

## 공기-탄산용융염 이상흐름계에서의 흐름영역전이

조용준<sup>†</sup> · 양희철 · 은희철 · 강 용\*

한국원자력연구원 핵주기공정기술개발부

305-353 대전시 유성구 덕진동 150

\*충남대학교 화학공학과

305-764 대전시 유성구 궁동 220

(2009년 5월 7일 접수, 2009년 6월 22일 채택)

## Flow Regime Transition in Air-Molten Carbonate Salt Two-Phase Flow System

Yung-Zun Cho<sup>†</sup>, Hee-Chul Yang, Hee-Chul Eun and Yong Kang\*

Nuclear Fuel Cycle R&D Group, Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea

\*Department of Chemical Engineering, Chungnam National University, 220 Gung-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-764, Korea

(Received 7 May 2009; accepted 22 June 2009)

### 요 약

본 연구에서는 기체(공기)-액체(용융탄산염) 이상 흐름계(용융염산화 공정)에서 공기유속(0.05~0.22 m/sec) 및 탄산용융염의 온도(870~970 °C)가 흐름영역 전이특성에 미치는 영향을 공기 체류량의 drift-flux 및 차압요동의 통계학적 해석을 통하여 규명하였다. 흐름영역이 시작되는 공기 체류량값은 공기체류량-drift flux 그래프를 통하여 구하였다. 흐름영역 전이가 시작되는 공기 체류량 값은 탄산용융염의 온도가 증가함에 따라서 증가하였는데 이는 탄산용융염의 온도가 증가함에 따라서 액상의 점도와 표면장력의 감소로 인한 계의 안정화 때문이며 계의 특성에 가장 큰 영향을 미치는 기포특성(평균기포크기 및 상승속도)을 drift-flux 모델식을 적용하여 추정하였다. 흐름영역전이 특성을 좀 더 정량적으로 특성화하기 위하여 차압요동신호를 상공간투영 및 Kolmogorov entropy를 이용하여 해석하였다. Kolmogorov entropy는 탄산용융염의 온도가 증가함에 따라 감소하였으며 공기유속이 증가함에 따라서 증가하였으나 흐름영역에 따라서 다른 경향성을 나타내었고 흐름영역이 시작되는 공기유속값은 공기체류량의 drift-flux 해석으로 유도된 결과와 동일하였다.

**Abstract** – In this of study, effects of input air velocity(0.05~0.22 m/sec) and molten carbonate salt temperature (870~970 °C) on flow regime transition have been studied by adopting a drift-flux model of air holdup and a stochastic analysis of differential pressure fluctuations in an air-molten sodium carbonate salt two-phase system(molten salt oxidation process). Air holdup where the flow regime transition begins was determined by air holdup-drift flux plot. The air holdup value which the flow regime transition begins was increased with increasing molten carbonate salt temperature due to the decrease of viscosity and surface tension of molten carbonate salt. To characterize the flow regime transition more quantitatively, differential pressure fluctuation signals have been analyzed by adopting the stochastic method such as phase space portraits and Kolmogorov entropy. The Kolmogorov entropy decreased with an increasing of molten carbonate salt temperature but increased gradually with an increase in an air velocity, however, it exhibited different tendency with the flow regime and the air velocity value which flow regime transition begins was same to the results of drift-flux analysis.

**Key words:** Air-molten Carbonate Salt, Molten Salt Oxidation, Flow Regime transition, Drift-flux Model, Kolmogorov Entropy

### 1. 서 론

기상-액상 기포탑 반응기는 연속상인 액상에 기포가 분산상으로 존재하므로 기상과 액상의 접촉효과가 좋아서 기체-액체간의 물질 전달이 잘 일어나 기-액(gas-liquid) 반응 및 접촉공정에 효과적으로

응용될 수 있으며, 연속조작이 용이하고 저렴한 원가소요뿐만 아니라 장치 및 공정이 비교적 복잡하지 않으며 조작변수가 작다는 등의 장점을 가지고 있어 여러 공정에 상용적으로 널리 사용되고 있다[1,2]. 용융염산화(molten salt oxidation) 공정은 소각을 대체할 수 있는 기술 중 상업적 운전 가능성이 가장 클 것으로 평가받는 소각 대체 기술중의 하나로 산화용 공기-고온 탄산용융염의 이상(two-phase) 공정에서 산화반응이 이루어진다. 즉, 900~1,000 °C로 유지

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.  
E-mail: choyj@kaeri.re.kr

되는 용융염 반응기 내에서 폐기물 내의 유기물질은 산소와의 반응으로 비불꽃(non-flame) 산화반응 이용해서 완전분해하고, 회재, 방사성물질, 중금속들은 특별한 조작을 가하지 않고 용융염 내에 포집하여 휘발을 통한 배출가스로의 방출을 억제한다. 특히, 산화공정시 발생하는 산성가스를 용융염과의 화학반응을 통해서 용융염층 내에 체류시키기 때문에 세정기와 같은 부가적인 시설이 필요없다는 장점을 가지고 있다[3,4].

