

## 삼상 순환유동층에서 기체-액체 물질전달 특성

김사중 · 조용준 · 강 용<sup>†</sup> · 김상돈\* · 박성희\*\*

충남대학교 화학공학과

\*한국과학기술원 화학공학과

\*\*우석대학교 화학공학과

(2001년 5월 18일 접수, 2001년 7월 24일 채택)

## Mass Transfer Characteristics of Three-Phase Circulating Fluidized Beds

Sa-Jung Kim, Yong-Jun Cho, Yong Kang<sup>†</sup>, Sang-Done Kim\* and Sung-Hee Park\*\*

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

\*Department of Chemical Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Daejeon 305-701, Korea

\*\*Department of Chemical Engineering, Woosuk University, Cheonju 565-701, Korea

(Received 18 May 2001; accepted 24 July 2001)

### 요 약

삼상 순환유동층의 상승관(내경이 0.102 m이고 높이가 3.5 m)에서 기체-액체 부피물질전달 계수( $k_L a$ )의 특성을 고찰하였다. 기체(0.01-0.09 m/s) 및 액체유속(0.12-0.43 m/s), 고체순환속도(2-8 kg/m<sup>2</sup>s) 그리고 고체 유동입자의 크기(1.0-3.0 mm)가 기체-액체 부피 물질전달 계수에 미치는 영향을 검토하였다. 기체-액체 물질전달 계수는 용존산소의 축방향 농도 분포로부터 축방향 분산 모델에 의해 구하였다. 물과 여과된 압축공기 그리고 밀도가 2,500 kg/m<sup>3</sup>인 유리구슬을 액체상, 기체상 그리고 유동 고체입자로 각각 사용하였다. 상승관에서 기체의 유속이 기체-액체 부피 물질전달 계수의 결정에 가장 중요한 요소로 나타났다. 즉, 부피 물질전달 계수는 기체유속이 증가함에 따라 증가하였으나, 액체 유속의 변화에 따라서는 유동입자의 크기가 비교적 큰 1.7-3.0 mm의 유동층에서 크게 변화하지 않았다. 다만, 유동입자의 크기가 1 mm인 경우에는 액체유속이 증가함에 따라  $k_L a$  값이 약간 증가하는 것으로 나타났다. 기체-액체 부피 물질전달 계수는 고체순환속도와 유동입자의 크기가 증가함에 따라 증가하는 것으로 나타났다. 기체-액체 물질전달 계수는 본 연구의 실험범위에서 운전변수와 무차원군의 함수로 각각 나타낼 수 있었다.

**Abstract** – Characteristics of gas-liquid volumetric mass transfer has been investigated in a riser of three-phase circulating fluidized bed(0.102 m ID and 3.5 m in height). Effects of gas(0.01-0.09 m/s) and liquid(0.12-0.43 m/s) velocities, solid circulation rate(2-8 kg/m<sup>2</sup>s) and fluidized particle size(1.0-3.0 mm) on the volumetric gas-liquid mass transfer coefficient have been examined. The mass transfer coefficient has been recovered from the concentration profile of dissolved oxygen in the axial direction of the riser by means of axial dispersion model. Tap water, filtered and compressed air and glass bead whose density is 2,500 kg/m<sup>3</sup> were employed as a liquid, gas and solid phase, respectively. It has been found that the gas velocity is a important factor to determine the value of mass transfer coefficient; the mass transfer coefficient increases with increasing gas velocity but it does not change considerably with the variation of liquid velocity in the beds of relatively large particle( $d_p$ : 1.7-3.0 mm), although the  $k_L a$  value increases slightly with increasing  $U_L$  in the beds of 1 mm glass bead. The value of mass transfer coefficient increases with increasing solid circulation rate as well as particle size. The mass transfer coefficient has been correlated as a function of operation variables as well as dimensionless groups.

**Key words** : Three-Phase Circulating Fluidized Bed, Gas-Liquid Mass Transfer, Mass Transfer Coefficient, Axial Dispersion-Model, Correlation

### 1. 서 론

삼상 순환유동층은 유동입자가 기체, 액체, 고체의 삼상이 흐르는 상승관에서 상승하여 하강관을 거쳐 재순환되는 계이므로, 유동입자의 크

기나 밀도 그리고 물리적 특성에 관계없이 기체와 액체의 유속을 자유롭게 조절할 수 있어서 삼상의 접촉효율을 극대화하면서도 기존의 삼상 유동층과 비교하여 액체의 유속 및 유동고체 입자의 크기, 밀도 등 운전조건을 매우 확장할 수 있다는 큰 장점을 가지고 있다[1-3]. 뿐만 아니라, 삼상 순환유동층은 유동입자를 상승관과 하강관을 통하여 순환시키면서 유동입자의 표면처리나 가공 등이 용이하여 상승관에서 기체나 액체 등과 접촉하여 비활성화된 촉매나 흡착, 흡수제들의 재활성

