

삼상 슬러리 기포탑의 세 기능영역 체류량 특성

장지화 · 임대호 · 강 용[†] · 전기원^{*}

충남대학교 화학공학과
305-764 대전시 유성구 궁동 220
*한국화학연구원 그린화학연구단
305-600 대전시 유성구 장동 100
(2010년 2월 9일 접수, 2010년 3월 15일 채택)

Holdup Characteristics of Three Functional Regions in a Slurry Bubble Column

Ji Hwa Jang, Dae Ho Lim, Yong Kang[†] and Ki Won Jun^{*}

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

^{*}Green Chemical Technology Division, Korea Research Institute of Chemical Technology,
100 Jang-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-600, Korea

(Received 9 February 2010; accepted 15 March 2010)

요 약

직경이 0.152 m인 삼상슬러리 기포탑에서 연속 슬러리상 영역(ϵ_c), 기포영역(ϵ_b) 그리고 기포의 후면에서 기포와 같이 상승하는 소용돌이 영역인 wake 영역(ϵ_w)의 세 종류의 기능영역을 분류하여 이들 각 영역의 체류량을 구하였다. 기포탑에서 기포영역과 wake 영역의 체류량은 전기저항 탐침법에 의해 결정하였다. 기체유속(U_G)과 슬러리상에서 고체 입자의 농도(S_s)가 삼상슬러리 기포탑에서 각 기능영역의 체류량에 미치는 영향을 검토하였다. 슬러리 기포탑에서 기체유속이 증가하면 연속 슬러리상의 체류량은 감소하였으나, 기포와 wake의 체류량은 증가하였다. 슬러리상에서 고체 입자의 농도가 증가함에 따라 연속 슬러리상 영역의 체류량은 증가하였으나, 기포와 wake 영역의 체류량은 감소하는 경향을 나타내었다. wake 영역의 체류량은 기포영역 체류량의 15~40% 정도를 나타냈으며, 기체유속이 증가함에 따라 wake 영역의 기포영역에 대한 분율은 감소하였다. 본 연구의 범위에서 세 기능영역의 체류량은 각각 실험 변수의 상관식으로 나타낼 수 있었다.

Abstract – Three kinds of functional regions such as continuous slurry(ϵ_c), bubble(ϵ_b) and wake(ϵ_w) regions were identified, and the individual phase holdups of each functional region were determined in a three-phase slurry bubble column of 0.152 m ID. The holdups of bubble and wake were measured by adopting the electrical resistivity probe method. Effects of gas velocity and solid concentration in the slurry phase on the individual holdups of functional regions in the column were discussed. The holdup of continuous slurry phase decreased but that of bubble or wake increased, with an increase in the gas velocity in the column. The increase of solid content in the slurry phase could lead to the increase in the holdup of continuous slurry phase but decrease in the bubble or wake holdup. The portion of wake holdup was in the range of 15~40% of the bubble holdup, which decreased with increasing gas velocity or solid content in the slurry phase. The individual holdups of three functional regions were well correlated with operating variables within this experimental conditions.

Key words: Slurry, Bubble Column, Three Functional Regions, Wake, Holdup

1. 서 론

삼상슬러리 기포탑은 기포탑을 구성하고 있는 슬러리상과 분산상인 기포의 접촉과 혼합효과가 좋으며 연속조작이 가능할 뿐만 아니라, 조작이 단순하여 공업적, 산업적 응용이 점점 확대되어 지고

있다. 특히, 합성가스나 천연가스로부터 액체 연료를 합성하는 GTL(Gas to Liquid) 공정과 같이 여러 가지 상(phase)이 공존하는 다상의 동력학적 반응공정 등에는 삼상슬러리 기포탑 반응기가 매우 효과적으로 사용될 수 있어서 이에 대한 연구가 최근 활발하게 진행되고 있다[1-3]. 연속 조작이 가능한 다상(multiphase) 반응기로써의 슬러리 반응기는 입도가 작은 촉매 입자를 사용할 수 있기 때문에 다른 반응기에 비하여 입자내 확산 저항(intraparticle diffusion resistance)을 매우 줄일 수 있으며, 촉매의 첨가와 회수 및 재생을