용융염산화공정에서 산화반응은 고온상태로 용융되어 있는 탄산 용융염층 내에서 산소와 폐기물의 혼합현상을 통해서 발생하게 되므로, 혼합현상이 저하되면 반응기 내 발생하는 혼합효과가 저하되기 때문에 산소와 폐기물간의 접촉 빈도수가 떨어지게 되어 미연탄소가 발생하는 등의 전체적인 산화공정의 큰 문제점이 발생할 수 있다. 따라서 용융염산화공정의 설계, scale-up 및 운전을 위해서는 공정 내에서 발생하는 혼합 및 수력학적(hydrodynamic) 특성들에 대한 자료가 필요하며 특히 이러한 특성들에 직접적으로 영향을 미치는 흐름특성(flow characteristics)에 대한 명확한 이해가 필요하다[5]. 일반적으로 기상-액상 이상계는 기상유속의 증가에 따라서 2개의 흐름영역 즉, 균일(homogeneous) 및 불균일(heterogeneous) 흐름영역으로 구분되어지며 각각의 흐름영역에서는 서로 상이한 기상-액상 상호작용을 나타낸다. 균일흐름영역은 일반적으로 낮은 기상 유속조건에서 형성되며 작은 크기의 기포크기 및 균일한 기포크기 분포를 나타낸다. 이와 반대로 높은 기상유속에서 형성되는 불균일 흐름영역은 작은기포와 큰 기포가 동시에 존재하며 이러한 크기가 서로 다른 기포들간의 상호작용으로 인해 반경방향으로 불균일한 기체체류량 분포를 나타낸다. 용융염산화는 반응기 내에 분산상인 산화용공기와 연속상으로 존재하는 용융염과의 이상흐름(two-phase flow)으로 이러한 이상흐름을 효율적으로 해석하는 것은 전체적인 용융염산화 공정의 작업성능 및 운전조건 설정에 매우 중요한 요소가 되므로 이러한 이상흐름을 해석하기에 적합하고 또 실제 계(system)의 특성을 잘 살릴 수 있는 해석방법의 개발은 매우 중요한 일이라고 할 수 있다. 특히, 용융염산화공정이 불균일 흐름영역에서 운전될 경우 큰 직경과 상승속도를 가진 기포에 의해 염 및 완전 산화되지 않은 폐기물들의 유출현상과 산화반응효율을 저하를 가져올 수 있기 때문에 공기-용융염계에서의 흐름영역 전이에 대한 정보는 매우 중요하다[6].

본 연구에서는 공기-용융탄산염계에서 온도 및 공기유량에 따른 공기체류량을 실험적으로 구하고 drift flux model을 이용하여 흐름영역 전이현상 및 흐름특성에 중요한 역할을 하는 기포특성을 파악하였다. 또한 기상 및 액상간의 복잡한 거동에 의해서 발생하는 동력학적특성을 효과적으로 파악하고자 차압요동을 통계학적(stochastic) 방법을 이용하여 해석함으로써 복합적인 동특성을 보다 효과적으로 규명하고자 하였다. 이와 같은 연구는 공기-용융탄산염 이상흐름계의 거동 특성이 열전달 및 물질전달, 기포특성, 그리고 액상의 분산 및 혼합특성 등 제 전달현상에 미치는 영향을 규명하는데 매우 중요한 정보를 제공하여 용융염산화 공정의 설계, 운전 그리고 제어 등에 필수적인 공학적 자료를 제공할 것으로 판단된다.

## 2. 해 석

### 2-1. Drift flux model

Drift flux 모델은 기-액 이상계에서 기체의 상대적인 움직임을 특

성화 하기 위하여 유도되었다. Wallis[7]와 Zubar & Findlay[8]는 Drift flux 모델을 기포탑에서 기-액 흐름을 특성화하기 위해 이용하였으며 현재까지도 많은 연구자들에 의해서 기포탑에서 흐름영역전이 특성과 기체체류량의 상관식에 이용되고 있다. Wallis[7]에 의해서 유도된 drift flux 방법은 흐름영역의 전이현상을 규명하는데 효과적으로 이용된다. 액상이 batch 상태로 운전되는 기포탑의 경우 drift flux,  $j_{GL}$ 는 식 (1)과 같이 정의된다.

$$j_{GL} = U_G(1 - \epsilon_g) \quad (1)$$

기체체류량과 drift flux를 X-Y 좌표상에 도시하였을 때 기울기의 변화로부터 흐름영역이 전이를 파악할 수 있는데 일반적으로 기체 체류량 곡선의 기울기보다 drift flux 곡선의 기울기가 더 크므로 좀 더 확연한 흐름영역전이 현상을 파악할 수 있다.

Drift flux 모델은 기포탑에서 기포특성(평균기포크기 및 평균상승속도)을 추정하는데 사용되어지며 좀 더 정확한 예측이 가능하도록 많은 연구자들에 의해서 수정되었다[9]. 액상이 batch 상태로 존재하는 기-액 이상흐름계에서 기체의 slip 속도는 식 (2)와 같이 정의된다.

$$U_{sb} = \frac{U_g}{\epsilon_g} \quad (2)$$

기체의 slip 속도는 단일기포의 종말속도,  $U_t$ 와 기체체류량,  $\epsilon_g$ 의 함수인데 가장 빈번하게 사용되는 관계식은 다음과 같다.

$$U_{sb} = U_t(1 - \epsilon_g)^{m-1} \quad (3)$$

식 (3)에서  $m$ 은 기포레이놀즈수,  $Re_b$ 의 함수이다.

$$m = \begin{cases} \left(4.45 + 18 \frac{D_b}{D_c}\right) Re_b^{-0.1} & (1 < Re_b < 200) \\ 4.45 Re_b & (200 < Re_b < 500) \end{cases}$$

$$\text{여기서, } Re_b = \frac{U_t \rho_L D_b}{\mu_L}$$

식 (2)와 (3)에서 단일 기포의 종말속도에 대한 식을 유도할 수 있다.

$$U_t = \frac{U_g}{\epsilon_g(1 - \epsilon_g)^{m-1}} \quad (4)$$

평균 기포크기는 식 (5)와 같이 표현된다.

$$D_b = \left[ \frac{18 \mu_L U_t}{g \Delta \rho} (1 + 0.15 Re_s^{0.687}) \right]^{0.5} \quad (5)$$

여기서,  $Re_s$ 는 기포군(bubble swarm)의 레이놀즈수로 Masliyas[9]는 다음과 같은 식을 유도하였다.

$$Re_s = \frac{D_b U_{sb} \rho_L (1 - \epsilon_g)}{\mu_L} \quad (6)$$

위와 같은 식들을 이용하면 실험적으로 얻은 기체체류량 데이터를 이용하여 평균기포크기 및 평균 단일기포 상승속도를 시행착오법(trial and error method)를 이용하여 계산하여 추정할 수 있다.

