

삼상순환유동층에서 상체류량 특성

김성훈 · 조용준 · 송평섭 · 강 용[†] · 김상돈*

충남대학교 화학공학과

*한국과학기술원 화학공학과

(1999년 3월 18일 접수, 1999년 7월 8일 채택)

Phase Holdup Characteristics in Three-Phase Circulating Fluidized Beds

Sung Hun Kim, Yong Jun Cho, Pyung Sub Song, Yong Kang[†] and Sang Done Kim*

Department of Chemical Engineering, Chungnam National University, Taejeon 305-764, Korea

*Department of Chemical Engineering, KAIST, Taejeon 305-701, Korea

(Received 18 March 1999; accepted 8 July 1999)

요 약

기체-액체-고체 삼상순환유동층(직경 0.102 m×높이 3.5 m)에서 각 상들의 체류량 특성을 고찰하였다. 분산상인 기체상과 연속상인 액체상의 유속 그리고 고체 순환속도의 변화가 기체, 액체, 고체 각 상들의 체류량의 변화 및 축방향 체류량 분포에 미치는 영향을 검토하였다. 분산상인 기체로는 건조공기를, 연속상인 액상으로는 물을, 그리고 고체 입자로는 2.1 mm의 유리구를 사용하였다. 분산상인 기체의 체류량은 분산상의 유속이 증가함에 따라 증가하지만 액체의 유속과 고체 순환속도에는 큰 영향을 받지 않았으며, 연속상인 액체의 체류량은 액체유속이 증가하면 증가하였으나 기체 유속 및 고체 순환속도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다. 한편, 고체 체류량은 기체 유속이 증가함에 따라 약간 증가하나 액체 유속의 증가에 따라서는 감소하는 경향을 나타내었고 고체순환속도의 증가에 따라서는 증가하였다. 축방향 고체체류량은 액체 유속이 증가함에 따라 그 분포가 점점 균일해졌다. 기체의 체류량과 총공극률은 조작변수인 액체 및 기체 유속 그리고 고체 순환속도들과의 상관식으로 나타낼 수 있었다.

Abstract – Phase holdup characteristics have been investigated in a gas-liquid-solid circulating fluidized bed(0.102 m I.D.×3.5 m in height). Effects of velocities of dispersed gas and continuous liquid phases and solid circulation rate on the individual phase holdup and its axial distribution in the bed have been determined. Compressed air and water have been used as a dispersed gas and a continuous liquid phase, respectively, while glass beads with the diameter of 2.1 mm have been used as a fluidized solid phase. It has been found that the gas holdup has increased with increasing dispersed gas velocity, but liquid velocity and solid circulation rate have little effect on the gas holdup. The liquid holdup has increased with increasing liquid velocity, however, it has decreased with increasing gas velocity and solid circulation rate. The solid holdup has increased with increasing solid circulation rate and gas velocity, whereas, it has decreased with increasing liquid velocity. The axial distribution of solid holdup has become uniform with increasing liquid velocity. The gas holdup and bed porosity have been well correlated in terms of operating variables such as gas and liquid velocities and solid circulation rate.

Key words: Gas-Liquid-Solid Fluidized Bed, Solid Circulation Rate, Phase Holdup Characteristics, Bed Porosity

1. 서 론

기체-액체-고체 삼상유동층 반응기에서 고체 촉매입자의 비활성 현상이 발생하게 되면, 비활성된 촉매 입자를 다시 활성화시킨 후 층내로 유입시키는 작업을 수행할 수 있는 반응기로 삼상순환유동층 반응기가 매우 효과적이라 할 수 있다.