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.  
E-mail: kangyong@hanbat.cnu.ac.kr

화에 매우 효과적으로 적용할 수 있어서 삼상 유동층 반응기나 접촉기 그리고 흡수나 흡착공정을 매우 효율적으로 수행할 수 있는 것으로 알려져 있다[4-7]. 또한, 대부분의 생물공정이나 반응기에서는 유동입자가 다공성이며 밀도가 작아 삼상유동층을 사용할 경우 유동입자의 최소유동화속도가 매우 작으므로 이에 따른 액체의 유속조절이 전체 반응의 전환율에 미치는 영향이 커서 그 제약조건이 많아 사용에 큰 제한을 받아왔으나, 삼상 순환유동층을 사용함으로써 이와같은 제한점을 극복할 수 있다 하겠다. 그러나, 삼상 순환유동층에 대한 연구는 국내 · 외를 막론하고 이제 시작단계에 있으며 이를 공정에 응용하기에는 수력학적 특성과 열 및 물질전달 등 전달현상에 대한 정보가 매우 긴급하다 하겠다[8-10].

따라서, 본 연구에서는 삼상 순환유동층의 상승관에서 기체와 액체간의 물질전달특성을 고찰하였으며, 기체와 액체유속, 유동입자의 순환속도 그리고 유동입자의 크기 등이 기체-액체간의 부피 물질전달 계수에 미치는 영향을 규명하였다. 본 연구의 결과는 삼상 순환유동층 반응기나 접촉기의 운전이나 설계 그리고 제어 등에 필수적인 공학적 자료를 제공할 수 있을 것으로 사료된다.

## 2. 실험

본 연구의 실험에 사용한 삼상 순환유동층(Circulating Fluidized Beds)의 상승관은 직경이 0.102 m이고 높이가 3.5 m인 아크릴 관을 사용하였다[3, 9-10]. 삼상 순환유동층은 Fig. 1에서 보는 바와 같이 고체입자를 유동화하여 유출시키는 상승관과 상승관 상부의 기체-액체-고체 분리부, 고체입자를 저장하는 hopper, 그리고 고체입자를 일정한 순환속도로 다시 상승관에 주입시키는 내부 loop-seal로 구성되어 있다. 액체 연속상의 분산관은 다공관 형태를 사용하였는데, 직경 3 mm의 구멍을 삼각피치로 균일하게 배치하였으며 기체분산상의 주입을 위해 액체연속상 분배기에 직경 6.35 mm의 관을 삽입하여 용접한 후 이 관에 직경 1 mm의 오리피스를 만들어 기체 분산상과 액체연속상이 동일면에서 유동층 내에 주입되도록 하였다.

연속상인 액체로는 상온의 물을, 분산상인 기체로는 여과된 압축공기를 사용하였고, 고체입자로는 직경이 1.0, 1.7, 2.1, 3.0 mm이고 밀도가 2,500 kg/m<sup>3</sup>인 유리구를 사용하였다. Loop-seal의 하부와 측면에서는 일정한 유속의 액체를 주입하여 상승관으로 다시 유입되는 고체의 양을 조절하였고, 순환되는 고체의 양은 butterfly valve를 이용하여 실험적으로 측정하였는데[3, 8-10] 본 실험에서 고체순환속도의 범위는 2-8 kg/m<sup>2</sup>s이다.

본 연구의 주요 실험변수로는 기체유속(0.01-0.09 m/s), 액체유속(0.12-0.43 m/s), 고체순환속도(2-8 kg/m<sup>2</sup>s) 및 입자크기(1.0-3.0 mm)를 선정하였으며, 삼상 순환유동층의 상승관에서 기체-액체 부피 물질전달 계수의 결정은 연속상의 축방향 용존산소량을 측정하여 축방향 분산모델을 적용하여 구하였다[6, 11-12]. 삼상 순환유동층의 상승관내에서 액상의 축방향 용존산소량의 변화를 측정하기 위하여 상승관의 고체유동입자가 재순환되는 재투입구로부터 0.3 m의 높이에서부터 고체유동입자 재투입구의 맞은 편 벽면에 0.3 m 높이에 따라 7개의 액체시료 sampling tap을 설치하였다. 일정실험 조건에서 액상의 시료채취는 상승관의 축방향 각 위치에서 시료채취 밸브가 일정시간 동시에 열리도록 solenoid valve와 기-액 분리기를 사용하여 채취하였다. 채취된 시료의 용존산소량 측정은 상온에서 교반되는 DO-meter(YSI Inc. 59BC-115V)를 사용하여 측정하였다.

