

## 고속유동층에서의 기체혼합특성

남궁원 · 김상돈<sup>†</sup>

한국과학기술원 화학공학과 및 에너지 환경 연구센터  
(1998년 5월 21일 접수, 1998년 7월 20일 채택)

## Gas Mixing Characteristics in a Fast Fluidized Bed

Won Namkung and Sang Done Kim<sup>†</sup>

Department of Chemical Engineering and Energy & Environment Research Center, Korea  
Advanced Institute of Science and Technology, Taejeon 305-701, Korea  
(Received 21 May 1998; accepted 20 July 1998)

### 요 약

고속유동층 반응기(직경 0.1 m, 높이 5.3 m)에서 충물질로 silica sand 입자를 사용하여 기상유속과 고체순환속도가 기체의 반경방향혼합 및 기체역혼합특성에 미치는 영향을 연구하였다. 반경방향의 기체분산계수( $D_r$ )는 고체체류량이 증가할수록 증가하였다. 반경방향의 분산계수( $D_r$ )에 대한 상관식을 Froude number와 무차원군을 사용하여 제시하였다. 벽면 근처에서는 입자의 하강흐름으로 인하여 상당한 양의 기체역혼합이 관찰되었지만, 중심영역에서는 기-고의 높은 상승흐름으로 인하여 기체의 역혼합은 크게 감소하였다. Peclet number의 향으로 기체역혼합계수에 대한 상관식을 무차원군을 사용하여 제시하였다.

**Abstract**—The effects of gas velocity and solid circulation rate on the radial gas mixing and backmixing characteristics have been determined in a fast fluidized bed(0.1 m-I.D.  $\times$  5.3 m-high). Radial gas mixing coefficient( $D_r$ ) increases with increasing solid holdup. Radial gas mixing coefficient has been correlated with the Froude number and the pertinent dimensionless groups. The considerable amount of backmixed tracer gas near the wall region is observed due to the downflow of solids. However, at the center region of the bed, gas backmixing is negligibly small due to high upward flow of gas-solid mixture. Gas backmixing coefficient in terms of Peclet number has been correlated with the dimensionless groups.

**Key words:** Fast Fluidized Bed, Radial Gas Mixing, Gas Backmixing

### 1. 서 론

고속유동층(fast fluidized bed)은 기존의 기포유동층에 비하여 높은 유속에서 조업되는 반응기로 기체와 고체의 접촉효율이 좋고, 연소 특성 및 공해방지특성이 우수하여 기-고 반응기에 널리 사용되고 있다. 그래서, 최근에 이에 대한 연구가 활발히 수행되고 있다.

기-고 반응기의 효율은 기체혼합정도를 조절하여 크게 향상시킬 수 있다. 새로운 반응기의 형태로서 고속유동층내 기체혼합특성의 이해는 실제 설계시 대단히 중요하다[1]. 그러나, 고속유동층내 고체 체류량 등 고체특성 연구에 비하여 상대적으로 기체특성에 대한 연구는 미비한 실정이다. Cankurt와 Yerushalmi[2]는 고속유동층에서 처음으로 기체역혼합특성에 대한 연구를 수행하였다. 이들은 고속유동층에서는 난류유동층에 비하여 기체역혼합이 크게 줄어들어 반응기는 plug 흐름형태로 존재한다고 하였다. 그러나, Brereton 등[3]은 기체체류시간측정으로 기체의 역혼합이 상당히 존재함을 보였다.

이 차이는 순환유동층내의 core-annulus 존재로 인하여 반응기내의 다른 흐름영역이 존재하기 때문이다[4]. 즉, 중심영역에서는 기체와 고체가 빠른 속도로 상승하여 기체의 역혼합이 거의 일어나지 않지만, 벽면근처에서는 입자의 하강흐름이 존재하여 상당한 양의 기체 역혼합이 일어나기 때문이다. 그러므로, 일부 연구자들에 의하여 core-annulus 구조를 바탕으로 기체혼합을 설명하려는 시도가 이루어 졌다[3, 5-7].

Yang 등[8]은 반경방향의 혼합정도는 반경방향의 분산계수( $D_r$ )에 의하여 특징지어지고,  $D_r$ 은 기상유속이 증가하고 고체순환속도가 감소하면 감소한다고 하였다. 반면에 Adams[9]는 기상유속이 증가하고 고체순환속도가 감소하면  $D_r$ 은 증가한다고 하였고, Werther 등[5]은 회박상내의 core 영역에서  $D_r$ 은 기상유속과 고체순환속도에 무관하다고 하였다. Martin 등[10]은  $D_r$ 은 고체순환속도가 증가될 때 미세하게 증가된다고 하였다. 그러나, 이들은 기상유속이  $D_r$ 에 미치는 영향에 대해서는 실험을 수행하지 않았다.

현재까지 조업변수가 기체의 역혼합 및 반경방향의 기체혼합에 미치는 영향에 대한 연구는 미비한 실정이며, 일부 연구 결과에 대하

<sup>†</sup>E-mail : kimsd@cais.kaist.ac.kr

여는 상반된 주장이 존재한다. 그리고, 고속유동층에서 반경방향의 기체혼합 및 기체역혼합계수를 구하기 위한 모델식 및 실험적 상관식은 거의 없는 실정이다. 그러므로, 본 연구에서는 silica sand 입자를 사용하여 고속유동층내에서 기상유속 및 고체순환속도가 기체의 역혼합 및 기체의 반경방향혼합에 미치는 영향을 연구하였고, 본 실험 및 타연구자들의 결과를 사용하여 고속유동층에서 반경방향의 기체혼합 및 역혼합계수를 구하기 위한 실험적 상관식을 제시하였다.

## 2. 실험

### 2-1. 실험장치 및 실험방법

본 연구에서 사용된 상온 순환유동층의 개략도는 Fig. 1과 같다. 전체 장치는 상승관, 싸이클론, 호퍼를 갖는 downcomer와 loop-seal로 구성되어 있다. 상승관의 직경은 0.1 m이고, 분산판으로부터 상승관 상단까지의 높이는 5.3 m로서 내부 흐름현상을 관찰하기 위하여 상승관은 아크릴로 제작되었다. 고체재순환부를 제외한 실험장치에 관한 자세한 내용은 Namkung 등[11]이 보고한 문헌에 나와 있다. Downcomer와 loop-seal은 내부흐름을 관찰하기 위하여 아크릴로 제작되었고, 내경은 0.08 m이다. Downcomer에서 상승관내로 재주입되는 고체의 양은 loop-seal 내로 들어가는 공기의 양을 조절하여 조정하였다. 순환되는 고체속도는 싸이클론에서 포집되어 호퍼로 이동하는 고체흐름을 butterfly valve를 이용하여 sampling bottle내로 흐름경로를 바꾸어 흐르게 한 후 여기서 알려진 높이에 고체가 쌓이는 시간을 측정하는 time of descent 방법에 의하여 측정되었다. Loop-seal을 통한 고체순환속도 조절에 대한 내용은 Kim 등[12]이 보고한 문헌에 자세히 나와 있다. 실험에 사용된 시료는 silica sand로서 평균입경은 125  $\mu\text{m}$ 이고, 겉보기 밀도는 3,055  $\text{kg/m}^3$ 이다.

