

氣·固系流動層의 Scale up 에 關하여

南宮寔*, 鄭雨昌*, 河白顯*, 文世基*

On the Scale up of Fluidized Bed

Shik Namkoong*, Woo Chang Chung*, Baik Hyon Ha*, Shea Ghy Moon*

*Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Han Yang Univ.

Fixed and fluidized bed were compared with their reaction rate constant by the ammonium catalytic dissociation reaction.

There was almost same reaction rate constant on both unit column fluidized reactor (5cm ϕ) and scaled up fluidized reactor (10cm \times 10cm \times 60cm) which is scaled up by inserting internal wall with hole into four compartments, but scaled up reactor without compartment shows lower value of its reaction rate constant than with compartment.

1. 緒 論

流動層을 scale up 할 때 良好한 流動化狀態를 얻기 위해서 層內에 各種의 防害板, 充填物 등을 流動層 內에 挿入하는 方法이 있다. 挿入物은 流動層底部에서 生成된 氣泡가 上方으로 上昇함에 따라 점차 成長하거나 서로 會合되어서 크게 되는 氣泡를 細分化하고 中央部에 集結하기 쉬운 gas 流를 均一히 分散케 하고 그 結果 粒子的 運動을 調節해서 均一한 流動化狀態를 얻게 한다.

近來 Volk¹⁾ 등은 流動層觸媒反應裝置를 scale up 함에 있어서 基礎實驗裝置의 內徑과 同一한 相當徑을 갖게끔 圓管群을 大型裝置內에 設置한 結果 裝置規模의 擴大에도 不拘하고 同一한 反應器成積을 얻을 수가 있었다고 報告하고 있다.

既往의 研究에서 scale up 을 容易하게 하기 위하여 使用된 挿入物의 種類로서는 圓管板 및 多孔板¹⁾, grid 板²⁾, 金網³⁾, tube tray²⁾ 및 泡鐘段板⁴⁾ 등을 들 수 있고 充填物로서는 球⁵⁾, 圓柱³⁾, Raschig ring⁶⁾ 및 金網製 充填物⁶⁾ 등을 들 수 있다.

著者 등은 가장 裝置構造가 簡單하고 特히 挿入物에

依한 反應器容積의 占有率을 極小化시킬 수 있는 方法의 하나로서 流動層 內에 有孔隔壁을 垂直方向으로 設置하여 橫方向으로 裝置規模를 擴大하는 方式을 提案하였고⁷⁾, 그간 粉粒體의 混合速度 및 滯留時間分布의 測定으로 有孔隔壁에 依한 scale up 方式의 合當性を 確認한 바 있다^{7), 8)}.

本 研究에서는 著者 등이 提案한 바 있는 有孔隔壁에 依한 scale up 方式의 合當如否를 NH₃ 分解反應裝置의 경우에 對하여 檢討한 結果 基礎實驗裝置에서 얻은 data 와 基礎實驗裝置의 內徑과 同一한 相當徑을 갖게끔 有孔隔壁에 依해서 四槽連成裝置로 scale up 했을 때 얻은 data 가 거의 一致함을 確認했다.

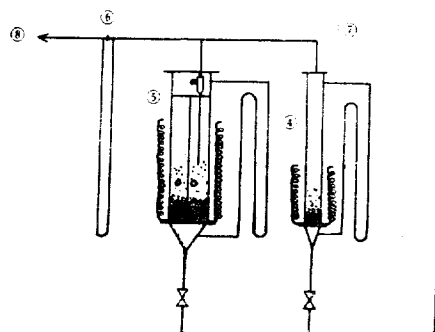
또한 固定層에서의 反應速度定數와 流動層에서의 反應速度定數를 比較한다면 대개 前者의 反應速度定數가 더 좋다고 알려져 있다. 이 研究에 關한 從來의 研究로서는 Johnstone⁹⁾ 및 Sken¹⁰⁾ 등이 NH₃의 低溫接觸 酸化 및 酸化窒素의 接觸分解의 경우에 對해서 研究한 바 있다.

