평균 밀도는 2.450g/cm^3 이다. 실험변수의 범위는 Table 1과 같다.

4. 결과 및 고찰

기포탑이 반응기로 이용될 때 탑내에서 기포교반에 의하여 유동화되는 유체의 혼합은 반응기의 설계에 매우 중요한 변수이다. 특히 슬러리상에서의 혼합은 벌크슬러리 흐름과 난류 및 분자확산에 의하여 이루어 지지만 혼합속도의 유한성으로 인하여 물질전달의 기 전력, 즉 액상의 용존성분의 농도는 탑내의 위치와 시간에 따라 달라지게 되는데 축방향 혼합은 순환유체에 존재하는 농도구배를 감소시키는 역할을 수행하여 물

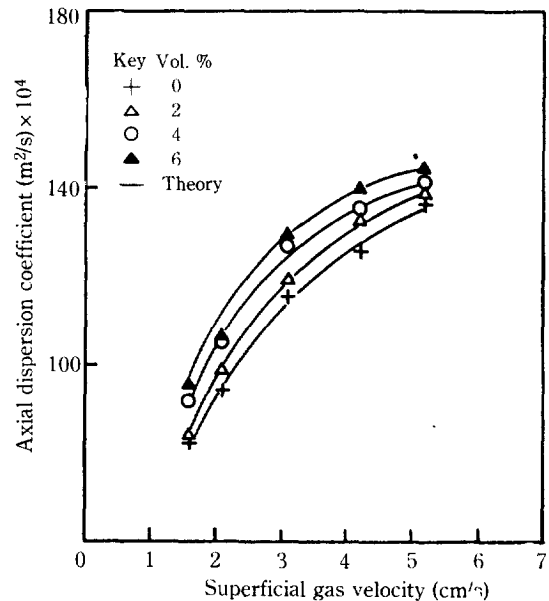


Fig. 1. Effect of superficial gas velocity on the axial dispersion coefficient ($d_p=91.0\mu\text{m}$).

질전달속도 증진에 큰 영향을 주게 된다. 일반적으로 축방향 확산계수는 상승기포의 크기와 기포후면의 wake크기 및 탑경크기의 증가에 따라 증가하며[22], 이는 주로 상승기포후면 wake내의 에너지소멸에 기인한다. 한편 본 실험에서 기포탑내에 형성되는 흐름영역은 순환특성 연구보문[21]과 동일하다.

4-1. 기체속도의 영향

공탑기체속도가 축방향 확산계수에 미치는 영향을 입자농도를 매개변수로 하여 나타낸 그림이 Fig. 1이다. 그림에서 볼 수 있듯이 축방향 확산계수는 모든 입자농도에 대하여 공탑기체속도의 증가에 따라 전반적으로 증가하며 이는 공탑기체속도의 증가에 따라 탑내 유동층의 단위면적 및 단위시간당 기포생성속도가 증가하고 이에 따라 액상을 통하여 상승하는 기포가 자신이 지닌 운동량을 더욱 많이 기포후면의 액상 wake의 형성에 사용하기 때문이다. 이 때에 생성된 wake는 난류성 에너지를 촉진시키고 이에 따라 상승기포에서 슬러리 유동상으로의 운동량 전달속도가 증가하게 된다. 이같은 경향은 (4)식에 의하여 산출된 유체 단위 질량당 에너지 소멸속도가 잘 설명하여 주고 있다. 한편 실험범위내에서 축방향 확산계수의 공탑기체속도에 대한 의존도는 $D_L \propto U_G^{0.398}$ 로 나타났으며 이같은 경향은 다른 연구자들[22, 23]의 결과와 잘 일치되고 있다.

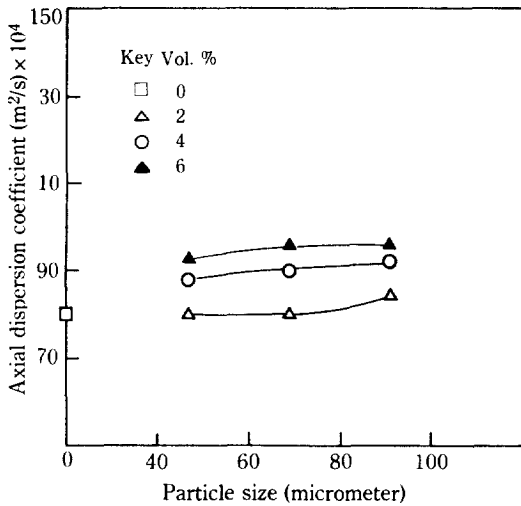


Fig. 2. Effect of particle size on the axial dispersion coefficient ($U_{go}=1.60$ cm/s).

한편 기체유속의 증가에 따른 각 흐름영역에서의 축방향 확산계수의 증가율은 bubbly 흐름영역에서는 큰 값을 보이나 흐름영역이 transition에서 slug 흐름영역으로 이동할수록 둔화되며 이는 전보문[20]에서 발표하였듯이 높은 기체유속에서는 흐름영역의 전이에 따라 기포의 상승속도가 증가하여 미처 기포의 운동량이 액상으로 모두 전달되지 못하고 기포가 탑상부로 빠져 나가지 때문이다.

