

氣固系流動層의 二相間氣體交換係數의 測定

南 宮 寔* · 鄭 雨 昌** · 文 世 基***

Measurement of Gas Cross Flow Coefficient between the Bubble and Emulsion Phases in a Gas-Solid Fluidized Bed

Shik Namkoong*, Woo Chang Chung**, Shea Ghy Moon***

*, **, ***Dept. of Chem Eng., College of Eng. Hanyang Univ.

An alternative measurement of gas cross flow coefficient between the bubble phase and emulsion phase, and the density of the solid particles in the bubble of a gas-solid, two dimensional fluidized bed are proposed, using the tracer technique and leak-current method.

In the range of u_o/u_{mf} from 1.5 to 7.0, the gas cross flow coefficient $(\bar{K}_{bd})_b$ and density ratio γ_b are decreased rapidly and exponentially, respectively, with the increase of u_o/u_{mf} .

It was found that there was a linearity between $(\bar{K}_{bd})_b$ and u_{mf}/d_b and that this proposed $(\bar{K}_{bd})_b$ was one of the catalytic fluidized bed design factor for the gas catalytic reaction.

I. 緒 論

流動層觸媒反應裝置設計의 資料를 얻기 위해서는 流動層內의 粒子 및 氣泡의 舉動, 粒子 및 流體^{1,2)}의 混合^{3,4,5,6)}과 같은 여러가지 現象들 間의 相互關連性을 究明할 必要가 있다.

流動層內 流體의 滯留時間分布函數 및 接觸時間分布函數^{7,8,9)}는 巨視的인 面에서 反應裝置因子로서의 重要性이 認定되었으며 微視的인 面에서 본 氣泡의 舉動^{10,11,12)} 및 粒子의 舉動^{13,14)}은 流體의 滯留時間 및 接觸時間의 分布에 큰 影響을 미치고 있다.

따라서 反應裝置 全體에 對한 이들 現象間의 關係를

究明하는 것은 重要한 것으로서 流動層의 性能을 統一的으로 說明할 수 있게 된다. 다시 말하면 氣泡의 模型이나 流動層을 二相說 model¹⁵⁻¹⁹⁾로 生覺한 것은 流動層을 아주 잘 表現한 것 같으며 單一 氣泡에서 連續氣泡에 이르기까지에는 많은 實驗이 행해졌으며, 이들 結果는 假定한 模型이 지금까지에는 제일 알맞다는 것을 의미하고 있다.

또한 氣泡의 上昇速度, 氣泡徑의 分布, 氣泡生成頻度, 氣泡會合 등에 對해서는 國井¹¹⁾ 桐榮¹²⁾ 등에 의해서 基礎的 研究가 充分히 되어 있다.

本 實驗에서는 流動層內의 氣泡과 連續相에 對한 一般的인 model로 부터 二相間의 gas 交換係數 및 氣泡內 粒子密度를 測定했다. 이로부터 二相間의 gas 交

*, **, *** 漢陽大學校 工大 化工科

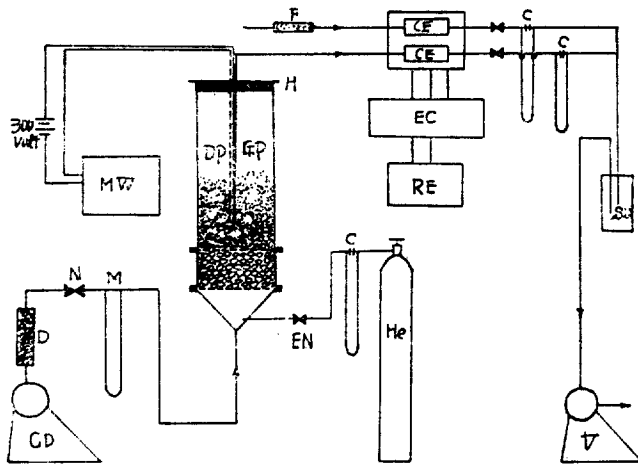


Fig. 1. Schematic Diagram of Experimental Apparatus

C: Capillary flow meter
 CE: Pt-cell
 CP: Compressor
 D: Dryer tube
 DP: Detector probe
 EC: Electric cell
 EN: Electro magnetic valve
 F: Filter
 GP: Gas sampling probe
 RE: Recorder
 Su: Suction tube
 M.W: Mini-writer
 V: Vacuum pump

