

순환유동층에서 하부 루프실 형태 변화에 따른 고체순환 특성 비교

이동호*** · 조성호* · 진경태* · 이창근* · 류호정*† · 박승빈**

*한국에너지기술연구원 온실가스연구실
305-343 대전 유성구 가정로 152
**한국과학기술원 생명화학공학과
305-701 대전 유성구 대학로 291

(2014년 2월 5일 접수, 2014년 4월 25일 수정본 접수, 2014년 4월 29일 채택)

Comparison of Solid Circulation Characteristics with Change of Lower Loop Seal Geometry in a Circulating Fluidized Bed

Dong-Ho Lee***, Sung-Ho Jo*, Gyoung-Tae Jin*, Chang-Keun Yi*, Ho-Jung Ryu*† and Seung Bin Park**

*Greenhouse Gas Laboratory, Korea Institute of Energy Research, 152 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 305-343, Korea

**Department of Chemical and Biomolecular Engineering, KAIST, 291 Daehak-ro, Yuseong-gu, Daejeon 305-701, Korea

(Received 5 February 2014; Received in revised form 25 April 2014; accepted 29 April 2014)

요 약

연소 전 CO₂ 포집용 SEWGS 시스템의 SEWGS 반응기와 재생반응기 사이의 고체순환을 위해 SEWGS 반응기 - 하부 루프실 - 재생반응기 - 상승관 - 사이클론 - 상부 루프실로 구성된 순환유동층 시스템을 사용하고 있다. 현재 시스템의 경우 수직형 하부 루프실을 사용하고 있으나 하부 루프실의 유동화 및 안정적인 고체순환을 위해 유량이 많이 필요하고 가끔씩 슬러그가 발생하였다. 본 연구에서는 새로운 하부 루프실 형태로 경사형 하부 루프실을 제안하였으며, 상온, 상압 조건에서 CO₂ 흡수제(P-78)를 증물질로 사용하여 기포유동층-기포유동층-고속유동층 형태의 순환유동층 실험장치를 이용하여 하부 루프실의 형태 변화에 따른 고체순환특성을 측정 및 비교하였다. 경사형 하부루프실의 경우가 수직형인 경우보다 적은 유량으로 안정적인 고체순환을 유지할 수 있었으며 두 반응기 사이의 고체층 높이 차이도 발생하지 않는 것으로 나타나 경사형 하부 루프실을 사용하는 것이 유리한 것으로 결론지을 수 있었다.

Abstract – Circulating fluidized bed system consists of SEWGS reactor - lower loop seal - regeneration reactor - riser - cyclone - upper loop seal has been used for solid circulation between the SEWGS reactor and the regeneration reactor in a SEWGS system for pre-combustion CO₂ capture. A vertical type lower loop seal has been used in current system but this lower loop seal requires high gas flow rate through the lower loop seal for fluidization and smooth solid circulation, and consequently, causes slugging behavior sometimes. To overcome these disadvantages, inclined type lower loop seal was proposed by this study. Solid circulation characteristics with change of lower loop seal geometry were measured and compared in a bubbling - bubbling - riser type circulating fluidized bed using CO₂ absorbent (P-78) as bed material at ambient temperature and pressure. We could conclude that the inclined lower loop seal is better than the vertical type lower loop seal from the viewpoints of minimum flow rate requirement for stable solid circulation and solid height change during solid circulation.

Key words: SEWGS, Circulating Fluidized Bed, CO₂ Absorbent, Solid Circulation Rate, Lower Loop Seal, Minimum Flow Rate

1. 서 론

석탄가스화복합발전(IGCC)으로부터 온실가스의 주성분인 CO₂를 회수하기 위해서는 합성가스(syngas)가 연소되기 전에 CO₂를 회수

하는 것이 유리하므로 연소 전 회수기술을 주로 적용하며, 비교적 저온에서 조업되는 기존 습식 연소 전 CO₂ 회수기술의 단점인 에너지 손실을 최소화하기 위한 시도로 고온에서 조업될 수 있는 건식 CO₂ 회수기술이 개발되고 있다[1-3]. 하지만 고정층을 주로 이용하는 기존 건식 CO₂ 회수기술의 경우 가스화, 오염가스정제, 고온수성가스화, 저온수성가스화, CO₂ 회수 등의 복잡한 공정을 거치게 되며, 이에 따라 다양한 종류의 촉매와 흡수제가 필요하다[2,3]. 이와 같은 단점을 극복하기 위한 새로운 연소 전 CO₂ 회수 시스템으로 수성가스화 촉매와 CO₂ 흡수제를 함께 이용하는 신개념의 회수증진 수성가

†To whom correspondence should be addressed.

