

고온고압건식 유동층 탈황공정의 고체흐름특성 해석

최정후[†] · 이창근* · 손재익* · 김상돈**

건국대학교 화학공학과

*한국에너지기술연구소

**한국과학기술원 화학공학과

(2000년 5월 10일 접수, 2000년 8월 4일 채택)

An Analysis of Solid Flow Characteristics in a Fluidized Bed High Pressure Hot-Gas Desulfurization System

Jeong-Hoo Choi[†], Chang-Keun Yi*, Jae-Ek Son* and Sang-Don Kim**

Department of Chemical Engineering, Konkuk University, Seoul 143-701

*Korea Institute of Energy Research, Taejon 305-343

**Department of Chemical Engineering, KAIST, Taejon 305-701

(Received 10 May 2000; accepted 4 August 2000)

요 약

탈황로와 재생로로 구성된 고온, 고압의 IGCC 공정용 유동층 탈황공정에서 유동특성이 고려된 입자수지의 해석을 수행하였다. 탈황로에서 입자의 마모속도상수, 사이클론의 분급 입경, 유속, 고정층 높이의 변화와 재생로에서 사이클론 분급 입경의 변화에 따른 고체흐름특성의 변화를 조사하였다. 탈황로의 고정층 높이, 기체유속, 탈황제의 마모속도상수가 증가함에 따라 새로 주입되는 탈황제량과 재생로 하부에서 탈황로로 주입되는 고체량이 증가하였다. 탈황로와 재생로의 사이클론 분급 입경이 증가함에 따라 새로 주입되는 탈황제량은 증가하는 반면 재생로 하부에서 탈황로로 주입되는 고체량은 감소하였다. 탈황제 소모량에는 탈황로에서 사이클론 포집 효율 즉 사이클론의 분급 입경이 가장 중요한 변수이며, 탈황로에서 기체유속, 정제층 높이, 탈황제의 마모속도상수도 무시될 수 없는 인자들임을 알 수 있었다. 공정의 입도 분포는 탈황로 사이클론의 포집 효율에 지배적인 영향을 받았으며 타 변수들의 영향은 무시될 수 있었다. 탈황공정의 부하조절 방법에 고려될 수 있는 변수로는 탈황로에서 유속이 가장 중요하며, 탈황로 사이클론의 포집 효율 즉 사이클론의 분급 입경도 상당한 영향을 주는 것으로 사료되었다.

Abstract – A particle population balance has been developed to analyze characteristics concerning solid flow rates of input and output streams and their particle size distributions in a fluidized bed high pressure hot-gas desulfurization process of the IGCC system that consists of a desulfurizer and a regenerator. Simulation on the solid flow rate and its particle size distribution has been carried out with variations of principal process parameters such as the attrition rate constant of sorbent, cut diameter of the cyclone, bed weight and gas velocity in the desulfurizer and the cut diameter of the cyclone in the regenerator. As the attrition rate constant of sorbent, the bed weight and gas velocity of the desulfurizer increased, the feed rate of fresh sorbent and the flow rate of solid from the regenerator to the desulfurizer were predicted to increase. As cut diameters of desulfurizer and regenerator cyclones increased, the feed rate of fresh sorbent were predicted to increase, however, the flow rate of solid from the regenerator to the desulfurizer were predicted to decrease. The most important factor affecting solid flow rates of input and output streams and their particle size distributions was found to be the cut diameter of the desulfurizer cyclone. Effects of the attrition rate constant of sorbent, gas velocity and bed weight in the desulfurizer on the feed rate of fresh sorbent were predicted somewhat important because they affect the particle attrition rate. Particle size distributions of the process were influenced mainly by the collection efficiency of the desulfurizer cyclone, however, effects of other parameters were negligible. The gas velocity in the desulfurizer was found the most important parameter for load control and the effect of the collection efficiency of the desulfurizer cyclone on load control was moderate.

Key words: Desulfurization, Fluidized-Bed, Model, Simulation

[†]E-mail: choijhoo@kkucc.konkuk.ac.kr

1. 서 론

IGCC(integrated gasification combined cycle) 공정은 크게 석탄 가스화 로와 기체 정제 및 발전 부분으로 구성되어 있는데, 고온 고압 건식 탈황 공정은 기체 정제 공정에 속하는 것으로 가스화 로에서 생성되어 나온 석탄 기체 중의 H_2S , COS 등의 황 화합물을 제거하여 발전 부분에서 부식 문제, 공해 문제 및 마모 문제 등을 해결하는 매우 중요한 단위 공정이다[1-6]. 기존의 $200^\circ C$ 미만에서 사용하는 일반적인 습식 정제 공정에 비해 석탄 기체의 고온 정제 공정은 $400^\circ C$ 이상의 고온에서 기체를 처리하므로 석탄 기체의 냉각에 따른 타르 응축을 방지하고, 열 손실을 억제하며, 고온의 석탄 기체가 가스 터빈의 구동에 이용되도록 하므로 가스화 공정의 열 효율을 더 높여주며, 저온 공정에서 발생하는 폐수 등의 처리가 필요하지 않으므로 부대 비용의 절감 효과도 있는 여러 가지 장점들을 가진다. 이와 같은 여러 가지 장점들로 인하여 현재 미국, 일본을 중심으로 고온 건식 탈황 공정에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다.

고온 고압 건식 탈황 공정은 탈황 반응기, 재생 반응기, 유황 회수 공정으로 구성되어 있으며, 탈황 및 재생 반응기의 형태에 따라 이동층, 고정층, 유동층으로 구분되고 있다. 탈황 공정은 탈황 로에서 고체상의 탈황제에 $400^\circ C$ 이상의 고온 기체를 접촉시켜 기체중의 유황 화합물(H_2S , COS)을 제거하고 사용된 탈황제는 재생 로에서 공기 혹은 산소와의 산화 반응으로 재생된다. 재생 로에서 발생하는 SO_2 는 유황 회수 공정에서 회수된다. 고온 고압 건식 탈황에 관련된 핵심 기술은 적절한 탈황제의 개발과 탈황로와 재생로의 공정기술로 나누어 볼 수 있다.

본 연구는 고온, 고압의 유동층 탈황 공정에서 수력학 특성 및 성능의 예측에 기본이 되는 고체 흐름 특성을 예측하기 위해서 탈황 로와 재생 로의 고체 출입이 모두 고려된 입자 수치 해석을 통한 고체 순환 모델의 개발을 목표로 수행되었다. 개발된 모델을 이용하여 탈황 로의 경우에는 사이클론 분급 입경, 입자 마모 속도 상수, 고정층 높이, 유속 등의 조업 변수를, 재생 로의 경우에는 사이클론의 분급 입경을 조업 변수로 고려하여 각 조업 변수의 변화에 따른 탈황 로와 재생로의 고체 흐름 특성 변화를 모사하였다. 고체 흐름 특성의 해석은 추후 탈황 로와 재생로 각 반응기에서 고체의 평균 체류 시간의 결정과 탈황 및 재생 반응 속도와 연립되어 탈황·재생 복합 공정의 반응기 모델에 사용된다.