換係數가 氣泡徑과 氣泡의 上昇速度에 크게 左右됨을 알았고 既往의 研究者들의 實驗結果와 比較했으며, 本實驗에서 提議한 model이 잘 맞는다고 生覺된다.

II. 實驗裝置 및 測定方法

實驗裝置는 Fig. 1에 表示했고 實驗條件은 Table 1과 같다.

流動層은 二次元流動層으로서, demension은 30cm×2.5cm×80cm이고 4mm 두께의 板유리로 만들었다. 分散板은 銅板에 0.5mmφ의 hole을 約 300個 配置한 多孔板 두장을 使用했으며 均一한 流動狀態를 얻고자 그 사이에 20~30mesh의 sand를 500gram程度 充填했다. 二次元流動層을 使用한 理由는 氣泡의 크기 및 上昇速度를 直接觀察할 수 있게 하기 위해서이며, 1/100 sec의 撮影速度로 撮影했고 이때 流動層을 垂直方向으로 부터 5°程度 기울였다.

한편 氣泡의 生成頻度를 測定하기 위해서 leak-current method²⁰⁾를 使用했으며 檢知端은 0.5mmφ의 銅線으로 兩極間의 間격은 0.2mm이었다. Tracer gas의 濃度를 測定 하기 위해서는 熱傳導度 cell法을 使用했고 이의 檢知端은 4mmφ의 銅管의 끝에 sieve를 써워 粉體가 管內에 들어가는 것을 방지했으며 이들 두개의 檢知端을 하나로 부착시켜 같은 位置에 있게했다. 軸方向의 tracer gas의 濃度 및 氣泡生成頻度를 測定하기 위해서 垂直方向으로만 檢知端이 自由로 움직일 수 있도록 했으며 半徑方向으로는 固定시켰다.

Tracer gas는 比較的 吸着의 影響이 적은 He gas를

Table 1. Operation Condition

流動層	二次元流動層(30cm×2.5cm×80cm)
使用分體	Kaolin, size 30~60mesh $\bar{d}_p=4.23 \times 10^{-2}$ cm $\rho_p=2.35$. $u_{mf}=3.1$ cm/sec $\epsilon_0=0.66$. $\alpha=0.062$. $L_0=19.7$ cm
	石灰石 size, 60~100mesh, $\bar{d}_p=1.99 \times 10^{-2}$ cm $\rho_p=1.77$. $u_{mf}=1.4$ cm/sec $\epsilon_0=0.32$. $\alpha=0.18$. $L_0=22.5$ cm
流 速	4.8~9.7cm/sec
流 體	air (15~20°C)
Tracer Gas	He

使用했고 一定量을 送入하기 위해 electric control valve를 使用했다. 粉體는 kaolin 및 石灰石을 150°C程度에서 充分히 건조하여 使用했으며 流動氣體는 空氣를 使用했다.

III. 實驗結果 및 考察

1. 理論式

1-1. 假定

- Wake 및 bubble內의 粒子가 上方向으로 移動함으로써 連續相內 粒子가 下方向으로 移動한다.
 - 粒子의 沈降速度가 連續相內의 氣體流速보다 크다.
 - 氣體의 逆混合은 無視한다.
- 라고 하면 다음과 같은 式이 成立한다.

$$u_b \delta dC_{gb} = \left(u_s - \frac{u_{mf}}{\epsilon_{mf}} \right) (1 - \delta - \alpha \delta) \epsilon_{mf} dC_{gb}$$

$$= -(K_{bd})_f (C_{gd} - C_{gb}) dl \quad (1)$$

一點에서 檢出한 濃度는

$$\bar{C}_g = \left(\frac{d_b \cdot n}{u_b} \right) C_{gb} - \left(1 - \frac{d_b \cdot n}{u_b} \right) C_{gd} \quad (2)$$