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: kangyong@cnu.ac.kr

^{*}이 논문은 충남대학교 유성곤 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

하였다. 전기저항탐침으로부터 나오는 신호는 1000 Hz로 30초간 측정하였으며 이 자료는 기포 및 wake의 이동자료로 변환되어 신호 자료를 증폭기(amplifier), Low-pass filter를 거친 후, A/D 변환기를 이용하여 아날로그 신호를 디지털 신호로 변환시키고 이들의 자료를 데이터획득장치(data acquisition system, DT-2805 Lab-Board, DT-VEE software)를 사용하여 PC에 입력시켰다. 저장된 자료는 DT-VEE 프로그램 상에서 on-line으로 나타나게 하였으며 자료의 재현성을 고찰하기 위하여 3~5회 측정하여 이들 자료의 평균값을 사용하였다[14-16].

3. 결과 및 고찰

삼상슬러리 기포탑에서 기포의 상승에 따라 기포탑 내부에 설치된 전기저항탐침에 의해 측정된 전기저항요동의 전형적인 변화를 Figs. 2와 3에 나타내었다. 이들 전기저항 변화의 신호로부터 기포 및 wake의 특성을 측정하고 상승기포의 후반부에 연결되어 기포와 같이 상승하는 기포 wake의 특성을 고찰하였다[17,18]. 슬러리 기포탑에서 상승하는 단일 기포와 기포의 후반부에 형성되는 wake 영역이 측정된 것을 Fig. 2에 나타내었다. Fig. 2에서 볼 수 있듯이 전기저항탐침에 의해 측정된 b영역은 기포를 나타내고 w영역은 기포 후면의 wake를 나타내는데, 슬러리 기포탑의 운전조건에 따라 여러 가지 형태의 wake 영역이 형성되는 것을 알 수 있다. 또한, 슬러리 기포탑에서 상승하는 여러 가지 형태의 기포들은 서로 합체되기도 하고 분쇄되면서 다중기포(multi-bubbles)를 형성하는 경우가 많으므로 이들 다중기포의 상승시 기포의 후반부에 형성되는 wake 영역이 측정된 예를 Fig. 3에 나타내었다. 이와같이 측정된 기포와 wake 영역에 대한 자료들로부터 기포탑의 일정한 운전조건에서 기포의 체류량과 wake 영역의 체류량을 결정하였다.

삼상슬러리 기포탑의 구성을 크게 연속상의 영역과 분산상의 영역으로 나눌 수 있는데, 연속상은 슬러리를 형성하고 있는 영역을 나타내고 분산상은 기포의 영역과 기포의 후반부에 형성되어 기포와 같이 상승하는 wake의 영역으로 분류할 수 있다. 따라서, 삼상

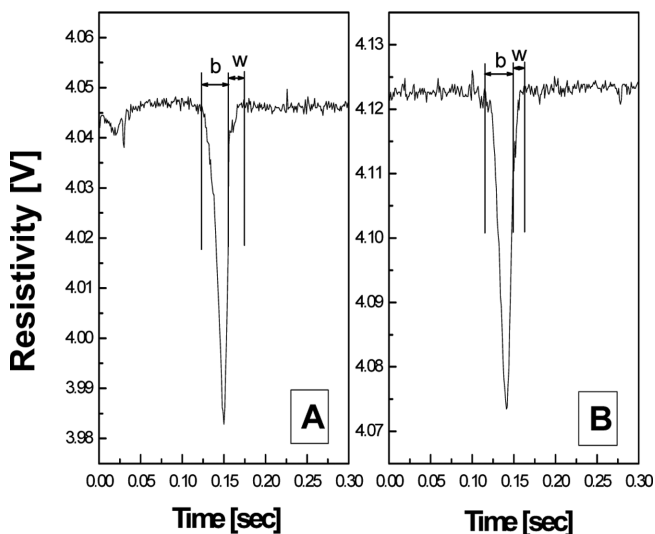


Fig. 2. Typical examples of bubble and wake regions in a slurry bubble column(A: $U_G=0.04$ m/s, $S_c=5$ wt%, B: $U_G=0.04$ m/s, $S_c=15$ wt%).