2. 이론적 배경

2-1. 탈황로와 재생로에서 입자수지

본 연구에서 고려된 고온 건식 탈황 공정의 고체순환구조는 Fig. 1과 같이 유동층 탈황로-유동층 재생로 형태로 탈황제는 탈황로에서 유동화 기체로 주입되는 H_2S 와 COS를 함유한 석탄 기체와 반응하고[예: $H_2S(g) + M-O(s) \rightarrow H_2O(g) + M-S(s)$], 반응된 입자는 비산되어 사이클론에 포집된 후 loopseal을 이용하여 재생로로 보내진다. 반응된 탈황제 입자는 재생로에서 유동화 기체로 주입되는 기체에 함유된 산소와 반응하여 재생되며[예: $M-S(s) + 1/2 O_2(g) \rightarrow M-O(s) + SO_2(g)$], 비산된 입자는 사이클론에 의해 포집되어 재생로로 재순환되고 재생로 하부에서 유출된 고체는 외부로 배출되거나 탈황로로 주입된다. 위의 반응식에서 $M-O(s)$ 는 미반응 탈황제의 금속 산화물이고, $M-S(s)$ 는 탈황 반응 후 탈황제의 황화 금속을 나타낸다.

Fig. 1에서 F_i 는 흐름 i 고체의 질량속도, x 는 구형 입자의 직경, $p_i(x)$ 는 질량속도 F_i 고체의 입도분포에 관한 확률밀도함수, $[p_{bi}(x), i=1, 2]$ 는 반응기내 입자의 입도분포에 관한 확률밀도함수, $[R_i(x), i=1, 2]$ 는 반응기내 입자의 마모속도, $[R_{ai}, i=1, 2]$ 는 반응기내에서 마모에 의해 생성되는 미분의 총괄생성속도, $[K_i^*(x), i=1, 2]$ 는 반응기에서 입자

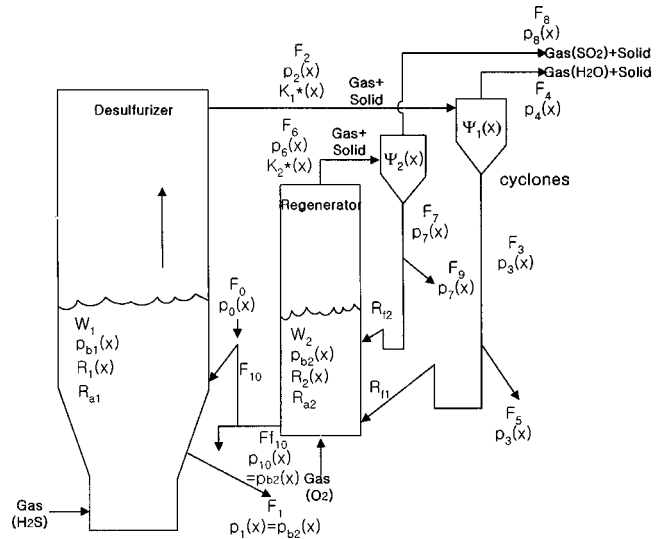


Fig. 1. Flow diagram of a fluidized-bed hot gas desulfurization system.

의 비산유출속도, $[\psi_i(x), i=1, 2]$ 는 사이클론의 포집 효율, $(R_{fi}, i=1, 2)$ 는 사이클론에 포집된 입자의 재순환 분율을 나타낸다.

본 연구에서는 탈황로에서 비산된 입자중 사이클론에서 포집된 입자는 모두 재생로로 재 주입되는 것으로 고려하였으며 탈황로 하부에서 고체유출은 없는 것으로 고려하였다. 탈황로와 재생로는 일정한 고정층 높이, 혹은 층무게로 유지되며 새 탈황제는 탈황로로 주입된다. 탈황로와 재생로에서 고체흐름은 완전혼합흐름이며, 고체의 밀도는 일정한 것으로 간주하였다. 실제 공정에서 탈황과 재생 반응에 따른 고체 입자의 밀도 변화는 매우 작기 때문에 이는 무시될 수 있다.

공정의 입자수지는 탈황로와 재생로에 대해 각각 고려하고, 두 입자수지를 연립하여 해석하여야 한다.

2-1-1. 탈황로의 입자수지

탈황로의 freeboard 단면적을 기준으로 하여, 입자수지는 다음과 같이 표현된다[7-9]. 반응은 물리적 반응으로 입자 마모를 고려한다.

$$\frac{dp_{b1}(x)}{dx} + \alpha_{11}(x)p_{b1}(x) - \alpha_{12}(x)p_{b2}(x) - \alpha_{13}(x) = 0 \quad (1)$$

여기서

$$\alpha_{11}(x) = \left[\frac{F_1}{W_1 R_1(x)} + \frac{K_1^*(x)}{W_1 R_1(x)} + \frac{1}{R_1(x)} \frac{dR_1(x)}{dx} - \frac{3}{x} \right] \quad (2)$$

$$\alpha_{12}(x) = \frac{F_{10}}{W_1 R_1(x)} \quad (3)$$

$$\alpha_{13}(x) = \frac{F_0 p_0(x) + R_{a1} p_{a1}(x)}{W_1 R_1(x)} \quad (4)$$

$$\text{경계 조건: } p_{b1}(x)=0 \text{ for } x=x_{max} \quad (5)$$

$$\text{제약 조건: } \int_0^{x_{max}} p_{b1}(x) dx = 1 \quad (6)$$

$R_1(x)$ 는 탈황로에서 마모에 의한 입자의 입도감소속도, R_{a1} 는 탈황로에서 마모에 의해서 생성되는 미분 생성 속도를 나타낸다. 마모 미분의 생성속도는 총괄값으로 고려하며, 입도분포는 유동화속도의 1% 유속이 종말속도인 입경 이하로 균일한 것으로 보통 가정된다[8]. 탈황로내 고체흐름을 완전 혼합으로 간주하고, 탈황로에서 고체의 비산 유출속도는 탈황로 freeboard 단면적과 단위 면적당 비산 유출 속도(E_i^*)의 곱으로 나타냈다. x_{max} 는 최대 입경을 나타낸다.