상승관내의 축방향 압력분포를 측정하기 위하여 상승관의 벽면에 압력 탭을 설치하였다. 층내의 고체체류량 및 압력변동은 pressure transducer와 마노미터를 사용하여 측정하였다. 압력변이는 pressure transducer(Valyline P306D)를 사용하여 측정하였고, 여기서 나온 신

호는 data acquisition system으로 보내져 저장된 후 IBM PC에서 off line으로 처리되었다.

반경방향의 기체혼합특성을 측정하기 위하여 tracer 기체인  $\text{CO}_2$ 는 분산판위 3.0 m 지점에서 주입되었다. Tracer 기체는 반응기의 중심에서 tracer 주입으로 인한 흐름에 미치는 영향을 최소화하기 위하여 injection tube 출구에서 공탐속도와 동일하게 주입되었다. Tracer 기체의 포집은 주입부위 0.25, 0.50, 1.0 m 지점에서 수행되었고, 포집관의 tip은 하방향으로 향하게 설치하였다. 그리고, 포집관은 반경방향으로 기체농도를 측정하기 위하여 반경방향으로의 이동이 가능하게 제작되었고, 포집관을 통한 입자의 역류를 방지하기 위하여 포집관에 filter를 부착하였다. 포집된 기체는 GC(HP 5890II)를 사용하여 분석하였다.

기체의 역혼합특성을 측정하기 위하여 tracer 기체인  $\text{CO}_2$ 를 정상 상태에서 주입하였다. 고속유동층의 축방향으로 농후상, 전이영역, 회박상 영역이 존재하므로 각 영역에 따라 tracer 주입과 포집위치를 다르게 하였다. 회박상 영역인 경우 3.0 m 지점에서 주입하였고, 기체의 포집은 tracer 주입부 아래 0.10, 0.20, 0.35, 0.55 m 지점에서 수행하였다. 그리고, 전이영역과 농후상 영역의 경우 tracer는 각각 분산판위 1.85 m와 1.40 m 지점에서 주입되었으며, 기체의 포집은 각각 주입부 아래 0.10, 0.25, 0.35, 0.55 m와 0.10, 0.25, 0.35, 0.50 m 지점에서 수행되었다. 반경방향으로의 tracer 주입과 포집이 가능하도록, tracer 주입관과 포집관은 반경방향으로 이동이 가능하도록 제작되었다. 회박상 영역의 경우 고체체류량이 core 반지름에 미치는 영향을 최소화하기 위하여 고체체류량은 0.02로 일정하게 유지시켰다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3-1. 기체의 반경방향혼합(radial gas mixing)

반경방향의 혼합정도는 반경방향의 분산계수(radial gas dispersion coefficient,  $D_r$ )에 의하여 특성지어지고, 반경방향의 분산계수는 다음 식을 사용하여 구할 수 있다.

$$U_g \frac{\partial C}{\partial x} = D_r \left( \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} + \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} \right) \quad (1)$$

여기서, 경계조건은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} x &= -\infty & C &\rightarrow C_o \\ r &= R, & \partial C / \partial r &= 0 \end{aligned} \quad (2)$$

그러므로, (2) 식의 경계조건을 이용하여 (1) 식의 해를 구하면 다음과 같다 [13].

$$\frac{C}{C_o} = 1 + \sum_{i=1}^{\infty} \frac{J_0(a_i r^*)}{J_0^2(a_i)} \exp \left( - \frac{2a_i^2 x^*}{\text{Pe}_r} \right) \quad (3)$$

여기서,

$$\text{Pe}_r = \frac{U_g D_r}{D_r}, r^* = \frac{r}{R}, x^* = \frac{x}{R}, J_i(a_i) = 0 \text{이고, } J_i \text{는 } i\text{-th 차수의 first kind}$$

의 Bessel function이고,  $a_i$ 는 Bessel function  $J_i$ 의 ascending order 내의 positive roots이다.

그러므로, (3) 식을 이용하여 주어진 실험 data를 fitting하여  $D_r(\text{Pe}_r)$ 을 구할 수 있다. 여기서,  $D_r$ 과  $U_g$ 는 반경방향으로 일정하다고 가정하였다.

Fig. 2에 실험에서 얻은 반경방향의 data를 (3) 식을 사용하여 curve fitting한 결과를 나타내었다. 실험값은 주입점 위 0.25 m에서 포집된

