

석탄유동층 연소로에서의 Freeboard 연소특성

II. 수학적 모델링

박영성 · 김영성 · 손재익 · 맹기석*

한국에너지기술연구소 폐자원연구팀

*충남대학교 공과대학 화학공학과

(1993년 3월 27일 접수, 1993년 8월 25일 채택)

Characteristics of the Freeboard Combustion in a Fluidized-Bed Coal Combustor

II. Mathematical Modelling

Yeong-Seong Park, Young-Sung Ghim, Jae-Ek Son and Ki-Suck Maeng*

Korea Institute of Energy Research, P.O. Box 5, Daedeok Science Town, Taejeon, Korea

**Dept. of Chem. Eng., Chungnam National University, 220, Kung-Dong, Taejeon, Korea*

(Received 27 March 1993; accepted 25 August 1993)

요 약

국내 무연탄을 대상으로 하는 유동층 연소로에 있어서 freeboard에서 일어나는 탄소연소반응을 해석하기 위해 연소로내 탄소비산구조를 설정하고 관련된 reaction kinetics를 적용하여 freeboard 탄소연소반응의 수식모델을 전개하였다. 모델의 해석을 통해 산출된 탄소연소율, 가스농도분포 및 온도분포 등의 freeboard 탄소연소반응의 주요 특성치는 실험치와 비교적 근사한 일치를 보였으며, 모델에 적용된 kinetic parameter중 탄소연소반응의 표면반응속도상수는 freeboard내 온도 및 가스조성에 커다란 영향을 주며 CO 재연소반응속도상수는 CO 농도분포에 지배적인 영향을 주는 것으로 나타났다.

Abstract—A mathematical model for the carbon combustion reaction in the freeboard of a fluidized bed combustor using domestic anthracite coal was developed by using the entrainment mechanism of unburned carbon particle and applying the related reaction kinetics. The extent of carbon combustion, gas composition and temperature distributions in the freeboard can be determined from the proposed model. It was also found that among the kinetic parameters, the surface reaction rate constant gives significant effects on the temperature and gas compositions in the freeboard, while the CO combustion reaction rate constant gives a dominant effect on CO composition in the freeboard.

1. 서 론

유동층 연소로에 있어서 freeboard의 주요기능은 층 표면에서 기포의 분출(eruption)과 함께 비산된 입자

중에서 기체유속, 입자크기, 밀도 등을 토대로 일부 입자를 다시 유동층으로 떨어뜨리는 disengagement 역할과 비산입자와 반응기체간의 빈번한 접촉에 의해 일어나는 탄소 및 휘발분연소, SO₂흡수, NO_x환원 등 각종

균일, 불균일 반응을 들 수 있다[1-3]. 이들 기능은 석탄유동층 연소에 있어서 석탄의 연소효율, 분진 및 배가스 배출 등에 직접적인 영향을 주게 되며 따라서 효율적인 유동층 연소로 설계에 있어 freeboard 연소특성 이해는 매우 중요한 요소가 되고 있다.

지금까지 발표된 연구결과를 살펴보면, Gibbs와 Beer [4], Tang 등[5], Martens 등[6], Hiram 등[7]은 freeboard 탄소연소율, 가스온도분포 및 성분분포 등의 실험자료를 제시한 바 있으며, Chen과 Wen[1], Wells 등 [8], Tung 등[9], Zhang 등[10], Tomita 등[11]은 고체반응입자의 비산속도 및 hold-up 등을 산출하고 아울러 대상반응물의 물질수지를 토대로 freeboard 탄소 연소반응에 대한 모델식을 제시한 바 있다.

하지만 지금까지 발표된 실험자료들은 주로 소형 유
동층 연소로내 아주 제한된 조건에서 얻은 것이거나 규
모가 큰 상용 플랜트에서 기-고 반응물에 대한 정확한
성분분석없이 대략적인 구간별 열수지와 증기발생량을
토대로 추산된 것이므로 미흡한 점이 많으며, 특히 모
델연구에 있어서는 서로 다른 유도과정을 통해 수립된
여러 가지 모델이 있으나 일부 해가 아직 밝혀지지 않
았거나 실험치와의 비교평가를 통한 모델의 적합성이
뚜렷이 밝혀지지 못하고 있어 이 분야에 대한 연구가
크게 요청되고 있다.

본 연구는 본 보문 제1부에서 발표된 바 있는 국내 무연탄을 대상으로 하는 유동층 연소로에서의 freeboard 탄소연소반응에 대한 실험적 연구[12]에 이은 모델연구로서 유동층 연소로내 탄소입자의 비산구조를 설정하여 freeboard에서의 탄소연소반응에 대한 모델을 수립하였으며 이의 해석을 통해 관련인자의 영향을 검토하고 아울러 측정된 실험치와 비교 검토함으로써 freeboard 탄소연소반응모델의 타당성을 분석하였다.

2. 모델설정

Freeboard내 온도, 산소농도 등이 주어진 조건하에서 탄소연소반응은 연소로 단위체적당의 carbon load(carbon hold-up, carbon concentration)에 따라 결정된다. 또한 carbon hold-up은 탄소의 비산율(entrainment rate)과 상수하는 입자의 속도에 지배를 받는다.

본 연구에서는 freeboard에서 일어나는 탄소연소반응을 해석하기 위해서 별도의 탄소비산구조를 설정하고 관련된 reaction kinetics를 적용하여 탄소연소반응의 수식모델을 전개하였다.