기존의 비순환 삼상유동층과 비교하여 삼상순환유동층은 입자의 종말속도 보다 높은 기체 및 액체 유속 상태에서 조작되기 때문에 고

체 입자의 혼합을 촉진시킬 수 있으며, 단위 장치당 생산량을 증가시킬 수 있고, 좀더 균일한 기포 크기 분포와 상체류량을 가지며 기존의 삼상유동층에서 발생할 수 있는 dead zone을 없앨 수 있기 때문에 기체-액체-고체간의 접촉효율을 더욱 증가시켜 반응전환율을 획기적으로 증가시킬 수 있을 뿐만 아니라 발열 반응 시 고체의 순환은 열에너지의 층 내에서 매우 효과적으로 제거시키는 역할을 하여 반응기 내의 안정성을 잘 유지할 수 있다는 등의 장점을 가지고 있다 [1-3].

삼상유동층의 수력학적 특성과 열전달과 물질전달 등에 관한 연구들은 현재까지 많이 진행되어오고 있으나[4-10], 고체 입자의 종말 속

[†]E-mail: kangyong@hanbat.chungnam.ac.kr

도보다 높은 액체 유속에서 운전되는 삼상유동층의 수력학적 특성에 대한 연구는 현재 국내·외를 막론하고 매우 미흡한 실정이다[1-3, 11].

산업적으로 삼상순환유동층을 촉매를 사용한 기체-액체 반응기나 기체-액체 반응을 동반한 흡착 및 흡수계 또는 다상의 접촉공정 그리고 생물 반응기 등에 응용하기 위해서는 삼상순환유동층의 각 조업 조건의 특성과 이에 따른 상체류량 특성 등 수력학적 특성에 대한 정보가 필수적으로 요구된다. 따라서, 본 연구에서는 기체-액체-고체 삼상순환유동층에서 기체, 액체의 유속과 고체의 순환속도변화에 따른 층 내의 수력학적 특성의 변화를 고찰하고자 하였으며, 각 상의 체류량 특성 변화와 기체, 액체의 유속과, 그리고 고체의 순환속도 등 주요 운전변수가 각 상의 체류량에 미치는 영향을 검토하였다.

2. 실험

본 연구의 실험에 사용한 삼상순환유동층 장치는 Fig. 1에서 보는 바와 같이 상승관은 직경이 0.102 m이고 높이가 3.5 m인 아크릴 관을 사용하였다. 연속상의 분산관은 다공관 형태를 사용하였는데, 직경 3 mm의 구멍을 삼각파치로 균일하게 배치하였으며 분산상의 주입을 위해서는 연속상 분배기 중간에 직경 6.35 mm의 관을 삽입하여 용접한 후 이 관에 직경 1 mm의 오리피스를 만들어 분산상과 연속상이 동일면에서 유동층 내에 주입되도록 하였다. 연속상인 액체로는 상온의 물을, 분산상인 기체로는 여과된 압축공기를 사용하였고, 고체 입자로는 직경이 2.1 mm이고 밀도가 2,500 kg/m³인 유리구를 사용하였다.

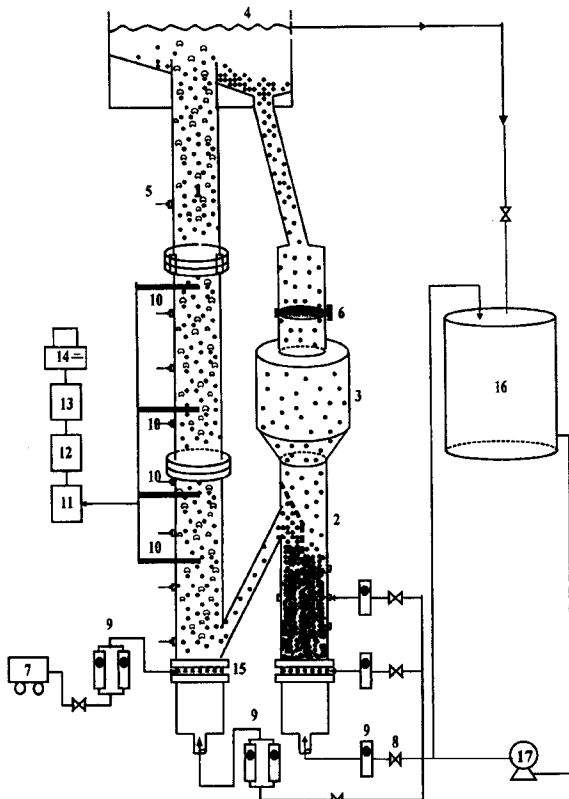


Fig. 1. Schematic diagram of a three-phase circulating fluidized bed.