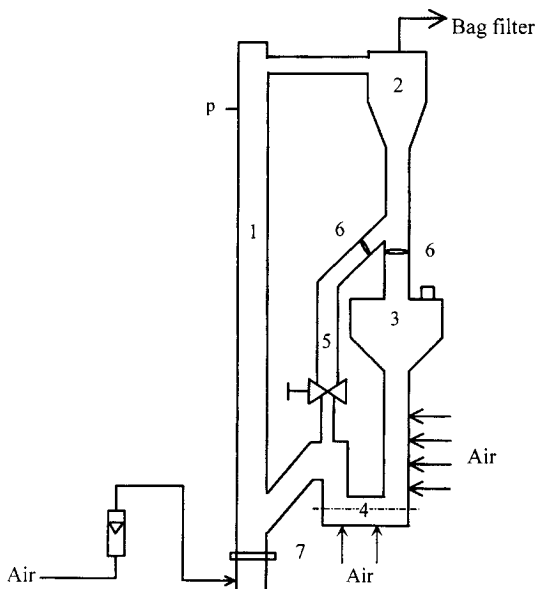
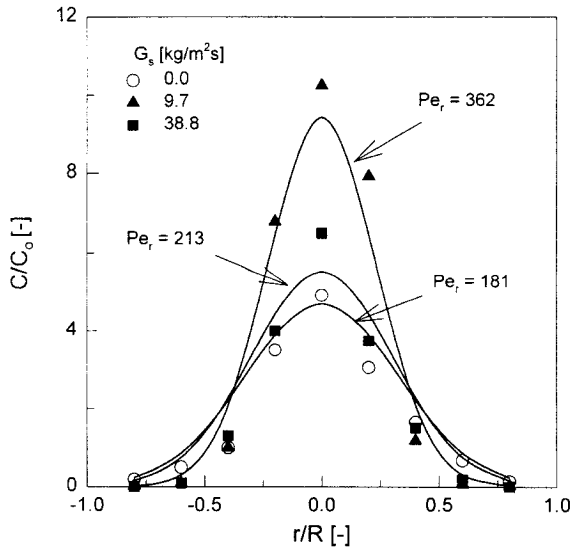
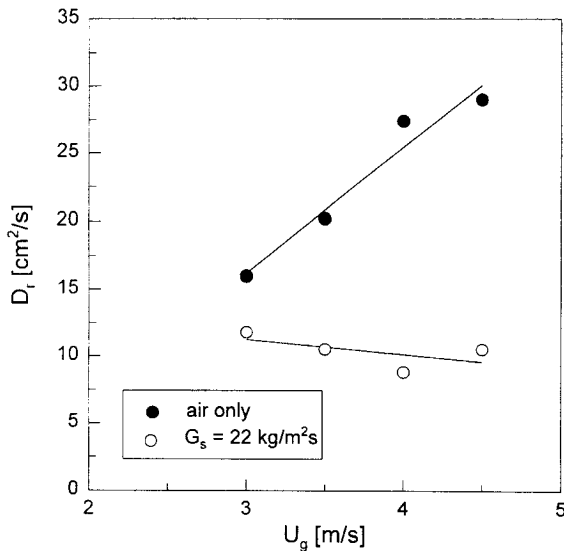


Fig. 1. Schematic diagram of apparatus.

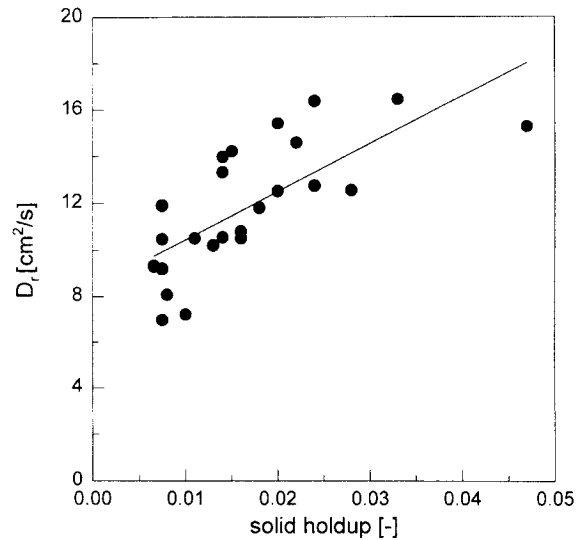
- |              |                    |
|--------------|--------------------|
| 1. Riser     | 5. Sampling bottle |
| 2. Cyclone   | 6. Butterfly valve |
| 3. Hopper    | 7. Distributor     |
| 4. Loop-seal | p: Pressure taps   |

Fig. 2. Tracer gas concentration profile at  $U_g = 3.5$  m/s.Fig. 3. Effect of the presence of particles on  $D_r$ .

값이다. 그림에서 보듯이 tracer gas가 중심에서 주입이 되었기 때문에 sampling 위치에서의 tracer 농도는 중심에서 상당히 높고 벽면으로 갈수록 tracer 농도가 급격히 감소하였다. 그리고  $Pe_r$ 은 (3) 식을 이용하여 실험값을 가장 잘 fitting할 때의 결과로 대체로 (3) 식을 사용하여 실험 data를 curve fitting한 경우, 실험값을 잘 표현함을 알 수 있다.

Fig. 3은 반응기내에 고체를 주입하지 않으면서 공기만 주입하였을 경우와 입자를 주입한 경우 반경방향의 분산계수 값을 비교하여 나타낸 것이다. 그림에서 볼 수 있듯이 입자가 없는 경우  $D_r$ 은 매우 높고 기상유속이 증가할수록 증가하였다. 그러나, 입자의 존재로 인하여  $D_r$ 이 크게 감소함을 알 수 있다. 기체흐름내에 입자의 존재는 turbulent intensity를 증가시키거나 감소시켜  $D_r$ 에 영향을 미치는 것으로 알려져 있다[9]. 일반적으로 입자의 크기가 작은 경우(약 150  $\mu$ m 이하), 입자의 존재는 turbulent intensity를 억제시킨다[14]. 그러므로,  $D_r$ 은 입자의 존재로 기체의 turbulent intensity가 억제되었기 때문에 기체만 있는 경우에 비하여 감소하였다[9, 15].

Fig. 4에 고체체류량이  $D_r$ 에 미치는 영향을 나타내었다. 그림에서

Fig. 4. Effect of solid holdup on  $D_r$ .

보듯이,  $D_r$ 은 고체체류량이 증가할수록 증가하였다. 초기에 입자가 아주 미세하게 존재하는 경우 입자의 존재로 기체흐름의 turbulent intensity는 감소하게 되고, 결국  $D_r$ 은 입자가 없는 경우에 비하여 감소하게 된다. 그러나, 일정한 기상유속에서 고체순환속도가 증가하거나 고정된 고체순환속도에서 기상유속이 감소하면 층내의 고체체류량 또는 입자밀도는 증가된다. 그러므로, 순환되는 입자의 증가는 기체 velocity profile을 방해하고, 이로 인하여 반경방향의 기체혼합계수를 미세하게 증가시킨다[10]. 그리고, 층내 입자밀도의 증가는 벽면에서의 하강흐름을 증가시키게 되고, 이 벽면에서의 하강흐름은 기체의 원주방향으로의 역혼합을 증가시킨다[7]. 기체의 원주방향으로의 역혼합은 기체의 혼합을 증진시키는 역할을 하기 때문에[16], 기체의 반경방향 혼합은 고체체류량이 증가될수록 증가되었다. 결국  $D_r$ 은 일정한 고체순환속도에서 기상유속이 증가할수록, 그리고 고정된 기상유속에서는 고체순환속도가 감소할수록 감소한 Yang 등[8]의 결과와 일치한다.

