

## 삼상 순환유동층에서 기포특성

남석희 · 조용준 · 강 용<sup>†</sup> · 최호석 · 김상돈<sup>\*</sup>

충남대학교 화학공학과

<sup>\*</sup>한국과학기술원 화학공학과

(2000년 5월 12일 접수, 2000년 8월 31일 채택)

## Bubble Characteristics in Three-Phase Circulating Fluidized Beds

Seok-Hee Nam, Yong-Jun Cho, Yong Kang<sup>†</sup> and Sang-Don Kim<sup>\*</sup>

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

<sup>\*</sup>Department of Chemical Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Teajon 305-701, Korea

(Received 12 May 2000; accepted 31 August 2000)

### 요 약

직경이 0.102 m, 높이 3.5 m인 삼상 순환유동층에서 기체-액체-고체 흐름 거동에 따른 기포특성을 고찰하였다. 기체유속 (0.01-0.07 m/s), 액체 유속 (0-0.31 m/s) 그리고 고체순환속도 (2-8 kg/m<sup>2</sup>s) 등을 변수로 선정하였으며, 이들 변수들이 삼상 순환유동층의 상승관에서 기포의 상승속도와 수직길이 그리고 빈도수에 미치는 영향을 검토하였고 각 실험조건에서 기포 크기의 분포를 비교함으로써 비순환영역과 순환영역 흐름에서 기포특성을 비교하였다. 본 연구의 실험결과 삼상 순환유동층의 상승관에서 기포의 상승속도와 빈도수는 기체와 액체유속이 증가함에 따라 증가하는 경향을 나타내었다. 고체 순환속도가 증가함에 따라서는 기포상승속도는 약간 감소하고 빈도수는 약간 증가하는 경향을 나타내었다. 기포의 수직길이는 기체유속의 증가에 따라 증가하는 경향을 나타내었으며, 액체유속과 고체의 순환속도가 증가하면 감소하였다. 기포의 크기분포는 고체입자의 비순환영역에 비해서 순환영역에서 균일도가 상당히 증가하였으며, 기포의 평균크기도 크게 감소하였다. 본 연구의 실험범위에서 기포의 상승속도와 수직길이 그리고 빈도수를 실험변수의 상관식으로 나타낼 수 있었다.

**Abstract** – Bubble characteristics have been investigated in a three-phase circulating fluidized bed of 0.102 m I.D. and 3.5 m height. Effects of gas (0.01-0.07 m/s) and liquid velocities (0-0.31 m/s) and solid circulating rates (2-8 kg/m<sup>2</sup>s) on the bubble characteristics such as rising velocity, chord length and frequency have been determined. Probability density of bubble chord length has been examined with the variations of experimental conditions to analyze the bubble characteristics in the solid circulating regime. As a result of this study, The bubble rising velocity and frequency have increased with increasing gas and liquid velocities, but the former has decreased while the latter has increased slightly, with increasing solid circulating rates. The bubble chord length has increased with increasing gas velocity but it has decreased with liquid velocity and solid circulating rate in the riser of three-phase circulating fluidized beds. The probability density of bubble chord length becomes more narrow representing more uniform bubble size distribution with increasing liquid velocity as well as solid circulating rate in the beds. The rising velocity, chord length and frequency of bubbles have been well correlated in terms of operating variables.

**Key words:** Three-Phase Circulating Fluidized Bed, Bubble Characteristics, Bubble Size Distribution

### 1. 서 론

삼상유동층은 촉매를 사용한 기체-액체 반응이나 증류의 촉매수소첨가 분해반응, 석탄액화, 생물반응공정 및 식품공정 등에 매우 효과적으로 사용될 수 있는 것으로 알려져 있어 국내외적으로 삼상유동층의 수력학적 특성, 열전달 특성 및 물질전달 등의 전달현상에 대한 연구뿐만 아니라 삼상유동층 반응기의 설계 및 성능향상에 대한 연구들이 꾸준히 진행되어 왔다[1-5]. 그러나 삼상유동층에서는 dead zone의 발생

으로 인하여 반응전환율이 감소되며 촉매의 재생작업 등이 어려운 단점을 가지고 있다.