Fig. 1은 본 freeboard 연소반응모델의 주요 구성요소들을 간략히 나타낸 것이다. 탄소의 비산구조로는 주어진 기체유속보다 낮은 종말속도를 갖는 공급시료

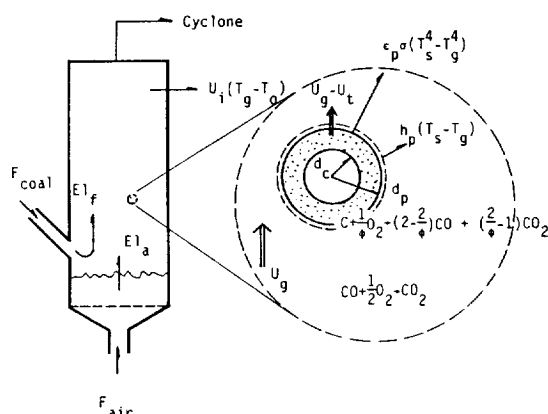
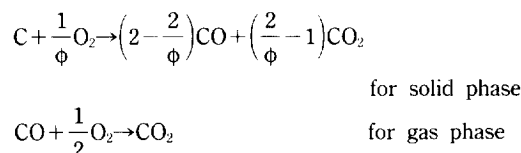


Fig. 1. Schematic representation of freeboard carbon combustion model.

중의 미분탄소의 비산과 층내 마모작용에 의해 일어나는 탄소의 비산 등 크게 두 가지만을 고려하였다. 물론 이외에도 층표면에서의 기포파괴에 의한 층물질의 비산과정에서 야기되는 탄소의 비산이 있을 수 있으나 이는 층물질 전체에 적용되기 보다는 기포의 roof 혹은 wake를 따라 올라가는 일부 입자에 국한된 것이며, 층물질 자체의 탄소농도 또한 Sarofim과 Beer[13], Choi 등[14]이 밝힌 바와 같이 0.1-1.0%로 아주 낮으므로 본 모델에서는 이 부분을 무시하였다.

탄소연소반응은 Rajan과 Wen[15], Martens 등[6]이 적용한 바와 같이



의 두 반응이 일어나는 것으로 간주하였다. 이 때 ϕ 는 mechanism factor로서 입자크기와 온도의 함수로 주어지며 다음식과 같이 표시된다(Wen과 Lee[16]).

$$\phi = \frac{2P+2}{P+2} \quad d_i < 0.05 \text{ mm} \quad (1)$$

$$\phi = \frac{2P+2-P(dc-0.05)/0.95}{P+2} \quad 0.05 < d_r < 1.0 \text{ mm} \quad (2)$$

$$\phi=1 \quad d_i>1.0 \text{ mm} \quad (3)$$

P는 연소반응이 일어나는 입자표면에서의 CO와 CO₂의 생성비율을 나타내는 것으로 Arthur[17]가 제시한 다음식이 사용된다.

$$P = 2500 \exp(-1200/RT_s) \quad (4)$$

이상의 관계를 이용하여 freeboard 탄소연소반응모델을 세우는데 도입된 가정은 다음과 같다.

(1) 가스 및 고체입자의 흐름은 plug flow를 적용한다 (Chen 등[2], Martens 등[6], Yates와 Rowe[18]).

(2) 무연탄 시료의 탄소연소반응은 입자크기가 불변인 unreacted core model을 적용한다.

(3) 연소반응은 chemical reaction이 controlling step으로 본다 (Tomita 등[11], Sarofim과 Beer[13]), Pillai [19]).

(4) 입자-입자간, 입자-벽간의 interaction은 무시한다 (Martens 등[6], Zhang 등[10]).

(5) Freeboard내의 기체유속은 일정한 것으로 가정한다.

(6) 비산되는 탄소입자의 상승속도는 $U_g - U_f$ 로 적용한다 (Walsh 등[3], Zhang 등[10]).

위의 가정을 도입하여 freeboard 탄소연소반응에 대한 각 성분별 물질수지와 전체열수지를 세우면 다음과 같다.

· Material balance

$$(U_g - U_f) \frac{d[C]}{dh} = -R_s \quad \text{for carbon} \quad (5)$$

$$U_g \frac{d[O_2]}{dh} = -\frac{1}{\phi} R_s - \frac{1}{2} R_g \quad \text{for oxygen} \quad (6)$$

$$U_g \frac{d[CO]}{dh} = (2 - \frac{2}{\phi}) R_s - R_g \quad \text{for carbon monoxide} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \text{B.C. at } h=0, [C] &= [C]_0 \\ [O_2] &= [O_2]_0 \\ [CO] &= [CO]_0 \end{aligned}$$

여기서 R_s 는 solid phase에서 일어나는 불균일반응의 탄소소비속도를 말하며 Rajan과 Wen[15]에 따르면 산소농도에 대한 1차반응으로

$$R_s = \pi d_p^2 k_s \exp(-E_s/RT_s) [O_2] N_p \quad (8)$$

$$d_r = d_p (1 - \zeta)^{1/3} \quad (9)$$

와 같이 표시된다. R_g 는 gas phase에서의 CO의 재연소반응속도로서 Hottel 등[20]이 제시한 다음과 같은 형태의 식으로 표시된다.

$$R_g = k_{g0} \left(\frac{P_i}{R_i T_g} \right)^{1.8} \exp(-E_g/RT_g) Y_{H_2O} Y_{CO}^{0.5} f_2 \quad (10)$$

$$f_2 = 17.5 Y_{O_2} / (1 + 24.7 Y_{O_2}) \quad (11)$$

N_p 는 단위체적당 탄소입자수로서 다음과 같이 표시된다.

$$N_p = \frac{[C]_0 M_c}{V_p \rho_c} = \frac{6[C]_0 M_c}{\pi d_p^3 \rho_c} \quad (12)$$

여기서 $[C]_0$ 는 freeboard에 유입되는 탄소의 초기농도로서 다음과 같이 계산된다. 우선 공급시료로부터 직접 비산되는 미분입자의 비산율은 주어진 기체유속(유동층 단면적을 기준으로한 공탐속도)을 종말속도로 갖는 입자크기(d_{pf})를 구하고 공급시료중 이러한 입도범위 이하가 차지하는 중량분율을 고려한 다음식으로부터 산출된다.

$$El_f = F_{coal} X_c X_f \quad (13)$$

또한 층내 마모작용에 의해 일어나는 탄소입자의 비산은 주로 탄종에 따라 별도의 실험을 통해 구하게 되는데 여기서는 국내 저열량탄을 대상으로 bench-scale 연소실험을 통해서 제시한 다음의 상관관계를 적용하여 마모에 의한 미분탄소의 비산율을 산출하였다[21].

