

유동층연소소에서 granulation에 의한 미세입자의 연소효율 향상

차왕석 · 김성현 · 홍성창* · 오광중** · 도동섭

고려대학교 공과대학 화학공학과
*경기대학교 공과대학 환경공학과
**부산대학교 공과대학 환경공학과
(1993년 4월 24일 접수, 1993년 9월 6일 채택)

Improvement of Combustion Efficiency of Fine Particles by the Granulation in a Fluidized Bed Combustor

Wang Suk Cha, Sung Hyun Kim, Sung Chang Hong*,
Kwang Joong Oh and Dong-Sup Doh

Dept. of Chem. Eng., Korea Univ., Seoul 136-701, Korea
*Dept. of Environ. Eng., Kyonggi Univ., Suwon 440-270, Korea
**Dept. of Environ. Eng., Pusan Nat'l Univ., Pusan 609-735, Korea
(Received 24 April 1993; accepted 6 September 1993)

요 약

내경 0.109 m, 높이 1.8 m인 유동층연소소에서 미세입자가 포함된 다입자계의 granulation 실험을 수행하였다. 미세입자의 집괴입상화와 유동화특성은 압력요동, 연소효율, 온도분포 및 평균입자크기로 해석하였으며 granulation mechanism은 SEM 분석을 통해 조사하였다. 염과 석탄의 혼합연소시 비유동화가 일어나며 이러한 비유동화현상에 대한 정보를 압력요동신호와 온도분포로부터 알 수 있었다. 유출부에서의 연소효율은 미세입자의 집괴에 의해 3-4배 증가하였고 층내의 granulation mechanism은 agglomeration model임을 알 수 있었다.

Abstract—Granulation experiment was carried out in a 0.109 m ID, 1.8 m height fluidized bed combustor of the multi-sized particles. Granulation of fine coal particles and fluidizing characteristics were investigated by the pressure fluctuations, combustion efficiency, temperature profile and mean particle diameter. Granulation mechanism was studied by the SEM analysis. Defluidization occurred in the mixed firing of salt and anthracite coal and the information on the defluidization phenomena was interpreted with the pressure fluctuation signals and temperature profile. It was found that the combustion efficiency in the elutriated stream was increased 3-4 times by the granulation of fine coal particles and that the granulation mechanism was agglomeration model.

1. 서 론

다입자계 시료가 연속적으로 주입되는 경우 종말속도가 기체의 유속보다 작은 미세입자는 연소될 수 있는

탄소의 함량이 높음에도 불구하고 층내에서의 체류시간이 짧고 freeboard에서의 낮은 온도로 인해 연소가 충분히 이루어지지 않아 많은 열량손실을 가져오며[1] 또한 환경오염문제도 야기시킨다.

이러한 문제를 해결하기 위해 많은 연구가 수행되었는데 그 중의 하나가 무기염공업, 비료공업, 식품공업, 제약공업에서 많이 사용되는 granulation 방법이다. 유동층에서의 granulation은 유동화가 된 후 보통 액상인 결합액을 첨가함으로써 시작되는데 이 방법은 입자크기를 제어하고 건조과정이 동시에 일어나므로 점점 중요시 여겨지는 새로운 방법이다[2]. 그러나 유동층연소로에 주입되는 결합액의 양이 많아지면 유동화되는 입자의 표면에 결합액이 용착되어 고체입자들은 높은 점착성을 갖게 되고 최소유동화속도 이상에서 조업하여도 유동층의 유동화 상태가 불안정하여 지속적인 조업이 불가능하다[3].

유동층에서 granulation시 결합액으로 사용할 수 있는 물질은 NaCl, KCl, KI 등을 비롯하여 다양한 종류가 있는데[4] 결합액에 따라 조업조건, 효율, 생성물의 성상들이 크게 변하므로 이의 적절한 선정은 대단히 중요하다.

본 실험에서는 NaCl을 선택하였는데 NaCl은 경제적이며 상온에서 다루기 쉬운 결정상태로 있다가 유동층연소로의 조업온도인 900°C에서 액상으로 바뀌므로 이의 표면장력을 이용하여 석탄미세입자를 집괴입상화하고자 하였다[5]. 따라서 NaCl을 결합액으로 사용하여 미세입자를 집괴입상화시켜 미세입자의 층내 체류시간을 증가시켜서 연소효율을 향상시키고 분석을 통해 NaCl에 의한 집괴입상화가 어떤 mechanism에 의해 형성되는지 조사하고자 하였다. 또한 연소효율증가와 고체입자의 점착성 때문에 발생하는 비유동화현상을 압력요동신호와 온도분포로서 예측하고자 하였다.