初期條件은, $l=0$, $C_{gd}=C_{gdo}$

$$l=\infty, C_{gb}=0$$

일때 (1)式을 풀고 (2)式에 代入하여 정리하면,

$$\begin{aligned} \ln \frac{\bar{C}_g}{C_{g0}} &= -\frac{1-\beta}{\beta} \frac{(K_{bd})_f}{u_0 u_b \delta} l \\ &= -\frac{1-\beta}{\beta} \frac{(K_{bd})_b}{u_0 u_b} l \end{aligned} \quad (3)$$

$$\text{여기서, } \beta = \frac{\varepsilon_{mf} u_s - u_{mf}}{u_b \delta} (1 - \delta - \alpha \delta) \quad (4)$$

軸方向의 分散係數를 D_a 라하면 (3)式으로 부터,

$$D_a = \frac{\beta}{1-\beta} \frac{u_0 u_b}{(K_{bd})_b} \quad (5)$$

또한,

$$\begin{aligned} -u_b \frac{dC_{gb}}{dl} &= (K_{bd})_b (C_{gb} - C^*) \\ &= \frac{\sigma}{d_p} \gamma_b k_{df} (C_{gb} - C^*) + (K_{bc})_b (C_{gb} - C_{gc}) \quad (6) \\ (K_{bc})_b (C_{gb} - C_{gc}) \\ &= \frac{\sigma}{d_p} \gamma_c k_{df} (C_{gc} - C^*) + (K_{cd})_b (C_{gc} - C_{gd}) \\ (K_{cd})_b (C_{gc} - C_{gd}) &= \frac{\sigma}{d_p} \gamma_d k_{df} (C_{gd} - C^*) \end{aligned}$$

여기서,

$$\delta(\gamma_b + \gamma_c + \gamma_d) = 1 - \varepsilon \quad (7)$$

(6)式을 다시 정리하면,

$$(K_{bd})_b = \gamma_b B_d + \frac{1}{\frac{1}{(K_{bc})_b} + \frac{1}{\gamma_c B_d + \frac{1}{\frac{1}{(K_{cd})_b} + \frac{1}{\gamma_d B_d}}}} \quad (8)$$

여기서,

$$B_d = \frac{\sigma D Sh}{d_p^2 y} [\text{sec}^{-1}] \quad (9)$$

$$Sh = 2 + 0.6 S_c^{1/3} (9 N_{Re})^{1/2} \quad (10)$$

$\gamma_c B_d, \gamma_d B_d \gg (K_{bc})_b, (K_{cd})_b$ 이면,

$$(K_{bd})_b \cong \gamma_b B_d + (K_{bc})_b \quad (11)$$

1-2. 氣泡相 濃厚相의 二相流에서 濃厚相中の 氣體가 完全混合이라면,

$$u_b \delta \frac{dC_{gb}}{dl} = (\bar{K}_{bd})_b \left(\frac{1}{1-\varepsilon} \right) (C_{gb} - C_{gd}) \quad (12)$$

$$\begin{aligned} (1-\delta) u_{mf} (C_{gi} - C_{gd}) + L_f \delta (\bar{K}_{bd})_b \\ \left[\left(\int_{l=0}^{L_f} C_{gb} \frac{dl}{L_f} \right) - C_{gd} \right] = 0 \quad (13) \end{aligned}$$

初期條件, $l=0$, $C_{gb}=C_{gi}$, $C_{gd}=\text{const}$

(12), (13)式을 풀고 정리하면,

$$(\bar{K}_{bd})_b = -\frac{u_b}{L_f \delta (1-\varepsilon)} \ln \left[1 - \frac{(1-\delta) u_{mf}}{u_b \delta} \right] \quad (14)$$