著者 등은 本 scale up 研究과 더불어 NH₃ gas의 分解反應을 통해서 流動層에서 反應시켰을 때와 固定層에서 反應시켰을 때의 MH₃ 分解時 總括速度定數를 비

* 漢陽大 工大 化工科

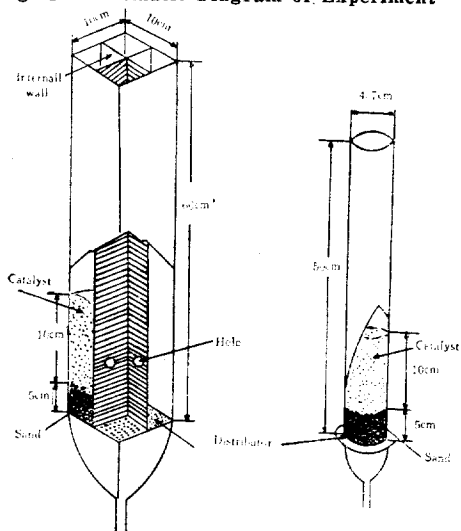
較해서 固定層에서의 總括速度定數가 流動層에서의 總括速度定數보다 현저히 크다는 것을 確認했다.

2. 實驗裝置



- ① Ammonia gas bomb
- ② Gas dryer
- ③ ⑦ Flow Meter
- ④ Unit volume reactor
- ⑤ Scaled up reactor
- ⑥ Manometer
- ⑧ Gas analyser

Fig. 1. Schematic Diagram of Experiment



a. Scaled up reactor b. Unit column reactor

Fig. 2. Fluidized Beds

實驗裝置의 概略을 Fig. 1에 圖示했다. 流動層反應器의 單位 column 으로서는 內徑 47mm 이고 높이가 50cm 인 stainless steel 製 圓筒管(Fig. 2-b)을 使用했으며 scale up 된 反應器로는 stainless steel 製 四角管 (10×10×60cm³)에 有孔隔壁을 Fig. 2-a의 형태로 插入한 것을 使用했다.

또한 整流板은 幾何學的 變化로 오는 反應條件의 變動을 防止하기 위하여 粒徑이 10~30 mesh의 標準砂를 分散板部에 50mm 높이로 充填하였다. 開孔의 位置는 流動化에 依한 粉粒體 混合이 억제 당하지 않는 곳에 두기 위하여 整流板으로부터 5cm 인 位置로 했으

며 開孔(10mmφ) 面積은 0.78[cm²]로 하였다. 使用된 NH₃는 忠肥製品이며 觸媒로는 "Nissan Chemetron G-47"을 使用했다. 本研究實驗範圍는 다음과 같다.

觸媒粒徑; 60~120 [mesh]

靜止時觸媒充填高; 10 [cm]

反應溫度; 400~550[°C]

Time factor; 0.5~2 [sec]

反應 gas 및 反應生成 gas의 分析은 Orsat gas 分析器에 依하여 50% H₂SO₄ 溶液에 NH₃ gas를 吸收시키고 이를 未反應量으로 하여 轉化率(q)을 計算했다. 本研究에 使用된 觸媒의 物性은 Table 1과 같다.

Table 1. Physical Properties of Catalyst

	主 成 分	粒 度	겉보기 密度
Nissan Chemetron G-47	還元鐵	60~120 mesh	0.89gr/cc

固定層反應器의 反應速度 data는 Fig. 1의 單位 column 上部로부터 原料 gas를 供給하고 下部에서 反應生成 gas를 採取하여 分析해서 求했다.

3. 實驗結果 및 考察

1) 速度式

NH₃ 分解反應의 速度論의 data를 求하기 爲하여 우선 單位 column 反應器를 利用하여 370°C, 420°C, 450°C 및 500°C 에서 反應을 進行시킨 結果 Fig. 3과 같이 $\ln \frac{1}{1-q}$ 과 V/F에 直線의 關係가 있음으로 1次 反應임을 確認할 수 있었고 또한 溫度에 따른 總括速度定數(k)의 變化는 Table 2에 表示한 바와 같다.