본 연구에서는 삼상유동층이나 기포탑의 물질전달 특성연구에 적용되어온 축방향 분산 모델을 적용하였다. 이 모델에 의하면 정상상태에서 용존산소의 물질수지로부터 얻을 수 있는 식 (1)과 같이 나타낼 수 있는데[6, 11-12].

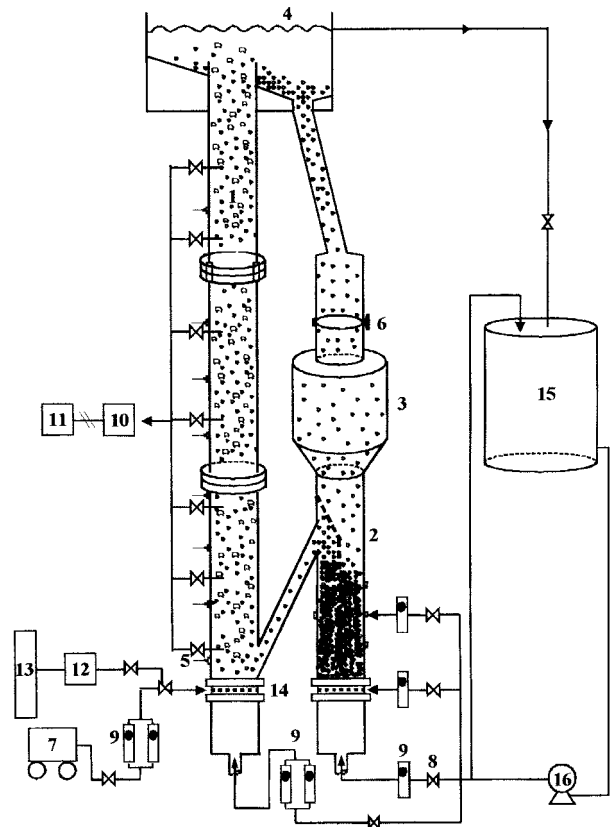


Fig. 1. Schematic diagram of a three-phase circulating fluidized bed.

- |                    |                         |
|--------------------|-------------------------|
| 1. Riser           | 9. Flowmeter            |
| 2. Down comer      | 10. Control valve       |
| 3. Hopper          | 11. Sampling vessel     |
| 4. L/S separator   | 12. DO meter            |
| 5. Pressure tap    | 13. N <sub>2</sub> tank |
| 6. Butterfly valve | 14. G/L distributor     |
| 7. Compressor      | 15. Liquid reservoir    |
| 8. Control valve   | 16. Pump                |

$$\frac{1}{Pe^*} \frac{d^2C}{dx^2} - \frac{dC}{dx} + St^*(C^* - C) = 0 \quad (1)$$

at

$$x = 0, C = C_0 + \frac{1}{Pe^*} \frac{dC}{dx} \Big|_{x=0} \quad (2)$$

at

$$x = 1, \frac{dC}{dx} \Big|_{x=0} = 0 \quad (3)$$

여기서,  $Pe^*$ 는 Peclet 수로  $U_L L / D_{eL}$ 과 같이 정의되며  $St^*$ 는 Stanton 수로  $(k_L a) L / U_L$ 과 같이 정의된다. 한편  $x$ 는 무차원 길이를, 그리고  $C^*$ 는 용존산소의 평형농도를 나타낸다. 따라서, 주어진 운전조건에서 상승관의 축방향 변위의 변화에 따른 용존산소의 양을 측정하여 식 (1)로부터  $St^*$ 수의 값을 구하여 기체-액체 부피 물질전달 계수를 구하였다.