- | | | |
|--------------------|-----------------------|----------------------|
| 1. Riser | 7. Compressor | 13. A/D converter |
| 2. Down comer | 8. Control valve | 14. Computer |
| 3. Hopper | 9. Flowmeter | 15. G/L distributor |
| 4. L/S separator | 10. Resistivity probe | 16. Liquid reservoir |
| 5. Pressure tap | 11. Amplifier | 17. Pump |
| 6. Butterfly valve | 12. Low-pass filter | |

용하였다. 실험 범위는 기체의 유속이 0.01-0.07 m/s이고 액체의 유속은 0.025-0.31 m/s이었다.

실험장치는 고체 입자를 유동화하여 유출시키는 상승관과 상승관 상부의 액체-고체 분리부, 고체입자를 저장하는 hopper, 그리고 고체 입자를 일정한 순환속도로 다시 상승관에 주입시키는 내부 loop-seal로 구성되어 있다. Loop-seal의 하부와 측면에서는 일정한 유속의 액체를 주입하여 상승관으로 다시 유입되는 고체의 양을 조절하였고 순환되는 고체의 양은 butterfly valve를 이용하여 실험적으로 구하였는데[12,13], 본 연구에 사용한 고체 순환 속도는 2-8 kg/m²·s이었다.

기체의 체류량은 electrical conductivity probe를 이용하여 분산관으로부터 0.5, 0.9, 1.3, 1.7 m의 높이에서 측방향 4지점에서 측정하였다[14]. 또한, 측방향높이에 따라 20 cm간격으로 압력측정 탭을 설치하고 압력센서(coppel electronics)를 이용하여 각 위치에서 정압력강하를 측정하였다.

전기전도도 탐침의 변화자료로부터, 측정지점에서의 국부 기체 체류량은 식 (1)에 의해 구하였다. 식 (1)에서 t_i 는

$$(\epsilon_G)_i = \frac{\sum t_i}{T} \quad (1)$$

기포가 탐침에 머문 시간을 나타내고, T는 각 지점에서 전체 측정 시간을 나타낸다. 한편, 일정 실험조건에서 기체의 평균체류량은 측방향 4지점에서 측정한 국부 기체체류량의 평균값으로 결정하였으며, 액체와 고체 입자의 평균체류량은 실험적으로 측정된 기체의 체류량 값을 식 (2)와 (3)에 대입하여 구하였다.

$$\frac{\Delta P}{\Delta Z} = (\rho_G \epsilon_G + \rho_L \epsilon_L + \rho_S \epsilon_S)g \quad (2)$$