최근까지 순환유동층에서 여러 연구자들에 의하여 반경방향의 기체혼합이 연구되었지만, 기상유속 및 고체순환속도 등 조건변수에 따라  $D_r$ 을 예측할 수 있는 상관식은 거의 없는 실정이다. 현재까지  $D_r$ 을 예측할 수 있는 실험적 상관식을 제시한 연구자들의 결과를 Table 1에 나타내었다. Amos 등[6]과 Yang 등[8]은 그들의 실험결과만을 사용하여  $D_r$ 을 예측할 수 있는 상관식을 제안하였다. 그러나,

Table 1. Summary on correlation equation of  $Pe_r$  or  $D_r$  in previous studies

Workers	Correlation equations
Amos et al.[6]	$Pe = 3.23Re_m^{0.297}$ , $Re_m = \frac{(G_s + \rho_g U_g) D_r}{\mu}$ , $Pe = \frac{U_g R}{D_r}$
Yang et al.[8]	$D_r \text{ (cm}^2/\text{s)} = 43.4 \frac{U_g}{\left( \frac{U_g}{\varepsilon} - U_p \right)} \cdot \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} + 0.7$
Gayan et al.[15]	$D_r \text{ (m}^2/\text{s)} = 1.4 \times 10^{-6} Re_m^{-1.14} (G_s + 1) \left( \frac{d_p}{\rho_s} \right)^{-1.3} D_r^{1.85}$ $Re_m = \frac{(G_s + U_g \rho_g) D_r}{\mu}$
Wei et al.[17]	$Pe_r = 3.14 \times 10^{-3} Re^{0.95} E^{-73.4}$

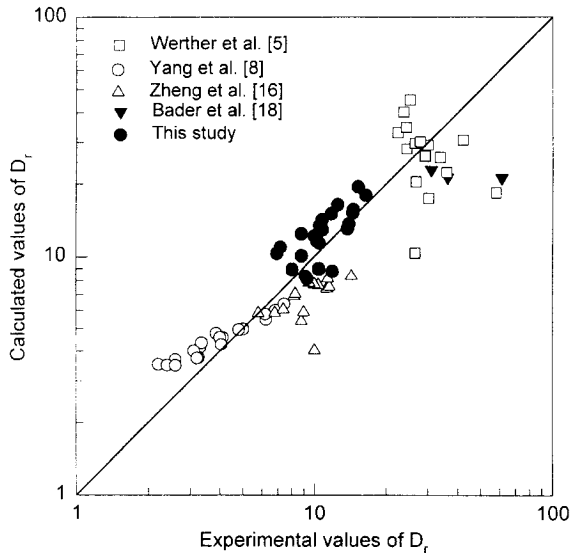


Fig. 5. Comparison between the experimental and calculated values of  $D_r$ .

Amos 등[6]의 상관식은 입자특성에 대한 영향이 고려되지 않았고,  $G_r$ 가 증가함에 따라  $D_r$ 이 증가하여 일부 실험결과와 반대의 경향을 나타내었으며, Yang 등[8]의 실험값은  $2-8 \text{ cm}^2/\text{s}$ 의 범위를 가지는데, 이것은 타연구자들의  $D_r$ 에 비하여 매우 낮은 값이다. 그러므로, 이들의 상관식으로 타연구자들의 결과를 예측하기에는 부적합하다. Wei 등[17]은 downer 반응기에서  $Re$ 와  $\varepsilon$ 의 함수로  $Pe$ 를 예측할 수 있는 실험적 상관식을 제안하였다. 그러나, 그들의 실험값은 본 실험의 결과와는 다르게  $D_r$ 이  $U_g$ 에 따라 증가하고,  $G_r$ 의 증가에 따라 감소하므로 본 실험과 일부 연구자들의 결과를 예측하기에는 부적합하다. 최근에 Gayan 등[15]은 고속유동층에서  $D_r$ 을 예측할 수 있는 실험적 상관식을 제안하였다. 그러나, 제안된 상관식은 그들의 실험결과와는 반대로 일정한 조건에서  $G_r$ 가 증가할수록  $D_r$ 이 감소하는 경향을 나타내었다. 그러므로, 본 실험의 결과 및 다른 연구자들의 결과[5, 8, 16, 18]로부터 조업변수의 함수로  $D_r$ 을 예측할 수 있는 상관식을 Froude number, Reynolds number( $G_r D_r / \mu$ )와 무차원군을 사용하여 다음과 같이 제안하였다.

$$D_r (\text{m}^2/\text{s}) = 2.98 \times 10^{-9} \text{Fr}^{-0.589} \text{Re}_G^{0.516} \left( \frac{\rho_g}{\rho_s} \right)^{-1.234} \quad (4)$$

여기서,  $\text{Fr} = \frac{U_g}{\sqrt{g d_p}}$  이고, correlation coefficient는 0.891이고, 표준편차는 0.588이다. 적용범위는 각각  $53.327 \leq \text{Fr} \leq 223.517$ ,  $3.804 \times 10^4 \leq \text{Re}_G \leq 2.934 \times 10^6$ ,  $3.863 \times 10^{-4} \leq \rho_g/\rho_s \leq 8.477 \times 10^{-4}$ 이다. Fig. 5에서 볼 수 있듯이 (4) 식에 의하여 예측된 값은 실험치와 잘 일치하였다.

### 3-2. 기체의 역혼합(gas backmixing)

현재까지 순환유동층에서 sand 입자를 사용하여 수행된 기체역혼합 실험은 거의 없는 실정이다. Fig. 6에 silica sand 입자를 사용하여 농후상(dense region)에서 반경방향으로 주입위치를 달리했을 때 주입부 아래에서 측정된, 역혼합된 tracer의 반경방향 농도 분포를 나타내었다. 그림에서 보듯이 tracer 주입위치가 중심으로 접근할수록 역혼합되는 tracer 농도의 양은 급격히 감소하였다. 주입위치가  $r/R$ 이 0.9일 때(벽면근처에서 주입했을 때), 벽면에서의 입자의 하강흐름으로 인하여 상당한 양의 역혼합된 tracer 기체가 측정되었다. 그

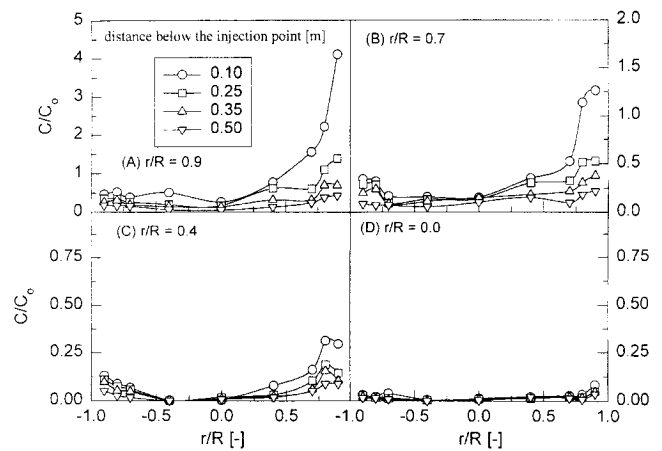


Fig. 6. Backmixed tracer gas concentration in the dense region of silica sand ( $U_g=3.0 \text{ m/s}$ ).