삼상 순환유동층은 삼상유동층에 비하여 이러한 단점을 극복할 수 있기 때문에 기체-액체-고체간의 접촉효율을 더욱 증가시켜 반응전환율을 획기적으로 증가시킬 수 있고, 발열 반응 시 고체의 순환은 열에너지가 층 내에서 제거시키는 역할을 하여 반응기 내의 안정성을 잘 유지할 수 있다. 특히, 유동 고체가 촉매로 이용되는 반응계에서는 고체촉매의 비활성현상이 발생하게 되며, 비활성된 고체입자를 외부에서 다시 활성화시킨 후 하강관을 통해 연속조작으로 다시 상승관 즉, 층 내로 유입시키는 작업이 필요한데 밀도가 매우 작거나 입자의 크기가 매우

<sup>†</sup>E-mail: kangyong@hanbat.chungnam.ac.kr

작은 경우 또는, 고체유동입자가 다공성인 촉매이거나 흡착제 또는 흡수제 등일 경우 이러한 작업을 효과적으로 수행할 수 있는 것이 삼상 순환유동층이라 할 수 있다[6-10].

삼상 순환유동층에 대한 연구는 세계적으로도 지금 시작단계에 있으며, 국내에서는 매우 미흡한 실정이다[9]. 삼상 순환유동층을 공업적으로 응용하기 위해서는 분산상인 기포와 연속상인 액체상간의 접촉 등에 의해 나타나는 수력학적 특성을 규명하는 일은 매우 중요한 일이라 할 수 있다[9, 10].

따라서 본 연구에서는 상승관 내부의 수력학적 특성을 해석하고자 연속상인 액체와 분산상인 유동고체입자의 흐름변화에 따른 상승기포의 흐름특성을 고찰하였으며, 이는 삼상 순환유동층 반응기의 운전과 설계, 제어 등에 필수적인 공학적 자료를 제공할 것으로 사료된다.

## 2. 실험

본 연구의 실험에 사용한 삼상 순환유동층(Fig. 1)은 상승관의 직경이 0.102 m이고 높이가 3.5 m인 아크릴 관을 사용하였다[9]. 연속상의 분산상은 다공관 형태를 사용하였는데, 직경 3 mm의 구멍을 삼각피치로 균일하게 배치하였으며 분산상의 주입을 위해서는 연속상 분배기 중간에 직경 6.35 mm의 관을 삽입하여 용접한 후 이 관에 직경 1 mm의 오리

**Table 1. Operating conditions in the three-phase circulating fluidized beds**

	Operating condition
Bed height [m]	3.5
Column diameter [m]	0.102
Solid	Glass bead
$d_p$ [mm]	2.1
$\rho_p$ [kg/m <sup>3</sup> ]	2500
Liquid	Tap water(room temperature)
Gas	Compressed air(room temperature)
Gas velocity( $U_G$ ) [cm/s]	0.01-0.07
Liquid velocity( $U_L$ ) [cm/s]	0.00-0.31
Solid circulating rate( $G_S$ ) [kg/m <sup>2</sup> s]	2-8
Data sampling size [-]	500 Hz × 6 s=3000

피스를 만들어 분산상과 연속상이 동일면에서 유동층 내에 주입되도록 하였다. 연속상인 액체로는 상온의 물을, 분산상인 기체로는 여과된 압축공기를 사용하였고, 고체 입자로는  $d_p$ 가 2.1 mm이고  $\rho_p$ 가 2,500 kg/m<sup>3</sup>인 유리구를 사용하였다. 본 실험에 사용된 실험 조건을 Table 1에 간략히 정리하였다. Table에 나타난 바와 같이 실험 범위는 기체유속이 0.01-0.07 m/s이고 액체의 유속은 0.00-0.31 m/s이었다. 실험장치는 고체 입자를 유동화하여 유출시키는 상승관과 상승관 상부의 액체-고체 분리부, 고체입자를 저장하는 hopper, 그리고 고체입자를 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 측정하였는데[9-11], 본 실험에서 고체 순환 속도의 범위는 2-8 kg/m<sup>2</sup> · s 이었다.