$$\rho_G + \rho_L + \rho_S = 1 \quad (3)$$

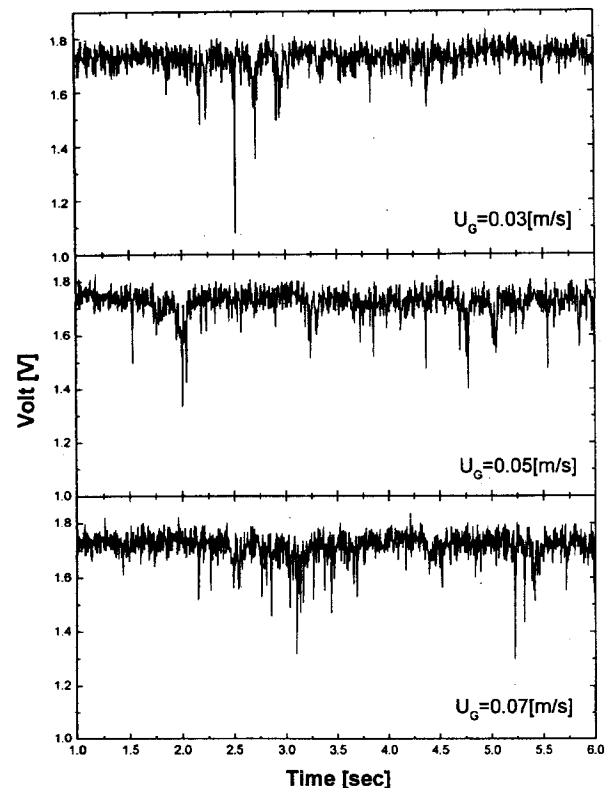


Fig. 2. Typical output signal form the probe($U_L=0.25$ [m/s], $G_S=6$ [kg/m²·s]).

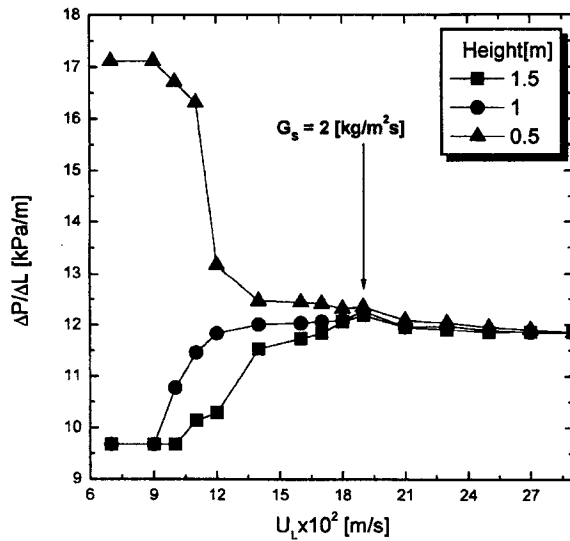


Fig. 3. Effects of U_L on pressure drop at the three parts of the riser in three-phase circulating fluidized beds ($U_G=0.01$ m/s).

3. 결과 및 고찰

3-1. 흐름 패턴

삼상순환유동층에서 전기전도도 탐침으로 측정된 전형적인 신호자료를 Fig. 2에 나타내었다. Fig. 2에서 보는 바와 같이 기포가 저항탐침과 접촉할 때에는 큰 peak가 발생하게 되며, 이 peak의 시간들로부터 국부 기포체류량을 계산하였다[14].

한편, 삼상순환유동층은 난류 유동층과 고속 유동층에서 운전되므로 흐름영역의 전이현상은 삼상순환유동층의 설계와 운전에서 필수적이라 할 수 있다. Fig. 3에 액체 유속의 증가에 따른 층 내 압력강하를 높이별로 나타내었는데, 이 그림에서 볼 수 있듯이 층 하부의 영역에서는 유동화가 시작된 후 액체 유속의 증가에 따라서 층 팽창이 발생하여 층 내 국부 압력강하가 감소하는 것을 볼 수 있다. 또한 높이가 1.5 m인 경우에는 액체의 유속이 0.075 m/s가 될 때부터 층 내 압력강하가 변하는 것을 볼 수 있으며, 계속적인 액체 유속의 증가는 층의 높이에 따른 압력 강하의 차이를 작게 만들고 결국 액체 유속이 0.25 m/s가 될 때 거의 같아지게 되는데 이때의 유속이 고체 순환이 시작되는 액체 유속임을 알 수 있다. Liang 등[11]은 액체 유속의 증가에 따라서 삼상순환유동층의 흐름 영역을 단순 삼상유동층영역, 순환흐름영역 그리고 고체입자수송영역의 3가지로 구분하였는데, 본 연구에서도 이와 유사한 양상을 보임을 알 수 있었다.