1-3. 使用數式

$$\delta = \frac{\varepsilon - \varepsilon_{mf}}{1 - \varepsilon_{mf}} \quad (15)$$

$$u_b = \frac{1}{\delta} [u_0 - (1-\delta) u_{mf}] \cong \frac{1}{\delta} [u_0 - u_{mf}] \quad (16)$$

$$\alpha = \frac{0.785 e^{-66.5 d_p}}{\rho_p (1 - \varepsilon_{mf})} \quad (17)$$

$$u_s = \frac{\alpha \delta (\varepsilon u_b - u_{mf}) + 2 u_{mf} (1-\delta)}{(1-\delta - \alpha \delta) \varepsilon} \quad (18)$$

$$\begin{aligned} d_b &= \frac{1.5}{n} (u_0 - u_{mf}) \cong \frac{1.5 u_b}{n} \frac{u_0 - u_{mf}}{u_b - u_{mf}} \\ &= 1.4 (d_p \rho_p) (u_0 / u_{mf}) \cdot l \end{aligned} \quad (19)$$

위의 式들에서 보면,

$$\begin{aligned} n \rightarrow d_b \rightarrow u_b \rightarrow \delta \rightarrow u_s \rightarrow (\bar{K}_{bd})_b \\ \uparrow \quad \quad \quad \uparrow \\ \varepsilon \text{ or } L_f \quad \alpha \leftarrow d_p d_p \rho_p \end{aligned}$$

의 순서로써, \rightarrow 表 앞의 값은 \rightarrow 表 뒤의 값에 비해 測定하기 쉬운 값이며 \rightarrow 表 앞의 값을 알면 지금까지 기술한 數式으로서 \rightarrow 表 뒤의 값을 순차적으로 計算할 수 있음을 意味한다.

2. 實驗結果 및 考察

分散板으로부터 5, 10, 15, 20cm의 位置에서 tracer gas의 濃度를 測定하여 $\ln \left(\frac{C_{g0}}{C_g} \right)$ 의 값을 u_0 를 parameter로 하여 plot하면 Fig. 2, Fig. 3과 같으며 이

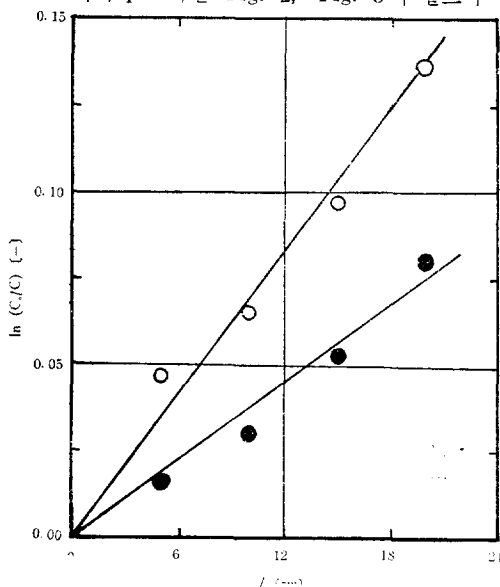


Fig. 2. $\ln(C_0/C)$ vs. l

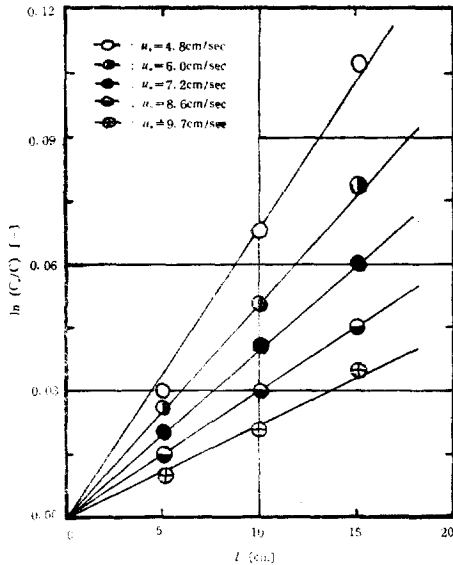


Fig. 3. $\ln(C_0/C)$ vs. l

로부터 求한 D_a , 혹은 u_0/D_a 의 값은 Table 2 및 Table 3과 같다.