기포특성은 전기저항 탐침(electric resistivity probe)을 이용하여 분산관으로부터 0.5, 0.9, 1.3, 1.7 m 높이의 측방향 4지점에서 측정하여 이 값들의 평균값으로 결정하였다. 전기저항탐침 간의 거리는 2.0 mm이었으며, 탐침의 두 tip 간의 신호시간차이를 이용하여 다음 식들로부터 기포상승속도, 기포수직길이, 기포빈도수 등을 구하였다[4, 12]. 즉, 두 tip 간의 시간차를  $t_i$ , 기포가 탐침에 머무는 시간을  $t_{2i}$  하여 식 (1)과 (2)에 의해 기포상승속도를 구하였다.

$$\text{단일기포의 상승속도, } U_{bi} = \frac{\text{탐침 tip 거리}(l)}{t_{1i}} \quad (1)$$

$$\text{평균기포의 상승속도, } U_b = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n U_{bi} \quad (2)$$

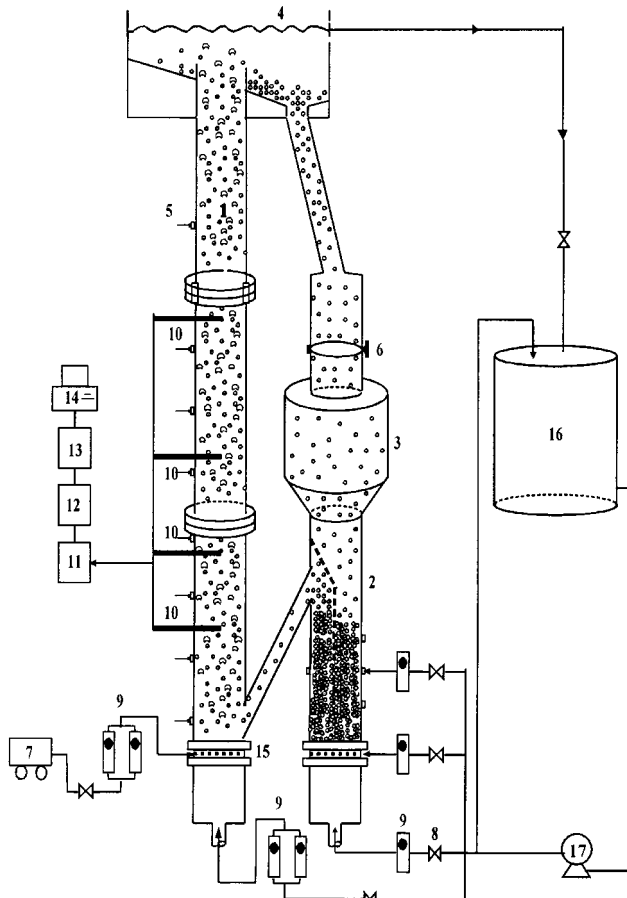
한편, 기포의 수직길이( $L_v$ )는 기포가 두 tip 사이에 머무르는 시간  $t_2$ 로부터 식 (3)과 (4)에 의해 구하였다.

$$\text{단일기포의 수직길이, } L_{vi} = U_{bi} \cdot t_{2i} = \frac{t_{2i}}{t_{1i}} [\text{탐침 tip 거리}(l)] \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \text{평균기포의 수직길이, } L_v &= \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n L_{vi} \\ &= \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n U_{bi} \cdot t_{2i} \\ &= \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{t_{2i}}{t_{1i}} \end{aligned} \quad (4)$$

또한, 탐침을 통과하는 기포의 평균 빈도수는 식 (5)와 같이 구할 수 있으며, 기포의 크기분포는 식 (6)과 같이 구할 수 있다.

$$\text{기포의 평균빈도수, } F_B = \frac{\text{기포의 총수}(n)}{\text{전체측정시간}(T)} \quad (5)$$



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

- |                    |                       |                      |
|--------------------|-----------------------|----------------------|
| 1. Riser           | 7. Compressor         | 13. A/D convertor    |
| 2. Down commer     | 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   |                      |