러나, 중심에서 tracer gas를 주입한 경우에는 역혼합된 tracer 기체는 거의 관찰되지 않았다. 고속유동층은 tracer가 벽면이나 중심영역에서 주입되는 것에 관계없이 반경방향의 역혼합된 기체농도가 거의 유사한 기포유동층과는 달리[4], 반경방향으로의 주입위치에 따라 역혼합된 기체의 농도 차이가 크게 나타났다. 이것은, 중심영역에서는 기체와 고체가 빠른 속도로 상승하여 기체의 역혼합이 거의 일어나지 않지만 벽면근처에서는 입자의 하강 흐름이 존재하여 기체의 역혼합이 일어나기 때문이다. 기체의 역혼합은 하강하는 입자가 주위의 기체를 안고 내려오기 때문에 일어나며, 기포유동층의 경우에는 공압속도가  $3 U_{mf}$  이상일 경우 일반적으로 일어나는 현상이다[19]. 그림에서 볼 수 있듯이, 역혼합된 기체의 양은 주입부에서 멀어질수록 감소하여, 주입부 아래 0.50 m 지점에서는 역혼합된 tracer 농도가 크게 감소하였다. 농후상영역의 경우와 마찬가지로 전이 영역과 회박상 영역도 반경방향으로의 주입위치에 따라 같은 경향을 나타내었다.

유동층내에서 역혼합계수는 1차원 흐름에 기초한 분산모델(dispersion model)로부터 구할 수 있다. 정상상태에서 조업되고, 반경방향의 혼합은 대류향에 비하여 무시할 수 있으므로, 만약 다른 화학반응이 일어나지 않는다면 분산모델은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\varepsilon D_{ba} \frac{d^2 C}{dx^2} - \varepsilon \frac{U_g}{\varepsilon} \frac{dC}{dx} = 0 \quad (5)$$

여기서, 경계조건은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} x=0, & \quad C/C_0=1 \\ x=-\infty, & \quad C/C_0=0 \end{aligned} \quad (6)$$

(6) 식의 경계 조건을 사용하여 (5) 식의 해를 구하면 다음과 같다.

$$\frac{C}{C_0} = \exp \left( \frac{U_g}{\varepsilon D_{ba}} x \right) \quad (7)$$

여기서  $D_{ba}$ 는 역혼합계수이고,  $C_0$ 는 주입 위치에서의 tracer gas의 단면적에 대한 평균 농도이다. (7) 식을 사용하여  $D_{ba}$ 를 구하기 위하여 각 측정 위치에서 반경 방향의 tracer 기체 농도의 평균값을 사용하였다. 기체역혼합계수  $D_{ba}$ 는 (7) 식으로부터 주어진 기상유속( $U_g$ )과 측정된 고체체류량을 사용하여  $C/C_0$  대  $x$ 의 semi-log plot의 기울기로부터 구하였다.

Fig. 7에 회박상, 전이 영역, 농후상 영역에서의 구한  $D_{ba}$ 를 FCC 입자[4, 20]를 사용하여 구한  $D_{ba}$ 와 비교하여  $U_g$ 의 함수로 나타내었다.

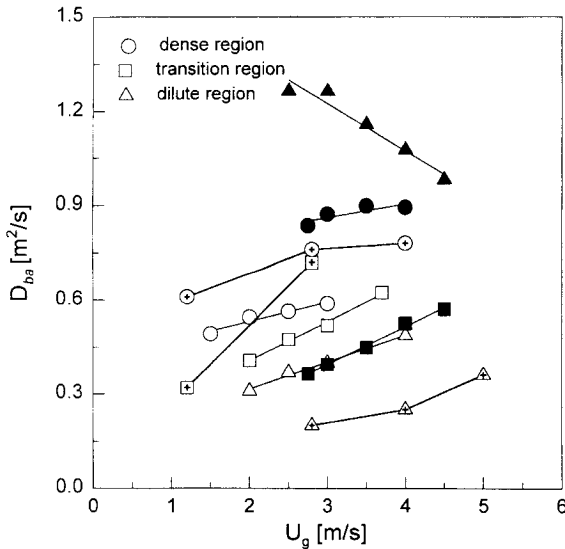


Fig. 7. Effect of  $U_g$  on the gas backmixing coefficients.

Silica sand의 경우 FCC 입자에 비하여 농후상과 희박상 영역의 경우 기체역혼합계수가 높게 나타났다. 전이 영역의 경우 silica sand 입자의 경우가 FCC 입자에 비하여 상대적으로  $D_{ba}$ 가 낮은 값을 갖는데, 이것은 sand 입자를 사용한 경우 전이 영역에서의 고체체류량( $\epsilon_s=0.03-0.06$ )이 FCC 입자의 전이 영역 고체체류량( $\epsilon_s=0.06-0.08$ )보다 작기 때문으로 생각된다. 기체흐름내에 입자의 존재는 air turbulence를 증진시키거나 억제시키는 역할을 한다[9]. 그리고,  $Re_p$ 가 낮은 경우의 입자는 turbulence를 억제시키고,  $Re_p=[(U_g - U_p)d_p(\rho_s - \rho_g)/\mu]$ 가 높은 경우 wake shedding으로 인하여 turbulence를 증진시킨다[21]. 본 실험 범위에서 sand 입자의 경우가 FCC 입자보다  $Re_p$ 가 높기 때문에 FCC 입자가 모래입자보다 air turbulence를 더 많이 억제시킬 것으로 생각된다. 그러므로, sand 경우가 FCC 입자에 비하여  $D_{ba}$ 가 높게 나타난 것으로 사료된다.