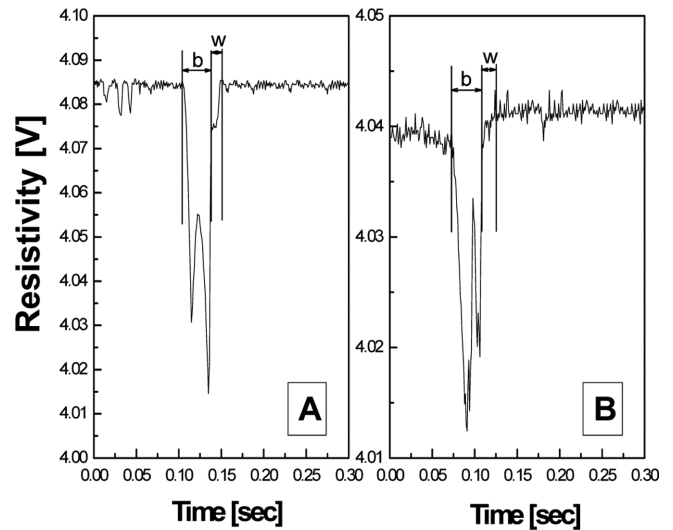


Fig. 3. Typical examples of multi-bubbles and wake regions in a slurry bubble column(A: $U_G=0.04$ m/s, $S_c=5$ wt% B: $U_G=0.12$ m/s, $S_c=5$ wt%).

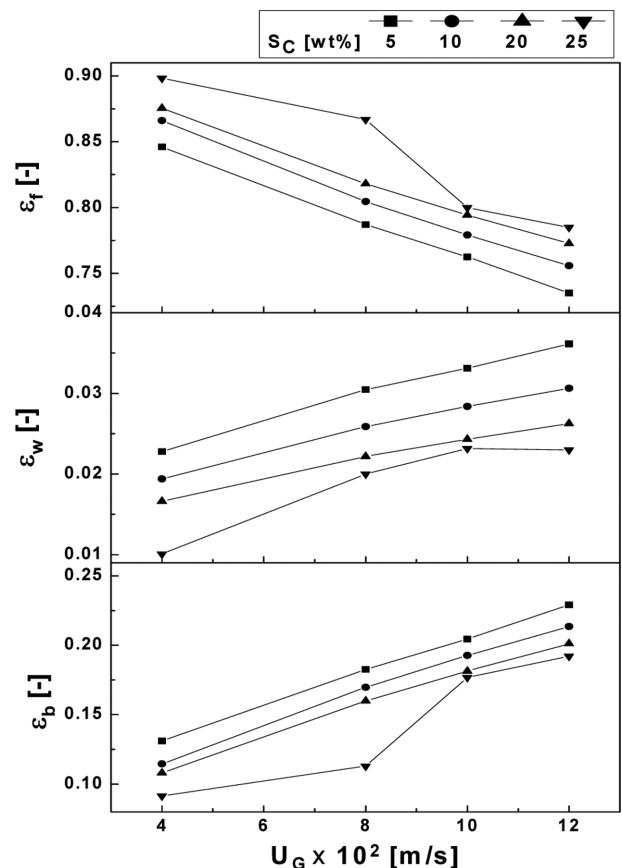


Fig. 4. Effects of gas velocity and solid content in slurry phase on the individual phase holdups of functional regions in a slurry bubble column.