2-1-2. 재생로의 입자수지

탈황로에서와 동일한 방법으로 재생로의 freeboard 단면적을 기준으로 한 입자수지는 다음과 같이 표현된다.

$$\frac{dp_{b2}(x)}{dx} + \alpha_{21}(x)p_{b2}(x) - \alpha_{22}(x)p_{b1}(x) - \alpha_{23}(x) = 0 \quad (7)$$

여기서

$$\alpha_{21}(x) = \left[\frac{K_2^*(x)}{W_2 R_2(x)} (1 - R_{f2} \Psi_2(x)) + \frac{F_{f10}}{W_2 R_2(x)} + \frac{1}{R_2(x)} \frac{dR_2(x)}{dx} - \frac{3}{x} \right] \quad (8)$$

$$\alpha_{22}(x) = \frac{R_{f1} \Psi_1(x) K_1^*(x)}{W_2 R_2(x)} \quad (9)$$

$$\alpha_{23}(x) = \frac{R_{a2} p_{a2}(x)}{W_2 R_2(x)} \quad (10)$$

$$\text{경계 조건: } p_{b2}(x)=0 \text{ for } x=x_{\max} \quad (11)$$

$$\text{계약 조건: } \int_0^{x_{\max}} p_{b2}(x) dx = 1 \quad (12)$$

$R_2(x)$ 는 재생로에서 마모에 의한 입자의 입도 감소 속도, R_{a2} 는 재생로에서 마모에 의한 미분 생성 속도를 나타낸다. 마모 미분의 생성속도는 총괄값으로 고려하며, 입도분포는 유동화속도의 1% 유속이 종말속도인 입경 이하로 균일한 것으로 보통 가정된다. 재생로내 고체흐름을 완전혼합으로 간주하고, 고체의 비산 유출 속도는 재생로 freeboard 단면적과 단위 면적당 비산 유출 속도(E_i^*)의 곱으로 나타낸다.

2-2. 입자의 비산 유출 속도

본 연구에서는 단위 면적당 입자 비산 유출 속도에 관한 상관식으로 고온 고압을 비롯하여 넓은 범위의 유동화 조건에서 기체 유동층에 적용될 수 있는 단순화된 Choi 등의 상관식[10-11]을 사용하였다.

$$E_i^* = E_{ih}^* + E_{io}^* \quad (13)$$

$$E_{ih}^* d_p / \mu = C_d Re_p \exp(-9.12 - 0.0153a(H_t - H_b)) \quad (14)$$

$$E_{io}^* d_p / \mu = Ar^{0.5} \exp(6.92 - 2.11F_g^{0.303} - 13.1/F_d^{0.902}) \quad (15)$$

여기서

$$Ar = g d_p^3 \rho_g (\rho_p - \rho_g) / \mu^2 \quad (16)$$

$$F_g = g d_p (\rho_p - \rho_g) \quad \text{in SI unit} \quad (17)$$

$$F_d = C_d \rho_g U^2 / 2 \quad \text{in SI unit} \quad (18)$$

$$\frac{H_{mf}}{H_b} = 1 - \left(1 - \frac{U_{mf}}{U} \right)^{(1.06U_{mf} + 1)/1.06U_{mf}} \quad (19)$$

$$ad_p = \exp \left(-11.2 + 210 \frac{d_p}{D_t - d_p} \right) \left(\frac{d_p \rho_g (U - U_{mf})}{\mu} \right)^{-0.492} \cdot \left(\frac{\rho_p g d_p}{\rho_g (U - U_{mf})^2} \right)^{0.725} \left(\frac{\rho_p - \rho_g}{\rho_g} \right)^{0.731} C_d^{1.47} \quad (20)$$

C_d 는 항력계수를 의미하며 다음과 같이 표현된다.

$$C_d = \begin{cases} 24/Re_p & \text{for } Re_p \leq 5.8 \\ 10/Re_p^{1/2} & \text{for } 5.8 < Re_p \leq 540 \\ 0.43 & \text{for } 540 < Re_p \end{cases} \quad (21)$$

Table 2. Size distribution of fresh sorbent

Sieve size [μm]	-200 +190	-190 +162	-162 +147	-147 +134	-134 +123	-123 +111	-111 +96	-96 +74	-74 +53	-53 +0
Weight fraction [-]	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1

$$Re_p = d_p U \rho_g / \mu \quad (22)$$

2-3. 입자의 마모속도

정상상태에서 층내 입자의 마모에 의한 미분의 총괄생성속도와 단일 입자의 입도 감소 속도는 Merrick과 Highley[12]의 상관식으로 표현하였다. 총괄 미분 생성 속도(R_a)는 과잉기체속도($U - U_{mf}$)와 층무게(W)에 의해서 다음과 같이 표현된다.

$$R_a = K_a (U - U_{mf}) W \quad (23)$$

K_a 는 속도상수로 입자 마모 특성(friability)의 함수이다. 이를 단일 입자에 적용하면 다음과 같다.

$$R(x) = dx/dt = -K_a (U - U_{mf}) x / 3 \quad (24)$$

3. 모사 조건

본 모델을 한국에너지기술연구소 유동층 탈황공정(탈황로: 0.123 m I.D., 7.0 m high, 재생로: 0.23 m I.D., 2.0 m high)에 적용하여 고체 흐름 특성을 모사하였다. 고체흐름 특성의 마모속도상수(1×10^{-9} , 6×10^{-9} , 3×10^{-8} , $1 \times 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$), 사이클론 분급입경(0.5, 1.5, 2.0, $3.0 \times 10 \text{ cm}^{-3}$), 유속(100, 200, 300, 400 cm/s), 고정층높이(5, 10, 20, 30, 40, 50 cm) 등을 변화시켰으며 재생로의 경우에는 사이클론 분급입경(0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 3.5, 4.0, 4.5, 5.0, 5.5, 6.0, 7.0, 8.0, 9.0, $10.0 \times 10^{-3} \text{ cm}$)을 변화시켜가며 고체흐름특성에 미치는 영향을 모사하였으며 각 입력자료 중에서 변수로 고려되지 않는 경우는 굵은 글씨로 표시된 값으로 고정하였다. 사이클론의 분급 입경(cut diameter)은 포집 효율이 50%인 입경을 의미하며, 포집 효율은 Lapple[13]의 성능 곡선으로부터 결정하였다. 본 모사에서 탈황로와 재생로의 층하부에서 고체유출은 없는 것으로 고려되었고($F_1=0$, $F_{10}=F_{f10}$) 탈황로와 재생로의 사이클론에서 포집되는 입자는 모두 재사용되는 것으로 고려하였다($F_5=0$, $F_9=0$). 탈황로와 재생로에 주입된 기체의 조성은 Table 1에, 새 탈황제(fresh feed)의 입도 분포는 Table 2에 나타내었으며, 입자밀도는 $1,850 \text{ kg/m}^3$ 이다. 탈황로의 온도와 압력은 각각 550°C , 20기압으로, 재생로의 온도와 압력은 700°C , 20기압으로 고정하였다. 마모에 의해서 생성되는 미분의 최대 입경은 $5 \mu\text{m}$ 으로 고정하였고, 입도 분포는 최대 입경 이하로 균일한 것으로 간주하였다.