고속유동층내의 희박상 영역에서 core-annulus 구조로 인하여 기체의 역혼합특성은 core와 annulus 영역이 다른 것으로 알려져 있다. 그러므로, Namkung과 Kim[7, 20]은 고속유동층의 희박상 영역에서 기체역혼합계수와 core와 annulus 영역사이의 물질전달계수인  $k$ 를 구하기 위한 core-annulus 모델식을 다음과 같이 제안하였다.

$$\text{core: } \epsilon_c U_c \frac{dC_c}{dx} + \frac{2k}{r_c} (C_c - C_a) = 0 \quad (8)$$

$$\text{annulus: } -D_{bc} \epsilon_a \frac{d^2 C_a}{dx^2} + \frac{2r_c}{R^2 - r_c^2} k (C_a - C_c) = 0 \quad (9)$$

만약,  $x$ 가 주입위치에서  $-\infty$ 에 접근한다면, core와 annulus에서의 tracer 농도는 0에 접근할 것이다. 또한, 주입위치에서 core와 annulus의 농도의 합은 주입된 tracer 농도  $C_o$ 와 같으므로, 이 두 경계 조건을 식으로 나타내면 식 (10)과 (11) 처럼 된다.

$$\text{b.c.) } x = -\infty, \quad \frac{C_a}{C_o} = \frac{C_c}{C_o} = 0 \quad (10)$$

$$x = 0, \quad \left[ 1 - \left( \frac{r_c}{R} \right)^2 \right] \frac{C_a}{C_o} + \left( \frac{r_c}{R} \right)^2 \frac{C_c}{C_o} = 1 \quad (11)$$

식 (10)과 (11)의 경계 조건을 이용하여 식 (8)과 (9)의 해를 구하면 다음과 같다.

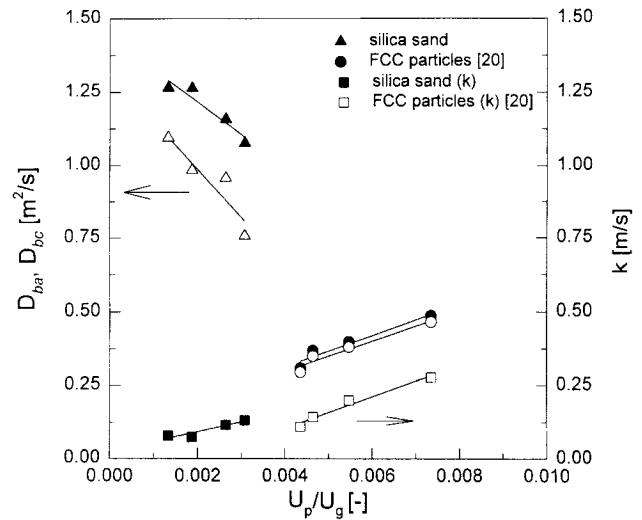


Fig. 8. Effect of  $U_p/U_g$  on  $D_b$  and  $k$  with FCC and silica sand particles in the dilute region.

$$\frac{C_a}{C_o} = \frac{(a + \epsilon_c \mu_c r_1) e^{bx}}{a + \epsilon_c U_c r_1 \left[ 1 - \left( \frac{r_c}{R} \right)^2 \right]} \quad (12)$$

$$\frac{C_c}{C_o} = \frac{a e^{bx}}{a + \epsilon_c U_c r_1 \left[ 1 - \left( \frac{r_c}{R} \right)^2 \right]} \quad (13)$$

$$\text{where } a = \frac{2k}{r_c}, \quad b = \frac{2r_c k}{R^2 - r_c^2}$$

$$r_1 = \frac{-\frac{a}{\epsilon_c U_c} + \sqrt{\left( \frac{a}{\epsilon_c U_c} \right)^2 + \frac{4b}{\epsilon_a D_{bc}}}}{2} \quad (14)$$

이 모델을 이용하여  $D_{bc}$ 와  $k$ 를 구하려면  $r_c$ ,  $\epsilon_{sc}$ ,  $\epsilon_{sa}$ 에 대한 정보가 필요하다. 여기서는 Kagawa 등[22]이 제시한  $\epsilon_{sc}=0.6\epsilon_s$ ,  $\epsilon_{sa}=2.0\epsilon_s$ 를 사용하였고, core 반지름  $r_c$ 는 여러 연구자들에 의하여 제시된  $r_c=0.85R$ 을 사용하였다[5, 22].

Fig. 8에 FCC 입자와 silica sand 입자에 대하여 희박상 영역에서 입자유속( $U_p=G/\rho_s$ ) 대 기상유속비의 함수로 core-annulus 모델에 의하여 구한  $D_{bc}$ 와 axial dispersion model에 의하여 구한  $D_{ba}$ 를 비교하여 나타내었다. Core-annulus 모델에 의하여 구한  $D_{bc}$ 가 axial dispersion model에 의하여 구한  $D_{ba}$ 보다 낮은 값을 갖는데, 이 차이는 core-annulus 모델 전개시 core 영역에서의 기체역혼합이 무시할 만큼 작다는 가정으로부터 기인된다. 실제 core와 annulus 영역사이의 기체와 고체의 물질전달때문에 core 영역에서도 역혼합된 tracer 기체가 미세하게 존재한다. 특히, sand 입자는 wall에서 tracer를 주입한 경우 상당히 많은 양이 역혼합되어, 중심 영역에서도 core-annulus 간의 물질 전달로 인하여 FCC 입자에 비하여 역혼합된 tracer 농도가 높게 나타났다. 그러므로, sand 입자의 경우에는 FCC 입자에 비하여 dispersion model과 core-annulus model에 의하여 구한 기체역혼합계수에 차이가 많이 났다. 그림에서 보듯이 FCC 입자의 경우와 달리 sand 입자의 경우는 기체역혼합계수값이 매우 높고  $U_p/U_g$ 가 증가할수록 감소하였다. Rhodes 등[23]이 제안한 모델식에 의하여 wall에서의 입자의 하강속도를 구하면, sand 입자( $U=0.88$  m/s)의 경우 wall에서의  $(r/R=0.9)$  입자 하강속도가 0.307–0.570 m/s의 범위이고, FCC 입자( $U=0.19$  m/s)의 경우는 wall에서의  $(r/R=0.9)$  입자 하강속도가 0.200

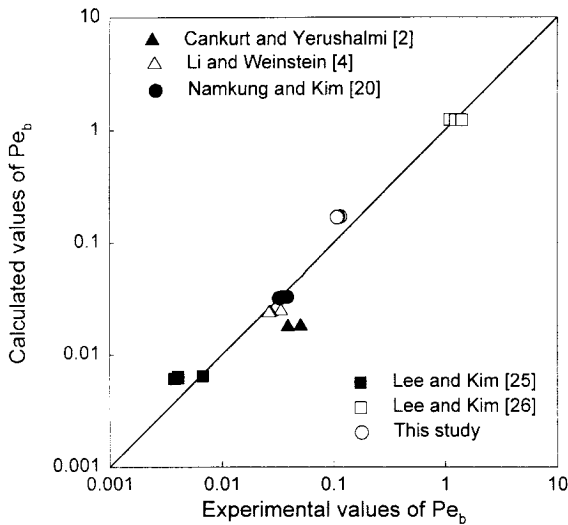


Fig. 9. Comparison between the experimental and calculated values of  $Pe_b$ .