E-mail: hjryu@kier.re.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

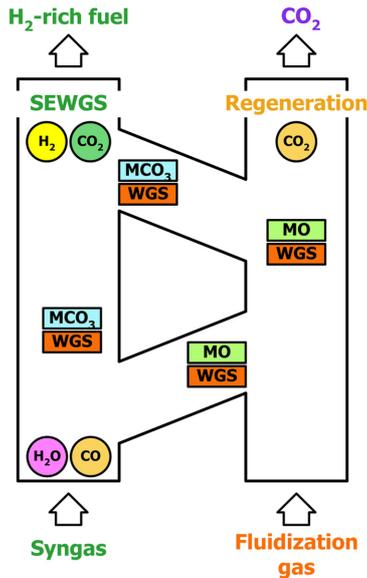


Fig. 1. Conceptual diagram of SEWGS system.

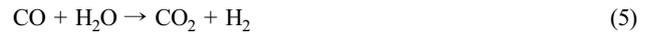
스화(SEWGS, sorption enhanced water gas shift) 기술에 대한 관심이 증대되고 있다[3].

Fig. 1에는 SEWGS 시스템의 개념도를 나타내었다. SEWGS 시스템은 기존 기술의 세 가지 공정(고온수성가스화, 저온수성가스화, CO₂ 분리)을 두 개의 공정(SEWGS, 재생)으로 대체할 수 있다. SEWGS 반응기 내부에는 수성가스화(WGS, water gas shift) 반응 촉매와 CO₂ 흡수제가 함께 장입되어 있다. SEWGS 반응기에서는 식 (1)과 같이 합성가스에 포함된 CO와 수증기가 반응하면서 수소와 이산화탄소로 전환되며, 발생된 이산화탄소는 식 (2)와 같이 반응기 내부에 촉매와 함께 존재하는 금속산화물(MO) 형태의 CO₂ 흡수제에 의해 금속탄산염(MCO₃) 형태로 고체에 흡수된다. 이와 같은 반응에 의해 기체상태의 CO₂ 분압이 낮아지므로 식 (1)의 반응은 정반응(수소생산)이 더욱 우세해지며 수소수율을 95% 이상으로 향상시킬 수 있다[4]. CO₂ 흡수제로는 MgO, K₂CO₃ 등이 사용될 수 있으며[5] 흡착제인 K₂CO₃ promoted hydrotalcite를 활용하는 연구도 진행되고 있다[6].

SEWGS 반응기에서 일어나는 반응의 총괄반응식은 식 (3)과 같으며 기체생성물은 수소와 미반응 수증기(excess steam) 뿐이므로 미반응 수증기를 응축하여 제거하면 별도의 분리/정제 설비 없이 고농도의 수소를 얻을 수 있다.



재생반응기에서는 식 (4)와 같이 MCO₃를 열에 의해 소성하여 MO로 다시 전환하여 SEWGS 반응기로 재순환시켜 반복적으로 사용하게 된다. 재생반응기에서 배출되는 기체는 소성반응의 열원으로 사용되는 수증기와 CO₂뿐이므로 수증기를 응축하여 제거하면 별도의 분리설비 없이 고농도의 CO₂를 분리할 수 있다. 식 (3)과 식 (4)를 함께 고려하면 SEWGS 시스템의 총괄반응은 식 (5)와 같으며 식 (1)에 표시된 수성가스화 반응식과 같아지게 된다.



결과적으로 SEWGS 시스템을 이용하면 SEWGS 반응기에서는 별도의 정제설비 없이 고농도의 수소를 얻을 수 있으며, 재생반응기에서는 별도의 CO₂ 분리설비 없이 고농도의 CO₂를 얻을 수 있다. 또한 SEWGS 시스템의 경우 수성가스화 반응을 하나의 반응기에서 수행할 수 있으므로 한 종류의 촉매와 반응기만 필요하므로 경제성이 높다[7,8]. 또한 PSA와 같은 다단 CO₂ 분리공정을 재생반응기로 대체할 수 있으므로 시스템이 콤팩트해지고 소요 부지면적도 감소하게 된다[2,3].