$$\begin{aligned} El_d = 0.01 F_{coal} X_c (1 - X_f) \times [38.05 + 13.2(U_g - U_{mf}) \\ - 0.04 T_b - 6.79 X_c] \end{aligned} \quad (14)$$

따라서 freeboard에 유입되는 탄소의 초기농도는 다음 식으로 표시된다.

$$[C]_0 = \frac{El_f + El_d}{M_c (U_g - U_f) A_i} \quad (15)$$

고체입자에 대한 최소유동화속도(U_{mf})는 박 등[22], Barrett 등[23]이 실험을 통해 고온조건에서 석탄입자에 대해 잘 맞는 것으로 밝힌 바 있는 Babu 등[24]이 제시한 식을 적용하여 구하였으며, 종말속도(U_f)는 입경이 작은 비산입자를 구형(circular type)으로 가정하고 drag coefficient와의 관계로부터 표시되는 식을 이용하여 구하였다[25].

· Heat balance

$$\begin{aligned} (U_g - U_f) C_{ps} \frac{dT_g}{dh} (\rho_p T_s) V_p N_p \\ = \left[\left(2 - \frac{2}{\phi} \right) (-\Delta H_{s1}) + \left(\frac{2}{\phi} - 1 \right) (-\Delta H_{s2}) \right] R_s - Q \end{aligned} \quad \text{for solid phase} \quad (16)$$

$$\begin{aligned} U_g \rho_g C_{pg} \frac{dT_g}{dh} = Q + (-\Delta H_g) R_g - \frac{4U_f}{D_i} (T_g - T_o) \end{aligned} \quad \text{for gas phase} \quad (17)$$

Table 1. Data for the numerical analysis

Freeboard height(L)	2.4 m
Inside diameter(D _i)	0.2 m
Particle diameter(d _p)	10 ⁻⁴ m
Overall coefficient(U _i)	7.5×10 ⁻⁴ kcal/m ² sec°C
Frequency factor(k _{so})	4.1×10 ⁴ m/sec
Frequency factor(k _g)	3×10 ¹³ (kgmol/m ³) ^{-0.8} /sec
Activation energy(E _s)	3×10 ⁴ kcal/kgmol
Activation energy(E _g)	2.6×10 ⁴ kcal/kgmol
Emissivity of particle(ε _p)	1

$$Q = [h_p(T_s - T_g) + \epsilon_p \sigma (T_s^4 - T_g^4)] A_p N_p \quad (18)$$

B.C. at $h=0$, $T_s = T_{go}$

$$T_g = T_{go}$$

여기서 $-\Delta H_{s1}$ 과 $-\Delta H_{s2}$ 는 탄소연소반응시, CO 및 CO₂ 생성에 따른 반응열의 분배를 나타낸 것으로 다음과 같은 관계를 갖는다.

$$-\Delta H_s = \left(2 - \frac{2}{\phi}\right)(-\Delta H_{s1}) + \left(\frac{2}{\phi} - 1\right)(-\Delta H_{s2}) \quad (19)$$

$-\Delta H_s$ 는 CO 재연소반응에 의한 반응열을 나타낸다. 또한 Q는 연소되는 입자로부터 주위로 방출되는 대류 및 복사 전열량을 의미하며 마지막 항은 freeboard벽을 통한 손실열량을 나타내고 있다. 단일입자의 입자표면과 유체간의 대류전열계수 h_p 는 Froessling[26]이 광범위한 실험자료를 토대로 반 이론적으로 유도한 식을 써서 산출되며 총괄열전달계수 U_i 는 연소로벽을 통한 대기로의 열손실에 대한 별도의 열수지식을 써서 산출된다.

이상 (5)-(7), (16), (17)의 5개의 연립 미분방정식의 해를 구하면 freeboard 탄소연소반응의 주요특성인 탄소연소율, O₂ 및 CO 농도분포, 연소가스 및 고체입자의 온도분포 등을 산출할 수 있다. 여기서는 Gill의 상수를 이용한 Runge-Kutta 4th order 수치해법에 의하여 해를 구하였다. 수치해석에 적용된 data는 Table 1과 같다.

이들 데이터중에서 비산입자의 크기는 실측치로서 0-0.4 mm 범위에서 분포하는 입자들의 평균입경을 취하였으며, 탄소연소반응에 대한 진동계수 및 활성화에너지 등의 kinetic parameter들은 특히 국내무연탄의 경우, 기존의 발표된 자료들의 편차가 크거나 반응차수가 다른 점 등을 고려하여 Martens 등[6]과 Wang 등[27]이 무연탄시료에 대해 사용한 값의 평균치에 해당되는 값을 적용하였다. 또한 CO 재연소반응에 있어서는 CO와 O₂의 조성비율로 표시되는 equivalent ratio가 매우 낮은 점을 고려하여 Hottel 등[20]이 제시한 값보다는 다소 높은 활성화에너지값을 적용하였다.

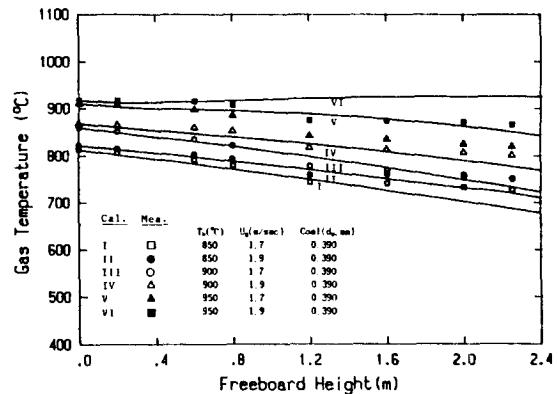


Fig. 2. Comparison of calculated and measured axial temperature profiles(I).