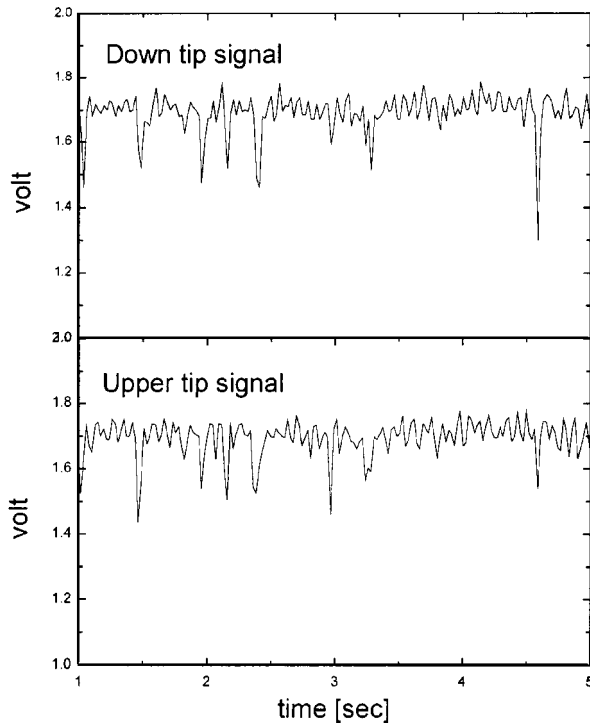


Fig. 2. Typical output signals from the electrical resistivity probe( $U_G=0.01$ [m/s],  $U_L=0.27$ [m/s],  $G_S=4$ [kg/m<sup>2</sup> · s]).

기포의 크기분포,

$$\text{수밀도확률(probability number density)} = \frac{n_{L_v}}{\sum n_{L_v}} \quad (6)$$

탐침의 전압은 1.75 volt였으며 탐침으로부터 나오는 전기적 신호는 증폭기를 거쳐 A/D 변환기를 사용하여 디지털 신호로 변환하였다. A/D 변환기를 거친 자료(500 Hz)들은 데이터 획득장치(DT 2805 Lap Card)를 사용하여 sample의 크기를 각 실험조건에서 3,000개가 되도록 하여 PC에 입력시킨 후 off-line process로 통계적으로 처리하여 해석하였다. 이들 자료크기와 수집속도의 조합은 각 조건에서 상승관 내부의 기포 특성을 나타내는 전체 스펙트럼을 해석하는데 충분하였다.

### 3. 결과 및 고찰

삼상 순환유동층의 상승관 내에서 2개의 저항탐침에 의해 측정된 신호의 전형적인 형태를 Fig. 2에 나타내었는데, 이 신호들은 filtering 과정을 거쳐 기포의 상승속도, 수직길이 그리고 빈도수 등과 같은 기포의 특성을 해석하는데 사용하였다.

Fig. 3a는 고체 입자가 2.1 mm인 입자층에서 기상유속의 변화에 따른 기포상승 속도의 변화를 나타낸 것이다. 그림에서 보듯이 기상유속이 증가함에 따라 기포의 상승속도는 모두 선형적으로 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 기존의 삼상유동층의 결과와도 비슷한 양상을 보이는 것으로 [4] 기체유속의 증가는 상승관 내부에 주입되는 기체량의 증가에 따라 Fig. 3c에서 볼 수 있듯이 기포빈도수의 증가를 가져오며 이는 기포합체의 증가에 의해 Fig. 3b에서 보는 바와 같이 기포크기의 증가를 가져와 결국 부력의 증가에 의해 상승속도가 커지는 것으로 해석할 수 있다. 또한, 기상유속의 증가로 인해 상승관 내에 기포의 밀도는 증가하게 되고 기포의 상승속도는 액상의 상승속도보다 빠르기 때문에 층전체에 걸쳐 앞선 기포에 의한 굴뚝효과로 뒤에 따르는 기포에 미치는 항력이 줄어들게 되어 기포의 상승속도는 커지게 된다고 할 수 있다.