SEWGS 시스템에서는 SEWGS 반응기와 재생반응기 사이의 고체순환을 위해 순환유동층이 사용된다. 또한 SEWGS 시스템의 경우, CO₂ 흡수제의 흡수 및 재생반응속도가 느리기 때문에 반응기체와 고체흡수제의 접촉시간을 증가시켜야 하며 이를 위해서는 높은 체류시간을 얻는 것이 유리하므로 두 반응기 모두 기포유동층으로 조업하는 것이 유리하다[7]. 이와 같은 기포유동층-기포유동층 공정에서 두 반응기 사이에서 고체입자를 순환하기 위해서는 별도의 상승관(riser)을 사용하거나 반응기 하부는 기포유동층 조건에서 조업하고 상부를 고속유동층 형태로 설계하는 방법이 사용될 수 있다[9]. 한편, 순환유동층 공정에서는 두 반응기 사이의 안정적인 고체순환 및 기체누설 방지를 위해 가동부가 없어서 고온, 고압 조건에서도 사용이 가능한 장점을 가지고 있는 비기계식 밸브인 루프실(loop seal)이 많이 사용되고 있으며 루프실의 운전 원리와 변수들의 영향에 대해 많은 연구가 진행되어 왔다[10-15]. 하지만 루프실에 대한 기존의 연구들은 대부분 상승관 또는 고속유동층과 연결된 사이클론으로부터 입자가 유입되어 원래의 상승관(또는 고속유동층)으로 입자를 재순환하거나, 다른 쪽 반응기로 입자를 재순환하는 역할을 하는 루프실에 대해 이루어져 왔다. 최근에 Ryu 등[16,17]은 SEWGS 시스템에서 고체를 순환하기 위해 두 개의 기포유동층(SEWGS 반응기 및 재생반응기) 하부에 하부 루프실(lower loop seal)을 연결하는 공정을 개발한 바 있으며, 두 반응기 사이의 고체순환속도에 미치는 여러 변수들의 영향을 해석하였다. 그들이 개발한 수직형 하부 루프실은 별도의 제어 없이도 한쪽의 반응기에서 비산된 고체량 만큼 다른 쪽 반응기에서 고체가 순환되므로 두 반응기의 고체층 높이가 일정하게 유지되는 장점이 있는 반면, 하부 루프실의 유동화 및 안정적인 고체순환을 위해 별도의 기체주입이 필요하며, 하부 루프실의 유속이 높은 경우 슬러그가 발생하는 단점이 있었다. 본 연구에서는 Ryu 등[15,16]의 보고에 나타난 수직형 하부 루프실(vertical type lower loop seal)의 단점을 개선하기 위해 경사형 하부 루프실(inclined type lower loop seal)을 제안하였으며, 상온, 상압 3탑 아크릴 유동층 실험장치를 이용하여 하부 루프실의 형태, 루프실 유동화 유량 및 상승관 유속 변화에 따른 고체순환속도 변화, 고체층 높이의 변화 및 안정적인 고체순환을 위해 필요한 최소유량을 측정 및 해석하여 보다 우수한 하부 루프실 형태를 선정하고자 하였다.

2. 실험

2-1. 유동화 입자

3탑 유동층 실험장치에서 고체순환 실험에 사용하기 위한 유동화 입자로는 SEWGS 공정에 적용하기 위해 개발한 CO₂ 흡수제를 사

Table 1. Summary of CO₂ absorbent particle's characteristics

Particle	Main component	Producer	Preparation methods	Bulk density [kg/m ³]	Particle size [μm]
P-78	K ₂ CO ₃ (19%)	KEPCO RI	Spray drying	633	106-212

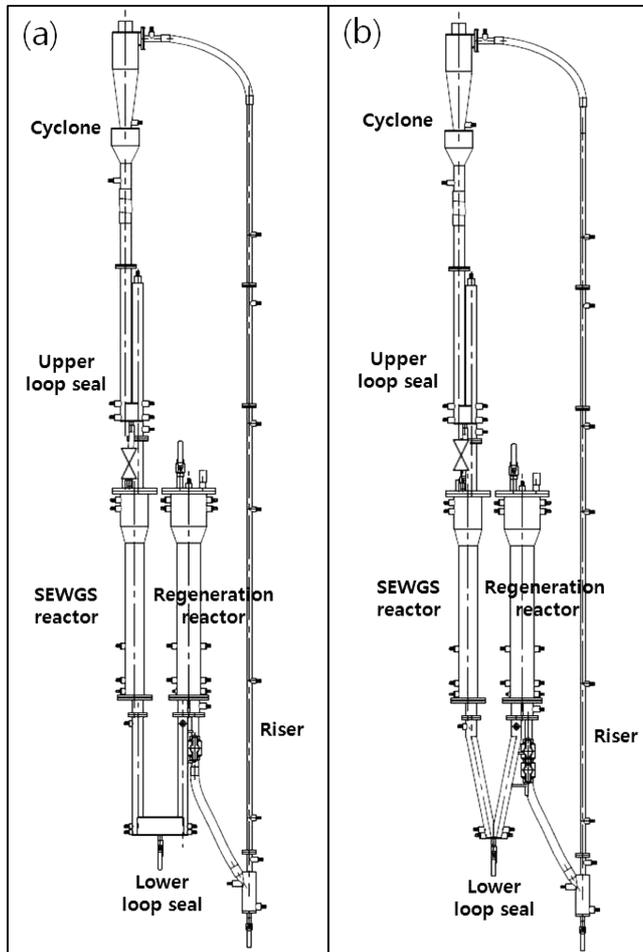


Fig. 2. Schematic of three-interconnected fluidized bed equipped with (a) vertical type lower loop seal and (b) inclined type lower loop seal.