슬러리 기포탑의 구성을 기포탑 내부에 흐르는 유체들의 기능에 따라 식 (1)와 같이 세가지의 영역으로 나눌 수 있다.

$$\varepsilon_b + \varepsilon_w + \varepsilon_f = 1.0 \quad (1)$$

식 (1)에서 기포와 wake 영역의 체류량은 전기저항탐침의 신호

에 의해 결정할 수 있으므로 연속액상의 체류량인 ϵ_l 를 결정할 수 있다.

이렇게 결정된 삼상슬러리 기포탑에서 세가지의 기능영역 체류량을 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 볼 수 있듯이 슬러리 기포탑에서 기체의 유속이 증가함에 따라 연속 슬러리상의 체류량은 현저히 감소하며 기포의 체류량은 현저히 증가하는 것을 알 수 있다. 기체의 유속이 증가하면 슬러리 기포탑 내부의 기포의 크기가 증가하며, 기포의 갯수도 증가하여 기포의 체류량은 증가하는 것으로 알려져 있다[3,4]. 기포의 크기가 증가함에 따라 기포의 후반부에 형성되는 wake의 크기도 증가하게 되는데, wake는 일정크기 이상의 기포의 후반부에 형성되므로 기체의 유속이 증가함에 따라 기포의 크기와 체류량이 증가하고 이에 따라 wake의 체류량도 증가한다고 할 수 있다.

삼상슬러리 기포탑에서 연속상을 이루는 슬러리상에 포함된 고체의 양(s_c)이 기포탑 내부 세가지 기능영역의 체류량에 미치는 영향을 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 볼 수 있듯이 슬러리 기포탑에서 연속상을 이루는 슬러리상의 고체함량이 증가함에 따라 연속액상의 체류량은 증가하였으나 기포의 체류량과 wake 영역의 체류량은 감소하는 경향을 나타내었다. 슬러리상의 고체함량이 증가하면 연속액상과 접촉하면서 상승하는 기포들이 연속액상 내부에 퍼지며 상승하기보다는 고체입자의 영향으로 기포의 합체현상이 증가하게 되어 기체의 일정한 유속조건에서 기포의 개수는 줄어들고 기포의 크기가 증가하게 되는데[1-5], 기포의 크기가 증가하면 연속액상 내부에서 상승하는 기포에 작용하는 부력이 증가하게 되어 기포의 상승속도도 증가하게 된다. 기포의 상승속도가 증가하게 되면 기포가 슬러리 기포탑 내부의 연속상 내부에 머무는 체류시간이 감소하게 되어 일정한 운전조건하에서 기포의 체류량은 감소한다고 할 수 있다. 기포탑 내부에서 기포의 체류량이 감소하면 기포의 후반에서 동반 상승하는 wake의 체류량도 감소한다고 할 수 있다. 기포탑에서 슬러리상에 포함된 고체입자의 함량이 증가하면 기포탑 내부에 존재하는 매우 작은 기포들이 합체되어 비교적 큰 기포들로 변화하므로 기포의 체류량은 감소하나, 이들 슬러리 기포탑에 존재하는 매우 작은 기포들은 기포자체의 기능을 발휘할 수 있는 기포의 거동을 할 수 있을 만큼 큰 관성력(inertia force)을 가지지 못하기 때문에 슬러리상과 같이 섞여서 거동을 하므로 이들 매우 작은 기포들의 후반에는 wake가 형성되지 못한다. 따라서, 슬러리상에 존재하는 매우 작은 기포들의 합체는 기포의 상승속도의 증가를 가져와 기포의 체류량 감소가 뚜렷하게 보이지만 작은 기포에 wake가 형성되지 못하기 때문에 기포의 합체에 의해 wake 체류량의 감소량은 기포의 체류량이 감소하는 것에 비해 큰 변화가 없는 것으로 사료된다. 다만, 슬러리상의 고체함량 증가에 따라 기포탑 내부에 존재하는 비교적 큰 기포의 합체에 의한 기포의 체류량 감소에는 영향을 받아 wake 영역의 체류량이 약간 감소하는 경향을 나타낸다고 판단된다.