2. 실험장치 및 방법

2-1. 실험장치

본 실험에서 사용한 실험장치는 Fig. 1과 같으며 유동층은 직경 0.109 m, 높이 1.8 m의 원통형 stainless steel을 사용하였으며 전기로 가열하였다.

유동층에 주입되는 공기는 300°C로 예열하였으며 기체 분산판은 stainless steel을 사용하였으며 개공비는 1.75%이다.

유출되는 입자들을 포집하기 위하여 유동층부 상단에 cyclone을 설치하였고 석탄시료를 일정하게 주입하기 위하여 screw feeder를 사용하였다. 층내의 압력현상은 압력전달기로 측정하였으며 층하부에서 층상부까지 열전대를 설치하여 온도변화를 측정하였다.

2-2. 실험방법

유동층연소로가 충분히 정상상태에 도달한 후인 200

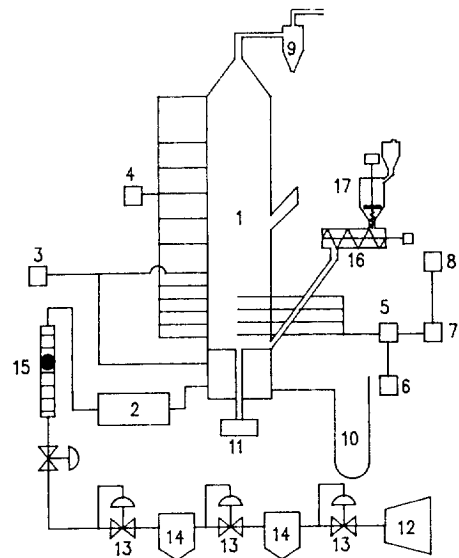


Fig. 1. Experimental facilities and data processing system at high temperature.

- | | |
|-----------------------------|--------------------------|
| 1. Fluidized bed combustor | 10. Manometer |
| 2. Preheater | 11. Vibrating discharger |
| 3. PID temp. controller | 12. Air compressor |
| 4. Digital multithermometer | 13. Regulator |
| 5. Pressure transducer | 14. Air filter |
| 6. Power supply | 15. Flow meter |
| 7. Amplifier | 16. Screw feeder |
| 8. Personal computer | 17. Hopper |

분부터 순도 99% NaCl이 포함된 석탄이 주입되었으며 조업은 층내 유동화물질이 NaCl이 포함된 시료로 완전히 교체되는 200분 동안 수행하였다. 시료채취는 10분 간격으로 실시하였으며 배출 및 유출된 시료는 각각 채 분석한 뒤 각 입자크기별로 연소효율을 측정하였으며 그 정의식은 다음과 같다.

$$X_b(d_p) = \frac{X_{cr}(d_p)/X_{ca}(d_p) - X_{cr}(d_p)/X_{ca}(d_p)}{X_{cr}(d_p)/X_{ca}(d_p)} \quad (1)$$

총 연소효율은 주입된 고정탄소와 배출 및 유출된 고정탄소의 비로서 구할 수 있는데 정의식은 다음과 같다.

$$\eta_{cr} = \frac{(\text{Carbon Input}) - (\text{Carbon Output})}{(\text{Carbon Input})} \quad (2)$$

NaCl은 각 0-7%로 무게분율을 달리하여 NaCl의 무게분율에 따른 집괴현상을 조사하였는데 무게분율은 다음식으로 계산하였다.