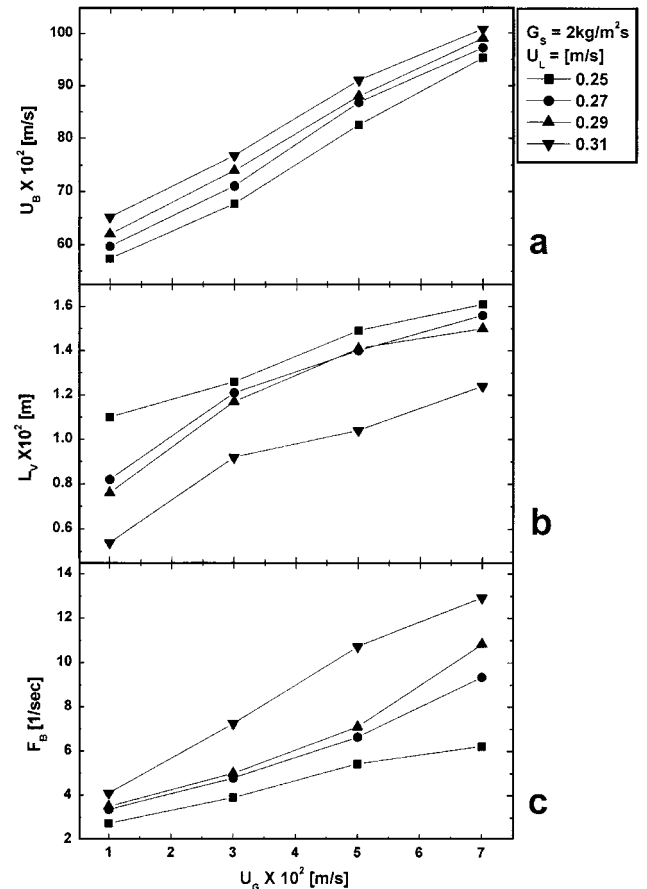


Fig. 3. Effects of  $U_G$  on the bubble rising velocity( $U_B$ ), chord length( $L_v$ ) and frequency( $F_B$ ) in three-phase circulating fluidized beds.

삼상 순환유동층에서 액체유속의 증가에 따른 기포의 상승속도변화를 Fig. 4a에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 액체유속이 증가함에 따라 기포의 상승속도는 약간 증가함을 나타내었다. 액체유속의 증가는 액체에 의한 상승관내 운동량의 증가를 가져와 상승관에 투입되는 일정 고체순환속도의 조건에서 고체체류량은 감소하게 된다. 따라서 유동 고체입자가 기포에 작용하는 hinderance 효과가 상대적으로 감소하기 때문에 기포의 상승속도는 증가된다. 하지만 액체유속의 증가로 인해 기포크기는 Fig. 4b에서 보는 바와 같이 감소하는 경향[13]을 나타내기 때문에 이는 운동량의 증가로 인한 기포의 상승속도 증가를 상쇄시키는 결과를 나타내어 액체 유속의 증가는 기포의 상승속도를 크게 증가시키지 못한다고 할 수 있다. 한편, 액체유속의 증가에 따라 기포의 상승속도가 증가하고, 또 난류현상의 증가에 따라 기포의 분쇄효과 증가 및 합체현상 감소로 인해 기포수의 크기가 감소하므로 같은 기체유량의 조건에서 기포의 빈도수는 증가하는 경향을 나타내었는데(Fig. 4c), 이와 같은 현상은 기체유속이 증가할수록 더욱 두드러지게 나타났다.

삼상 순환유동층의 상승관에 투입되는 고체입자의 순환속도가 기포의 상승속도와 수직길이 그리고 빈도수에 미치는 영향을 Fig. 5에 나타내었다. 이 그림에서 볼 수 있듯이 고체입자의 순환속도가 증가함에 따라 기포상승속도는 약간 감소하는 경향을 나타내고 있는데, 이는  $G_S$ 의 증가에 따라 고체체류량이 증가하여 고체입자의 유동에 의한 난류현상의 증가를 야기시켜 기포합체를 억제하는 효과를 가져와 기포의 크기가 감소하고(Fig. 5b) 기포의 상승속도도 약간 감소하는 것을 알 수 있다(Fig. 5a). 한편, 상승관에 일정량의 기체가 유입될 때  $G_S$ 의 증가는 기포의 크기가 감소하는 결과를 가져오기 때문에 기포의 빈도수( $F_B$ )는