연속 조작 슬러리 기포탑에서 기포의 체류량 결정을 위해서 전기 저항탐침을 사용할 때에 상하 탐침간의 거리가 2 mm이었으므로 2 mm 이하 크기의 기포는 측정되지 않았다. 따라서, 2 mm 이하 크기의 기포를 작은 기포로 분류하였다.

삼상 슬러리 기포탑에서 기체반응물과 슬러리 상간의 접촉효과를 예측하기 위하여 슬러리상을 이루는 액체상의 체류량(ϵ_l)과 wake 영역의 체류량(ϵ_w)의 관계를 식 (2)와 같이 나타내었다.

$$\epsilon_w = m\epsilon_l \quad (2)$$

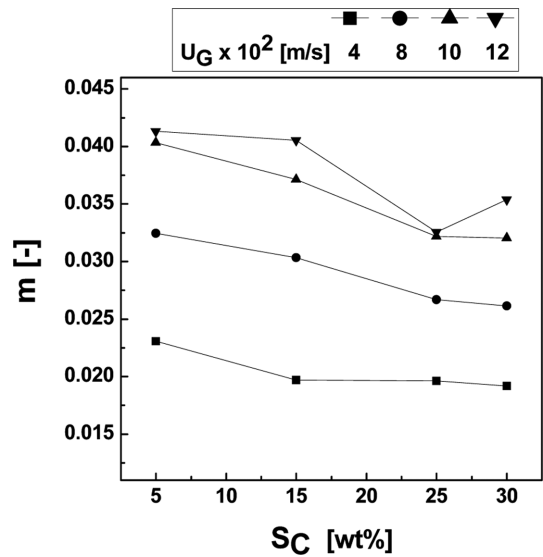


Fig. 5. Effects of gas velocity and solid content in slurry phase on the ratio of wake to liquid holdup(m) in a slurry bubble column.

식 (2)에서 상수 m 은 wake 영역 체류량의 액체상 체류량에 대한 비율을 나타낸다. 슬러리상을 구성하고 있는 연속 액상의 체류량(ϵ_l)은 반응기체와 물질전달을 고찰할 때 연속 액상의 단위부피당 물질전달계수로 나타내는데, 이 현상의 설명에 연속 액상의 체류량과 wake 영역의 체류량의 관계가 중요한 인파이므로 이 관계식을 사용하였다. 상수 m 값은 Fig. 5에서 볼 수 있듯이, 기체의 유속이 증가함에 따라 증가하였으나, 슬러리상에 포함된 고체입자의 농도(Sc)가 증가함에 따라 대체적으로 약간 감소하는 경향을 나타내었다. 그러나, 기체유속이 10 cm/s 이상이 되면 m 값은 기체의 유속이 증가함에 따라 크게 변화하지 않는 것을 알 수 있다. 이는 삼상슬러리 기포탑에서 기체의 유속이 어느 정도 이상 증가하면 기포흐름영역(bubbling flow regime)에서 Churn-난류흐름영역으로 변화하기 때문으로 해석할 수 있다. 이와 같은 결과는 기포탑에서 기체의 유속이 증가하여 기포의 흐름영역이 Churn-난류영역으로 변화되면 기포후면에 형성되는 wake 영역과 연속액상의 접촉효과가 슬러리상의 고체입자의 농도에 크게 영향을 받지 않는 것을 나타낸다.

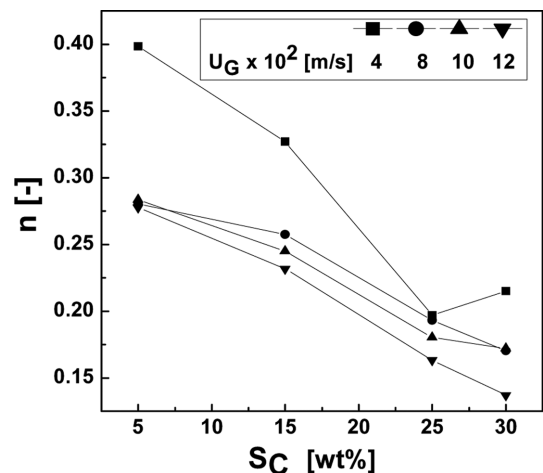


Fig. 6. Effects of gas velocity and solid content in slurry phase on the ratio of wake to bubble holdup(n) in a slurry bubble column.