### 2-2. Kolmogorov entropy[1,10]

Kolmogorov entropy는 위상공간에서 시스템의 불안정성과 초기

조건에 대한 민감성을 나타내며 계에서 새로운 정보의 생성에 대한 특징적인 변수가 된다. Lyapunov 지수는 attractor의 발산(diverge)에 있어서 근접한 2개의 trajectory의 속도를 측정한다. Lyapunov 지수의 값을 구하기 위해서 식 (7)을 사용한다.

$$L(t_i) = \frac{1}{t_n - t_0} \sum \log_2 \frac{d(t)}{d(t_{i-1})} \quad (7)$$

Kolmogorov entropy는 양의 Lyapunov 지수의 합이고, 따라서 가장 큰 양의 Lyapunov 지수에 의해서 좌우된다. 즉, Kolmogorov entropy는 Lyapunov 지수의 양수값들의 합으로 시스템에서 정보가 생성 또는 소멸되는 속도를 정량적으로 특성화시킨 것이며 그 값을 식 (8)로부터 구할 수 있다

$$K_2 = \sum_{i=0}^n L(t_i) [if, L(t_i) > 0] \quad (8)$$

규칙계(Periodic system)에서 Kolmogorov entropy는 0이며, 이는 계 안으로 어떠한 정보도 생성되지 않는다는 것을 의미하며, 따라서 이 계는 모든 시간에서 예측되어 질 수 있다고 말할 수 있다. 완전한 무작위계(random system)에서는 무한의 Kolmogorov entropy를 나타내며 따라서 이 계는 예측되어 질 수 없다.

### 3. 실험

본 연구에서 사용한 용융염산화 공정의 전체적인 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 용융염산화장치는 크게 공기/폐기물 주입계, 용융염 반응용기 및 가열계, 폐용융염 처리계, 배기가스 처리계로 구성되어 있다. 폐기물의 비불꽃 산화반응(non-flame oxidation)이 발생하는 반응용기는 직경이 0.076 m이고 높이가 0.653 m이며 재질로는 내열성과 내부식성이 강한 Inconel 재질을 사용하였다. 반응기 외부에 ceramic heater를 설치하여 탄산염을 녹는점 이상으로 가열하였으며 온도제어기를 이용하여 반응기 내 용융염의 온도를 제어하였다. 탄산염으로는 녹는점이 850 °C인 탄산나트륨( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ )을

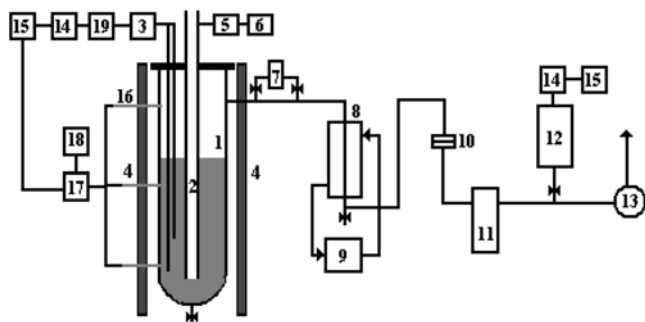


Fig. 1. Schematic diagram of molten salt oxidation process

- |                          |                      |
|--------------------------|----------------------|
| 1. Molten salt vessel    | 11. Silica bed       |
| 2. Gas/Waste injector    | 12. Off gas analyzer |
| 3. D. pressuretransducer | 13. I.D. fan         |
| 4. Electric heater       | 14. A/D converter    |
| 5. Screw feeder          | 15. Computer         |
| 6. RPM controller        | 16. Thermocouple     |
| 7. Impactor              | 17. T. indigater     |
| 8. Heat exchanger        | 18. T. controller    |
| 9. Cold water bath       | 19. Low pass filter  |
| 10. HEFA filter          |                      |

사용하였다. 폐기물과 산화용공기를 용융염 내로 주입하는 주입관은 직경이 0.013 m이며 주입관의 최하단은 반응용기 바닥에서 4 cm 상부에 위치하도록 하였다.

용융염산화반응기 내에서 발생하는 공기-탄산용융염 이상흐름특성을 효과적으로 파악하기 위하여 압력강화법을 이용하여 각 실험 조건에서 공기 체류량을 구하였는데 이를 위하여 용융염온도(870~970 °C) 및 공기유속(0.05~0.22 m/s)의 변화에 따른 용융염 반응용기 내의 차압요동(differential pressure fluctuation)을 측정하여 측정된 차압요동을 공기체류량 요동으로 변환시킨 후 공기체류량 요동의 평균값을 구하였다. 차압요동을 측정하기 위하여 반응기의 상부에서 수직으로 2개의 sus 관을 0.2 m 간격으로 용융염층 내로 삽입하고 차압센서(PAT-D05Kpa, ULFA Co.)를 연결하였으며, 차압센서에서 측정된 차압요동신호는 데이터수집장치(data aquisition system, DASY lab.)를 사용하여 digital 신호로 전환한 후 컴퓨터에 저장하여 해석하였다. 각 실험조건에서 압력요동의 측정속도는 500 Hz이고 6초간 3,000개의 신호를 수집하였다.

### 4. 결과 및 고찰

#### 4-1. 흐름영역전이특성

Fig. 2에 공기-용융탄산염계에서 공기유속(0.05~0.22 m/s) 및 탄산용융염 온도(870~970 °C)에 따른 공기체류량 특성을 나타내었는데 공기체류량은 공기유속 및 탄산용융염 온도가 증가함에 따라 증가하는 것을 알 수 있다. 일반적으로 기체체류량은 기상 및 액상의 물리적인 특성에 영향을 받는다. 현재까지 진행된 많은 연구자들의 연구결과에 의하면 기체체류량은 액상의 경우 액상의 밀도가 증가하면 기포에 작용하는 부력이 증가하며 높은 기포상승속도에 의해 기체체류량이 감소하고 점도 및 표면장력이 증가하면 평균기포크기가 증가하여 역시 기체체류량이 감소하게 되는데 이때 표면장력( $\propto \sigma L^{-0.5}$ )의 영향이 점도( $\propto \mu L^{-0.1}$ )의 영향보다 더 큰 것으로 보고되고 있다[11,12]. 기상의 경우 기상밀도가 증가하면 기포 분산판에서 기포형성 시 발생하는 운동량(momentum)에 영향을 주어서