4. 결과 및 고찰

4-1. 고체흐름특성

Fig. 2는 기류층 조건에서 조업되는 탈황로에서 사이클론 분급입경의

Table 1. Composition of fluidizing gas in the desulfurizer and regenerator

Desulfurizer:						
Component	H ₂	CO	N ₂	CO ₂	H ₂ O	H ₂ S
Mole fraction	0.306	0.382	0.000	0.125	0.183	0.004
Regenerator:						
Component	O ₂	N ₂	SO ₂			
Mole fraction	0.0126	0.9790	0.0084			

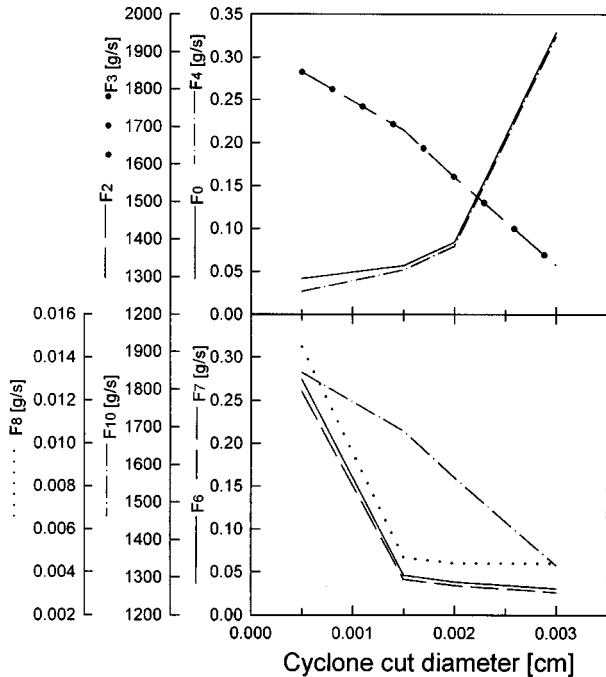


Fig. 2. Solid flow rate versus cut diameter of the desulfurizer cyclone.

변화에 따른 탈황로와 재생로의 고체유량 변화를 나타내고 있다. 그림에서 F 는 고체유량(g/s)을 의미하며 각각 탈황로에 새로 주입되는 고체(F_0), 탈황로에서 비산되는 고체(F_2), 탈황로 사이클론에 의해 포집되는 고체(F_3), 탈황로 사이클론을 통과해 유출되는 고체(F_4), 재생로에서 비산되는 고체(F_6), 재생로 사이클론에 의해 포집되는 고체(F_7), 재생로 사이클론을 통과해 유출되는 고체(F_8), 재생로 하부에서 탈황로로 재주입되는 고체(F_{10})의 유량을 나타낸다. F_4 가 F_2 와 F_3 에 비해서 매우 작기 때문에 그림에서 F_2 와 F_3 의 경향은 거의 중첩되어서 나타난다. 본 모사 범위의 타 조건에서도 이 경향은 동일하였다.

그림에 나타난 바와 같이 탈황로 사이클론의 분급 입경이 증가함에 따라 탈황로에서 비산되는 입자량(F_2) 및 탈황로 사이클론 포집입자량(F_3)이 감소하였으며 탈황로 밖으로 유출되는 입자량(F_4)과 탈황로에 주입되는 탈황제량(F_0)은 증가하였다. 한편 재생로의 고체흐름은 재생로에서 비산되는 입자량(F_6), 재생로 사이클론 포집입자량(F_7), 재생로 밖으로 유출되는 입자량(F_8) 및 재생로 하부에서 탈황로로 재주입되는 입자량(F_{10})이 감소하였다. 이와 같은 경향은 사이클론 분급 입경이 증가함에 따라 작은 입자들에 대한 사이클론의 포집효율이 감소하여 사이클론에 포집되는 입자량(F_3)이 감소하고, 탈황로 밖으로 유출되는 입자량(F_4)은 증가하여, 탈황로에 새로 주입하여야 하는 탈황제의 양(F_0)이 증가하기 때문으로 사료되었다. 또한 탈황로 고체 중 작은 입자의 양이 상대적으로 감소하므로 비산 입자량(F_2)도 감소하는 것으로 사료되었다. 탈황로 층내 고체 중 작은 입자의 양이 감소하면 재생로 층내 고체 중 작은 입자의 양도 함께 감소하므로 재생로에서 비산되는 입자량(F_6), 재생로 사이클론 포집입자량(F_7), 재생로 밖으로 유출되는 입자량(F_8)이 감소하였으며, 탈황로에서 비산되는 입자량(F_2)이 감소하므로 재생로 하부에서 탈황로로 재주입되는 입자량(F_{10})이 감소하는 것으로 사료되었다.

Fig. 3은 입자마모속도상수의 변화에 따른 탈황로와 재생로의 고체유량 변화를 나타내고 있다. 그림에 나타난 바와 같이 탈황로와 재생로 모두에 대해 입자마모속도상수가 증가함에 따라 고체유량이 증가하였으며 이와 같은 경향은 입자마모가 증가함에 따라 미세입자량이 상대적으로 증가하여 탈황로와 재생로에서 비산되는 입자량(F_2 , F_6)이 증가하므로 탈황로와 재생로의 사이클론 포집입자량(F_3 , F_7), 탈황로와 재생로 밖

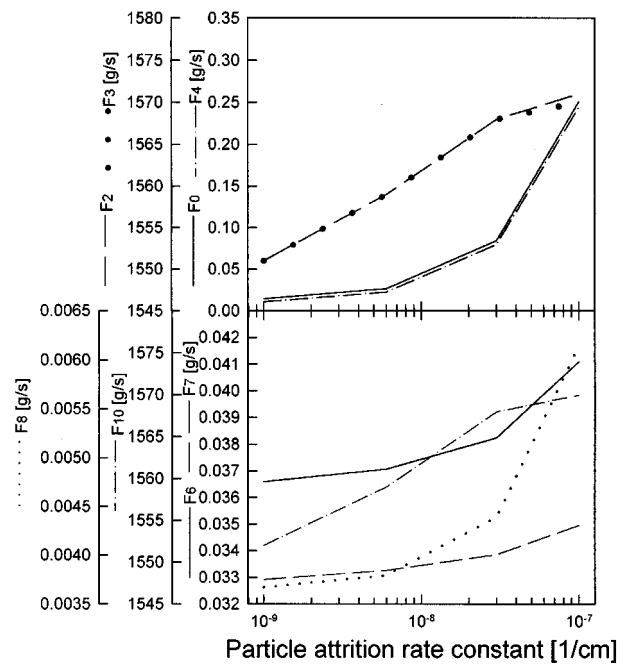


Fig. 3. Solid flow rate versus particle attrition rate constant.