## 3. 결과 및 고찰

삼상 순환유동층의 상승관에서 축 방향 높이에 따른 용존산소의 농도 분포의 예를 Fig. 2에 나타내었다. 상승관에서 용존산소 농도의 축방향

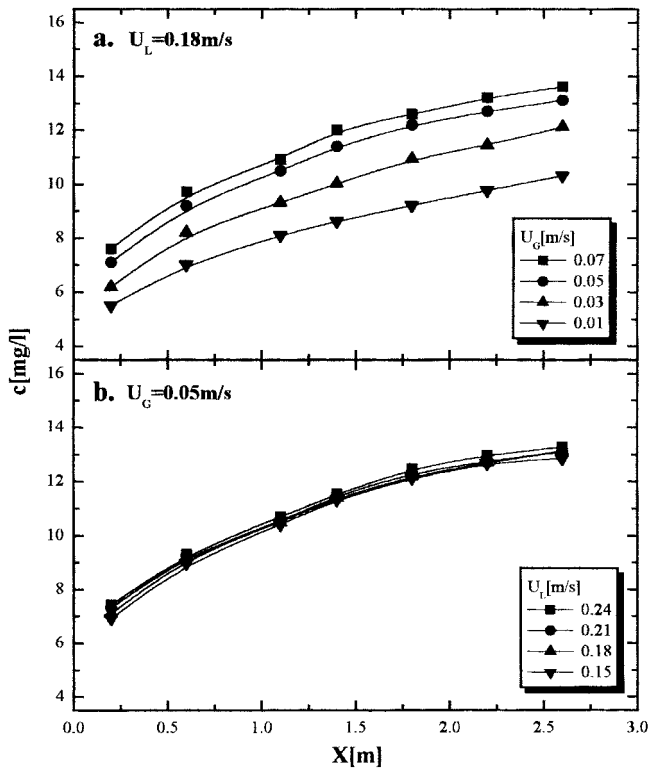


Fig. 2. Typical example of dissolved oxygen concentration profile in the axial direction of a column ( $G_s = 2 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$ ,  $d_p = 1 \text{ mm}$ ).

분포는 높이가 증가됨에 따라 단조 증가하는 경향을 나타낼 수 있으며, 따라서, 축방향 분산모델을 적용하며 기체-액체 물질전달 계수를 구하는 것이 합리적이라 판단되었다[6, 11-12]. 상승관에서 용존산소 농도의 증가 경향은 기체 유속이 상대적으로 낮은  $0.01 \text{ m/s}$ 인 경우에는 거의 선형적으로 약간 증가하는 경향을 나타내었으나 기체유속이  $0.03$ - $0.07 \text{ m/s}$ 의 범위에서는 용존산소의 농도가 축방향 높이에 따라 증가하는 경향이 더욱 뚜렷하였다(Fig. 2a). 또한, Fig. 2b에서 볼 수 있듯이 상승관에서 축방향 높이에 따른 용존산소 농도의 변화는 액체의 유속( $U_L$ )에는 크게 영향을 받지 않는 것으로 나타났다. 이와 같은 상승관의 축방향 높이에 따른 용존 산소의 농도 분포자료로부터 축방향 분산 모델인 식 (1)-(3)을 이용하여 일정 운전조건에서 기체-액체 부피 물질전달 계수를 구하였다[6, 11-12].

삼상 순환유동층의 상승관에서 기체-액체 부피 물질전달 계수( $k_L a$ )는 Fig. 3에서 보는 바와 같이 기체유속이 증가함에 따라 모든 운전조건에서 증가함을 알 수 있다. 이는 일정 유동입자와 액체유속 그리고 고체입자의 순환속도 조건에서 상승관의 단위부피에 투입되는 기체공기의 양이 증가함에 따라 공기에 포함된 산소량의 공급도 증가되기 때문이라 할 수 있다. 뿐만 아니라, 삼상이 흐르는 상승관에서 기체 유속의 증가는 상승관내에 기체 체류량의 증가를 가져와 분산상으로 존재하는 기포에 의한 기체-액체 계면에서의 난류현상도 증가되어 기체-액체간의 부피 물질전달에 도움이 된다고 할 수 있다. 그러나, 삼상 순환유동층의 상승관에서 액체 유속의 증가는 Fig. 4에서 보는 바와 같이 기체-액체 부피 물질전달 계수에 큰 영향을 미치지 못하는 것으로 나타났다. 이는 상승관에서 액체의 유속이 증가함에 따라 상승관 내부의 난류 현상의 증가를 가져와 기체-액체의 계면이 보다 효율적으로 접촉할 수 있어 기체-액체 간의 물질 전달현상을 증가시키는 것으로 작용하는 반면, 상승관의 단위부피당 액체의 체류량이 증가하게 됨으로써 기체의 체류량이 감소하는 결과를 가져와[8] 기체-액체의 접촉면적이 감소하는 효과가 되