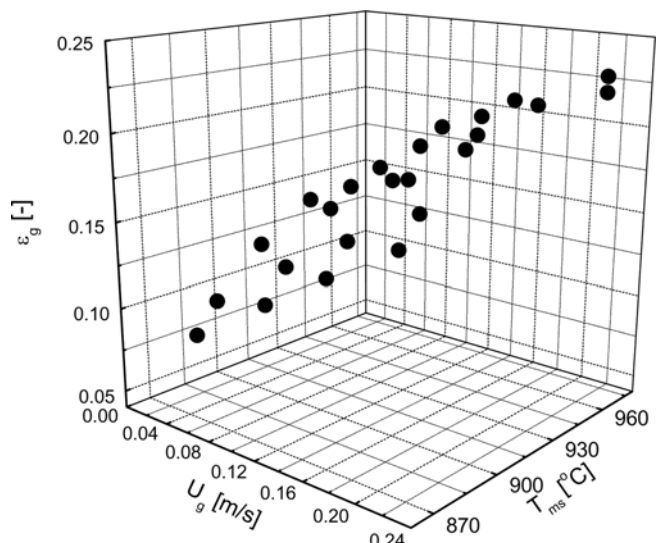


Fig. 2. Effect of air velocity and molten carbonate salt temperature on the air holdup in air-molten carbonate salt two-phase flow system.

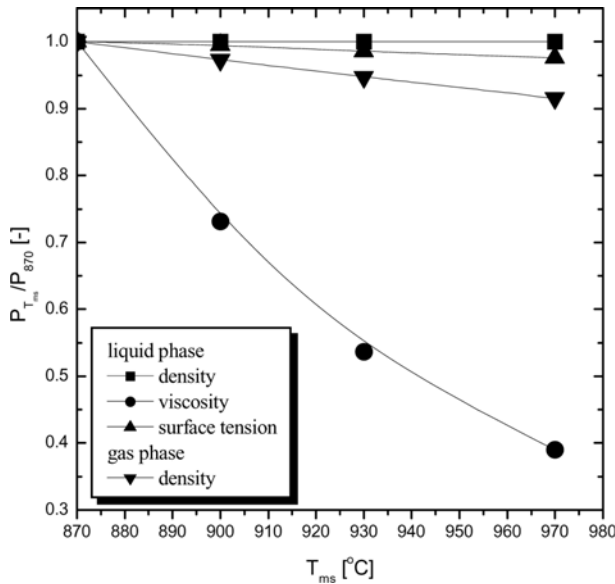


Fig. 3. Variation of various properties of sodium carbonate with temperature.

초기 형성되는 기포크기가 작아져 결과적으로 기체체류량을 증대시키는 결과를 초래하게 된다. Fig. 3에 온도에 따른 탄산용융염 및 공기의 물리적 특성변화 경향을 870 °C를 기준으로 나타내었다. 단, 870 °C에서 탄산용융염( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ )의 밀도( $\text{kg/m}^3$ ), 점도( $\text{Pa}\cdot\text{s}$ ) 그리고 표면장력( $\text{dyne/cm}$ ) 값은 각각 2,476,  $4.1 \times 10^{-3}$  그리고 211이다. Fig. 3에서 볼 수 있듯이 온도가 증가하게 되면 공기밀도가 감소하여 공기체류량을 감소시키는 영향과 탄산용융염의 점도 및 표면장력이 감소하여 공기체류량을 증가시키는 2가지의 상반된 효과가 발생한다는 것을 예측할 수 있는데 본 연구에서 온도가 증가함에 따라서 공기체류량이 증가하는 이유는 기상의 밀도감소 영향보다 액상의 점도 및 표면장력 감소에 의한 공기체류량 증가영향이 더 강하게 작용하기 때문인 것으로 판단된다.

용융염산화공정에서 공기유량 및 탄산용융염온도에 따른 흐름영역 전이 특성을 파악하는 것은 안정되고 효율적인 공정의 운전을 위해서 매우 중요한 변수가 된다. 본 연구에서는 이러한 흐름영역 전이 특성을 파악하고자 실험적으로 도출한 공기체류량 값을 drift-flux 모델을 이용하여 해석하였다. Fig. 4에 공기체류량에 따른 drift flux 값을 나타내었는데 그림에서 볼 수 있듯이 특정 공기체류량 값에서 급격한 기율기의 변화를 볼 수 있으며 이는 흐름영역의 전이 현상이 발생한다는 것을 의미한다. Fig. 4를 보면 흐름영역의 전이가 발생하는 공기체류량 값은 탄산용융염의 온도가 870 °C 일 경우 약 0.18이었으나 970 °C의 경우에는 약 0.21으로 증가하는 것을 알 수 있는데 이는 탄산용융염의 온도가 증가함에 따라서 전체적인 공기-탄산용융염계의 흐름특성을 안정화 시켜 좀 더 높은 공기체류량 값에서 흐름영역의 전이현상이 발생한다는 것을 의미한다. 흐름영역의 전이현상이 발생하는 기체 체류량에 대한 기존의 연구결과를 보면 공기-물 이상계에서 0.137에서 0.277의 공기체류량 범위에서 흐름영역 전이현상이 발생하는 것으로 보고되고 있는데[13] 본 연구결과와 비슷한 범위를 가짐을 알 수 있다. 공기-탄산용융염 이상흐름계에서 흐름영역 전이가 발생하는 공기체류량 값을 나타내는 공기유속은 실험에 사용한 온도범위에서 모두 0.15 m/s로 일정하였다.