염의 종류에 따른 characteristic molar volume V_o 와

Table 1. Experimental conditions

Variables	Conditions
Superficial gas velocity(m/sec)	0.204
Bed temperature(°C)	900
Aspect ratio(L/D)	1.0
Operation time(min)	400
Solid feeding rate(g/min)	30
NaCl concentration(wt%)	0-7
Excess air ratio(%)	20

온도 T_0 를 녹는 점과 표준상태에서의 molar volume을 연결하여 구했으며 표면장력과 포화곡선에 따른 등온 압축성과의 관계가 다음 식 (3)으로 나타낼 수 있으며 [4],

$$\frac{\sigma(V_0/N_A)^{2/3}}{k T_0} = \tilde{\sigma} \quad (3)$$

또 환산 표면장력과 환산 온도와의 관계가 다음과 같다.

$$\tilde{\sigma} = 3.52 - 1.55 \tilde{T} \quad (4)$$

$$\tilde{T} = T/T_0 \quad (5)$$

따라서 위의 세 식으로부터 표면장력값이 계산되어지며 Cape와 Dankwert[6]는 입상공간도에 결합액이 포화상태를 이룰 때 입자크기와 표면장력의 관계가 4600 dyne/cm 이상이면 집괴입상화될 수 있다고 보고하였다. 따라서 이 관계를 이용하여 용융된 소금이 입상공간도를 포화시켰다는 가정하에 약 0.37 mm 이하의 입자들은 집괴입상화가 가능할 것으로 예측되나[7] 비산유출되는 대부분의 입자들이 0.1 mm 이하이므로 이러한 미세입자들을 주로 집괴입상화시키기 위해 결합액으로서 NaCl 무계분을 약 7% 이하를 사용하였다.

여기서 NaCl은 순도가 99%이고 입자크기가 0.1 mm 이하인 고상을 사용하였으며 고상인 NaCl이 석탄시료에 골고루 분산되어 일정한 무계분율을 갖도록 하기 위해 V-mixer에서 혼합이 가장 잘 되는 회전수인 30 rpm으로 30분간 혼합하였다.

그리고 본 실험에서의 조업조건은 Table 1과 같으며 조업중 유동층의 aspect ratio가 1이 유지되도록 일정하게 주입하고 배출하였다.

사용된 석탄시료는 문경산 무연탄으로서 발열량은 약 3240 kcal/kg이고 입자분포는 Table 2에 나타내었는데 약 40% 정도가 0.1 mm 이하의 미세입자이다.

3. 결과 및 고찰

Table 2. Size distribution of anthracite coal of each particle size with moisture free basis in weight fraction

US.STD sieve no.	d_p (mm)	wt frac.
16/20	1.015	0.0840
20/30	0.715	0.1337
30/40	0.505	0.0978
40/50	0.359	0.0795
50/60	0.274	0.0457
60/70	0.231	0.0405
70/80	0.194	0.0411
80/100	0.163	0.0426
100/120	0.137	0.0205
120/140	0.115	0.0438
140/170	0.097	0.0336
170/200	0.081	0.0176
200/230	0.068	0.0393
230/270	0.058	0.0303
270-	0.053-	0.2500

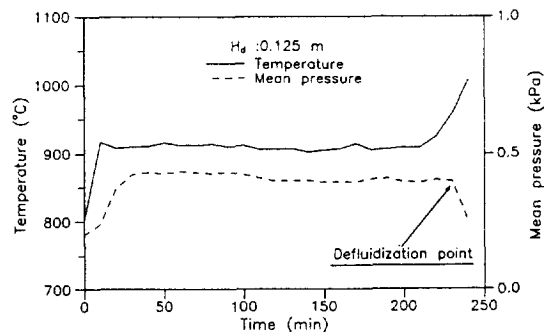


Fig. 2. Mean pressure and temperature profile with operating time for a defluidization experiment.

3-1. 비유동화 현상

유동층연소로에 결합액(binding material)으로 작용하는 물질을 첨가하면 고체입자들은 높은 점착성을 갖게 되어 비유동화 현상이 일어나 조업이 불가능하게 되는데 반응기의 안정화된 조업을 위하여 on-line으로 비유동화 현상을 예측할 수 있어야 한다. 따라서 이러한 비유동화 현상을 압력요동과 온도로서 예측한 결과를 Fig. 2와 3에 나타내었다.