로 유출되는 입자량(F_4 , F_8)이 증가하며 층의 유지를 위해 탈황로에 새로 주입되는 탈황제의 양(F_0)과 재생로 하부에서 탈황로로 재주입되는 입자량(F_{10})이 증가하는 것으로 사료되었다.

Fig. 4는 탈황로에서 고정층 높이의 변화에 따른 탈황로와 재생로의 고체 유량 변화를 나타내고 있다. 탈황로의 고정층 높이가 증가함에 따라 탈황로에서 비산되는 입자량(F_2) 및 탈황로 사이클론에서 포집되는 입자량(F_3)이 다소 증가하였으며 탈황로 밖으로 유출되는 입자량(F_4) 및 탈황로에 새로 주입되는 탈황제의 양(F_0)이 증가하였다. 또 탈황로 사이클론에서 포집되어 재생로로 주입되는 입자량(F_3)이 증가하므로 재생로에서 비산되는 입자량(F_6), 재생로 사이클론에서 포집되는 입자량(F_7),

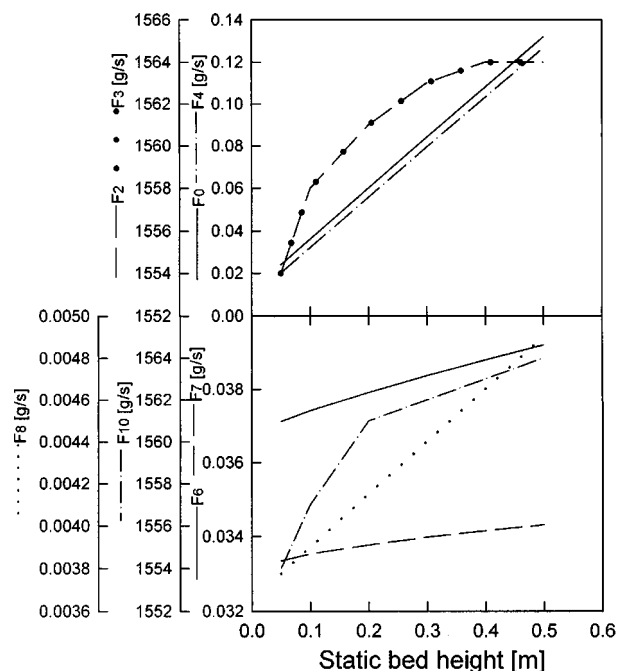


Fig. 4. Solid flow rate versus static bed height of the desulfurizer.

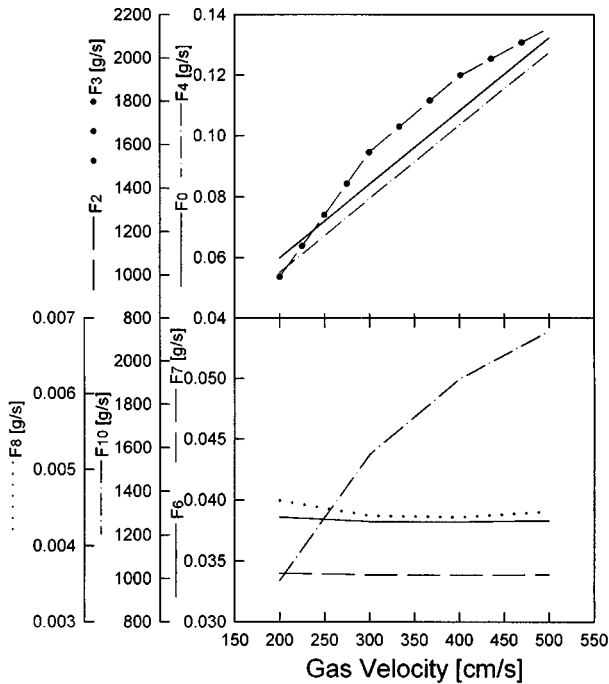


Fig. 5. Solid flow rate versus gas velocity of the desulfurizer.

재생로 밖으로 유출되는 입자량(F_8) 및 재생로 하부에서 탈황로에 새로 주입되는 입자량(F_{10})이 증가하였다. 이와 같은 경향은 탈황로내 입자량의 증가와 함께 마모에 의해 생성된 미분이 증가하기 때문으로 사료되었다.

Fig. 5는 탈황로에서 기체유속의 변화에 따른 탈황로와 재생로의 고체 유량 변화를 나타내고 있다. 그림에 나타난 바와 같이 유속이 증가함에 따라 탈황로에서의 입자비산속도가 증가하고 입자의 마모가 증가하므로 탈황로에서 비산되는 입자량(F_2), 탈황로 사이클론에서 포집되는 입자량(F_3), 탈황로 밖으로 유출되는 입자량(F_4) 및 탈황로에 새로 주입되는 탈황제의 양(F_0) 모두 증가하는 일반적인 경향을 나타내었다. 탈황로에서의 기체유속 변화가 재생로의 고체유량에 미치는 영향은 단지 재생로 하부에서 탈황로로 재주입되는 고체량(F_{10})이 증가할 뿐 재생로의 조입조건은 일정하므로 재생로에서 비산되는 입자량(F_6), 재생로 사이클론에서 포집되는 입자량(F_7) 및 재생로 밖으로 유출되는 입자량(F_8)에는 큰 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다.