다상흐름(multi-phase flow)에서 흐름특성을 좌우하는 가장 중요

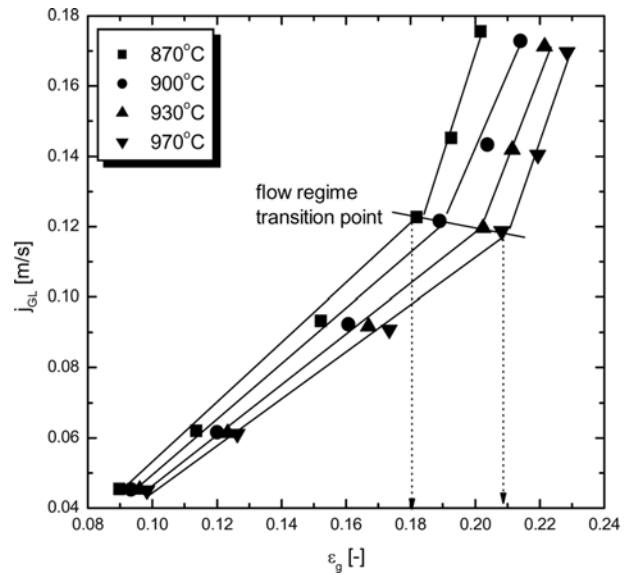
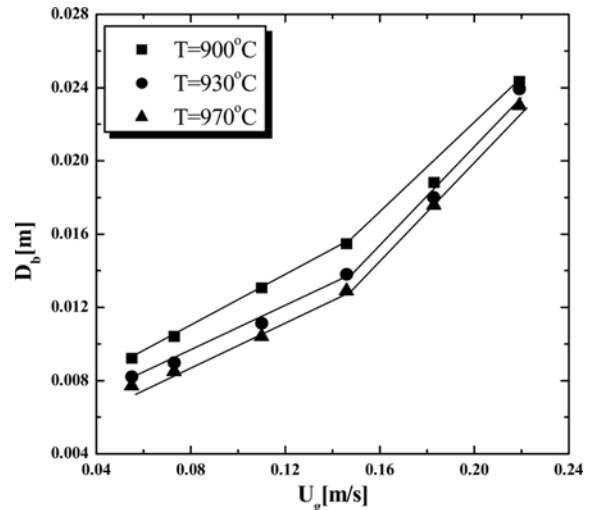
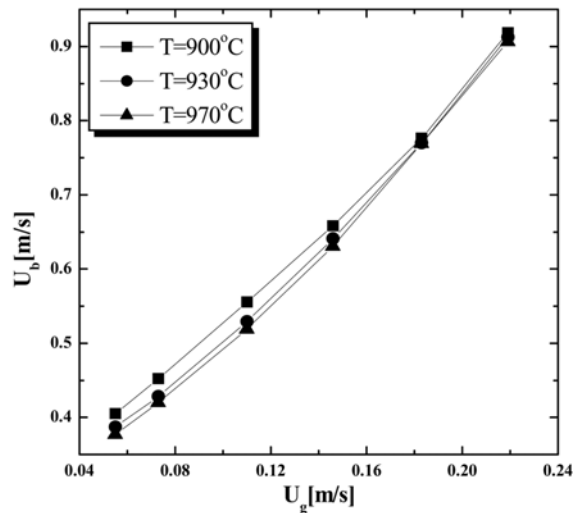


Fig. 4. Characterization of flow regime transition with the drift-flux analysis in air-molten carbonate two-phase flow system.



(a) bubble size



(b) bubble rising velocity

Fig. 5. Bubble size(a) and rising velocity(b) with air velocity and molten carbonate salt temperature estimated by drift-flux model.

한 변수중의 하나는 기포로 기포특성에 따라서 각상의 체류량(holdup)과 계의 난류도(turbulence intensity)가 결정된다. 본 연구에서는 Banisi and Finch[14]가 제안한 drift-flux 모델을 이용하여 평균 기포크기와 평균 기포상승속도를 추정하였다. Fig. 5(b)에 공기유속 및 온도에 따른 평균 기포상승속도를 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 공기유속에 따라서 용융염 내의 기포상승속도는 0.4 m/s에서 0.9 m/s로 거의 선형적으로 증가하였는데 이는 공기유속이 증가하면 기상 분율이 증가하고 큰 기포가 생성되기 때문에 기포에 작용하는 부력이 커져서 상승속도가 커지기 때문이다. 온도의 영향은 공기유속의 증가에 따라서 약간 상이하게 발생하였다. 즉, 낮은 공기유속 범위에서는 온도가 증가함에 따라서 기포상승속도는 감소하였으나 높은 공기유속 범위에서는 거의 변화가 없음을 알 수 있다. 평균기포크기의 변화특성은 Fig. 5(a)에 나타내었는데 낮은 공기유속 범위에서는 온도가 증가함에 따라서 기포크기는 감소하였으나 0.15 m/s 이상의 공기유속범위에서는 온도증가에 따른 기포크기의 감소효과는 감소하는 것을 알 수 있다. 이러한 현상은 흐름영역의 전이 때문으로 설명할 수 있다. 즉, 0.15 m/s 이하의 공기유속에서는 균일흐름 영역이 형성되므로 상대적으로 온도에 의한 기포크기 감소현상이 발생할 수 있으나 0.15 m/s 이상의 공기유속에서는 churn-turbulent 혹은 크고 빠른 상승속도를 가지고 있는 slug의 발생빈도수가 높은 bubble-slug 흐름영역이므로 온도에 의한 기포감소 영향이 거의 발생하지 않기 때문이다. 균일흐름영역에서 운전되는 용융염산화 반응기에서 용융염의 온도가 증가함에 따라서 전체적인 계의 흐름특성을 안정시키는 요인도 이러한 기포특성으로 설명할 수 있다. 탄산나트륨은 녹는점 이상에서 온도가 증가함에 따라서 밀도와 표면장력의 변화는 거의 없지만 점도가 감소하게 되는데, 연속상의 점도가 감소하게 되면 기포크기는 감소하여 상승속도의 저하현상을 유발하여 계의 흐름을 안정하게 하는 결과를 초래한다.