3-2. 상체류량

삼상순환유동층에서 분산판으로부터 축방향 높이에 따른 국부 층공극률의 변화를 Fig. 4에 나타내었다. 이 그림에서 볼 수 있듯이 액체 유속이 0.23 m/s일 경우에는 높이에 따른 층공극률의 차이가 크지만, 액체 유속의 증가에 따라 축방향으로 층공극률의 분포는 점점 균일해짐을 볼 수 있다. 이 그림에서, 분산판으로부터 높이가 증가함에 따라 유동층 내의 층공극률이 증가하는 경향을 나타내는 것은 본 실험의 범위에서 고체 유동입자가 bed 내에 균일하게 분포되지 못하기 때문으로 해석된다.

고체 입자의 순환이 일어나는 삼상순환유동층에서 기체 유속(U_G)의 변화에 따른 각 상의 체류량의 변화를 Fig. 5에 나타내었다. 이 그림에서 볼 수 있듯이, 기체의 유속이 증가하면 기체 체류량은 증가하고, 액체 체류량은 감소하며, 고체 체류량은 큰 변화가 없으나 약간 증가

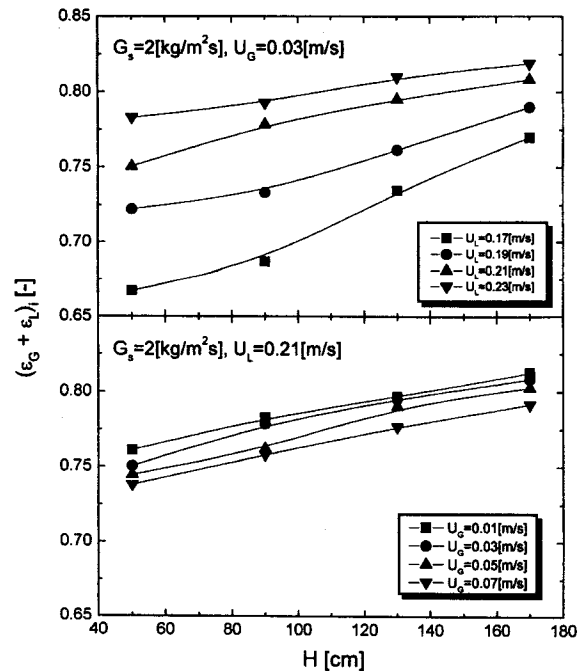


Fig. 4. Effects of bed height on bed porosity in three-phase circulating fluidized beds.

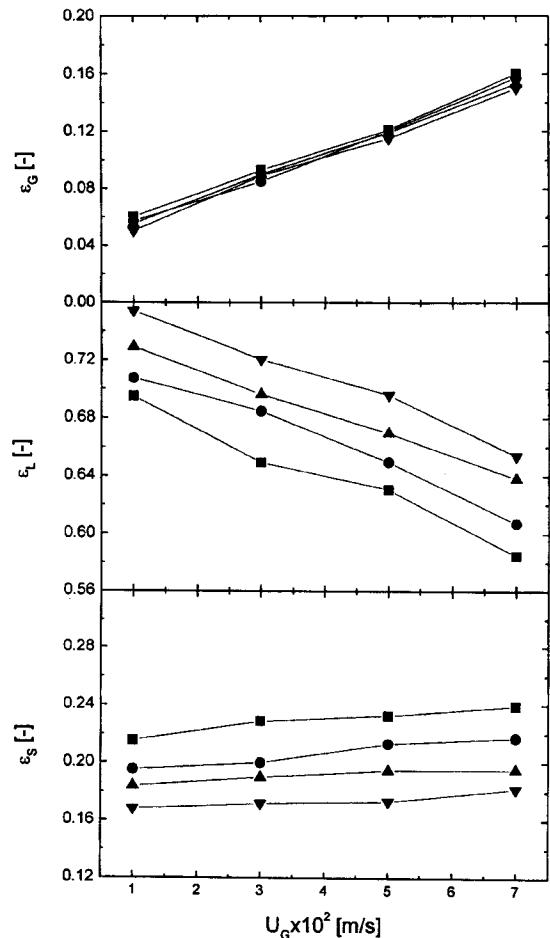


Fig. 5. Effects of U_G on three phase holdups in three-phase circulating fluidized beds ($G_s=6$ [kg/m² · s]).