Fig. 2, Fig. 3에서 보면 $\ln(C_{g0}/C_g)$ 는 大體로 分散板으로부터의 높이가 增加하면 增加할 수록 增加하며 流速이 增加함에 따라 減少하는 경향을 나타낸다. 또한 Table 2, Table 3에 나타난 氣泡徑은 層中央部에서의 測定값이며 桐榮^{12,13)} 등의 實驗式과 잘 一致하는 값이었다.

Table 2. Measurement Value of D_a , u_t , and \bar{d}_b for the Calcium Carbonate

u_0 [cm/sec]	4.8	6.0	7.2	8.6	9.7
D_a [cm ² /sec]	65.2	61.1	55.5	50.2	46.5
\bar{d}_b [cm]	2.2	2.8	3.5	4.2	4.8
u_b [cm/sec]	23.2	25.0	28.1	33.0	34.8

Table 3. Measurement Value of u_0/D_a , u_b and \bar{d}_b for the Kaolin

u_0 [cm/sec]	4.8	6.0	7.2	8.6	9.7
u_0/D_a [cm ⁻¹]	0.0710	0.0115	0.0085	0.0072	0.0054
\bar{d}_b [cm]	1.91	2.41	3.12	3.82	4.41
u_b [cm/sec]	15.5	20.2	22.2	26.9	30.0

Table 2 및 Table 3과 式(5)에 의해서 $(\bar{K}_{bd})_b$ 를 計算하여 plot 하면 Fig. 4와 같다.

Fig. 4에서 보면 u_{mf}/\bar{d}_b 가 增加하면 $(\bar{K}_{bd})_b$ 는 급격히 減少하게 되는데 이것은 流速 u_0 가 增加할 경우

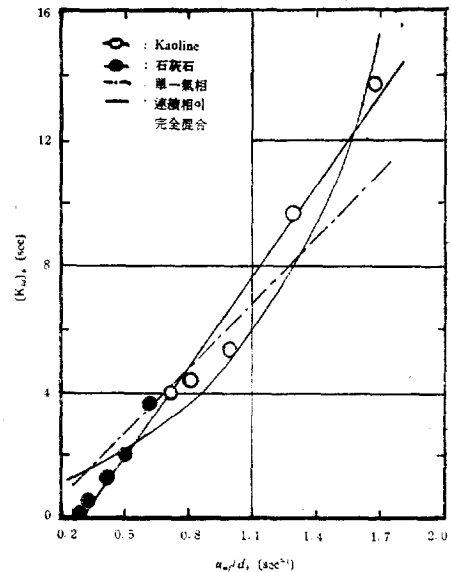


Fig. 4. Comparison of Experimental Results and Theoretical Curve

氣泡는 流動層內部에서 抵抗이 제일 적은 部分에 거의 모여 上昇하게 되며, 粒子는 結局 流動層벽주위에 있게되어 完全히 氣泡相과 連續相이 分離하게 됨으로 gas는 거의 한덩어리로 되어 流動層 下部로부터 上部로 移動하게 된다.

따라서 gas의 交換係數는 減少한다고 볼 수 있다. 流速 u_0 가 이러한 限界를 넘을 경우 流動層은 輸送層(transported bed)로 되고 流動層의 特性을 상실하게 된다.

결국 流動層反應裝置에서 反應의 收率을 높인다는 點에서 보면 u_0/u_{mf} 가 적은 범위가 좋을 것으로 生覺된다. $(\bar{K}_{bd})_b$ 의 값이 적다함은 氣固系流動層에서 反應에 기여하는 氣體의 量이 적다는 것을 의미한다.