재생로 사이클론의 분급 입경 변화에 따른 탈황로와 재생로의 고체유량 변화는 비교적 작았다. 재생로 사이클론의 분급 입경이 증가함에 따라 재생로에서 비산되는 고체 중 작은 입자들이 층 밖으로 유출되므로 재생로 사이클론에서 포집되는 입자량(F_7)은 감소하고 재생로 밖으로 유출되는 입자량(F_8)은 증가하며 재생로 밖으로 유출되는 입자량(F_8)이 증가하므로 층의 유지를 위해 재생로 하부에서 탈황로로 재주입되는 입자량(F_{10})은 감소하였다. 또한 재생로 층 내 고체 중 작은 입자의 양이 상대적으로 감소하므로 재생로에서 비산되는 입자량(F_6)이 감소하였다. 재생로 층 내 고체 중 작은 입자의 양이 상대적으로 감소하면 탈황로 층 내 고체 중 작은 입자의 양도 감소하므로 탈황로에서 비산되는 입자량(F_2), 탈황로 사이클론에서 포집되는 입자량(F_3) 및 탈황로 밖으로 유출되는 고체량이 감소하는 것으로 사료되었으며 재생로 하부에서 탈황로로 재주입되는 입자량(F_{10})이 감소하므로 탈황로에 새로 주입되는 탈황제의 양(F_0)은 증가하는 것으로 사료되었다.

4-2. 고체흐름의 입도분포

Fig. 6과 7은 탈황로 사이클론 분급입경의 변화에 따른 탈황로와 재생로 고체흐름의 입도분포 변화를 나타내고 있다. Y_i 는 각 고체 흐름 i 에

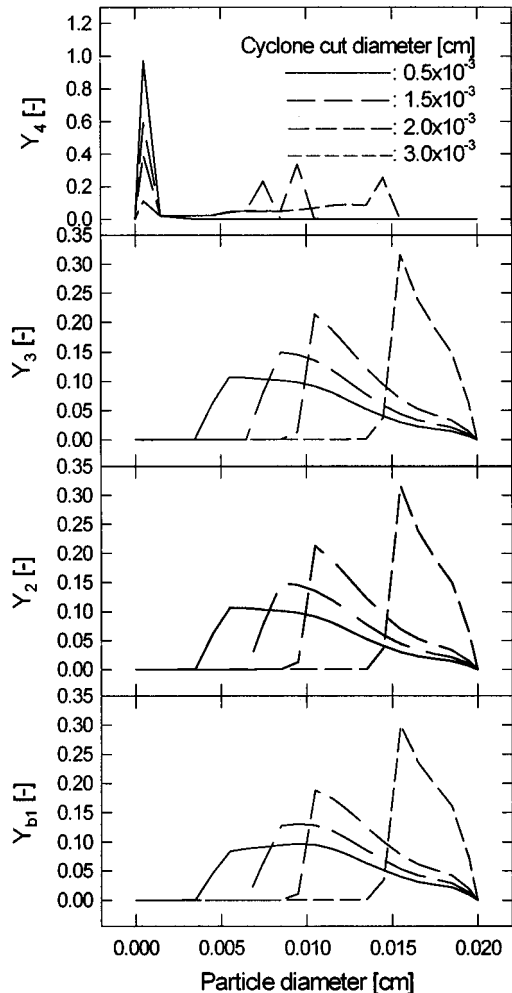


Fig. 6. Particle size distribution versus cut diameter of the desulfurizer cyclone.

대한 입도별 무게분율을 의미하며, 각각 탈황로내 고체(Y_{b1}), 탈황로에서 비산되는 고체(Y_2), 탈황로 사이클론에 의해 포집되는 고체(Y_3), 탈황로 사이클론을 통과해 유출되는 고체(Y_4), 재생로내 고체(Y_{b2}), 재생로에서 비산되는 고체(Y_6), 재생로 사이클론에 의해 포집되는 고체(Y_7), 재생로 사이클론을 통과해 유출되는 고체(Y_8)의 입도별 무게분율을 나타낸다. 그림에 나타난 바와 같이 탈황로의 사이클론 분급입경이 증가함에 따라 사이클론에서 미분 입자의 유출로 각 고체흐름의 입도분포가 굵은 입자 쪽으로 이동하는 경향을 나타내었다.

모사 범위 내에서 입자 마모 속도 상수의 변화에 따른 각 고체 흐름의 입도 분포 변화는 크게 나타나지 않았으나 입자 마모 속도 상수가 증가함에 따라 마모에 의해 생성된 작은 입자량이 증가하므로 각 고체 흐름의 입도 분포에서 굵은 입자의 무게 분율은 다소 감소하고 작은 입자의 무게 분율은 다소 증가하는 경향을 나타내었다. 탈황로 고정층 높이의 변화에 따른 각 고체 흐름의 입도 분포 변화는 거의 없는 것으로 나타났다. 탈황로의 기체 유속이 증가함에 따라 비산 입자량이 증가하고 비산된 입자 중 작은 입자는 층 밖으로 유출되어 탈황로 층 내 입자 중 작은 입자의 양이 상대적으로 감소하므로 각 고체 흐름의 입도 분포에서 작은 입자의 무게 분율은 다소 감소하고 굵은 입자의 무게 분율은 다소 증가하는 경향을 나타내었다.

4-3. 각 변수의 영향력 비교

모사결과에 의하면 고체흐름특성은 주로 탈황로 변수들의 영향을 받

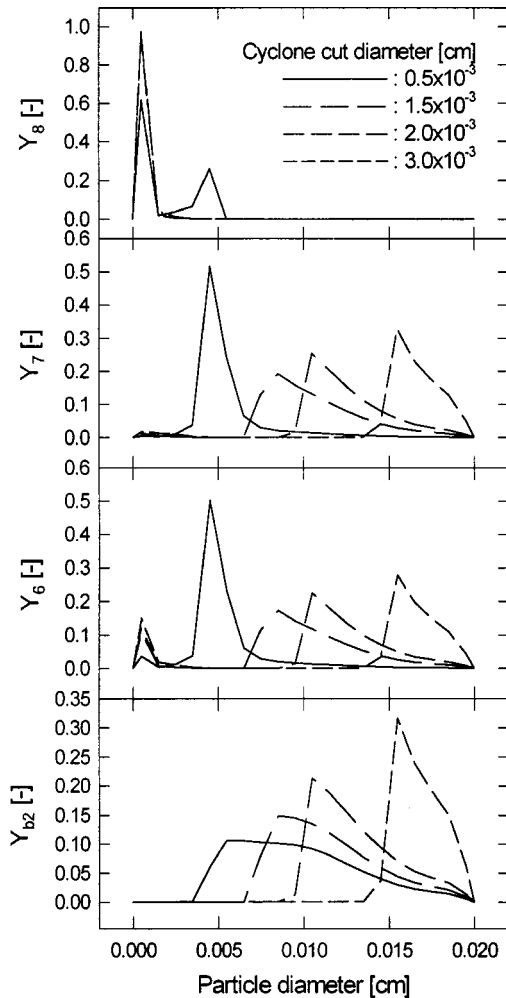


Fig. 7. Particle size distribution versus cut diameter of the desulfurizer cyclone.