용융염산화 반응기에서 흐름영역전이 특성을 좀 더 정량적으로 나타내기 위하여 차압요동에서 구성한 상공간투영으로부터 Kolmogorov

entropy를 구하였다. Fig. 6에 공기유속이 0.07 m/s로 일정할 경우 온도에 따른 차압요동 및 차압요동을 이용하여 시간지연(time delay) 방법에 의해 같은 scale로 2차원의 위상공간(phase space) 상에 재구성한 상공간투영의 예를 나타내었는데 온도가 증가할수록 차압요동의 진폭 및 상공간투영의 궤적이 감소하는 것을 알 수 있는데 이는 온도의 증가로 인해 공기-탄산용융염의 접촉현상이 점점 더 안정화 된다는 것을 의미한다. Kolmogorov entropy는 위상공간에서 시스템의 불안정성과 초기 조건에 대한 민감성을 나타내는 Lyapunov 지수의 양수 값들의 합으로 나타내며 Kolmogorov entropy는 system에서 새로운 정보의 생성에 대한 특징적인 변수가 된다. Fig. 7에 Lyapunov 지수의 예를 나타내었으며 이렇게 구한 Lyapunov 지수에서 양수 값들을 합하여 Kolmogorov entropy를 구하였다.

용융염산화 반응기에 유입되는 산화용 공기의 유입속도 및 용융

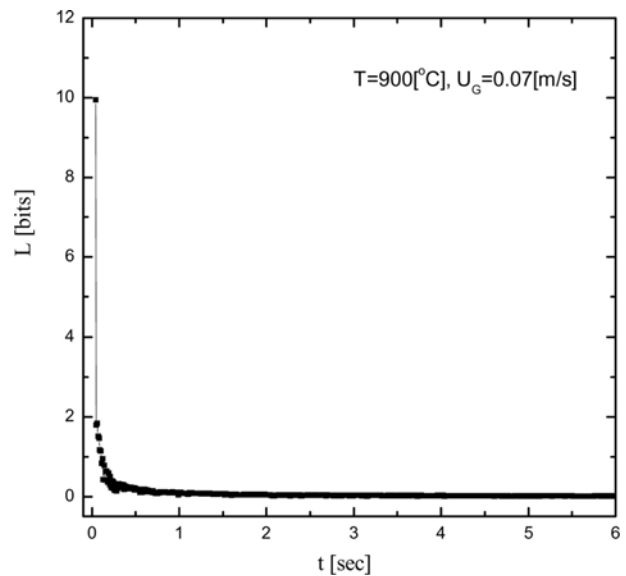


Fig. 7. Typical example of Lyapunov exponent in air-molten carbonate two-phase flow system.

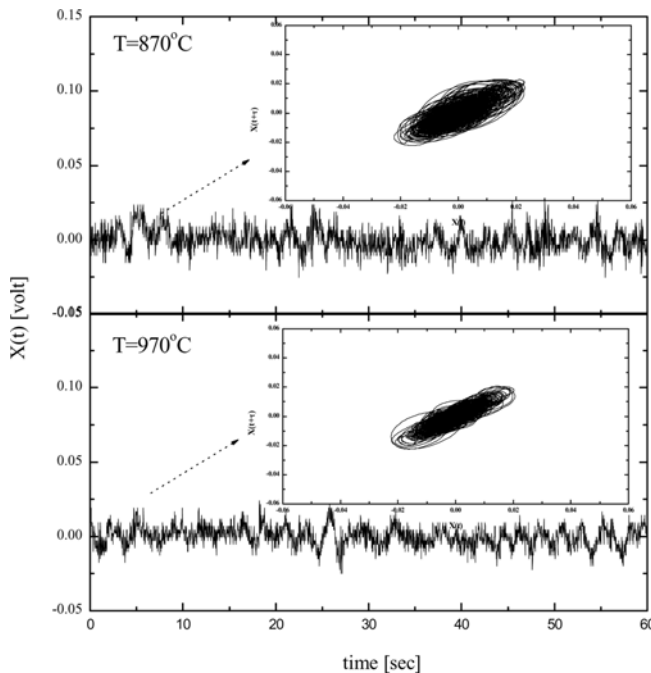


Fig. 6. Pressure fluctuations and phase space portraits in air-molten carbonate two-phase flow system.

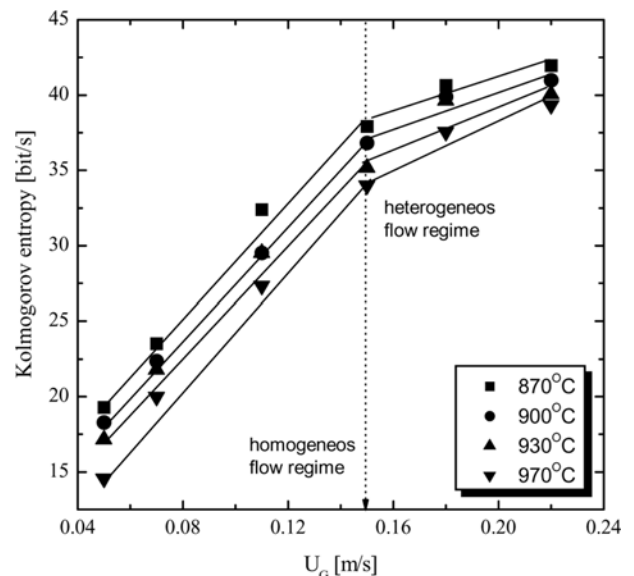


Fig. 8. Effects of air velocity and molten carbonate salt temperature on Kolmogorov entropy in air-molten carbonate two-phase flow system.