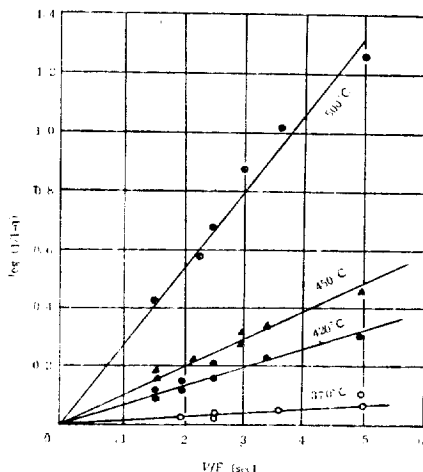


Fig. 3. $\ln \frac{1}{1-q}$ vs V/F

Table 2. Overall Rate Constant on Temperature

T [°C]	37.0	420	450	500
k × 10 ² [sec ⁻¹]	1.67	6.67	10.0	26.6

Table 2의 값으로부터 Fig. 4와 같이 Arrhenius plot에서活性化energy(E)를求한結果 21.0[kcal mole⁻¹]이었다.

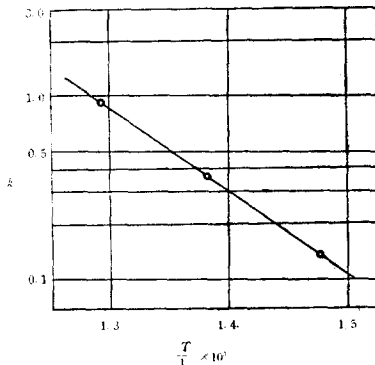


Fig. 4. $\log k$ vs $\frac{1}{T}$

2) 流動層과 固定層의 比較

流動層과 固定層에서의 速度論의 data를 比較하기爲하여 Fig. 5에 $\ln(1-q)$ 와 V/F 의 plot를 했다.

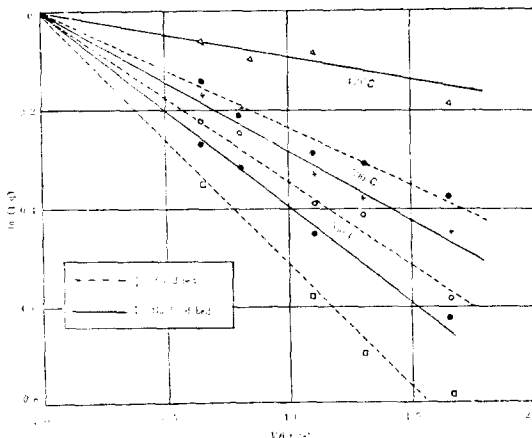


Fig. 5. Comparison of Fixed Bed and Fluidized bed

이때의 總括速度定數를 Table 3에 表示했다.

Table 3. Comparison of Reaction Rate Constants in Fixed Bed and Fluidized Bed

T [°C]	450	500	550
k _f (fixed bed) [sec ⁻¹]	0.238	0.343	0.51
k (fluidized bed) [sec ⁻¹]	0.093	0.283	0.395

Fig. 5와 Table 3의 結果에 의하면 總括速度定數는 流動層이 固定層에 比해서 떨어짐을 알 수 있다.

即 流動層에서는 一般的으로 濃厚相과 氣泡相을 이루어 粉粒體와 gas 體間의 接觸이 良好하지 못하다. 따라서 粉粒體와 gas 體間의 接觸效率를 좋게하는 때는 氣泡 中에 分散되어 있는 粒子群의 比率를 增加시키고 氣泡相과 濃厚相間의 交換 gas 流量을 增加시켜야 된다는 것이 여러 研究者에 依하여 指摘되고 있는 것이다.

3) 流動層의 Scale up

單位 column反應器의 內徑과 同一相當徑을 갖게끔 有孔隔壁에 依해서 scale up된 四槽連成裝置를 使用해서 얻은 data와 그의 有孔隔壁을 除去한 大型裝置를 使用해서 얻은 data와를 比較한 것이 Fig. 6이다. 또 各 경우의 總括速度定數를 求해서 Table 4에 表示했다.