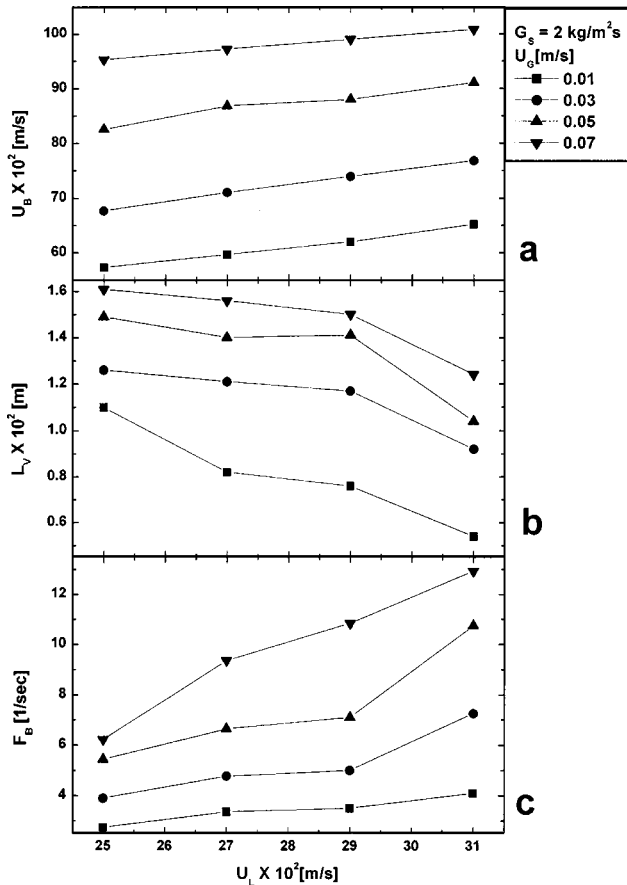


Fig. 4. Effects of  $U_L$  on the bubble rising velocity( $U_B$ ), chord length( $L_V$ ) and frequency( $F_B$ ) in three-phase circulating fluidized beds.

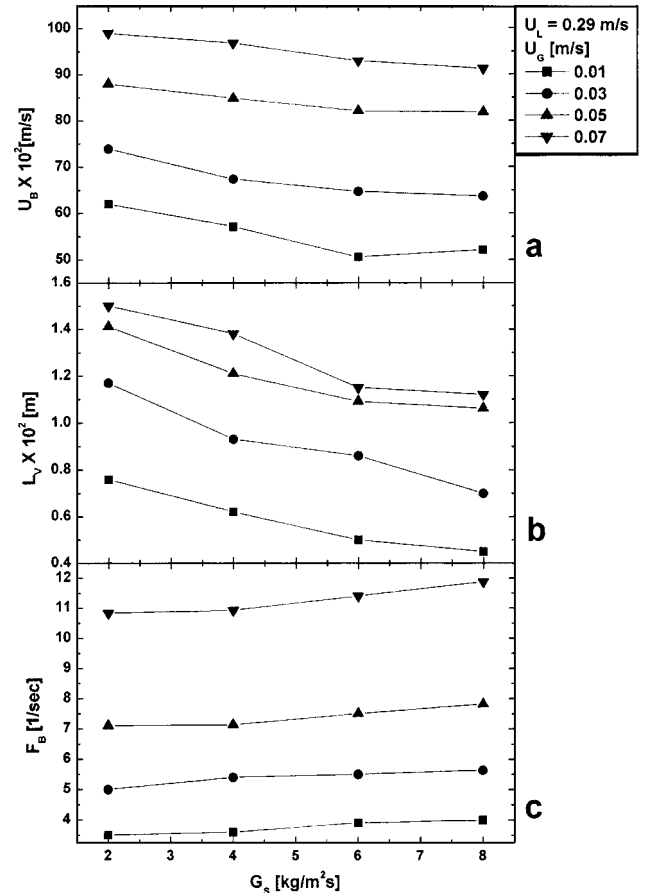


Fig. 5. Effects of  $G_s$  on the bubble rising velocity( $U_B$ ), chord length( $L_V$ ) and frequency( $F_B$ ) in three-phase circulating fluidized beds.

약간 증가하는 것으로 나타났다(Fig. 5c).

기포의 크기분포는 유동층반응기나 접촉기에서 반응전환율과 접촉 효율 등에 결정적인 영향을 미치므로 이들의 설계와 운전에 매우 중요한 요소가 되어왔다[12, 14]. 따라서, 각각의 실험조건에서 기포크기에 대한 수-밀도분포(number density distribution)를 식 (3)과 (5)에 의해 구하여 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6에서, 액체의 유속이 낮은 고체입자의 비순환영역(0.10-0.18 m/s)에서는 기포크기 분포의 폭이 넓고 bi-modal 형태를 보이다가 액체유속이 증가하여 순환유동층영역(0.27-0.31 m/s)으로 전이되면서 기포의 크기는 작아지고 수-밀도분포의 폭도 더욱 좁아짐을 나타내고 있다. 한편, 상승관에서 고체입자순환속도( $G_s$ )의 변화가 기포의 크기분포에 미치는 영향을 Fig. 7에 나타내었다. 이 그림에서 볼 수 있듯이  $G_s$ 가 증가함에 따라 상승관내에 존재하는 기포의 크기분포는 점점 좁아져 균일한 크기가 됨을 알 수 있다. 이는  $G_s$ 의 증가에 따라 난류현상의 증가가 효과적으로 기포를 분쇄해주기 때문으로 해석할 수 있다[9]. 이와 같이, 삼상 순환유동층에서는 삼상유동층에서보다 기포의 크기를 줄일 수 있으며 그 분포도 좁힐 수 있어 보다 효과적인 운전을 할 수 있을 뿐만 아니라, 삼상유동층에서 유동입자의 종말속도( $u_t$ ) 이내로 제한되어 있는 운전 영역을 그 이상으로 증가시킬 수 있어 유동입자의 크기와 밀도가 작은 입자를 사용한 때에 매우 효과적으로 적용할 수 있다 하겠다.