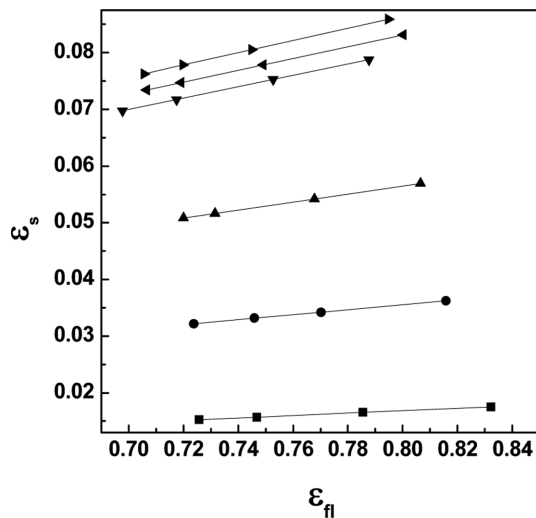


Fig. 7. Relationship between liquid and solid holdups in a slurry bubble column(■: 5 wt%, ●: 10 wt%, ▲: 15 wt%, ▼: 20 wt%, ◀: 25 wt%, ▶: 30 wt%).

삼상 슬러리 기포탑에서 wake 영역의 체류량과 기포체류량의 관계를 식 (3)과 같이 나타낼 수 있다.

$$\varepsilon_w = n\varepsilon_b \quad (3)$$

식 (3)에서, wake 체류량의 기포체류량에 대한 비율인 n 값은 Fig. 6에서 볼 수 있듯이 슬러리상에 포함된 고체입자의 농도(Sc)가 증가함에 따라, 그리고 기체유속이 증가함에 따라 대체적으로 감소하는 경향을 나타내었다. 이는 기체의 유속이나 슬러리상의 고체입자의 농도가 증가함에 따라 기포의 크기가 증가하게 되는 데[1-5,14], 기포의 후면에 형성되는 wake 영역의 크기는 기포의 크기가 증가함에 따라 절대값은 증가하나 wake 영역이 증가하는 비율은 기포의 체류량 증가에 비례하지 않고 오히려 반비례하는 것을 알 수 있다.

삼상 슬러리 기포탑의 각 운전조건에서 연속상인 슬러리상을 이루는 고체입자와 액체상의 체류량 상관성을 Fig. 7에 나타내었다. 여기서, 슬러리상의 체류량 ε_s 와 ε_f 은 기포탑의 특정운전조건에서 실험적으로 측정된 ε_w 와 ε_b 의 자료들과 기포탑에 첨가된 고체입자의 부피와 액상의 부피로 구할 수 있다. Fig. 7에서 볼 수 있듯이 슬러리상을 이루는 고체입자의 체류량과 액상의 체류량은 슬러리상에 포함된 고체입자의 양에 따라 일정한 값을 나타내지 않으며 기포탑의 운전조건에 따라 다양하게 변화하는 것을 알 수 있다. 특히, 슬러리상에 포함된 고체입자의 양이 증가함에 따라 기포탑의 운전조건에 따른 고체입자의 체류량은 점점 민감하게 변하는 것을 알 수 있다.