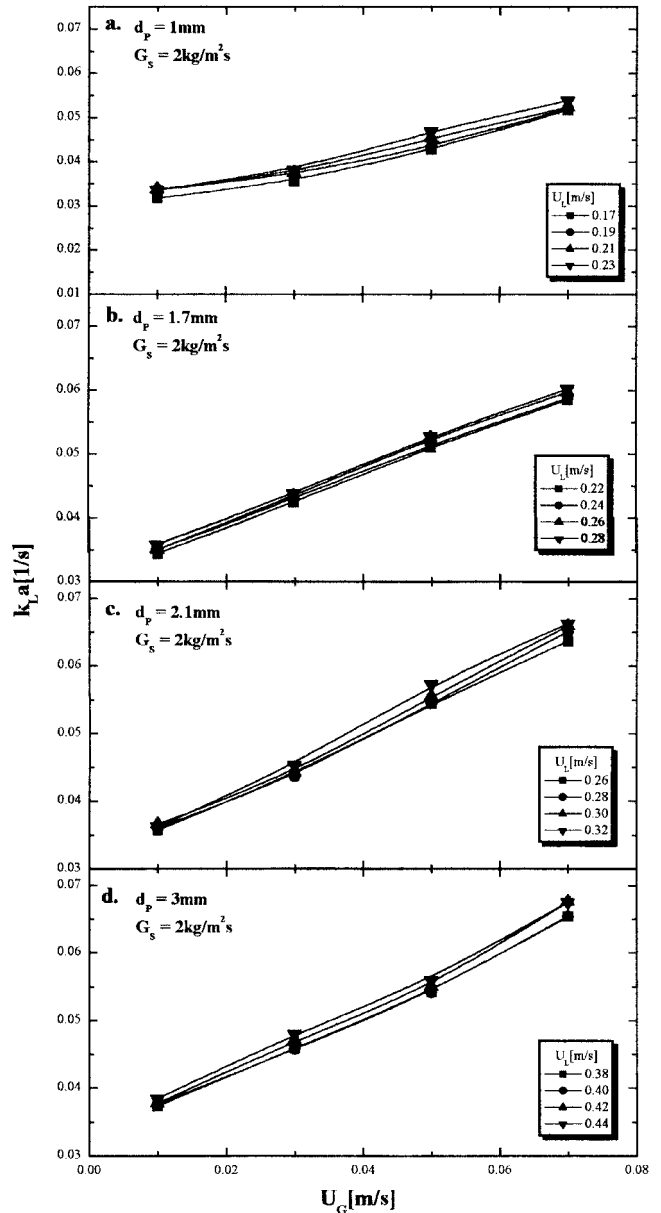


Fig. 3. Effects of  $U_G$  on  $k_L a$  in the riser of three-phase circulating fluidized beds.

어 결국 기체-액체 부피 물질전달 계수를 감소하게 하는 작용을 한다. 이 두 가지의 상반된 효과 때문에 삼상 순환유동층의 상승관에서 액체 유속의 증가는 기체-액체 부피 물질전달 계수에 큰 영향을 미치지 못한다고 할 수 있다. 삼상유동층에서 액체유속의 변화에 따른 기체-액체 부피 물질전달 계수가 크게 변화하지 않는 것도 이와 유사한 이유 때문으로 보고되고 있다[13].

상승관에서 유동 고체입자의 순환속도( $G_s$ )가 기체-액체 부피 물질전달 계수에 미치는 영향을 Fig. 5에 나타내었다. 이 그림에서 볼 수 있듯이 기체-액체 부피 물질전달 계수는 고체입자의 순환속도가 증가함에 따라 증가됨을 알 수 있고 특히, 기체유속이 낮은 경우( $U_G = 0.01 \text{ m/s}$ )보다 기체 유속이 증가할수록  $k_L a$ 값이 증가하는 것으로 나타났다. 삼상 순환유동층의 상승관에서 유동 고체입자의 순환속도가 증가함에 따라 상승관내에 존재하는 유동 고체입자의 체류량이 증가하게 되어 상승하는 기체-액체의 병류 흐름장에 작용하는 방해효과(hindrance effect)의 증가를 가져오는데 이와 같은 현상은 상승관내의 난류현상의 증가를 가져

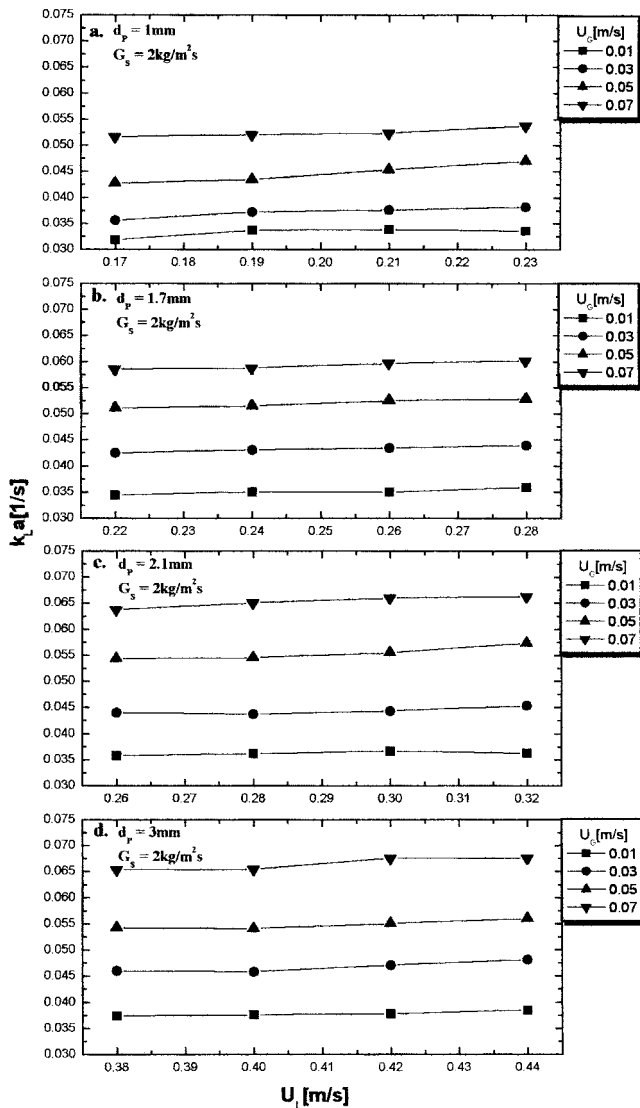


Fig. 4. Effects of  $U_L$  on  $k_La$  in the riser of three-phase circulating fluidized beds.