기포의 특성은 삼상 순환유동층의 조업조건의 결정에 중요한 요소로 작용되며, 이들 장치를 설계하기 위해서는 기포특성에 대한 정보가 확보되어야 한다. 따라서, 기포특성과 작업변수와의 관계를 유도하기 위하여, 본 연구의 실험범위에서 기포의 상승속도와 수직길이 그리고 빈도수를 기체와 액체의 유속 그리고 고체순환속도의 상관관계식으로 식 (6)-(8)과 같이 각각 나타낼 수 있었다. 식 (6)-(8)의 상관계수는 각각

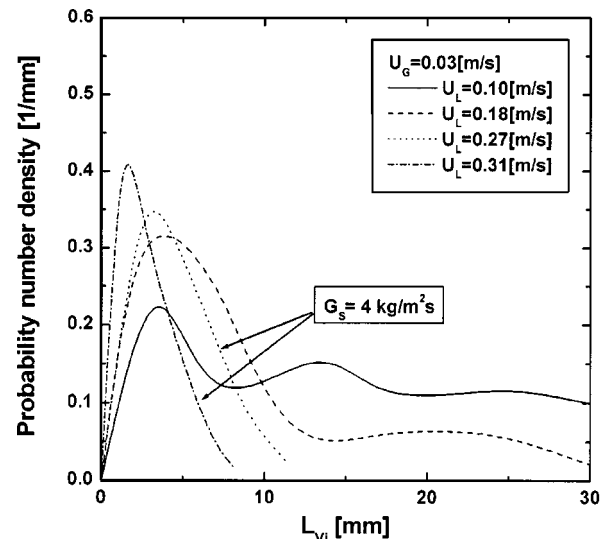


Fig. 6. Probability density of bubble chord length in circulating fluidized beds.

0.942, 0.932 그리고 0.931이었다.

$$U_B = 3.716 U_G^{0.260} U_L^{0.465} G_s^{-0.095} \quad (7)$$

$$L_V = 5.552 \times 10^{-3} U_G^{0.379} U_L^{-1.710} G_s^{-0.211} \quad (8)$$

$$F_B = 963.151 U_G^{0.517} U_L^{2.614} G_s^{0.016} \quad (9)$$

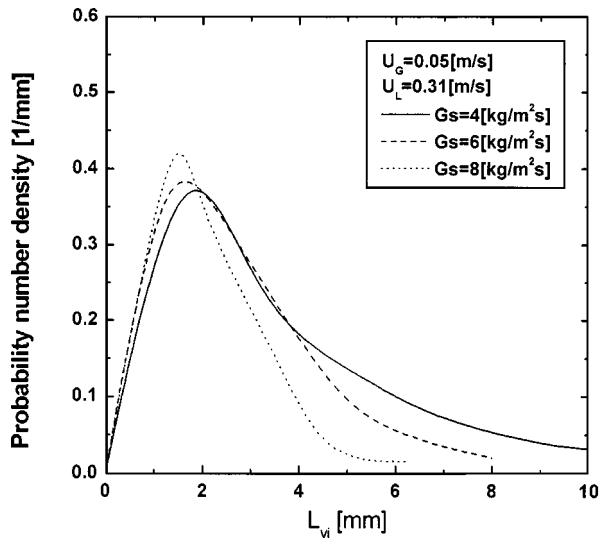


Fig. 7. Probability density of bubble chord length in circulating fluidized beds.