4-2. 입자크기의 영향

고체입자의 크기가 축방향 확산계수에 미치는 영향을 입자농도를 매개변수로 하여 나타낸 그림이 Fig. 2이다. 그림에서 알 수 있듯이 축방향 확산계수는 입자크기가 증가함에 따라 약간 증가하긴 하나 실험범위 전반에 걸쳐서 그다지 뚜렷한 경향을 나타내지 않는다. 이것은 고체입자의 크기가 증가할수록 동일한 조건에서 기포의 합체가 야기되어 기포의 크기가 증가하고 이에 따라 전술한 바와 같이 축방향 확산계수가 증가할 것으로 예상되나 실제로는 입자의 크기가 증가할수록 입자의 종말속도도 증가하게 되어 특히 bubbly 흐름영역에서는 축방향에 따른 입자의 불균일도에 의하여 탑하부에 입자가 쌓이게 되고 이것이 기포와 액체의 상향류에 상당한 저항요소로 작용하기 때문이다. 그리하여 작은 입자에 비하여 큰 입자가 액체순환류의 slip 속도를 더욱 감소시키어 이것이 에너지 소멸속도의 감소요인으로 작용하며 이같은 두 가지 경향의 상쇄효과(offset effect)에 의하여 축방향 확산계수는 입자크기에 대하여

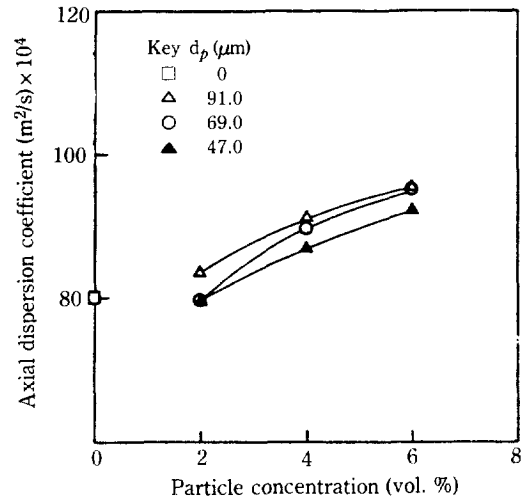


Fig. 3. Effect of particle concentration on the axial dispersion coefficient ($U_{go}=1.60$ cm/s).

뚜렷한 경향을 나타내지 않는 것으로 사료된다. 이러한 경향은 전보문[21]에서 발표한 순환특성의 결과와 일치하고 있다.

4-3. 입자 농도의 영향

고체입자의 농도가 축방향 확산계수에 미치는 영향을 입자의 크기를 매개변수로 하여 나타낸 그림이 Fig. 3이다. 그림에서 알 수 있듯이 축방향 확산계수는 입자의 농도가 증가함에 따라 입자크기전반에 걸쳐서 뚜렷이 증가하며 이같은 경향은 전술한 바와 같이 동일한 조건에서 고체농도의 증가에 따라 기포의 합체가 증가하며 이에 따라 기포크기가 커지고 기포후면의 wake의 크기도 증가하여 유체단위 질량당 에너지 소멸속도를 증가시키기 때문이다. 여기에서 기포경의 증가가 보다 빠른 기포의 상승속도를 초래하고 이에 따라 더욱 강렬한 액상혼합이 유도됨을 알 수 있다. 실험영역내에서 축방향 확산계수에 대한 각 실험변수의 영향을 다음 식으로 나타낼 수 있었다.

$$D_L = 87.94 U_{go}^{0.398} d_p^{0.046} (1 - \phi)^{-1.832} \quad (5)$$

이 때의 상관계수는 0.983이고 표준편차는 0.0348이다. 또한 전술한 (3)식을 실험 data와 비교분석한 결과 다음과 같은 식을 본 실험범위내에서의 축방향 확산계수를 나타내는 식으로 제시할 수 있었다. 이 때의 상관계수는 0.980이었다.

$$D_L = 0.868 D_T^{1/3} \epsilon^{1/3} \quad (6)$$

5. 결 론

이중기포탑내에서 순수한 용액에 고체입자를 첨가하였을 때 첨가입자가 기포의 교반에 의한 순환액체의 축방향 확산계수에 미치는 영향을 연구 검토하기 위하여 탑내에 유입되는 공탑기체속도를 1.60-5.20 cm/s, 고체입자의 크기를 평균입경 47.0-91.0 μm 로, 그리고 입자의 농도를 2.0-6.0 vol%로 변화시켜가며 실험을 행하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 순수한 액체에 고체입자를 첨가하였을 때 슬러리 현탁액의 축방향 확산계수는 공탑기체속도의 증가에 따라 증가하였으며 전반적으로 순수한 액체보다 큰 값을 나타내었다.

2. 또한 슬러리현탁액의 축방향 확산계수는 전반적으로 고체입자의 농도가 증가할수록 증가하였지만 고체입자의 크기에 대해서는 뚜렷한 경향을 나타내지 못하였다.