Fig. 4에서 $(\bar{K}_{bd})_b$ 와 u_{mf}/\bar{d}_b 와의 關係로부터 다음과 같은 實驗式을 얻었다.

$$(\bar{K}_{bd})_b = 9.4 u_{mf}/\bar{d}_b$$

또한 國井¹¹⁾ 및 Davidson¹⁶⁾에 의한 單一 氣泡에 對한 $(\bar{K}_{bd})_b$ 의 값과 比較하면 약간의 差가 있으나 單一 氣泡과 連續氣泡에 의한 差異때문이라고 生覺되며 (14) 式과 比較하면 대체로 잘 맞는 것으로 보아 $(\bar{K}_{bd})_b = 9.4 \frac{u_{mf}}{\bar{d}_b}$ 를 裝置設計에 使用해도 무방할 것 같다.

Szekely²¹⁾에 의하면 二相間의 gas 交換은 大部分 氣泡가 上昇할때보다 生成中에 일어난다는 것을 밝힌바

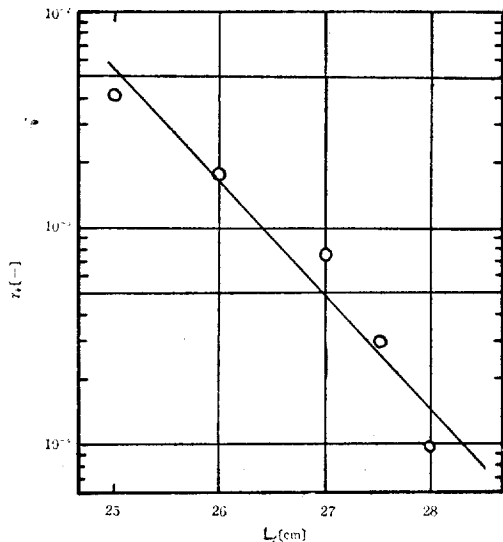


Fig. 5. γ_b vs. L_f

있는데, 이와 比較할때 著者등이 實驗한 結果와는 一致함을 나타내고 있다.

Fig. 4 와 (11)式으로 부터 γ_b 를 求해 plot 하면 Fig. 5 와 같다.

Fig. 5 에서 보면 L_f 가 增加하면 γ_b 가 급속히 減少함을 나타내고 있는데 이것은 接觸反應의 경우 反應에 기여하는 氣泡內粒子가 相對的으로 減少함을 意味하게 되며 氣泡에 基礎를 둔다면 反應은 氣泡가 發生하는 中에 거의 일어남을 알 수 있다. 따라서 反應收率을 높인다는 點에서 充填物을 넣는 다는 것은 이러한 意味이며 流動層全部를 均一化 할 수 있는 條件中的 하나이다. 또한 多段流動層도 꼭같이 說明할 수 있겠다.

IV. 結 論

1) 本實驗裝置에서 測定한 $(\overline{K_{bd}})_d$ 의 값은 氣泡相 및 連續相에서의 流體는 모두 piston flow 라는 假定하에 殘餘濃度曲線으로부터 얻은 값이며 流動層中央에서의 氣泡徑을 $\overline{d_b}$, 使用粉體의 流動化開始速度를 u_{mf} 라 할때

$$(\overline{K_{bd}})_b = 9.4 \frac{u_{mf}}{\overline{d_b}} [\text{sec}^{-1}]$$

임을 알았고, 單一氣泡에 對한 값에 連續氣泡의 의미를 보정한다면 잘 一致한다.

2) 氣泡內의 粒子密度는 流速 u_0 가 增加함에 따라 급격히 減少하며 反應은 氣泡의 生成時 거의 대부분이 일어날 것으로 추측된다.