본 연구의 실험범위에서 삼상 슬러리 기포탑 내부의 세가지 기능영역의 체류량을 실험변수의 상관식으로 식 (4)-(6)과 같이 얻을 수 있었다. 이들 식 (4)-(6)의 상관계수는 각각 0.958, 0.953, 0.965로 실험결과를 잘 나타내는 것으로 사료되었다.

$$\varepsilon_b = 0.071U_G^{0.560}S_c^{-0.128} \quad (4)$$

$$\varepsilon_w = 0.016U_G^{0.502}S_c^{-0.260} \quad (5)$$

$$\varepsilon_f = 0.940U_G^{-0.115}S_c^{0.033} \quad (6)$$

식 (4)-(6)을 만족시키는 실험범위는 $0.02 \text{ m/s} \leq U_G \leq 0.16 \text{ m/s}$, $0 \text{ wt}\% \leq Sc \leq 30 \text{ wt}\%$ 이었다.

4. 결 론

(1) 삼상 슬러리 기포탑에서 기포탑 내부의 구성을 기포영역, 연속상 영역 그리고 wake 영역의 세가지 기능영역으로 구분하여 해석할 수 있었으며 각 기능영역의 수력학적 특성을 고찰할 수 있었다.

(2) 삼상 슬러리 기포탑에서 기체의 유속이 증가할수록 기포와 wake의 체류량은 증가하였으며, 연속상의 체류량은 감소하였다. 또한, 슬러리상에 포함된 고체입자의 농도가 증가함에 따라 기포와 wake의 체류량은 감소하였으나, 연속상의 체류량은 증가하였다.

(3) 삼상 슬러리 기포탑에서 기체의 유속이 증가함에 따라 wake 영역 체류량(ε_w)의 액체상 체류량에 대한 비율은 증가하였으나, 슬러리상에 포함된 고체입자의 농도가 증가함에 따라 wake 영역 체류량의 액체상 체류량에 대한 비율은 약간 감소하였다. 그러나, 기체유속이 비교적 높은 10 cm/s 이상에서는 기체의 유속이 wake 영역 체류량의 액체상 체류량에 대한 비율에 크게 영향을 미치지 못하였다.

(4) 삼상 슬러리 기포탑에서 기체의 유속과 슬러리상에 포함된 고체입자의 농도가 증가함에 따라 wake 체류량(ε_w)의 기포체류량(ε_b)에 대한 비율은 감소하는 경향을 나타내었다.

(5) 본 연구의 범위에서 슬러리 기포탑 내부의 세가지 기능영역 체류량을 다음과 같이 운전변수의 상관식으로 나타낼 수 있었다.

$$\varepsilon_b = 0.071U_G^{0.560}S_c^{-0.128}$$

$$\varepsilon_w = 0.016U_G^{0.502}S_c^{-0.260}$$

$$\varepsilon_f = 0.940U_G^{-0.115}S_c^{0.033}$$

감 사

본 연구는 2009년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다(3A-3-1).

사용기호

D	: diameter of column[m]
d_p	: particle diameter[mm]
H	: column height[m]
K	: consistency index in power-law model[Pa s^n]
k	: flow behavior index[-]
m	: ratio of wake to liquid holdup[-]
n	: ratio of wake to bubble holdup[-]
S_c	: solid content[wt%]
t	: time[s]
U_G	: gas velocity[m/s]

그리스 문자

a	: diffusivity[cm/s]
ε	: holdup[-]

μ	: viscosity[mPa·s]
ν	: kinematic viscosity[m ² /s]
ρ	: density[kg/m ³]
σ	: surface tension[mN/m]

하첨자

b	: bubble phase
f	: continuous slurry phase
fl	: liquid phase
G	: gas phase
sl	: slurry
w	: wake phase