염의 온도에 따른 Kolmogorov entropy의 변화양상을 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8을 보면 모든 온도범위에서 Kolmogorov entropy의 증가율이 0.15 m/s에서 변화하는 것을 볼 수 있는데 이는 이 유속에서 흐름영역의 전이현상이 발생한다는 것을 의미하며 이러한 결과는 공기체류량의 drift-flux 해석 결과와도 일치함을 알 수 있다. 0.15 m/s 이전까지는 공기유속이 증가함에 따라서 기포크기가 증가하여 용융염산화 반응기 내부의 난류현상이 증가하고 공기-용융염의 흐름거동 자체가 매우 무질서해지고 불균일해지지만 그 이상의 공기유속에서는 이러한 흐름거동의 변화가 거의 발생하지 않는다는 것을 알 수 있으며, 온도가 증가하면 난류도가 감소하여 공기-용융염 흐름의 균일도가 증가한다고 할 수 있다.

#### 4.2. 상관식

용융염산화 반응기 내의 기포특성을 Buckingham Pi method를 사용하여 차원해석(dimensional analysis)을 수행하여 무차원 변수를 유도하였다. 기포상승속도( $U_b$ )는 기포크기( $D_b$ ), 액상과 기상밀도( $\rho_L$ ,  $\rho_g$ ), 액상과 기상점도( $\mu_L$ ,  $\mu_g$ ) 그리고 액상 표면장력( $\sigma_L$ )과 중력가속도( $g$ )의 함수이므로 이들을 변수로하여 Buckingham Pi method를 이용하면 식 (9)와 같이 bubble Froude number( $Fr_b$ ), bubble Reynolds number( $Re_b$ ) 그리고 bubble Weber number( $We_b$ ) 이루어진 무차원 상관식을 얻을 수 있다[15].

$$\frac{U_b^2}{gD_b} = f\left(\frac{D_b U_b \rho_L}{\mu_L}, \frac{D_b \rho_L U_b^2}{\sigma_L}\right) \quad (9)$$

식 (9)에 drift-flux 모델식을 이용하여 도출한 기포특성 값들을 대입하고 최소자승법(least square estimation)를 이용하여 상관하면 식 (10)을 얻을 수 있는데 식 (10)의 상관계수는 0.92로 비교적 모델결과와 잘 일치하였으며(Fig. 9(a)) 식 (10)의 상관식에 사용된 무차원군의 범위는 각각  $0.4 < Fr_b < 3.5$ ,  $1600 < Re_b < 11000$ ,  $4 < We_b < 131$ 이다.

$$Fr_b = 1.18 \times 10^{-3} Re_b^{0.911} We_b^{-0.246} \quad (10)$$

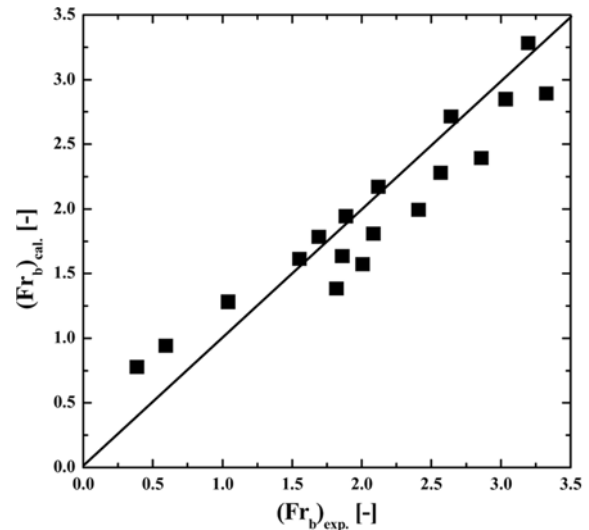
한편, 기포특성과 동일한 방법으로 Kolmogorov entropy 값에 영향을 미치는 인자로 공기유속 및 탄산용융염의 점도, 밀도 그리고 표면장력의 함수로 규정하고 차원해석을 통해 2개의 무차원군을 규정한 후, 최소자승법을 이용하여 Shannon entropy에 관한 상관식을 구하면 식 (11)과 같다[16].

$$K_2 = 1.36 \times 10^4 \left( \frac{\mu_L g}{\rho_L \sigma_L} \right)^{-0.115} \left( \frac{U_g \mu_L}{\rho_L} \right)^{0.562} \quad (11)$$

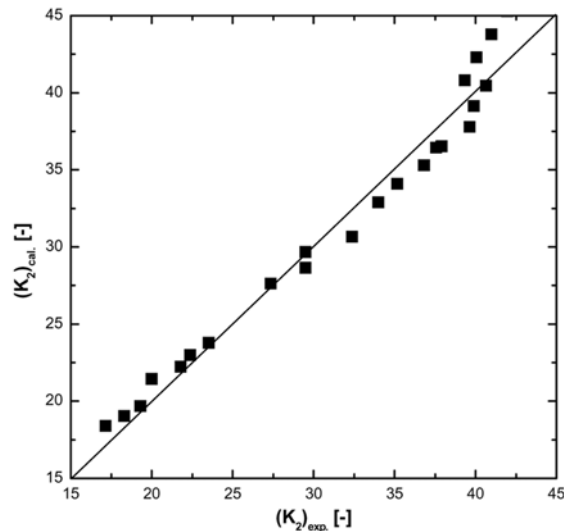
식 (11)의 상관계수는 0.935 이었고 상관식에 사용된 무차원군의 범위는 각각  $2.96 \times 10^{-12} < (\mu_L g / \rho_L \sigma_L) < 1.19 \times 10^{-10}$ ,  $3.23 \times 10^{-8} < U_g \mu_L / \rho_L < 3.64 \times 10^{-7}$ 이며 Fig. 9(b)에서 볼 수 있듯이 실험값과 비교적 잘 일치한다는 것을 알 수 있다.

### 5. 결 론

공기-탄산용융염 이상흐름 반응기(용융염산화공정)에서 공기유속 및 탄산용융염의 온도변화에 따른 흐름영역전이 특성을 파악하였다. 흐름영역전이 특성을 파악하기 위하여 실험적으로 구한 공기체류량 데이터를 drift flux 해석방법을 적용하여 흐름영역의 전이가 발생하는 공기체류량 값을 도출하였는데 탄산용융염의 온도가 증가함에



(a) Froude number of single bubble



(b) Kolmogorov entropy

Fig. 9. Comparison of the Froude number of single bubble (a) and Kolmogorov entropy (b) between the experimental and the calculated values.