와 기체-액체 계면에서 물질전달현상을 증가시킨다고 볼 수 있다. 이와 같은 효과는 기체의 유속이 증가함에 따라 증가하기 때문에 기체유속이 낮은 경우보다 증가할수록  $G_s$ 의 변화가  $k_La$ 에 작용하는 영향은 증가한다고 할 수 있다.

한편, 삼상 순환유동층의 상승관에서 유동 고체입자의 크기가 기체-액체 부피 물질전달에 미치는 영향을 Fig. 6에 나타내었다. 유동입자의 크기가 변화함에 따라 이들의 종말 속도인  $U_T$ 가 변화하기 때문에 이들 입자들은 순환시키기 위한 액체의 유속에 큰 차이가 있어서  $d_p$ 가  $k_La$ 에 미치는 영향의 고찰에서는  $U_L-U_T$ 를 매개 변수로 하였다. 이 그림에서 볼 수 있듯이 일정 유동화 조건 즉,  $U_L-U_T$ 가 일정할 때 입자의 크기( $d_p$ )가 증가함에 따라 기체-액체 부피 물질전달 계수는 증가하는 경향을 나타내었다. 상승관에서 유사한 유동 조건일 경우 기체-액체의 상승병류 흐름에 의해 유동입자에 작용하는 drag force가 증가하는 만큼 입자의 크기가 증가하면 그 입자에 의한 이들 기체-액체 상승 흐름에 대한 방해효과도 증가하게 될 뿐만 아니라, 유동화되며 파생되는 에너지의 손실 또한 증가하여 상승관 내의 난류현상의 증가를 가져와 기체-액체 계면에서의 부피 물질전달 계수는 증가한다고 볼 수 있다.

삼상유동층에서는 유동층내의 난류현상이 증가하면 이에 따른 미세

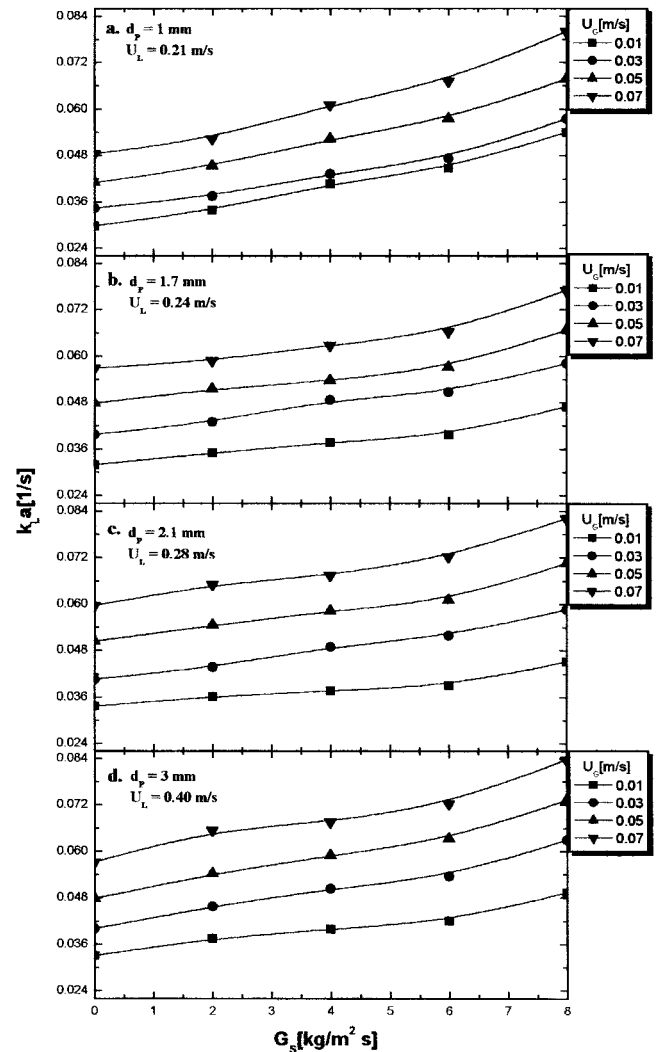


Fig. 5. Effects of  $G_s$  on  $k_La$  in the riser of three-phase circulating fluidized beds.