이밖에 미분방정식의 초기치인 [O₂]₀, [CO]₀, T_{go} 등은 freeboard inlet에서 실험적으로 측정된 값을 사용하였다. Freeboard inlet 높이의 설정에 있어서는 박 등[28]이 석탄유동층 연소로에서의 열전달실험을 통해 보고한 유동층의 층팽창(bed expansion)자료를 토대로, 약 25 cm의 고정층높이를 갖는 본 실험조건에 있어 공기분산판 상부 60 cm지점을 freeboard가 시작되는 높이로 간주하였다. 가스조성의 측정에는 가스흡입펌프(AP-115N), freeboard inlet에 설치된 가스 probe, 그리고 O₂, CO, CO₂, NO_x, SO₂의 5가지를 동시에 측정할 수 있는 multi-gas analyzer(IMR-3000P) 등이 사용되었으며, 온도측정에는 열전대(K type)와 data logger(Fluke model, 2190A)가 사용되었다[12, 29]. 또한 비산하는 미분입자의 초기온도는 입자의 크기가 작고 연소가 활발치 못한 점 등을 고려하여 가스온도와 동일한 값을 적용하였다.

3. 결과 및 검토

3-1. 실험치와의 비교검토

여기서는 freeboard 탄소연소반응모델을 이용하여 산출된 축방향의 온도분포, O₂ 및 CO 농도분포, 탄소연소율 등의 주요 특성치를 실험치와 비교 고찰하였다.

Fig. 2와 3은 유동화 속도, 시료의 입도크기, 유동층 온도에 따른 축방향의 온도분포를 비교하여 나타낸 것이다. 모델에 의해 계산된 값은 일부 경우를 제외하고는 측정치와 잘 일치되는 경향을 보여주고 있다. 단지 시료중의 미분함량이 높고 유동층온도가 높을 경우에는 측정치에 비해 다소 차이를 보이고 있는데 이는 본 모델 설정에 있어서 비산되는 미분석탄의 가열기간이 고

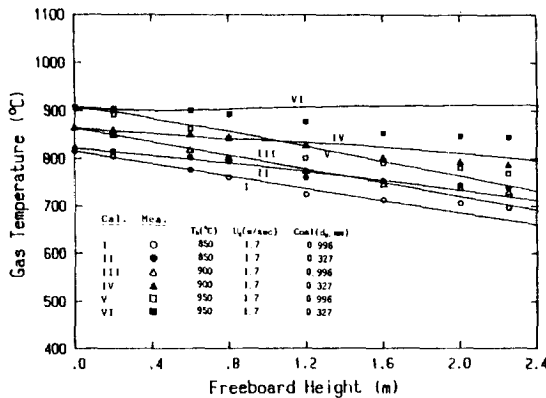


Fig. 3. Comparison of calculated and measured axial temperature profiles(II).

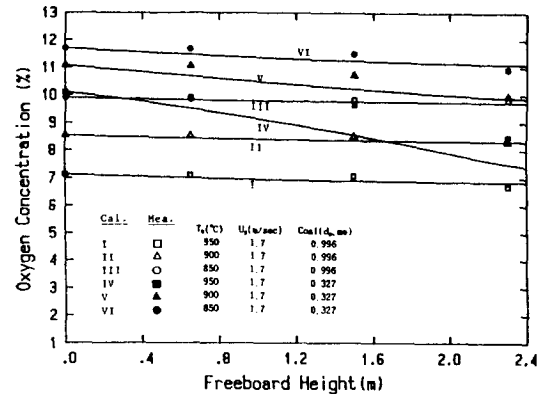


Fig. 5. Comparison of calculated and measured axial O₂ profiles(II).

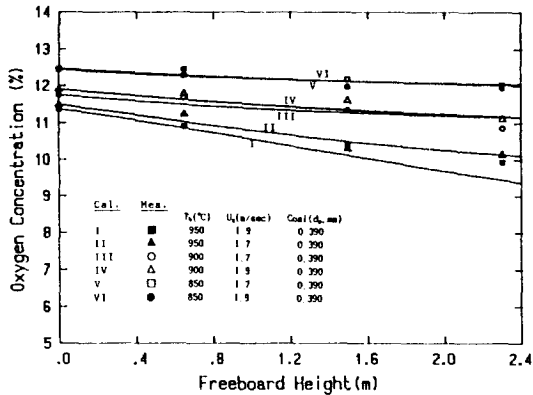


Fig. 4. Comparison of calculated and measured axial O₂ profiles(I).

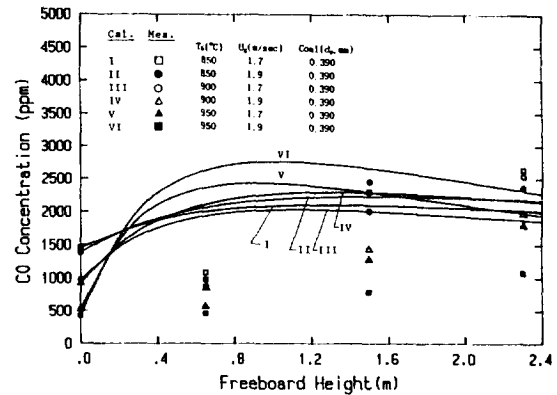


Fig. 6. Comparison of calculated and measured CO profiles(I).

려되지 않은 점, 주저항으로서 표면반응만을 고려하였으므로 온도가 높을 경우 상대적으로 반응속도가 높은 값을 가질 수 있는 점, 비산입자의 체류시간을 산출하는데 있어서 입도크기 및 입자상승속도에 대한 평균치를 적용한 점 등 몇 가지 복합적인 요인에 기인되는 것으로 사료된다.

Fig. 4와 5는 축방향의 O₂ 농도분포를 나타낸 것이다. 시료중의 미분함량이 높으며 유동층온도가 높은 일부 경우를 제외하고는 계산치와 측정치는 상당히 근접한 일치를 보이고 있다. 그러나 일부 측정치와의 차이는 역시 앞에서 언급한 바와 같이 본 모델의 구조적인 특성에 기인하는 것으로 볼 수 있다.