#### 4. 결 론

삼상 순환유동층에서 분산상인 기체의 유속과 고체의 순환속도 그리고 연속상인 액체유속의 변화에 따른 유동층상승관 내부에서의 기포특성에 대하여 고찰하였다. 전기저항탐침법을 이용하여 해석한 결과, 다음과 같은 중요한 결론을 얻을 수 있었다.

- (1) 삼상 순환유동층에서 기체의 유속증가는 상승관에서 기포의 상승속도와 수직길이 그리고 빈도수 모두의 증가를 가져왔다.
- (2) 상승관에서 액체유속이 증가함에 따라 기포의 상승속도와 빈도수는 증가하였고 기포의 크기는 감소하는 경향을 나타내었다.
- (3) 상승관에 투입되는 고체 순환속도가 증가함에 따라 상승관에서 기포의 상승속도와 크기가 감소하고 기포의 빈도수는 증가하는 경향을 나타내었다.
- (4) 삼상 순환유동층의 상승관에 존재하는 기포의 크기분포는 기포크기의 수 밀도함수로써 잘 나타낼 수 있었으며, 비순환영역과 비교하여 순환영역일 경우 매우 균일한 기포의 크기분포를 나타내었다.
- (5) 기포의 상승속도, 수직길이 그리고 빈도수는 각각 실험변수에 대해 다음과 같은 상관식으로 나타낼 수 있었다.

$$U_B = 3.716 U_G^{0.260} U_L^{0.465} G_S^{-0.095}$$

$$L_V = 5.552 \times 10^{-3} U_G^{0.379} U_L^{-1.710} G_S^{-0.211}$$

$$F_B = 963.151 U_G^{0.517} U_L^{2.614} G_S^{0.016}$$

#### 사용기호

$d_p$	: particle diameter [mm]
$F_B$	: bubble generating frequency [ $s^{-1}$ ]
$G_S$	: solid circulating rate [ $kgm^{-2}s^{-1}$ ]
$L_V$	: bubble chord length [m]
$L_{Vi}$	: individual bubble chord length [m]
$t$	: time [s]
$U_b$	: bubble rising velocity [ $ms^{-1}$ ]
$U_{bi}$	: individual bubble rising velocity [ $ms^{-1}$ ]
$U_G$	: superficial gas velocity [ $ms^{-1}$ ]
$U_L$	: superficial liquid velocity [ $ms^{-1}$ ]

#### 그리스 문자

$\rho_p$	: particle density [ $kg/m^3$ ]
----------	---------------------------------

#### 참고문헌

1. Kang, Y., Woo, K. J., Ko, M. H. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 3723(1997).
2. Kang, Y., Woo, K. J., Ko, M. H. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **34**, 429(1995).
3. Kim, S. D. and Kang, Y.: *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 3639(1997).
4. Matsuura, A. and Fan, L. S.: *AIChE J.*, **30**, 894(1984).
5. Kang, Y., Woo, K. J., Ko, M. H., Cho, Y. J. and Kim, S. D.: *Korean J. Chem. Eng.*, **16**, 784(1999).
6. Shejio, H., Jian, Z., Yong, J., Kai, C. L., Zhanwen, W.: *Chem. Eng. J.*, **70**, 9(1998).
7. Liang, W., Wu, Q., Yu, Z., Jin, Y. and Wang, Z.: *Can. J. Chem. Eng.*, **73**, 656(1995).
8. Liang, W. G., Wu, Q. W., Yu, Z. Q., Jin, Y. and Bi, H. T.: *AIChE J.*, **41**, 267(1995).
9. Kim, S. H., Cho, Y. J., Song, P. S., Kang, Y. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **37**, 916(1999).
10. Cho, Y. J., Song, P. S., Kim, S. H., Kang, Y. and Kim, S. D.: *J. Chem. Eng. Japan*, in press(2000).
11. Wang, T., Lin, Z. T., Zhu, C. M., Liu, D. C. and Saxena, S. C.: *AIChE J.*, **39**, 1406(1993).
12. Kang, Y., Cho, Y. J., Woo, K. J., Kim, K. I. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Sci.*, **55**, 411(2000).
13. Kwon, H. Y., Kang, Y., Kim, S. D., Yashima, M. and Fan, L. T.: *Ind. Eng. Chem. Res.*, **33**, 1852(1994).
14. Yu, H. Y. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Sci.*, **46**, 313(1991).