Fig. 2는 결합액으로 사용한 NaCl 무계비가 3%인 경우, 조업시간에 따른 압력요동 및 온도변화를 나타낸 그림이다. NaCl이 포함된 시료가 주입된 지 약 30분 후에 층내의 온도는 급격히 상승하나 압력은 급격히 하강하는 경향을 보여준다. 이는 결합액의 주입으로 인해 비산유출되던 일부 미세입자들이 집괴입상화하여 그 크기가

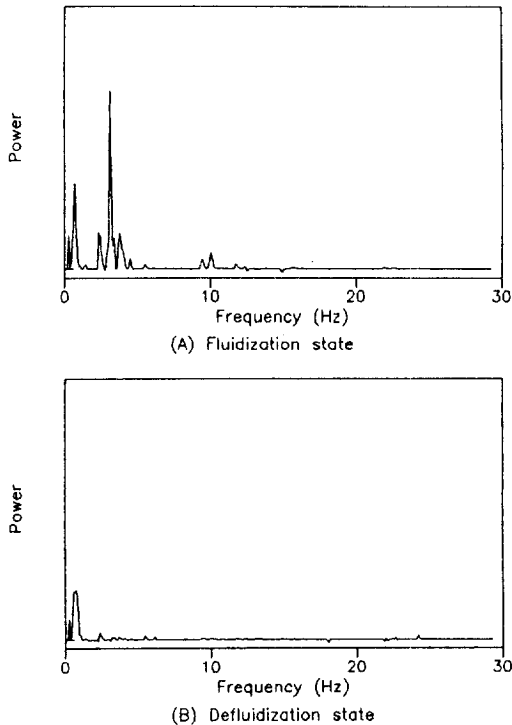


Fig. 3. Power spectrum distribution for (A) normal fluidization state (B) defluidization state.

성장하여 층내에서의 머무는 평균체류시간이 증가하기 때문이며 이로 인해 연소효율이 증가하게 되어 온도가 상승하게 된다. 온도가 상승하면 집괴입상화되는 입자의 평균크기 뿐만 아니라 생성속도 또한 증가하게 된다. 이러한 일련의 과정은 온도가 증가함에 따라 더욱 가속화되어 비유동화되는 시점에는 층내의 유동화입자들이 하나의 커다란 집괴입상화된 물질로 되며, 유동화기체는 층내에서 여러 개의 channel을 형성하여 이들 channel을 통해 흐르게 된다[8].

위와 같은 원인으로 인해 비유동화되는 시점에 층내의 온도는 급격히 상승하나 반대로 압력은 감소하는 경향을 보인다. 이러한 비유동화 현상은 power spectrum 분석에 의해서도 알 수 있다. Power spectrum density function은 유동층의 거동을 해석할 수 있는 정보를 제공하는 가장 기본적인 방법으로 알려져 있는데 power spectrum은 주어진 조건에서 빈도수의 함수로 발생한 에너지분포를 나타내므로 spectrum peak가 복잡한 형태일수록 측정위치에서 여러 가지의 다양한 빈도수를 가지는 기체와 고체간의 복잡한 현상이 일어나고 있음을 의미한다[9].

Fig. 3의 A는 spectrum의 peak가 크고 넓게 분포되어

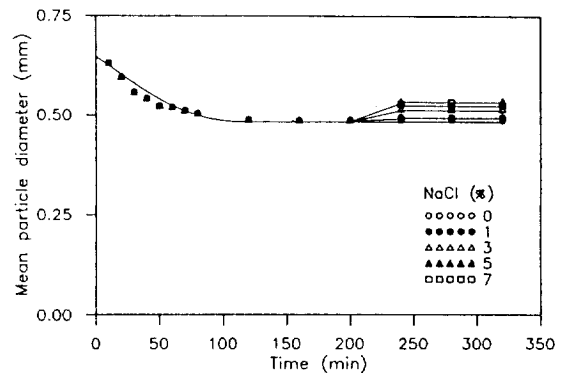


Fig. 4. Variation of mean particle diameter with added NaCl content for the discharge stream.

있으나 B의 경우는 0.7 Hz에서만 작은 peak가 나타날 뿐 나머지 주기에서는 소멸되었음을 알 수 있다. 따라서 비유동화가 일어나기 전에는 기체와 고체의 복잡한 현상이 일어나나 비유동화가 일어나는 시점에는 층내의 고체 입자들이 하나로 뭉쳐져 유동화가 거의 일어나지 않는 power가 거의 무시될 수 있는 상태임을 알 수 있다. 그리고 이러한 비유동화 현상을 막기 위해서는 유동화 기체속도를 높여주어 고체 입자들의 운동량을 증가시켜 주거나 시료주입속도를 낮추거나 냉각수 공급을 늘려 온도의 상승을 억제하는 방법이 있는데[10] 본 실험에서는 온도가 상승하는 시점에 냉각수의 공급을 늘려 비유동화 현상을 예방할 수 있었다.