U_L [m/s] ■ ● ▲ ▼
0.25 0.27 0.29 0.31

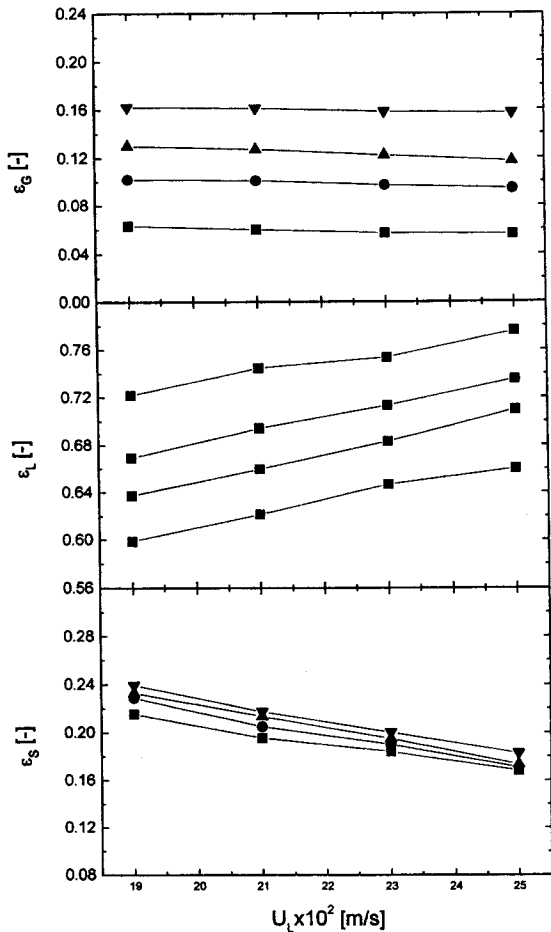


Fig. 6. Effects of U_L on three phase holdups in three-phase circulating fluidized beds ($G_S=2[\text{kg/m}^2 \cdot \text{s}]$).

함을 알 수 있다. 이는 conventional한 삼상유동층에서의 결과와도 비슷한 양상을 보이는 것으로 [4-6] 기체 유속의 증가는 기체 체류량의 증가를 가져와 이에 상응한 액체 체류량이 감소하는 것을 알 수 있다. 기체 유속의 증가에 따라 고체 체류량이 약간 증가하는 경향을 나타내는 것은 유동층 내부의 공극 중 기체가 차지하는 비율이 높아지므로 같은 액체 유속(U_L)의 조건에서 상승유체에 의해 유동입자에 작용하는 drag force의 감소를 가져와 유동입자의 체류량이 약간 증가하는 것으로 설명할 수 있다.

Fig. 6은 액체 유속의 변화에 따른 각 상의 체류량의 변화를 나타낸 것이다. 액체 유속이 증가하면 고체 입자의 체류량은 감소하는데, 이는 액체 유속의 증가로 인해 입자 상승 속도의 증가를 가져오므로, 비산 속도도 증가되어 점점 고체 체류량이 감소한다고 할 수 있다. 한편, 기체 체류량은 액체 유속의 증가에도 불구하고 큰 변화가 없는 것을 알 수 있는데, 이는 액체 유속의 증가로 인해 발생하는 난류 현상의 증가가 효과적으로 기포를 분쇄하고 기포의 합체를 막아주어 기체 체류량의 감소를 억제하여 주기 때문으로 해석할 수 있다.