記 號

C^*	: equilibrium concentration in the fluidized bed	[g -mole/cm ³]
C_{gb}	: concentration in bubble phase	[g -mole/cm ³]
C_{gc}	: concentration in cloud phase	[g -mole/cm ³]
C_{gd}	: concentration in emulsion phase	[g -mole/cm ³]
d_p	: particle diameter	[cm]
$\overline{d_p}$: average particle diameter	[cm]
d_b	: bubble diameter at measuring position 1	[cm]
$\overline{d_b}$: average bubble diameter	[cm]
D	: coefficient of gas diffusion	[cm ² /sec]
D_a	: longitudinal dispersion coefficient	[cm ² /sec]
$(K_{bd})_b$: gas cross flow coefficient between bubble and emulsion phase	[cm ³ /sec cm ³ bubble]
$(\overline{K_{bd}})_b$: average gas cross flow coefficient	[cm ³ /sec cm ³ bubble]
$(K_{bc})_b$: gas cross flow coefficient between bubble and cloud phase	[cm ³ /sec cm ³ bubble]
$(K_{cd})_b$: gas cross flow coefficient between cloud and emulsion phase	[cm ³ /sec cm ³ bubble]
$(K_{bd})_f$: gas cross flow coefficient	[cm ³ /sec cm ³ fluidized bed]
k_{df}	: mass transfer coefficient	[cm/sec]
l	: height of measuring position	[cm]
l_0	: static bed height	
L_f	: fluidization bed height	[cm]
n	: bubble frequency	[sec ⁻¹]
N_{Re}	: Reynold Number	[-]
Sh	: Sherwood Number	[-]
S_c	: Schmidt Number	[-]
U_0	: superficial gas velocity	[cm/sec]
U_{mf}	: minimum fluidization velocity	[cm/sec]
U_b	: average bubble rise velocity	[cm/sec]
U_s	: average particle drop velocity	[cm/sec]
α	: volume ratio of wake and bubble	[-]
γ_b	: particle density ratio	[gr/cm ³ bubble/gr/cm ³ fluidized bed]
γ_c	: particle density ratio	[gr/cm ³ cloud/gr/cm ³ fluidized bed]
γ_d	: particle density ratio	[gr/cm ³ emulsion/gr/cm ³ fluidized bed]
δ	: fraction of bed cross sectional area of bubble phase	[-]
ε	: void fraction of fluidized bed	[-]
ε_0	: void fraction of a static bed	[-]
ε_{mf}	: void fraction of incipient fluidized bed	[-]
ρ_p	: particle density	[gr/cm ³]

文 獻

- 1) 南宮 寔, 柳慶玉: 화학공학 3, 24(1965)
- 2) 森芳郎, 中村厚三: 化學工學(Japan) 29 901(1965)
- 3) 平井嘉吉, 深谷幸太郎: 化學工學(Japan) 17 438(1953)
- 4) 矢大榮, 磯巖: 化學工學(Japan) 19 158(1955)
- 5) 磯巖, 佐夕木健二: 化學工學(Japan) 25 747(1961)
- 6) 南宮 寔, 鄭雨昌: 화학공학 3 34(1965)
- 7) 中鹽文行, 坂井波: 化學工學(Japan) 24 452(1960)
- 8) 南宮 寔, 文世基: 第31年會講演要旨 p. 41(1966)
- 9) 南宮 寔, 文世基: 화학공학 4 9(1966)
- 10) 小林, 荒井: 化學工學(Japan) 29 851(1965)
- 11) 平木一郎, 國井, 吉田邦夫: 化學工學(Japan) 29 858(1965)
- 12) 桐榮, 平木一郎: 化學工學 29 901(1965)
- 13) 桐榮, 平岡正勝: 化學工學(Japan) 20 55(1956)
- 14) 森芳郎, 中村厚三: 化學工學(Japan) 29 910(1965)
- 15) Baumgarten, P.K., d Pigford R.L.: A.I. Ch. E. Journal, 6 115(1960)
- 16) Davidson J.F., Paul. R.C, Smith, M.J.S. and Duxburg, H.A.: Trans. Instn. Chem. Engrs (London) 37 323(1959)
- 17) Harrison, D, Davidson, J.F. and Kock, J.W.: Trans. Instn. Chem. Engrs (London) 40 146(1962)
- 18) Reuter, H.: Chem Ing. Tech. 35 98(1963)
- 19) Rowe, P.N.: Chem. Eng. Progr. Symposium Series 58 38, 42(1962)
- 20) 南宮 寔, 進藤: 第24年會 講演要旨 134(1959)
- 21) Szekeley: Europ. Fed. Chem. Engrs. B 60(1962)