한편 계산치는 대체로 균일한 O₂ 농도감소현상을 보이는 반면 측정치는 freeboard top 부근에서 비교적 큰 비율의 O₂ 농도감소현상을 보이고 있는데 이는 freeboard 하부영역의 경우, 미분입자의 반응개시전 초기

가열에 따른 반응지역이 일어나며 freeboard 상부영역의 경우 기체온도가 낮아지면서 기체유속 감소에 따른 입자의 상승속도 감소 및 체류량증가 등이 일어나 탄소연소반응이 다소 활발해질 수 있기 때문인 것으로 추정된다. 이와 관련된 것으로 남궁 등[30]은 freeboard top부근에서 가스의 배출구가 측면으로 배열되어 있을 경우 흐름특성에 의해 top부근에 좀 더 많은 입자가 체류함을 실험적으로 보고한 바 있다.

Fig. 6과 7은 여러 조업조건에서의 축방향의 CO 농도분포를 나타낸 것이다. 시료중의 미분함량이 낮은 경우는 계산치와 측정치는 대체로 유사한 경향을 보이나 시료의 미분함량이 높은 경우는 freeboard 하부영역에서 커다란 편차를 보여주고 있다. 이와 같은 현상은 우선 CO성분이 탄소연소반응의 1차 중간생성물로서 이의 생성 및 재연소반응은 반응조건이나 입도크기 등에 민감한 변화를 보이므로 정확한 예측이 어려운 점도 있

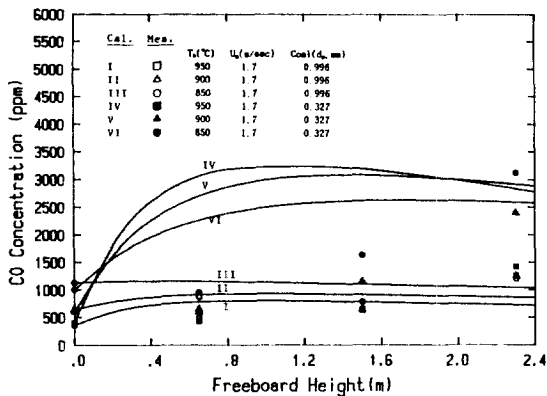


Fig. 7. Comparison of calculated and measured axial CO profiles(II).

으나 본 모델에 있어서 비산입자의 초기가열이 고려되지 않았으므로 특히 미분함량이 높을 경우 freeboard하부에서 계산치가 실측치보다 큰 값을 갖게 되는 것으로 볼 수 있다. 한편 전체적으로 CO가스의 농도는 일반 상용플랜트에서 배출되는 값을 훨씬 상회하고 있는데 이는 본 실험에 있어서 적용된 시료의 미분함량이 높고, 비산회 재순환이 없는 상태에서 freeboard온도가 낮아 CO발생이 촉진되었기 때문인 것으로 판단된다[12].

그러나 지금까지 발표된 freeboard 연소반응모델들이 주로 탄소의 완전연소반응만을 고려하여 실제로 발생하는 CO에 대한 검토가 전혀 이뤄지지 않은 점을 감안할 때 본 모델은 진일보한 것이라고 볼 수 있으며 특히 거의 대부분 0.5 mm 이하의 작은 입자로 구성되는 free-

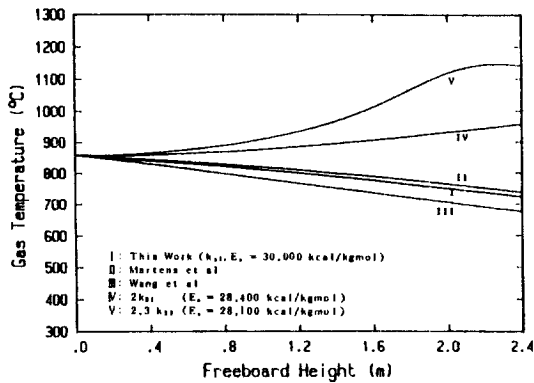
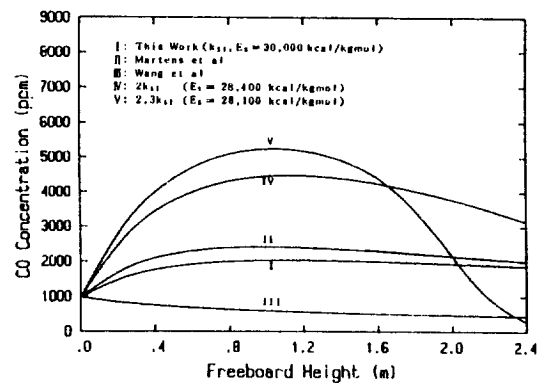
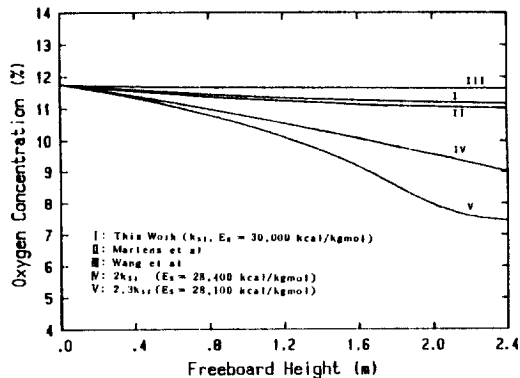
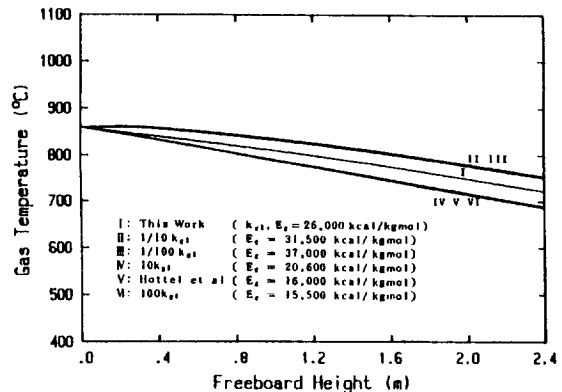
board에서의 탄소연소반응은 CO의 생성 및 재연소반응 등을 동시에 고려하는 것이 타당함을 알 수 있다.