았으며, 재생로 변수의 영향은 미약하였다. Table 3은 탈황로에서 각 변수(고정층 높이, 입자마모속도상수, 사이클론 분급입경, 기체유속)의 변화가 탈황로에 새로 주입되는 탈황제의 양(F_0), 재생로 하부에서 탈황제로 재주입되는 고체량(F_{10}), 각 고체흐름의 입도분포 변화에 미치는 영향력의 크기를 비교하여 나타내고 있다. 표에서 변수의 지수승은 각 고체 흐름량의 변화에 대한 변수의 지수승을 나타낸다.

표에 나타난 바와 같이 탈황로에 새로 주입되는 고체량(F_0)에 가장 큰 영향을 미치는 변수는 탈황로 사이클론의 분급입경으로 나타났으며, 탈황로에서 정체층 높이와 기체유속의 영향력은 유사하였으나 탈황제의 마모속도상수 보다는 컸다. 그러나 탈황제 마모속도 상수의 영향도 무

시될 수 없는 크기임을 알 수 있었다. 재생로 하부에서 탈황제로 재주입되는 고체량(F_{10})에 가장 큰 영향을 미치는 변수는 기체유속으로 나타났고, 다음으로 탈황로에서 사이클론의 분급입경, 정체층 높이, 탈황제의 마모속도상수 순이었다. 기체유속의 영향에 비해서 사이클론 분급입경의 영향은 훨씬 작았으나 무시될 수는 없는 크기였고, 정체층 높이와 탈황제 마모속도 상수의 영향은 무시될 만큼 작았다. 공정의 입도분포에 주로 영향을 주는 인자는 탈황로 사이클론의 분급입경이었다.

결과적으로 탈황제 소모량의 최적화에는 탈황로에서 사이클론 포집효율 즉 사이클론의 분급입경이 가장 중요한 변수이며, 탈황로에서 기체유속, 정체층높이, 탈황제의 마모속도상수도 무시될 수 없는 인자들임을 알 수 있었다. 탈황공정의 부하조절 방법에 고려될 수 있는 변수로는 탈황로에서 유속이 가장 중요하며, 설계단계에서 사이클론 포집효율 즉 사이클론의 분급입경도 상당한 영향인자로 고려될 수 있는 것으로 사료되었다.

4.4. 탈황로 부하조절

고체흐름특성에 대한 주요변수의 영향의 크기를 비교함으로써 정성적인 탈황로 부하조절 기법을 제안할 수 있었다. 탈황로 주입기체의 H_2S 농도가 일정한 상태에서 주입되는 기체량이 증가할 경우에는 탈황로 기체유속이 증가하게 되고, 비산되는 고체량이 증가되므로 탈황로의 고정층 높이를 일정하게 유지하기 위해서는 재생로 하부에서 탈황로로 주입되는 고체량(F_{10})과 탈황로에 새로 주입되는 탈황제량이 증가하여 탈황 반응의 부하조절이 가능해진다.

탈황로에 주입되는 기체량이 일정한 상태에서 주입기체중 H_2S 의 농도가 증가할 경우에는 탈황로의 고정층 높이를 증가시키면 기체와 탈황제간의 접촉시간이 증가하여 탈황 반응의 부하조절이 가능해진다. 이때 탈황로에 새로 주입되는 탈황제량과 재생로에서 재주입되는 고체량은 다소 증가된다.

5. 결 론

탈황로와 재생로로 구성된 고온, 고압의 유동층 탈황공정에서 탈황로와 재생로의 유동특성이 모두 고려된 입자수지의 해석을 수행하였다. 탈황로에서 입자의 마모속도상수, 사이클론의 분급입경, 유속, 고정층높이의 변화와 재생로에서 사이클론의 분급입경의 변화에 따른 고체흐름 특성의 변화를 모사하였다.

탈황로의 고정층높이, 기체유속, 탈황제의 마모속도상수가 증가함에 따라 새로 주입되는 탈황제량과 재생로 하부에서 탈황로로 주입되는 고체량이 증가하였다. 탈황로와 재생로의 사이클론 분급입경이 증가함에 따라 새로 주입되는 탈황제량은 증가하는 반면 재생로 하부에서 탈황로로 주입되는 고체량은 감소하였다.

탈황제 소모량에는 탈황로에서 사이클론 포집효율 즉 사이클론의 분급입경이 가장 중요한 변수이며, 탈황로에서 기체유속, 정체층높이, 탈황제의 마모속도상수도 무시될 수 없는 인자들임을 알 수 있었다. 전

Table 3. Effects of process variables on solid flow rates(F_0 , F_{10}) and particle size distributions of the process

Parameter of the desulfurizer(range)	F_0		F_{10}		Change of process particle size distribution
	Ranges in g/s (trends)*	Exponents of parameters	Ranges in g/s (trends)*	Exponents of parameters	
Static bed height(0.05-0.5 m)	0.02-0.14(↑)	0.845	1554-1564(↑)	0.0028	Minor
Particle attrition rate constant(1×10^{-9} - 1×10^{-7} /cm)	0.01-0.25(↑)	0.699	1552-1570(↑)	0.0025	Minor
Cyclone cut diameter(5-30 μ m)	0.05-0.35(↑)	1.09	1850-1300(↓)	-0.197	Significant
Gas velocity(200-500 cm/s)	0.06-0.13(↑)	0.844	1000-2100(↑)	0.810	Minor

*↓: Decreasing ↑: Increasing

공정의 입도분포는 탈황로 사이클론의 포집효율에 지배적인 영향을 받았으며 타변수들의 영향은 무시될 수 있었다.

탈황공정의 부하조절 방법에 고려될 수 있는 변수로는 탈황로에서 유속이 가장 중요하며, 탈황로 사이클론의 포집효율 즉 사이클론의 분급 입경도 상당한 영향을 주는 것으로 사료되었다. 탈황로에서 처리기체유량의 증가에 대한 부하조절은 탈황로 기체유속의 증가에 따른 재생로로부터 주입되는 탈황제 유량의 증가로 가능하며, 처리기체중의 H_2S 농도의 증가에 대한 부하조절은 탈황로의 정 체층높이를 증가시켜 기체의 반응기내 체류시간을 증가시킴으로 가능한 것으로 판단되었다.

감 사

본 연구는 대체에너지기술개발사업(G7)의 일환으로 수행되었습니다. 연구비 지원에 감사드립니다.