참고문헌

- Krichma, R. and Sie, S. T., "Design and Scale-up of the Fischer-Tropsch Bubble Column Slurry Reactor," *Fuel Processing Technol.*, **64**, 73-105(2000).
- Davis, B. H., "Overview of Reactors for Liquid phase Fischer-Tropsch Synthesis," *Catal. Today*, **71**, 249-300(2002).
- Behkish, A., Lemoine, R., Sehabiaque, L., Oukaci, R. and Morsi, B. I., "Gas Holdup and Bubble Size Behavior in a Large-Scale Slurry Bubble Column Reactor Operating with an Organic Liquid under Elevated Pressures and Temperatures," *Chem. Eng. J.*, **128**, 69-84(2007).
- Bakopoulos, A., "Multiphase Fluidization in a Large-Scale Slurry Jet Loop Bubble Columns for Methanol and of Dimethyl Ether production," *Chem. Eng. Sci.*, **61**, 538-557(2006).
- Kim, S. D. and Kang, Y., "Hydrodynamics, Heat and Mass Transfer in Inverse and Circulating Three-phase Fluidized-Bed Reactors for Waste water Treatment," *Stud. Surf. Sci. Catal.*, **159**, 103-108(2006).
- Kitano, K. and Fan, L. S., "Near-wake Structure of a Single Gas Bubble in a Two-dimensional Liquid-Solid Fluidized Bed : Solid Holdup," *Chem. Eng. Sci.*, **43**, 1355-1361(1988).
- Kang, Y. and Kim, S. D., "Radial Dispersion Characteristics of Two-and Three-Phase Fluidized Bed," *ICEC Process Des. Dev.*, **25**, 717-722(1986).
- Cardoso, O. N., Mayor, T. S., Pinto, A. M. F. and Campos, J. B. L. M., "Axial Dispersion of Particles on a Slugging Column - The Role of the Laminar Wake of Bubble," *Chem. Eng. Sci.*, 4159-4172(2003).
- Li, Y., Zhang, J. and Fan, L. S., "Numerical Simulation of Gas-Liquid-Solid Fluidization System using a Combined CFD-VOF-DPM Method Bubble Wake Behavior," *Chem. Eng. Sci.*, **54**, 5101-5107(1999).
- Sanada, T., Shiota, M. and Watanabe, M., "Bubble Wake Visualization by Using Photochromic Dye," *Chem. Eng. Sci.*, **62**, 7264-7273(2007).
- Celata, G. P., Cumo, M., D'Annibale, F. and Tomiyama, A., "The Wake Effect on Bubble Rising Velocity in One-Component Systems," *Int'l J. Multiphase Flow*, **30**, 939-961(2006).
- Lertnuwat, B. and Bunyajitradulya, A., "Effects of Interfacial Shear Condition and Tailing -Corner Radius on the Wake Vortex of a Bubble," *Nuclear Eng. Des.*, **237**, 1526-1533(2007).
- Chen, R. C. and Chou, I. S., "Wake Structure of a Single Bubble Rising in a Two-Dimensional Column," *Expt. Therm. Fluid Sci.*, **17**, 165-178(1998).
- Shin, I. S., Son, S. M., Kim, U. Y., Kang, Y., Kim, S. D. and Jung, H., "Multiple Effects of Operating Variables on the bubble Properties in Three-phase Slurry Bubble Columns," *KJChE*, **26**, 587-591(2009).
- Kang, Y., Lee, K. I., Shin, I. S., Son, S. M., Kim, S. D. and Jung, H., "Characteristics of Hydrodynamics, Heat and Mass Transfer in Three-phase Inverse Fluidized Beds," *Korean Chem. Eng. Res.*, **46**, 451-464(2008).
- Kang, S. H., Son, S. M., Kang, Y., Bae, J. W. and Jun, K. W., "Effects of Pressure Fluctuations on the Heat Transfer Characteristics in a Pressurized Slurry Bubble Column," *KJChE J.*, 897-904(2008).
- Kang, Y., Cho, Y. J., Woo, K. J., Kim, K. I. and Kim, S. D., "Bubble Properties and Pressure Fluctuations in Pressurized Bubble Columns," *Chem. Eng. Sci.*, **55**, 411-419(2000).
- Kang, S. H., Son, S. M., Kang, Y., Bae, J. W. and Jun, K. W., "Effect of Pressure Fluctuations on the Heat Transfer Characteristics in a Pressurized Slurry Bubble Column," *KJChE*, **25**, 897-904(2008).