따라서 흐름영역의 전이가 발생하는 공기체류량의 값은 증가하였고 이때 실험에 사용한 모든 탄산용융염 온도범위(870~970 °C)에서 흐름영역의 전이가 발생하는 공기유속은 0.15 m/sec로 일정하였다. 흐름영역 특성을 좀 더 정량적으로 파악하고자 조건에 따른 차압요동에 대한 위상공간투영 및 Kolmogorov entropy를 도출하였는데 조업조건에 따라 구한 차압요동의 Kolmogorov entropy는 온도의 증가에 따라서는 감소하였으며 공기유속에 따라서는 증가하였지만 이러한 증가율은 흐름영역에 따라서 변화하였음을 흐름영역의 전이가 발생하는 공기유속을 파악할 수 있었고 흐름영역의 전이가 발생하는 공기유량 값은 drift-flux 해석에서 유도된 값과 일치하였다.

#### 사용기호

- $P_{Tms}$  : various properties in  $T_{ms}$   
 $P_{870}$  : various properties in 870 °C molten salt temperature  
 $Fr_b$  : Froude number of single bubble [-]

$j_{GL}$	: Drift flux [m/sec]
$K_2$	: Kolmogorov entropy [bits/sec]
$d$	: length of the ellipsoidal axes [-]
$D_b$	: bubble diameter [m]
$g$	: gravitational acceleration [m/s <sup>2</sup> ]
$L$	: Lyapunov exponent [bits]
$m$	: parameter in equation 3 [-]
$Re_b$	: Reynolds number of single bubble [-]
$Re_s$	: Reynolds number in a swarm [-]
$t$	: sampling time [sec]
$T_{ms}$	: molten carbonate salt temperature [°C]
$U_g$	: air velocity [m/s]
$U_{sb}$	: slip velocity between bubbles and liquid [m/s]
$U_t$	: bubble terminal velocity [m/s]
$We_b$	: Weber number of single bubble [-]

#### 그리스 문자

$\varepsilon_g$	: air holdup [-]
$\mu_L$	: liquid viscosity [Pa·s]
$\rho_g$	: gas density [kg/m <sup>3</sup> ]
$\rho_L$	: liquid density [kg/m <sup>3</sup> ]
$\sigma_L$	: liquid surface tension [N/m]

#### 감 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발 기금으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

- Kang, Y., Woo, K. J., Cho, Y. J., Song, P. S., Ko, H. H. and Kim, S. D., "Search for the Intrinsic Order of Gas-Liquid Flow in a Bubble Column," *HWAHAK KONGHAK*, **35**, 649-654(1997).
- Kang, Y., Cho, Y. J., Woo, K. J., Kim, K. I. and Kim, S. D., "Bubble Properties and Pressure Fluctuations in Pressurized Bubble Column," *Chem. Eng. Sci.*, **55**, 411-419(2000).
- Hsu, P. C., Foster, K. G., Ford, T. D., Wallman, P. H., Watkins, B. E., Pruneda, C. O. and Adamson, M. G., "Treatment of Solid Wastes with Molten Salt Oxidation," *Waste Manage.*, **20**, 363-368(2000).
- Hsu, P. C., Foster, K. G., Ford, T. D., Wallman, P. H., Watkins, B. E., Pruneda, C. O. and Adamson, M. G., "Treatment of Solid Wastes with Molten Salt Oxidation," *Waste Manage.*, **20**, 363-368(2000).
- Kang, Y., Lee, K. I., Shin, I. S., Son, S. M., Kim, S. D. and Jung, I., "Characteristics of Hydrodynamics, Heat Transfer and Mass Transfer in Three-Phase Inverse Fluidized Beds," *Korean Chem. Eng. Res.*, **46**, 451-464(2008).
- Ribeiro, C. P., "On the Estimation of the Regime Transition Point in Bubble Columns," *Chem. Eng. J.*, **140**, 473-482(2008).
- Wallis, G. B., *One-Dimensional Two-Phase Flow*, McGraw-Hill, New York(1969).
- Zuber, N. and Findlay, J. A., "Average Volumetric Concentration in Two-Phase Flow Systems," *J. Heat Transfer Trans.*, **C87**, 453-468(1965).
- Masliyah, J. H., "Hindered Setting in a Multi-Species Particle System," *Chem. Eng. Sci.*, **34**, 1166-1168(1979).
- Song, S. M., Shin, I. S., Kang, Y., Cho, Y. J. and Yang, H. C., "Characteristics of Heat Transfer in Three-Phase Swirling Fluidized Beds," *Korean Chem. Eng. Res.*, **46**, 56-62(2008).
- Ruzika, M. C., Grahos, J. and Teixeira, J. A., "Effects of Viscosity on Homogeneous-Heterogeneous Flow Regime Transition in Bubble Columns," *Chem. Eng. J.*, **96**, 15-22(2003).
- Pohorecki, R., Moniuk, W., Zdrojkowski, A. and Bielski, P., "Hydrodynamics of a Pilot Plant Bubble Column under Elevated Temperature and Pressure," *Chem. Eng. Sci.*, **56**, 1167-1174(2001).
- Kantarci, N., Borak, F. and Ulgen, K. O., "Bubble Column Reactors," *Proc. Biochem.*, **40**, 2263-2283(2005).
- Banisi, S. and Finch, J. A., "Reconciliation of Bubble Size Estimation Methods Using Drift Flux Analysis," *Miner. Eng.*, **7**, 1555-1559(1994).
- Ityokumbul, M. T., Salama, A. I. A. and Taweel, A. M., "Estimation of Bubble Size in Flotation Columns," *Miner. Eng.*, **8**, 77-89(1995).
- Zou, R., Jiang, X., Li, B., Zu, Y. and Zhang, L., "Studies on Gas Holdup in a Bubble Column Operated at Elevated Temperatures," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **27**(10), 1910-1916(1988).