3-2. 집괴에 의한 미세입자의 입상화

결합물을 첨가하면 층내의 미세입자들은 집괴입상화하게 되는데 이를 확인하기 위해 층하부로 배출된 입자를 체분석하여 평균입자크기, 입도분포, 그리고 집괴입상화된 입자를 Fig. 4-6에 나타내었다. Fig. 4는 조업시간에 따른 층내 평균입자크기 변화를 NaCl 첨가량에 따라 나타낸 그림이다. NaCl 첨가량이 증가할수록 층내의 평균입자크기도 증가함을 알 수 있는데 이는 결합액으로 작용하는 NaCl 양이 증가할수록 표면장력도 증가하여 보다 많은 미세입자들이 집괴입상화되어 입자크기가 성장하므로 유동층내에서의 평균입자크기도 증가하게 된다.

Fig. 5는 NaCl과 석탄의 혼합시료를 주입한 지 약 80분이 경과한 후 층하부로 배출된 시료를 체분석하여 NaCl 첨가량에 따른 입도분포를 나타낸 것이다. NaCl이 포함된 혼합시료의 경우 NaCl이 포함되지 않은 시료에 비해 약 0.7 mm 이상의 입자들이 더 많이 존재함을 알 수 있다. 이는 앞에서 언급한 바와 같이 미세입자들이 집괴입상화되어 성장하였기 때문이다. 이렇게 미세입자

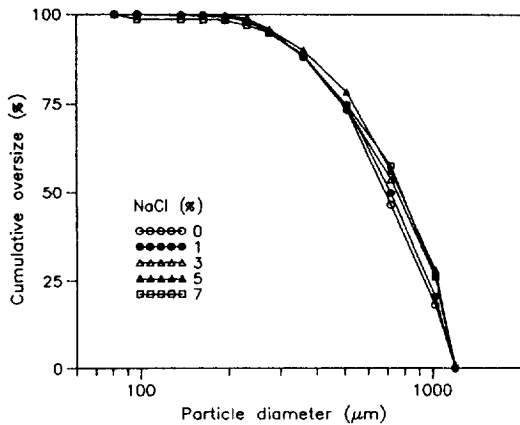


Fig. 5. Size distribution with added NaCl content for the discharge stream.

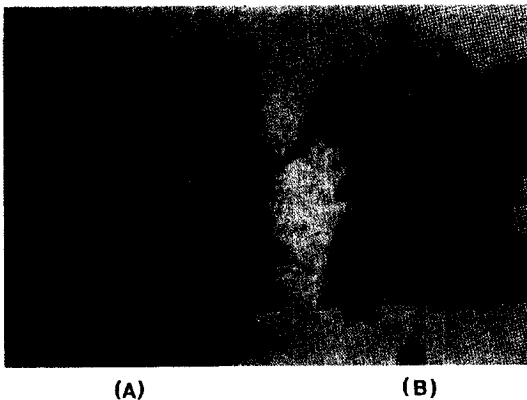


Fig. 6. Comparison of photograph for (A) multi-sized ash (B) granule formed in the agglomeration procedure of ash.

가 집괴입상화한 현상의 예를 Fig. 6에 나타내었는데 성장한 입자는 구형도가 크며 0.11 mm 이하의 미세입자가 2-3 mm까지 성장한 모습을 보여주고 있다. 그리고 층내로 주입되는 혼합시료에 포함되지 않은 1.190 mm 이상의 집괴입상화된 입자를 체분석 결과 무게비로 1-2% 정도 얻을 수 있었다.

집괴입상화에 의한 연소효율 향상정도를 조사하기 위해 배출 및 유출된 시료를 체분석하여 각 입자별로 연소효율을 측정하여 Fig. 7과 8에 나타내었다.