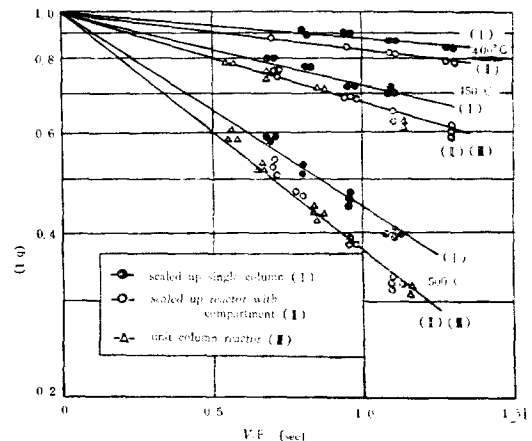


Fig. 6. Comparison of Unit Column Reactor and Scaled up Reactor

Table 4. Comparison of Reaction Rate Constant in Unit Column Reactor and Scaled up Reactor

T [°C]	400	450	500
k (Unit column reactor)	0.13	0.37	0.95
k (Scaled up reactor with compartment)	0.17	0.40	0.98
k (Scaled up single column)	0.12	0.32	0.80

Fig. 6와 Table 4에 依하면 單位 column反應器와 有孔隔壁에 依해서 scale up한 四槽連成裝置의 反應器 成績이 거의 同一함을 알 수 있다. 또 四槽連成裝置에 有孔隔壁을 設置하지 않았을 때의 速度定數는 有孔隔壁에 依한 scale up裝置에서의 速度定數보다 顯著히 떨어짐을 알 수 있다.

이러한 結果로 有孔隔壁은 流動層反應器의 反應率을 減少케 하는 氣泡의 成長을 억제하며 有孔隔壁의 開孔에 依하여 挿入物에 依한 短點인 粉粒體 混合速度의 阻止 없이 完만한 流動層을 이룸을 알 수 있다.

4. 結 論

1) NH_3 分解反應에서 總括速度定數는 固定層에 比해서 流動層이 떨어진다.

2) 基礎實驗裝置(單位 column 反應器)와 有孔隔壁에 依해서 scale up 한 四槽連成裝置의 反應器成積이 거의 同一한 點으로 보아 著者 等이 提案한 有孔隔壁에 依한 scale up 方式이 有効함을 알았다.

Nomenclature

E ; Activation energy [kcal mole⁻¹]

F ; Flow rate [m³ sec⁻¹]

k ; Over all reaction rate constant in fluidized bed [sec⁻¹]

k_f ; Over all reaction rate constant in fixed bed [sec⁻¹]

L_c ; Height of packed catalyst [cm]

q ; Conversion [—]

T ; Temperature [°C]

參 考 文 獻

1. Volk, Johnson, and Stotler; Chem. Eng. Progr. Symposium Series No. 38 58, 38 (1962)
2. Overcashier, R. H., D. B. Todd and R. B. Olney: A. I. Ch. E. Journal **5**, 54 (1959)
3. Lewis, W. K., E. R. Gilliland and W. Glass: A. I. Ch. E. Journal **5**, 419 (1959)
4. Volk, W., C. A. Johnson and H. H. Stotler: Chem. Eng. Progr., **58**, 44 (1962)
5. Gabor, J. D. and W. J. Mechem: Ind Eng. Chem. Fundamentals **3**, 60 (1964)
6. Sutherland, J. P., G. Vassilatos, H. Kubota and G. L. Osberg: A. I. Ch. E. Journal, **9**, 437 (1963)
7. 南宮寔, 鄭雨昌; 化學공학 **2**, 87 (1964)
8. 南宮寔, 鄭雨昌; 化學공학 **3**, 142 (1965)
9. Johnstone, H. F., J. D. Bachelor and C. Y. Shem: A. I. Ch. E. Journal **1**, 318 (1955)
10. Shen, C. Y., and H. F. Johnstone: A. I. Ch. E. Journal **1**, 349 (1955)