- 0.680 m/s로서 본 실험의 범위에서는 두 입자가 비슷한 하강속도를 갖는다. 그러므로, 유사한 고체체류량에서 상대적으로 입자가 큰 sand 입자가 FCC 입자에 비하여 더 많은 기체를 주위에 안고 내려올 것으로 생각된다. 그러므로, sand 입자를 사용한 경우가 FCC 입자에 비하여 기체역혼합계수가 더 높은 값을 가질 것으로 생각된다. 그러나, 현재까지 회박상영역에서 모래입자를 사용하여 기체역혼합계수를 구한 실험이 거의 없는 실정이다. 그러므로, 회박상 영역에서 조업변수가 기체역혼합계수에 미치는 영향에 대한 연구가 더 필요하다.

그리고, Fig. 8에서 볼 수 있듯이  $U_p/U_g$ 가 증가할수록 core와 annulus 간의 물질전달계수  $k$ 는 증가하였다. 회박상내에서 기상유속의 증가에 따라 일정한 고체체류량을 유지시키기 위해서는 고체순환속도도 증가되어야 한다. 따라서, 기상유속이 증가되면  $U_p/U_g$ 도 증가된다. 그러므로, 물질전달계수  $k$ 는  $U_p/U_g$ 가 증가될수록 반응기 중심에서의 기체와 고체의 상승흐름이 증가되는 동시에 벽면에서 고체순환속도의 증가로 입자의 하강속도도 증가되기 때문에 증가되었다.

기체혼합을 설명하기 위해서는 다음과 같은 3개의 혼합 계수가 필요하다.

- (1) Axial dispersion coefficient( $D_a$ ): RTD 측정
- (2) Backmixing coefficient( $D_{ba}$ ): tracer gas 주입부 아래의 농도 profile
- (3) Radial dispersion coefficient( $D_r$ ): tracer gas 주입부 위의 농도 profile로부터 구할 수 있다.

이들 계수들간에는 다음과 같은 관계가 존재한다[24].

$$\frac{D_a}{U_g D_t} = \frac{D_{ba}}{U_g D_t} + \frac{\beta U_g D_t}{D_r} \quad (15)$$

여기서,  $\beta$ 는 반응기내의 기체속도 profile의 특성을 나타내는 값이다. 즉, parabolic profile인 경우  $\beta=1/196$ , turbulent single phase인 경우  $\beta=5 \times 10^{-4}$ 이고 uniform flow인 경우는  $\beta=0$ 이다. Sand 입자의 경우 회박상 영역에서 같은 실험조건에서 수행한  $D_{ba}$ 는  $0.98 - 1.37 \text{ m}^2/\text{s}$ 이고,  $D_r$ 은  $7.2 \times 10^{-4} - 13.0 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ 로서, (15) 식을 사용하여 axial dispersion coefficient를 구하면 sand 입자의 경우  $1.69 - 1.87 \text{ m}^2/\text{s}$ 의 범위를 가진다.  $\beta$ 는 Bader 등[18]과 마찬가지로  $1/196$ 을 사용하였다. 그러므로, 반경방향의 기체혼합계수는 기체역혼합계수에 비하여 축방향 분산계수에 더 크게 영향을 미침을 알 수 있다.

현재까지 난류유동층과 고속유동층에서 기체역혼합계수를 예측하기 위한 상관식은 거의 없다. Li와 Wu[1]는 순환유동층에서 고체체류량만의 함수로 축방향분산계수를 예측할 수 있는 상관식을 제안하였다. 그러나, 이 상관식은 조업변수에 대한 영향이 고려되지 않았기 때문에 타연구자들의 결과를 적용하는데에는 한계가 있다. 그러므로, 본 연구에서는 난류유동층과 고속유동층의 농후상 영역에서 본 실험과 타연구자들의 결과[2, 4, 20, 25, 26]를 사용하여 Peclet number ( $Pe_b$ )의 함수로 기체역혼합계수( $D_{ba}$ )를 예측할 수 있는 다음과 같은 상관식을 제안하였다.

$$Pe_b = 5.681 \times 10^{-3} Ar^{0.662} Re^{-0.036} \quad (16)$$

여기서, 상관계수는 0.995이고, 표준편차는 0.138이다. 적용범위는 각각  $1.122 \leq Ar \leq 4048.863$ ,  $0.235 \leq Re \leq 32.065$ 이다. Fig. 9에서 볼 수 있듯이 실험치와 계산치는 대체로 잘 일치하였다.

## 4. 결 론

이상의 결과로부터 다음과 같은 결론을 얻었다.

- (1) Silica sand 입자의 반경방향의 혼합계수  $D_r$ 은 고체체류량이 증가될수록 증가하였다.
- (2) 반경방향의 기체혼합계수  $D_r$ 에 대한 상관식을 다음과 같은 Froude number, Reynolds number와 무차원군으로 나타내었다.

$$D_r \text{ (m}^2/\text{s)} = 2.98 \times 10^{-9} Fr^{-0.589} Re_G^{0.516} \left( \frac{\rho_g}{\rho_s} \right)^{-1.234}$$

- (3) 기체의 역혼합은 벽면근처에서는 고체의 하강흐름으로 인하여 상당히 존재하는 반면에, 중심에서는 기-고의 높은 상승흐름으로 인하여 기체의 역혼합은 거의 존재하지 않았다.
- (4) Sand 입자의 경우가 FCC 입자에 비하여 농후상과 회박상 영역에서 기체역혼합계수값은 더 높게 나타났다.
- (5) Peclet number의 함수로 난류유동층과 고속유동층의 농후상 영역에서  $D_{ba}$ 를 예측할 수 있는 상관식을 Reynolds number와 Archimedes number를 사용하여 다음과 같이 나타내었다.