Fig. 7은 유동층이 정상상태에 도달한 약 280분에 유출된 시료의 입자크기별 연소효율을 NaCl 첨가량에 따라 측정 후 NaCl을 첨가하지 않은 경우와 비교하여 나타낸 그림이다. 입자크기가 0.110 mm보다 작은 입자의 경우는 2-4배 증가함을 알 수 있다. 결합액으로 작용하는

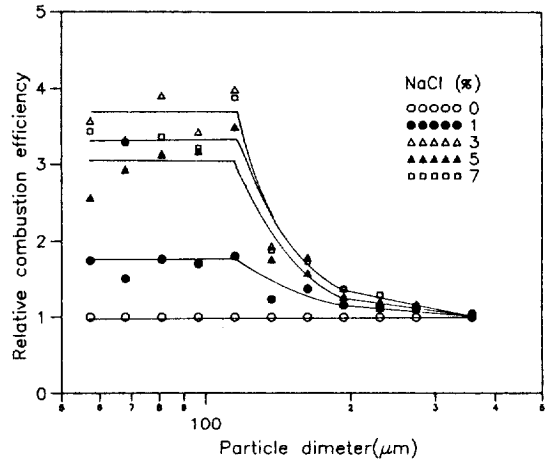


Fig. 7. Relative combustion efficiency with added NaCl content for the elutriated stream.

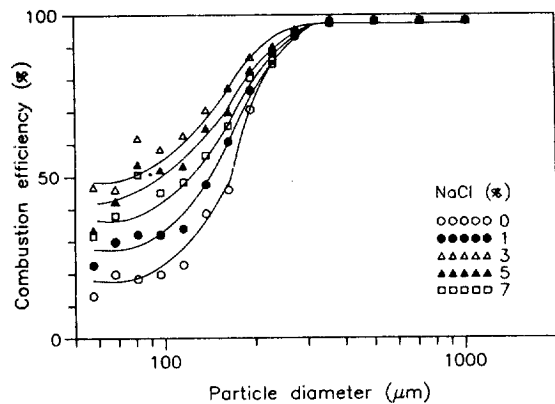


Fig. 8. Combustion efficiency with added NaCl content based on both discharged and elutriated streams.

NaCl의 표면장력은 식 (3)-(5)로부터 구할 수 있는데 그 값은 172 dyne/cm이다. 이 값으로부터 유동층연소로 내의 입자들의 집괴입상화되는 범위를 Capes 등[3]이 제시한 경험식으로부터 추론할 수 있는데 입상공간도에 결합액이 포화상태를 이룰 때 입자크기와 표면장력과의 관계가 4600 dyne/cm 이상이면 집괴입상화할 수 있다. 위의 결과에 따라 용융된 소금이 입상공간도를 포화시켰다는 가정하에 약 0.37 mm 이하의 입자들은 집괴입상화가 가능할 것으로 예측되나 NaCl의 함량이 7% 이하의 값이므로 집괴가능한 입자의 크기는 0.37 mm보다 훨씬 작은 0.1 mm 이하이다.

Fig. 8은 유동층이 정상상태에 도달한 약 280분에 배출 및 유출된 시료에 대하여 각각 체분석한 뒤 입자크기별로 연소효율 정의식 (1), (2)를 이용하여 연소효율을

Table 3. Combustion efficiency of discharged and elutriated particles with added NaCl content

Particle size (mm)	Combustion efficiency					
	NaCl 0%	NaCl 1%	NaCl 3%	NaCl 5%	NaCl 7%	
1.015	98	98	98	98	98	
0.715	98	98	98	98	98	
0.505	98	98	98	98	98	
0.359	97	98	98	98	97	
0.274	93	95	95	95	94	
0.231	86	88	85	90	85	
0.194	71	76	87	83	80	
0.163	46	61	77	70	66	
0.137	39	48	71	65	57	
0.115	23	34	63	53	48	
0.097	20	32	58	52	45	
0.081	18	32	62	54	51	
0.068	20	30	46	42	38	
0.058	13	23	47	34	32	
0.053	45	53	73	64	65	

**Fig. 9. SEM micrograph of granule along the radial direction.**

측정하여 이를 입자크기별로 나타낸 그림이다. 194 μm 이상의 입자들은 비산유출이 거의 일어나지 않고 충하부로 배출됨으로 인해 충내 체류시간이 길어 연소효율이 비교적 높다. 그리고 NaCl이 첨가된 시료의 경우가 NaCl이 첨가되지 않은 시료에 비해 연소효율이 높는데 이는 앞에서 설명한 바와 같이 NaCl에 의한 집괴입상화 때문이다.

유동층이 정상상태 도달후 NaCl 첨가량에 따른 입자별 연소효율을 Table 3에 나타내었다.