삼상순환유동층에서 고체 입자 순환 속도(G_S)의 변화에 따른 각 상의 체류량의 변화를 Fig. 7에 나타내었는데, 고체 입자의 순환속도는 실제로 기체-고체 순환유동층 반응기의 설계 및 응용에 중요한 변수로 알려져 있다 [12, 15]. 그림에서 보듯이 고체 입자의 순환 속도가 증가하면 고체 입자의 체류량은 증가하며, 액체 체류량은 감소하는 것을 알 수 있다. 기체 체류량은 고체 입자 순환 속도의 증가에 따라

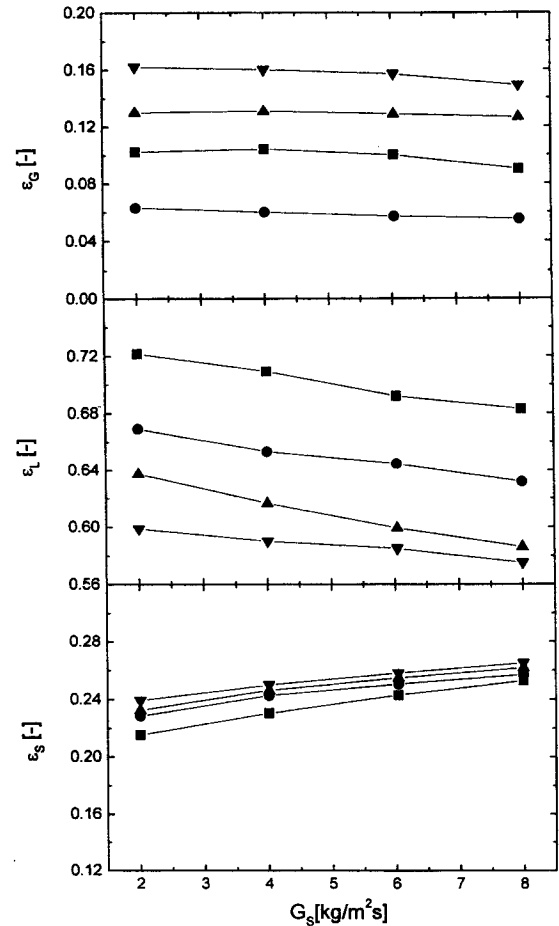


Fig. 7. Effects of G_S on three phase holdups in three-phase circulating fluidized beds ($U_L=0.25[\text{m/s}]$).

큰 변화가 없는 것을 알 수 있는데, 이는 같은 액체 유속의 조건에서 고체 체류량의 증가가 유동층 내부에서 효과적으로 기포를 분쇄하여 주어 기포의 체류량 감소를 억제하여 주기 때문으로 해석할 수 있다. 따라서 고체 체류량의 증가분 만큼 이에 상응하는 액체 체류량이 감소한다고 할 수 있다.

3-3. 상체류량 상관식

삼상순환유동층에서 기체의 평균 체류량을 실험 변수인 기체, 액체 및 고체 순환속도의 함수로 식 (4)와 같이 나타낼 수 있었으며, 이 식의 상관 계수는 0.971로 실험결과와 잘 맞는 것으로 나타났는데, 이 식의 적용 범위는 $0.01 \leq U_G[\text{m/s}] \leq 0.07$, $0.25 \leq U_L[\text{m/s}] \leq 0.31$, $2.0 \leq G_S[\text{kg/m}^2 \cdot \text{s}] \leq 8.0$ 이다.

$$\epsilon_G = 0.07(U_G)^{0.492}(U_L)^{-0.023}(G_S)^{-0.047} \quad (4)$$

또한, 순환유동층 내부의 평균 총공극률은 식 (5)와 같이 각 변수의 상관식으로 나타낼 수 있었으며, 이 식은 상기 변수의 범위에서 상관 계수 0.965로 실험결과와 잘 맞는 것을 알 수 있었다.

$$\epsilon_G + \epsilon_L = 1.226(U_G)^{-0.003}(U_L)^{0.279}(G_S)^{-0.023} \quad (5)$$

4. 결 론

본 실험의 연구결과 다음과 같은 결론을 내릴 수 있었다.

(1) 기체-액체-고체 삼상순환유동층에서 기체 체류량은 기체 유속이 증가함에 따라 증가하지만, 액체의 유속 및 고체 순환속도에는 큰 영향을 받지 않았다.