$$Pe_b = 5.681 \times 10^{-3} Ar^{0.662} Re^{-0.036}$$

## 사용기호

- $a_i$  : positive roots in ascending order of Bessel function of first kind of first order
- $Ar$  : Archimedes number [-]
- $C$  : concentration of tracer gas [mol/m<sup>3</sup>]
- $C_a$  : measured conc. of tracer gas in the annulus region [mol/m<sup>3</sup>]
- $C_c$  : measured conc. of tracer gas in the core region [mol/m<sup>3</sup>]
- $C_o$  : conc. of tracer gas at injection level, mean mixed vol%, tracer volumetric flow rate/( $U_g$  multiplied by the bed area) [mol/m<sup>3</sup>]
- $d_p$  : mean diameter of particle [m]
- $D_a$  : axial gas dispersion coefficient [m<sup>2</sup>/s]
- $D_{ba}$  : gas backmixing coefficient from the axial dispersion model [m<sup>2</sup>/s]
- $D_{bc}$  : gas backmixing coefficient from the core-annulus model [m<sup>2</sup>/s]
- $D_r$  : radial gas dispersion coefficient [m<sup>2</sup>/s]
- $D_t$  : diameter of riser [m]
- $Fr$  : Froude number [-]
- $G_s$  : solid circulation rate [kg/m<sup>2</sup>/s]

- $J_i$  : Bessel function of first kind of  $i$ -th order  
 $k$  : mass transfer coefficient between core and annulus region [m/s]  
 $Pe_p$  : Peclet number based on gas backmixing coefficient and terminal velocity( $=U_g D_p / D_{ao}$ ) [-]  
 $Pe_r$  : Peclet number( $=U_g D_p / D_r$ ) [-]  
 $R$  : radius of riser [m]  
 $r$  : radial distance from centerline [m]  
 $r_c$  : radius of core [m]  
 $Re$  : Reynolds number( $=U_g \rho_p d_p / \mu$ ) [-]  
 $Re_G$  : Reynolds number based on solid circulation rate and column diameter( $=G_s D_p / \mu$ ) [-]  
 $Re_p$  : Reynolds number based on particle diameter( $=\{(U_g - U_p) d_p (\rho_s - \rho_g)\} / \mu$ ) [-]  
 $U_c$  : gas velocity in the core [m/s]  
 $U_g$  : superficial gas velocity [m/s]  
 $U_{mf}$  : minimum fluidization velocity [m/s]  
 $U_p$  : particle velocity( $=G_s / \rho_s$ ) [m/s]  
 $U_t$  : particle terminal velocity [m/s]  
 $x$  : vertical distance from the tracer gas injected level [m]

### 그리스 문자

- $\epsilon$  : gas voidage [-]  
 $\epsilon_s$  : solid holdup [-]  
 $\epsilon_{sa}$  : solid holdup in the annulus region [-]  
 $\epsilon_{sc}$  : solid holdup in the core region [-]  
 $\mu$  : air viscosity [kg/ms]  
 $\rho_p$  : apparent density of particle [kg/m<sup>3</sup>]  
 $\rho_g$  : gas density [kg/m<sup>3</sup>]

### 참고문헌

- Li, Y. and Wu, P.: "Circulating Fluidized Bed Technol. III", eds. by Basu, P., Horio, M. and Hasatani, M., Pergamon Press, 581 (1991).
- Cankurt, N. T. and Yerushalmi, J.: "Fluidization", eds. by Davidson, J. F. and Keairns, D. L., Cambridge Univ. Press, 387(1978).
- Brereton, C. M. H., Grace, J. R. and Yu, J.: "Circulating Fluidized Bed Technol. II", eds. by Basu, P. and Large, J. F., Pergamon Press, 307(1988).
- Li, J. and Weinstein, H.: *Chem. Eng. Sci.*, **44**, 1697(1989).
- Werther, J., Hartge, E. U. and Kruse, M.: *Powder Technol.*, **70**, 293(1992).
- Amos, G., Rhodes, M. J. and Mineo, H.: *Chem. Eng. Sci.*, **48**, 943 (1993).
- Namkung, W. and Kim, S. D.: "Circulating Fluidized Bed Technol. V", eds. by Kwauk, M. and Li, J., Science Press, Beijing, 134(1997).
- Yang, G., Zhe, H. and Zhao, L.: "Fluidization IV", eds. by Kunii, D. and Toei, R., Engineering Foundation, 145(1984).
- Adams, C. K.: "Circulating Fluidized Bed Technol. II", eds. by Basu, P. and Large, J. F., Pergamon Press, 299(1988).
- Martin, M. P., Turlior, P., Bernard, J. R. and Wild, G.: *Powder Technol.*, **70**, 249(1992).
- Namkung, W., Cho, Y. J. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **32**, 241(1994).
- Kim, S. W., Namkung, W. and Kim, S. D.: Proc. of 10th Symposium on Chem. Eng. Taejon/Chungnam-Kyushu, 149(1997).
- Klinkenberg, A., Krajenbrink, H. J. and Lauwerier, H. A.: *Ind. Eng. Chem.*, **45**, 1202(1953).
- Tsuji, Y., Morikawa, Y. and Shiomi, H.: *J. Fluid Mech.*, **139**, 417 (1984).
- Gayan, P., de Diego, L. F. and Adanez, J.: *Powder Technol.*, **94**, 163(1997).
- Zheng, Q., Wei, X. and Fei, L.: "Fluidization VII", eds. by Potter, O. E. and Nicklin, D. J., Engineering Foundation, 285(1992).
- Wei, F., Jin, Y., Yu, Z. and Liu, J.: *Chem. Eng. Technol.*, **18**, 59 (1995).
- Bader, R., Findlay, J. and Knowlton, T. M.: "Circulating Fluidized Bed Technol. II", eds. by Basu, P. and Large, J. F., Pergamon Press, 123(1988).
- Nguyen, H. V., Potter, O. E., Dent, D. C. and Whitehead, A. B.: *AIChE J.*, **27**, 509(1981).
- Namkung, W. and Kim, S. D.: *Powder Technol.*, in Press(1998).
- Hetsroni, G.: *Int. J. Multiphase Flow*, **15**, 735(1989).
- Kagawa, H., Mineo, H., Yamazaki, K. and Yoshida, K.: "Circulating Fluidized Bed Technol. III", eds. by Basu, P., Horio, M. and Hasatani, M. 551(1991).
- Rhodes, M. J., Wang, X. C., Cheng, H., Hiram, T. and Gibbs, B. M.: *Chem. Eng. Sci.*, **47**, 1635(1992).
- Schgerl, K.: Proc. of the Int. Symp. on Fluidization, eds. by Drinkenburg, A. A. M., 782(1967).
- Lee, J. S. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **20**, 207(1982).
- Lee, G. S. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Comm.*, **86**, 91(1989).