Table 2는 본 모델을 통해 산출된 freeboard 탄소연소율(freeboard에서 연소된 탄소량/연소로내로 공급된 총 탄소량)을 측정된 값과 비교한 것이며, 아울러 본 모델로부터 계산된 비산된 입자의 freeboard내 탄소전환율을 나타낸 것이다. Freeboard 탄소연소율은 미분함량이 높고 온도가 높은 일부 경우를 제외하고는 계산치와 측정치가 대체로 잘 부합되는 것을 보여주고 있다. 그러나 고온영역에서 미분함량이 높은 경우에 나타나는 측정치와의 차이는 무엇보다도 비산입자가 입도분포를 갖는 비등온상태인 계에서 입자의 입도크기 및 상승속도 등에 대한 평균치를 적용한 체류량 산출 방법과 시료에 적용된 reaction kinetics 등이 실제로 freeboard내에서 일어나는 복잡한 수력학적 거동 및 연소반응을 해석하는데 다소 미흡한 점이 있기 때문으로 사료된다. 또한 Table 2에 표시된 바와 같이 비산된 입자의 freeboard내 탄소전환율은 7-40%로 나타났는데 만약 비산회 재순환방식 등을 적용해 freeboard내 탄소체류량을 늘려주거나 freeboard 길이를 길게 해 비산입자의 freeboard내 체류시간을 늘려주면 비산입자의 탄소전환율의 증가와 함께 freeboard 탄소연소율은 크게 향상될 수 있을 것으로 판단되었다.

이상 살펴본 여러 가지 특성치에 대한 모델검토를 종합해 볼 때 본 모델은 over-bed 석탄공급에 있어서 공급시료로부터 직접 유출되는 미분탄소와 마모에 의해 유출되는 미분탄소분만을 고려하여 비교적 계를 간단히 취급한 것이지만 본 모델을 통해서 주어진 조업조건내

Table 2. The extent of freeboard carbon combustion and carbon conversion of entrained particles in freeboard

Coal(d_p , mm)	$U_g(\text{m/sec})$	$T_b(^{\circ}\text{C})$	$Y_F(\%)$		Carbon conversion (%, 100%)
			Measured	Calculated	
0.996	1.7	850	0.6	0.9	6.9
		900	1.7	1.2	10.1
		950	2.9	1.6	14.7
	1.5	850	2.3	3.0	9.6
		900	3.2	3.2	14.8
		950	5.4	4.5	23.0
	1.7	850	3.3	2.4	9.0
		900	5.9	3.8	14.8
		950	8.2	8.1	32.1
0.390	1.9	850	3.3	2.8	8.6
		900	5.4	4.8	15.0
		950	7.9	10.1	33.9
	1.7	850	4.6	3.4	9.3
		900	6.1	6.2	17.8
		950	8.4	10.3	39.6

Fig. 8. Effect of k_p on axial temperature profiles.Fig. 10. Effect of k_p on axial CO concentration profiles.Fig. 9. Effect of k_p on axial O_2 concentration profiles.Fig. 11. Effect of k_p on axial temperature profiles.

에서 어느정도 유사하게 freeboard 탄소연소특성의 해석이 가능함을 알 수 있다.

그러나 앞으로 비산입자의 입도분포 및 상승속도분포를 고려한 좀 더 정확한 탄소체류량의 산출과 대상 시료인 고회분무연탄에 대한 불균일, 균일반응에 관련된 reaction kinetics의 적용 등에 보완이 요구된다.

3-2. Kinetic Parameter 분석

본 freeboard 탄소연소반응모델의 균일 및 불균일반응에 적용된 반응속도상수들에 대한 감도분석(sensitivity analysis)을 통해 이들 kinetic parameter의 영향을 살펴보면 다음과 같다. 우선 탄소연소반응에 대한 표면반응속도상수는 앞에서 인용한 바 있는 Martens 등[6], Wang 등[27]의 자료와 함께 본 모델에서 적용된 값을 일정비율로 변화시켜 보았다.

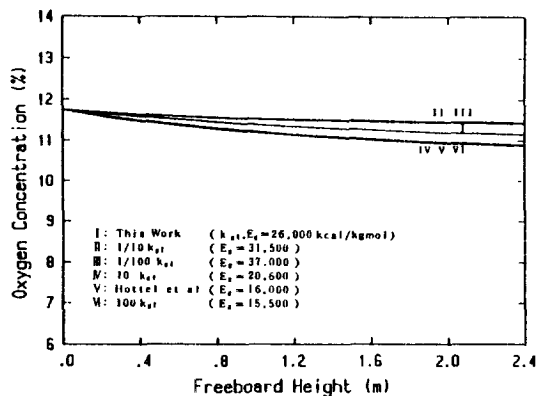
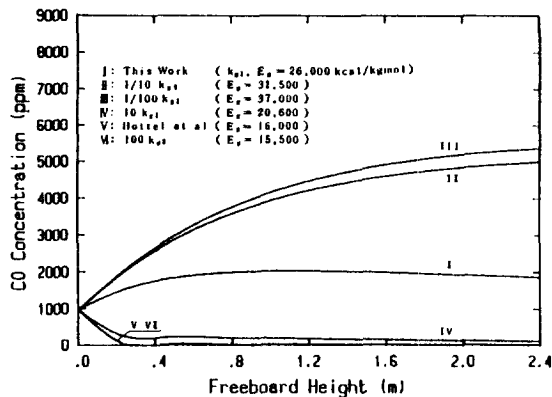
또한 CO 재연소반응에 대해서는 본 모델에 적용된 k_p 값을 토대로 1/100, 1/10, 10, 100배로 변화시킬 경우를 조사하였다. 조업조건으로는 석탄시료 평균입경 0.39 mm, 유동화속도 1.7 m/sec, 유동층온도 900°C, 과잉공

기율 25%를 적용하였다.

Fig. 8과 9는 탄소연소반응의 표면반응속도상수(k_p) 변화에 대한 freeboard내 축방향의 온도분포 및 O_2 농도분포를 나타낸 것이다. 이들 결과는 본 모델에 적용된 파라미터값이 Martens 등[6]과 Wang 등[27]이 사용한 값들과 매우 근접한 범위내에 있으며 아울러 표면반응속도상수의 영향이 매우 큰 것을 보여주고 있다.