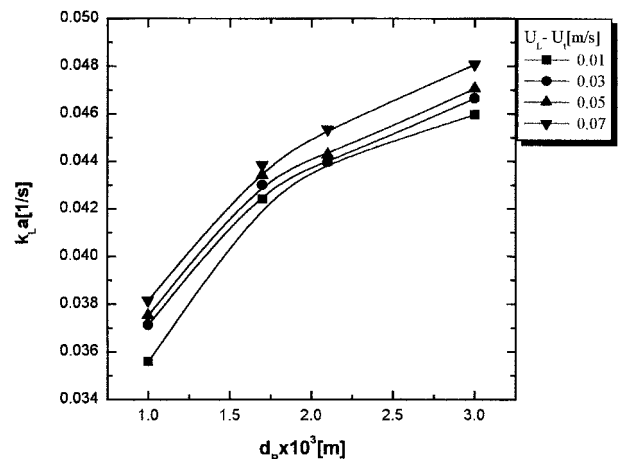


Fig. 6. Effects of  $d_p$  on  $k_La$  in the riser of three-phase circulating fluidized beds ( $U_G=0.03$  m/s,  $G_s=2$  kg/m<sup>2</sup> s).

소용돌이(micro eddy)들이 많이 발생하여 기체-액체 계면에서의 부피 물질전달 계수를 증가시키는 것으로 보고되고 있다[11-13]. 삼상 순환 유동층의 상승관에서 기체 및 액체의 유속, 고체유동입자의 순환속도

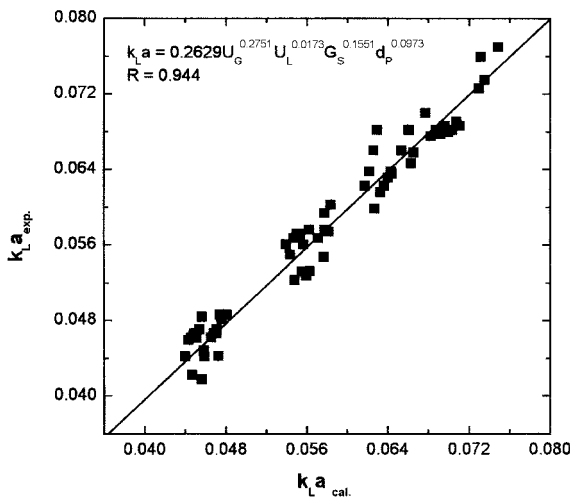


Fig. 7. Comparison between the experimental and calculated values of  $k_L a$ .

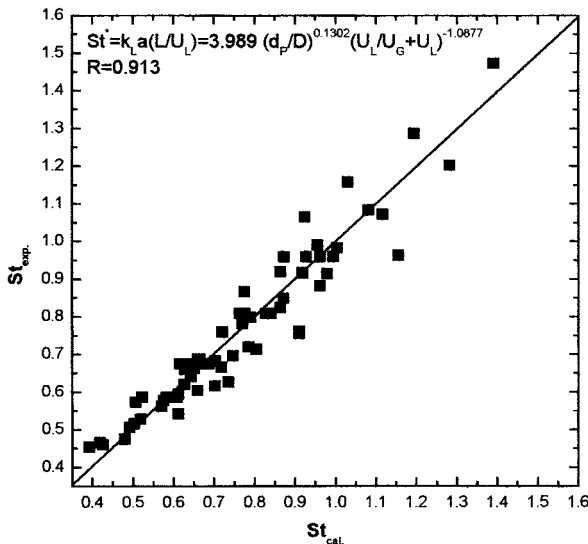


Fig. 8. Comparison between the experimental and calculated values of the Stanton number.

그리고 유동입자 크기의 변화에 따른 기체-액체 계면에서의 부피 물질 전달 계수의 변화를 예측하기 위해 본 연구의 실험범위 내에서 이들의 상관식을 식 (4)와 같이 구할 수 있었다.

$$k_L a = 0.263 U_G^{0.275} U_L^{0.017} G_S^{0.155} d_p^{0.097} \quad (4)$$

이 식의 상관계수는 0.944로 Fig. 7에 보는 바와 같이 실험결과와 잘 일치하는 것을 알 수 있다. 삼상 순환유동층 반응기의 scale-up이나 설계 등에 응용할 수 있도록 하기 위해서는 기체-액체부피 물질전달 계수를 무차원군의 상관식으로 나타내는 것이 필요하다 하겠다. 삼상 순환유동층의 상승관은 액체유속이 비교적 빨라서 상승관 내부의 dead zone이나 불균일 흐름이 거의 없으므로 등방난류이론(isotropic turbulence theory)을 적용하여[14] 물질전달 계수와 조작변수와의 관계를 무차원식으로 식 (5)와 같이 나타낼 수 있었다.

$$St^* = k_L a (L/U_L) = 3.990 (d_p/D)^{0.130} [U_L/(U_G + U_L)]^{-1.088} \quad (5)$$

식 (5)는 Fig. 8에서 보는 바와 같이 상관계수 0.913으로 실험결과와 잘 일치하였다.