3. 이와 같은 현탁액의 기포교반에 의한 축방향 혼합특성을 에너지수지로부터 유도한 에너지 소멸속도로써 설명할 수 있었다.

NOMENCLATURE

- A_b : free area for liquid flow between riser and downcomer [m^2]
 A_o : cross-sectional area of downcomer [m^2]
 A_i : cross-sectional area of riser [m^2]
 D_L : axial dispersion coefficient in liquid phase [m^2/s]
 d_e : equivalent diameter of the annulus [m]
 d_i : diameter of draft tube [m]
 d_o : diameter of outer tube [m]
 d_p : mean particle diameter [m]
 f_{Db} : Darcy friction factor at bottom section, $11.40 (A_o/A_b)^{0.790}$ [-]
 f_i : Fanning friction factor in the riser section, $0.079 [\rho_{SL} U_{SL} d_i / (1 - \epsilon_{Gi}) \mu_{SL}]^{-0.25}$ [-]
 f_o : Fanning friction factor in the downcomer section, $0.085 [\rho_{SL} U_{SL} d_o / (1 - \epsilon_{Go}) \mu_{SL}]^{-0.25}$ [-]
 g : gravitational acceleration [m^2/s]
 h_D : gas-liquid dispersion height [m]
 H_{SL} : height of slurry in bubble column [m]
 k : empirical constant
 L : length parameter for given system [m]
 m_L : unit mass of liquid [kg]
 P_h : pressure at head space of bubble column [cm H_2O]
 Q_G : volumetric gas flow rate [m^3/s]

U_{Go} : superficial gas velocity based on the cross-sectional area of outer column [m/s]

U_{SL} : superficial suspension velocity in riser [m/s]

Greek Letters

- ρ_{SL} : density of slurry [kg/m^3]
 ϵ : rate of energy dissipation by turbulence per unit mass of liquid [m^2/s^3]
 ϵ_{Gi} : gas holdup in riser [-]
 ϵ_{Go} : gas holdup in downcomer [-]
 ϕ : volume fraction of solid [-]

REFERENCES

- Karolyi, J., Zulai, A., BIRTHLER, R. and Spitzner, H.: *Int. Chem. Eng.*, **3**, 597 (1963).
- Shah, Y.T.: "Gas-Liquid-Solid Reactor Design", McGraw-Hill, N.Y., 1979.
- Kim, S.D. and Kim, C.H.: *J. Chem. Eng. Japan*, **16**, 172 (1983).
- Joshi, J.B., Shah, Y.T., Albal, R.S. and Ruether, J.A.: "Oxydesulfurization of Coal", Report to Ind. Eng. Chem. Fund. (1981).
- Leistner, G., Müller, G., Sell, G. and Bauer, A.: *Chem. Ing. Tech.*, **51**, 288 (1979).
- Zlokarnik, M.: *Chem. Eng. Sci.*, **34**, 1265 (1969).
- Hirata, A., Hosaka, Y. and Umezawa, H.: World Congress III of Chem. Eng., Tokyo, 1986.
- Fan, L.S., Fujie, K., Long, T.R. and Tang, W.T.: World Congress III of Chem. Eng., Tokyo, 1986.
- Kelkar, B.G. and Shah, Y.T.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **23**, 308 (1984).
- Kojima, H., Anjyo, H. and Mochizuki, Y.: *J. Chem. Eng. Japan*, **3**, 19 (1986).
- Bischoff, K.B. and Levenspiel, O.: *Chem. Eng. Sci.*, **17**, 257 (1962).
- Michelsen, M.L. and Ostergaard, K.: *Chem. Eng. J.*, **1**, 37 (1970).
- Levenspiel, O.: "Chemical Reaction Engineering", Wiley, N.Y., 1972.
- Eissa, S.H. and Schügerl, K.: *Chem. Eng. Sci.*, **30**, 1251 (1975).
- Kara, S., Kelkar, B.G., Shah, Y.T. and Carr, N.L.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **21**, 580 (1982).
- Kolmogoroff, A.N.: *C.R. Akad. Nauk U.S.S.R.*, **32**, 16 (1941).
- Hinze, J.O.: "Turbulence", McGraw-Hill, N.Y., 1959.
- Baird, M.H.I. and Rice, R.G.: *The Chem. Eng. J.*, **9**, 171 (1975).
- Walter, J.F. and Blanch, H.W.: *Chem. Eng. Com-*

- mun.*, **19**, 243 (1983).
20. Park, C.J. and Doh, D.S.: *HWAHAK KONGHAK*, **27**, 845 (1989).
21. Park, C.J. and Doh, D.S.: *HWAHAK KONGHAK*, **27**, 459 (1989).
22. Shah, Y.T., Kelkar, B.G., Godbole, S.P. and Deckwer, W.D.: *AIChE J.*, **28**, 353 (1982).
23. Kelkar, B.G., Shah, Y.T. and Carr, N.L.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **23**, 308 (1984).