Fig. 10은 표면반응속도상수 변화에 따른 CO 농도분포를 나타낸 것이다. 역시 축방향의 CO 농도분포도 표면반응속도상수에 커다란 영향을 받고 있음을 알 수 있다. 표면반응속도상수의 증가는 freeboard하부에서 CO 생성을 크게 촉진시키므로 급격한 CO 농도증가현상을 보이며 상부로 올라갈수록 Fig. 8과 같이 온도가 높아져 CO 재연소반응속도가 매우 빨라지므로 CO 농도는 다시 감소하게 된다. 또한 표면반응속도상수가 작은 경우에는 CO 생성속도가 낮으므로 CO 농도는 증가하지 않고 오히려 계속적으로 감소하게 된다.

Fig. 11과 12는 본 모델에 적용된 k_p 값에 대하여 CO

Fig. 12. Effect of k_g on axial O_2 concentration profiles.Fig. 13. Effect of k_g on axial CO concentration profiles.

재연소반응의 반응속도상수(k_g)변화에 따른 축방향의 온도분포 및 O_2 농도분포를 나타낸 것이다. k_g 값을 비교적 넓은 범위에서 변화시킬 때 freeboard내 온도 및 O_2 농도분포상에 큰 차이를 보이지 않으며 이로부터 CO 재연소반응속도상수의 영향은 매우 작음을 알 수 있다.

Fig. 13은 주어진 k_g 값에 대하여 CO 재연소반응속도상수에 대한 축방향의 CO 농도분포를 나타낸 것이다. 재연소반응속도상수 변화는 CO 농도분포상에 커다란 영향을 주고 있음을 알 수 있다. k_g 값이 작을 경우 생성된 CO의 재연소반응속도가 느리므로 CO 농도는 계속적으로 증가하게 되며 k_g 값이 커질수록 생성된 CO가 급속히 재연소됨으로 CO 농도는 아주 낮은 값을 갖게 된다.

k_g 값이 본 모델에 적용된 값에 대하여 II와 III같이 10배 이상 혹은 IV와 VI같이 1/10 이하로 변화될 때 CO 농도분포상의 차이는 아주 작은 편이나 이들 경우에 freeboard top에서의 CO 농도는 5000 ppm 이상이거나 100 ppm 미만으로서 극단적으로 높거나 낮은 값을 보

임으로써 실제적인 현상과는 큰 거리가 있을 것으로 판단되었다.

이상의 감도분석결과를 종합해 보면 탄소연소반응의 표면반응속도상수는 freeboard내 온도분포, O_2 및 CO 등의 가스농도분포에 커다란 영향을 주며, CO 재연소반응속도상수는 단지 CO 농도분포에 지배적인 영향을 주고 있음을 알 수 있다.

4. 결 론

유동층 연소로내 freeboard 영역의 탄소연소반응에 대한 모델해석을 통해서 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 유동층 연소로내로 공급된 시료의 직접적인 탄소비산과 유동층내 마모작용에 의한 탄소비산을 고려하고 탄소연소반응시 CO의 생성 및 재연소반응을 동시에 고려한 freeboard 탄소연소반응모델은 주어진 조업범위내에서 freeboard 탄소연소반응에 대한 비교적 근사한 해석이 가능함을 보여주었다.

(2) Freeboard 탄소연소반응모델의 kinetic parameter에 대한 민감도분석을 통해서 탄소연소반응의 표면반응속도상수는 freeboard내 온도분포, O_2 및 CO 등의 가스농도분포에 커다란 영향을 주며 CO 재연소반응속도상수는 단지 CO 농도분포에 지배적인 영향을 주고 있음을 알 수 있었다.

(3) 앞으로 freeboard 탄소연소반응에 대한 모델해석에 있어서 탄소체류량의 산출시 비산입자의 입도분포 및 상승속도분포가 고려되어야 하며, 대상시료인 고회분 무연탄에 대한 균일, 불균일 반응에 관련한 reaction kinetics의 적용에 보완이 요구된다.

사용기호

- A_c : cross-sectional area of combustor [m^2]
- A_p : surface area of single carbon particle [m^2]
- $[C]$: carbon concentration in freeboard [$kgmol/m^3$]
- $[C]_0$: initial carbon concentration in freeboard [$kgmol/m^3$]
- C_{pg}, C_{ps} : specific heat of solid and gas [$kcal/kg^\circ C$]
- d_c : diameter of unburned core of carbon particle [m]
- D_i : inside diameter of combustor [m]
- d_p : mean particle diameter of entrained carbon particle [m]
- d_{pt} : particle size having the terminal velocity equal to fluidizing velocity [m]
- E_a : fraction of attrited carbon on feed carbon [%]
- E_g : activation energy for CO oxidation [$kcal/kg$]

mol]

E_{L_i} : carbon elutriation rate from in-bed attrition [kg/hr]

E_{L_f} : carbon elutriation rate from feed coal [kg/hr]

E_a : activation energy for carbon oxidation reaction [kcal/kgmol]

f : fraction of stoichiometric oxygen in the feed oxygen [-]

F_{coal} : coal feed rate [kg/hr]

g : gravitational acceleration constant [m/sec²]

h_p : convectional heat transfer coefficient [kcal/m² sec°C]

$-\Delta H_c$: heat of carbon combustion [kcal/kgmol]

$-\Delta H_g$: heat of CO oxidation reaction [kcal/kgmol]

$-\Delta H_{s1}$: heat released when CO is formed [kcal/kgmol]

$-\Delta H_{s2}$: heat released when CO₂ is formed [kcal/kgmol]

k_g : thermal conductivity of flue gas [kcal/msec °C]

k_{go} : frequency factor for CO oxidation reaction [(m³kgmol)^{0.8}sec⁻¹]

k_{so} : frequency factor for carbon oxidation reaction [m/sec]

L : freeboard height [m]

M_c : molecular weight of carbon [kg/kgmol]