## 4. 결 론

삼상 순환유동층의 상승관에서 기체-액체 부피물질전달계수에 대한 실험적 연구결과 기체-액체 부피 물질전달 계수를 얻기 위해 촉방향 분산 모델이 잘 적용되었다. 상승관에서 기체-액체 부피 물질전달 계수( $k_L a$ )는 기체유속의 증가에 따라 증가하였고, 액체유속의 변화에 따라서는 큰 변화를 보이지 않았다.

또한, 상승관에서 부피 물질전달 계수의 값은 고체순환속도와 입자의 크기가 증가함에 따라 증가하는 경향을 나타내었다. 삼상 순환유동층의 상승관에서 기체-액체 부피 물질전달 계수의 값은 본 연구의 실험범위에서 다음과 같이 운전변수의 함수와 무차원군으로 각각 나타낼 수 있었다.

$$k_L a = 0.263 U_G^{0.275} U_L^{0.017} G_S^{0.155} d_p^{0.097}$$

$$St^* = k_L a (L/U_L) = 3.990 (d_p/D)^{0.130} [U_L/(U_G + U_L)]^{-1.088}$$

## 감 사

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구(1999-1-307-006-3)에 의해 수행되었으며 귀 재단에 감사드립니다.

## 사용기호

- C : concentration of oxygen [mol/m<sup>3</sup>]
- C\* : saturated concentration of oxygen [mol/m<sup>3</sup>]
- C<sub>0</sub> : initial oxygen concentration [mol/m<sup>3</sup>]
- D<sub>Z</sub> : axial dispersion coefficient [m<sup>2</sup>/s]
- d<sub>p</sub> : particle diameter [mm]
- G<sub>S</sub> : solid circulation rate [kg/m<sup>2</sup>s]
- k<sub>L</sub>a : liquid phase volumetric mass transfer coefficient [1/s]
- L : axial distance from the distributor [m]
- Pe\* : Peclet number(=U<sub>L</sub>L/D<sub>Z</sub>) [-]
- St\* : Stanton number[=(k<sub>L</sub>a)L/U<sub>L</sub>] [-]
- U<sub>G</sub> : superficial gas velocity [m/s]
- U<sub>L</sub> : superficial liquid velocity [m/s]
- U<sub>t</sub> : particle terminal velocity in a liquid medium [m/s]

## 그리스 문자

- ε<sub>L</sub> : liquid phase holdup

## 참고문헌

1. Kim, S. D. and Kang, Y.: *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 3639(1997).
2. Liang, W., Wu, Q., Yu, Z., Jin, Y. and Wang, Z.: *Can. J. Chem. Eng.*, **73**, 656(1995).
3. Shin, K. S., Cho, Y. J., Kang, Y. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **39**, 91(2001).
4. Han, S., Zhou, J., Loh, K. C. and Wang, Z.: *Chem. Eng. Sci.*, **70**, 9 (1998).
5. Liang, W. G., Wu, Q. W., Yu, Z. Q., Jin, Y. and Bi, H. T.: *AIChE J.*, **41**, 267(1995).
6. Yang, W. G., Wang, J. F., Chen, W. and Jin, Y.: *Chem. Eng. Sci.*, **54**, 5293(1999).
7. Zhu, J. X., Zheng, Y., Karamanev, D. G. and Bassel, A. S.: *Can. J. Chem. Eng.*, **78**, 82(2000).
8. Kim, S. H., Cho, Y. J., Song, P. S., Kang, Y. and Kim, S. D.: *HWA-*

- HAK KONGHAK*, **37**, 916(1999).
9. Cho, Y. J., Song, P. S., Kim, S. H., Kang, Y. and Kim, S. D.: *J. Chem. Eng. Japan*, **34**, 254(2001).
10. Nam, S. H., Cho, Y. J., Kang, Y. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **38**, 895(2000).
11. Kang, Y., Min, B. T., Nah., J. B. and Kim, S. D.: *AIChE J.*, **36**, 1255(1990).
12. Kang, Y., Min, B. T., Nah., J. B. and Kim, S. D.: *J. Chem. Tech. Biotechnol.*, **51**, 235(1991).
13. Lee, D. H., Kim, J. O., Han, J. H. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **31**, 118(1993).
14. Kim, S. D. and Kim, C. H.: *J. Chem. Eng. Japan*, **16**, 172(1983).