전체적으로 입자크기가 작아질수록 연소효율은 감소하는 경향을 보이다가 0.055 mm 이하의 입자는 오히려

증가하는 경향을 보인다. 이는 연소된 회분입자들이 마모과정을 통해 생성된 0.055 mm 이하의 회분입자가 거의 유출되므로 인해 0.055 mm 이하의 미세입자들의 연소효율은 높게 나타났다.

0.194 mm 이하 입자에서 NaCl을 첨가한 경우가 첨가하지 않은 경우에 비해 6-33% 가량 높으며 특히 NaCl 첨가량이 3% 경우가 연소효율이 가장 높는데 이것은 NaCl 첨가량이 3%에 비해 상대적으로 높은 편인 5%, 7%인 경우 NaCl이 순간적으로 용융되면서 필요한 열을 유동층으로부터 공급받고 또한 용융된 NaCl이 고체입자에 용착되어 산소의 확산속도를 제한하여 연소속도를 감소시키기 때문인 것으로 사려된다.

3-3. 집괴입상화기구

집괴입상화기구(granulation mechanism)는 layering mechanism model과 agglomeration model로 나눌 수 있는데 유동층연소소에서 NaCl을 이용한 석탄의 집괴입상화는 아직 관찰되어진 바가 없으므로 이를 조사하고자 집괴입상화된 입자를 지름 방향으로 절단하여 SEM 분석한 것을 Fig. 9에 나타내었다. 내부에는 미연소된 석탄입자가 남아 있고 외부는 연소된 미세입자로 구성되어 있음을 알 수 있다. 따라서 유동층에서 NaCl에 의한 석탄의 집괴입상화는 미연소 석탄입자를 핵으로 하여 성장과 치밀과정을 거친 후 건조과정이 일어나는 agglomeration model인 것으로 추론할 수 있다.

4. 결 론

(1) 염과 석탄의 혼합연소시 연소효율의 증가로 인한 온도상승과 염에 의한 점도 증가로 인해 비유동화 현상이 일어나며 이러한 비유동화 현상에 대한 정보를 압력 요동신호와 온도분포로부터 알 수 있다.

(2) 유동층연소소에서 석탄에 염을 혼합하면 미세입자의 집괴입상화에 의해 입자크기가 성장하며 연소효율도 증가하였다. 특히 0.110 mm 이하의 미세입자의 연소효율은 3-4배 증가하였다.

(3) 염에 의한 석탄의 집괴입상화는 미연소석탄을 핵으로 하는 agglomeration model임을 알 수 있다.

사용기호

H_d	: measuring height above distributor [m]
k	: Boltzmann constant [J/mol·K]
N_A	: Avogadro number
\bar{T}	: reduced temperature
T_o	: characteristic temperature [K]

V_o : characteristic molar volume [m^3]
 $X_b(d_p)$: combustion efficiency of particles of a size d_p
 X_{a,d_p} : weight fraction of ash in feed coal particles of a size d_p
 X_{c,d_p} : weight fraction of carbon in feed coal particles of a size d_p
 X_{ad,d_p} : ash fraction of discharged and elutriated particles of a size d_p
 X_{cd,d_p} : carbon fraction of discharged and elutriated particles of a size d_p
 σ : surface tension [N/m]
 η_{ct} : total combustion efficiency

참고문헌

1. Park, D. K. and Lee, J. K.: *Fuel*, **68**, 1180(1989).
2. Mullin, J. W.: "Enlargement and Compaction of Particulate Solids", Butterworth Co. Ltd., 128(1983).
3. Tardos, G., Mazzone, D. and Peefer, R.: *Can. J. Chem. Eng.*, **63**, 377(1985).
4. Harada, M., Tanigaki, M. and Tada, Y.: *Ind. Eng. Chem. Fund.*, **22**, 116(1983).
5. Compo, P., Pfeffer, R. and Tardos, G. I.: *Powder Technol.*, **51**, 85(1987).
6. Capes, C. E. and Dankwerts, P. V.: *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **43**, 116(1965).
7. Capes, C. E., Germain, R. J. and Coleman, R. D.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **16**, 517(1977).
8. Siegel, J. H.: *Power Technol.*, **38**, 13(1984).
9. Hong, S. C., Jo, B. R., Doh, D. S. and Choi, C. S.: *Powder Technol.*, **60**, 215(1990).
10. Choi, C. S., Park, J. H. and So, C. S.: *HWAHAK KONGHAK*, **24**, 63(1986).