사용기호

a	: decay constant [1/m]
Ar	: Archimedes number [-]
C_d	: drag coefficient [-]
d_p	: particle diameter [m]
D_t	: column diameter [m]
E_i^*	: entrainment rate of particles in size i [$kg/m^2 \cdot s$]
E_{ith}^*	: cluster flux of entrained particles in size i [$kg/m^2 \cdot s$]
E_{ioo}^*	: dispersed noncluster flux of entrained particles in size i or elutriation rate constant of particles in size i above TDH [$kg/m^2 \cdot s$]
F_d	: drag force on the particle per projection area [Pa]
F_g	: gravity force minus buoyancy force per projection area of particle [Pa]
F_0	: solid flow rate of fresh feed [kg/s]
F_1	: solid flow rate of bed drain in the desulfurizer [kg/s]
F_{10}	: solid flow rate from the regenerator to the desulfurizer [kg/s]
F_2	: flow rate of entrained solids from the desulfurizer [kg/s]
F_3	: flow rate of solids collected in the desulfurizer cyclone [kg/s]
F_4	: flow rate of solids passing the desulfurizer cyclone [kg/s]
F_5	: flow rate of discharged solids among solids collected in the desulfurizer cyclone [kg/s]
F_6	: flow rate of entrained solids from the regenerator [kg/s]
F_7	: flow rate of solids collected in the regenerator cyclone [kg/s]
F_8	: flow rate of solids passing the regenerator cyclone [kg/s]
F_9	: flow rate of discharged solids among solids collected in the regenerator cyclone [kg/s]
F_{j10}	: bottom solid discharge from regenerator [kg/s]
g	: gravitational acceleration [m/s^2]
H_b	: bed height calculated from Eq. (19) [m]
H_{mf}	: H_b at U_{mf} [m]
H_s	: static bed height [m]
H_t	: column height [m]
$K_i^*(x)$: particle entrainment rate in size x from the desulfurizer [kg/s]
$K_r^*(x)$: particle entrainment rate in size x from the regenerator [kg/s]
K_a	: attrition rate constant [1/m]
$p_i(x)$: probability density function of size x of particles in the flow rate F_i [1/m]
$p_{a1}(x)$: probability density function of size x of particles formed by attrition in the desulfurizer [1/m]

$p_{a2}(x)$: probability density function of size x of particles formed by attrition in the regenerator [1/m]
$p_{b1}(x)$: probability density function of size x of particles in the desulfurizer [1/m]
$p_{b2}(x)$: probability density function of size x of particles in the regenerator [1/m]
$R(x)$: shrinking rate of particle sphere [m/s]
$R_1(x)$: shrinking rate of particle sphere in desulfurizer [m/s]
$R_2(x)$: shrinking rate of particle sphere in regenerator [m/s]
R_a	: total attrition rate [kg/s]
R_{a1}	: formation of fine particles by particle attrition in desulfurizer [kg/s]
R_{a2}	: formation of fine particles by particle attrition in regenerator [kg/s]
Re_p	: particle Reynolds number, $d_p U_{pg}/\mu$ [-]
R_{j1}	: fraction of particles fed to regenerator among particles captured by desulfurizer cyclone [-]
R_{j2}	: fraction of particles fed to regenerator among particles captured by regenerator cyclone [-]
t	: time [s]
U	: superficial gas velocity [m/s]
U_{mf}	: U at minimum fluidizing condition [m/s]
W	: weight of bed solids [kg]
W_1	: weight of bed solids in desulfurizer [kg]
W_2	: weight of bed solids in regenerator [kg]
x	: diameter of particle [m]
x_{max}	: maximum diameter of particle [m]
Y_i	: weight fraction of size x of particles in the flow rate F_i [-]
Y_{b1}	: weight fraction of size x of particles in the desulfurizer [-]
Y_{b2}	: weight fraction of size x of particles in the regenerator [-]

그리스 문자

$\alpha_{11}(x)$: function defined by Eq. (2) [1/m]
$\alpha_{12}(x)$: function defined by Eq. (3) [1/m]
$\alpha_{13}(x)$: function defined by Eq. (4) [$1/m^2$]
$\alpha_{21}(x)$: function defined by Eq. (8) [1/m]
$\alpha_{22}(x)$: function defined by Eq. (9) [1/m]
$\alpha_{23}(x)$: function defined by Eq. (10) [$1/m^2$]
$\psi_1(x)$: particle collection efficiency in size x of the desulfurizer cyclone [-]
$\psi_2(x)$: particle collection efficiency in size x of the regenerator cyclone [-]
μ	: gas viscosity [Pa · s]
ρ_g	: gas density [kg/m^3]
ρ_p	: apparent particle density [kg/m^3]

참고문헌

1. Yi, C. K.: "Solid Circulation Technology for the Stable Operation of a Hot Gas Desulfurization Bench-Scale Unit(II)," IGCC Research Report, Taejon, 1(1998).
2. Ji, P. S.: "Development of a Hot Gas Clean-up Technology for IGCC," IGCC Research Report, Taejon, 45(1994).
3. Lee, T. J., Park, N. K., Kim, J. H., Kim, K. S., Park, Y. W. and Lee, C. K.: *HWAHAK KONGHAK*, **34**, 435(1996).
4. Kang, S. H., Lee, Y. W., Kang, Y., Han, K. H., Lee, C. K. and Jin, K. T.: *HWAHAK KONGHAK*, **35**, 642(1997).
5. Gupta, R. P. and Gangwal, S. K.: "Enhanced Durability of Desulfurization Sorbents for Fluidized-Bed Application," DOE Report DOE/

- MC/25006-3271(1992).
6. Yi, C. K., Bae, D. H., Shun, D. W., Jin, K. T. and Son, J. E.: *HWA-HAK KONGHAK*, **37**, 604(1999).
 7. Overturf, B. W. and Reklaitis, G. V.: *AIChE J.*, **29**, 813(1983).
 8. Choi, J. H.: Ph. D. Dissertation, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Taejon, Korea, 338(1989).
 9. Kunii, D. and Levenspiel, O.: "Fluidization Engineering," 2nd ed., Betterworth-Heinemann, Boston, 340(1991).
 10. Choi, J. H., Chang, I. Y., Shun, D. W., Yi, C. K., Son, J. E. and Kim, S. D.: *Industrial and Engineering Chemistry Research*, **38**(6), 2491(1999).
 11. Choi, J. H., Ma, S. C., Shun, D. W., Son, J. E. and Kim, S. D.: *HWA-HAK KONGHAK*, **35**, 300(1997).
 12. Merrick, D. and Highley, J.: *AIChE Symp. Ser.*, **70**, 366(1974).
 13. Lapple, C. E.: *Chem. Eng.*, **58**, 147(1951).