(2) 삼상순환유동층에서 액체 체류량은 기체 유속과 입자 순환속도가 증가함에 따라 감소하고 액체 유속의 증가에 따라 증가하였으며, 고체 체류량은 기체 유속과 입자순환속도가 증가함에 따라 증가하였으나 액체 유속이 증가하면 감소하였다.

(3) 삼상순환유동층에서 촉방향 높이에 따른 총공극률은 액체 유속이 증가함에 따라 그 분포가 점점 균일해진 반면 기체 유속의 증가는 촉방향 분포의 균일화에 큰 영향을 미치지 않았다.

(4) 삼상순환유동층에서 기체 체류량과 총공극률을 다음과 같은 상관식으로 나타낼 수 있었다.

$$\epsilon_G = 0.07(U_G)^{0.492}(U_L)^{-0.023}(G_S)^{-0.047}$$

$$\epsilon_G + \epsilon_L = 1.226(U_G)^{-0.003}(U_L)^{0.279}(G_S)^{-0.023}$$

감 사

본 논문은 한국과학재단 핵심전문연구과제(981-1104-017-1)로 수행되었으며, 귀재단에 감사드립니다.

사용기호

g	: gravitational acceleration [m/s ²]
G_S	: solid circulation rate [kg/m ² · s]
ΔP	: pressure drop [Pa]
T	: total record time [sec]
t_i	: exposure time of the probe to bubble [sec]
U_G	: superficial gas velocity [m/s]
U_L	: superficial liquid velocity [m/s]

그리스 문자

ϵ_G	: gas holdup [-]
--------------	------------------

$(\epsilon_G)_i$: local gas holdup [-]
ϵ_L	: liquid holdup [-]
ϵ_S	: solid holdup [-]
ρ_G	: density of gas [kg/m ³]
ρ_L	: density of liquid [kg/m ³]
ρ_S	: density of solid [kg/m ³]

참고문헌

1. Liang, W., Wu, Q., Yu, Z. and Jin, Y.: *Can. J. Chem. Eng.*, **73**, 656 (1995).
2. Liang, W. G., Wu, Q. W., Yu, Z. Q., Jin, Y. and Bi, H. T.: *AIChE J.*, **41**, 267(1995).
3. Liang, W. G., Zhang, S., Zhu, J. X., Jin, Y., Yu, Z. and Wang, Z.: *Powder Technology*, **90**, 95(1997)
4. Kim, S. D., Bakeer, C. G. J. and Bergougnou, M. A.: *Can. J. Chem. Eng.*, **53**, 134(1975).
5. Kim, S. D. and Kang, Y.: "Mixed Flow Hydrodynamics, Advances in Engineering Fluid Mechanics Series," Gulf Pub. Co., Houston, 845 (1996).
6. Kim, S. D. and Kang, Y.: *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 3639(1997).
7. Kang, Y. and Kim, S. D.: *I & EC Process Des. Dev.*, **25**, 717(1986).
8. Kumar, S. and Fan, L. S.: *AIChE J.*, **40**, 745(1994).
9. Kang, Y., Woo, K. J., Ko, M. H. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 3723(1997).
10. Kang, Y., Suh, I. S. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Commun.*, **34**, 1(1985).
11. Han, S., Zhou, J., Loh, K. C. and Wang, Z.: *Chem. Eng. J.*, **70**, 9(1998).
12. Yerushalmi, J., Turner, D. H. and Squires, A. M.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **15**, 47(1976).
13. Wang, T., Lin, Z. T., Zhu, C. M., Liu, D. C. and Saxena, S. C.: *AIChE J.*, **39**, 1406(1993).
14. Kang, Y., Cho, Y. J., Woo, K. J., Kim, K. I. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Sci.*, **55**, 411(2000).
15. Schnitzlein, M. G. and Weinstein, H.: *Chem. Eng. Sci.*, **43**, 2605(1988).