N_g : flue gas mole flow rate [kgmol/sec]

N_p : number of carbon particle contained in unit volume [-]

[O₂] : oxygen concentration in freeboard [kgmol/m³]

P : ratio of CO to CO₂ formed at the carbon surface [-]

Q : heat transfer rate from convection and radiation at particle surface [kcal/sec]

R_1 : gas constant, 82.05 [cm³ atm]/[gmol] [°K]

R : gas constant, 1.987 [cal]/[gmol][°K]

Re : Reynolds number [-]

R_g : reaction rate of CO oxidation reaction [kgmol/sec]

R_s : reaction rate of carbon oxidation reaction [kgmol/sec]

T_b : bed temperature [°C]

T_g : gas temperature in freeboard [°C]

T_a : ambient temperature [°C]

T_s : temperature of solid particle [°C]

T_w : average temperature of freeboard outside wall [°C]

U_g : fluidizing velocity(superficial velocity based on cross-sectional area of fluidized bed) [m

/sec]

U_i : overall heat transfer coefficient of freeboard wall [kcal/m²sec°C]

U_{mf} : minimum fluidization velocity [m/sec]

U_t : terminal velocity of solid particle [m/sec]

X : weight fraction in interval [-]

X_c : weight fraction of carbon in coal [-]

X_f : fraction of elutriation from the feeding coal [-]

Y_{fc} : extent of carbon combustion in freeboard [%]

그리스 문자

ρ_g, ρ_s, ρ_p : density of gas and solid [kg/m³]

ϵ_p : emissivity of carbon particle [-]

μ_g : viscosity of flue gas [kg/m sec]

Φ : mechanism factor [-]

σ : Stefan-Boltzman coefficient, 1.35×10^{-11} [kcal/m²sec⁴K⁴]

ζ : fractional carbon conversion of entrained particles in freeboard [-]

참고문헌

1. Chen, L. H. and Wen, C. Y.: *AIChE J.*, **28**, 1019 (1982).
2. Chen, G. T., Shang, J. Y. and Wen, C. Y.: Proc. of the 1st China-Japan Symp. on Fluidization, Vol. 1, 1(1985).
3. Walsh, P. M., Chaung, T. Z., Dutta, A., Beer, B. M. and Sarofim, A. F.: *Prep. Paper Am. Chem. Soc., Div. Fuel*, **27**, 243(1982).
4. Gibbs, B. M. and Beer, J. M.: *I. Chem. E. Symp. Ser.*, **43**(1975).
5. Tang, J. T., Duqun, J. N., Modrak, T. M. and Aulis, C. J.: Proc. of the 7th Int. Conf. of the 7th Int. Conf. on FBC, 373(1982).
6. Martens, F. J. A., Brouw, H. Op den and Van Koppen, C. W. J.: Proc. of the 7th Int. Conf. on FBC, 1054(1982).
7. Hiram, J., Hosoda, H., Nishizaki, H., Chiba, T. and Kobayashi, H.: *Int. Chem. Eng.*, **24**(3), 502 (1984).
8. Wells, J. W., Byrd, J. R. and Krishnan, R. P.: Proc. of the 7th Int. Conf. on FBC, 2, 284(1982).
9. Tung, S. E., Chaung, T. Z., Sharma, P. K., Hodges, J. and Louis, J. F.: Proc. of the 6th Int. Conf. on FBC, 3, 1131(1980).

10. Zhang, X. H., Cao, Y. Q., Ren, Y. Z., Chen, J. and Hong, Y. H.: Proc. of the 8th Int. Conf. on FBC, Vol. 1, 75(1985).
11. Tomita, M., Hirama, T. and Adachi, T.: Fluidization Science and Technology, ed. by Kwauk, M. and Kunii, D., 1-11(1982).
12. 박영성, 김영성, 손재익, 맹기석: 화학공학, **28**, 568 (1990).
13. Sarofim, A. F. and Beer, J. M.: *Colloquium on Coal Combustion*, 189(1979).
14. Choi, J. H., Park, Y. S., Park, Y. O., Park, W. H. and Son, J. E.: *KJChE*, **2**, 111(1985).
15. Rajan, R. R. and Wen, C. Y.: *AIChEJ.*, **26**, 642(1980).
16. Wen, C. Y. and Lee, S.: Coal Conversion Technology, Addison-Wesley Publishing Co., 130(1979).
17. Arthur, J. R.: *Trans. Faraday Soc.*, **47**, 165(1951).
18. Yates, J. G. and Rowe, P. N.: *Trans. Inst. Chem. Eng.*, **55**, 137(1977).
19. Pillai, K. K.: *Fuel*, **60**, 163(1981).
20. Hottel, H. C., Williams, G. C., Nerheim, N. M. and Schneider, G. R.: 10th Int. Symp. on Combustion, 111(1965).
21. 박영성, 손재익: 화학공학, **28**, 320(1990).
22. 박영철, 손재익, 김상돈: 화학공학, **23**, 213(1985).
23. Barrett, D.: Commonwealth of Australia National Energy Research Development and Demonstration Program, ISSN 0811-9570(1984).
24. Babu, S. P., Shah, B. and Talwalker, A.: *AIChE Symp. Ser.*, **176**(74), 176(1978).
25. Kuni, D. and Levenspiel, O.: Fluidization Engineering, John Wiley & Sons, 76(1969).
26. Froessling, W.: Chapter 24 in Momentum, Heat, and Mass Transfer, ed. by Bennett, C. O. and Myers, J. E., 2nd Ed., McGraw-Hill Inc.(1974).
27. Wang, T. S., Zhang, Y. F., Pan, Z. G., Ren, A. F. and Zhang, Y.: Proc. of the 1st China-Japan Symp. on Fluidization, Vol. 2, 1(1985).
28. 박영성, 손재익: 화학공학, **31**, 287(1993).
29. 박영성: 석탄유동층 연소로에서의 Freeboard 연소 특성에 관한 연구, 충남대학교 박사학위논문(1989).
30. 남궁원, 조용준, 김상돈: 화학공학회 추계학술발표회 논문초록집, 220(1992).