용하였다. CO₂ 흡수제의 이름은 P-78이며 한전전력연구원에서 분무 건조법에 의해 제조하여 공급하였다[17]. P-78 입자는 19 wt%의 K₂CO₃와 지지체 및 결합제(bentonite 및 지르코니아)로 구성되어 있으며, 입자의 형상은 구형이고 입자의 대량생산이 용이한 특징이 있다. P-78 입자의 주성분, 생산자, 제조방법, 벌크 밀도 및 입자크기를 요약하여 Table 1에 나타내었다. 입자의 벌크 밀도는 메스실린더를 이용하여 측정하였으며 5회 측정 후 최대값과 최소값을 제외한 3회 측정값의 평균값을 나타내었다.

2-2. 실험장치

Fig. 2에는 본 연구에서 CO₂ 흡수제의 고체순환특성 실험에 사용된 상온-상압 3탑 아크릴 유동층 실험장치의 개략도를 나타내었다. 실험장치는 고온-고압에서 운전되는 SEWGS 시스템을 모사하기 위해 제작되었으며, 왼쪽의 유동층은 SEWGS 반응기를, 오른쪽의 유동층은 재생반응기(regeneration reactor)를 모사하기 위해 설치하였으며, 고속유동층 형태의 상승관(riser), CO₂ 흡수제의 순환과 두 반

응기 사이의 기체누설방지를 위한 상부 루프실(upper loop seal) 및 하부 루프실(lower loop seal), 비산된 고체입자의 포집 및 재순환을 위한 사이클론(cyclone), 유동화 및 고체이송을 위한 기체 주입용 질량유량계(MFC)와 MFC controller 등의 기체 주입장치, 반응기 온도 측정을 위한 열전대(thermocouple, K-type), 유동층의 압력강하 측정을 위한 차압형 압력표시기, 전체 반응기의 제어 및 데이터 수집을 위한 PLC 및 PC 등이 함께 설치되었다. SEWGS 반응기를 모사하는 왼쪽의 기포유동층은 내경 0.10 m, 총 높이 1.20 m이고 재생반응기를 모사하는 오른쪽의 기포유동층은 내경 0.13 m, 높이 1.20 m이며 유동층 내경을 0.0625 m, 0.0625 m로 분할할 수 있는 격벽(높이 0.4 m)을 내부에 설치하였다. SEWGS 반응기와 재생반응기 모두 하부에 위치한 기체분사관(sparger)을 통해 기체를 주입하였다. 상부 루프실은 내경 0.05 m, 높이 0.9 m로 설치하였고 하부 루프실은 내경 0.05 m, 높이 0.7 m로 제작하였으며, Fig. 2 및 3에 나타난 바와 같이 하부 루프실의 형태를 수직형(vertical type)과 경사형(inclined type)의 두 가지 형태로 제작하였다. 상부 루프실의 경우 루프실 바닥으로부터 0.02 m 높이에 양쪽으로 설치한 기체분사관을 통해 기체를 주입하여 유동화시켰으며, 하부 루프실의 경우 루프실 바닥으로부터 0.015 m 높이에 양쪽으로 설치한 기체분사관을 통해 기체를 주입하여 유동화시켰다.

상승관의 하부 내경은 0.05 m이며, 바닥으로부터 0.1 m부터 직경이 감소하여, 바닥으로부터 0.2 m 부터는 내경이 0.02 m 가 되도록 하였으며 총 높이는 5.2 m였다. 상승관의 하부로부터 0.025 m 높이에 유동화를 위한 기체분사관을 설치하였으며, 하부로부터 0.3 m 높이에 고체이송을 위한 기체분사관을 추가로 설치하였다.

고체입자의 순환은 상승관 내부에 설치된 분사관으로 기체를 주입하여 시작된다. 고체순환에 앞서 상부 루프실, 하부 루프실, SEWGS 반응기, 재생반응기 및 상승관의 하부를 기포유동층 조건으로 유지한 후, 상승관 바닥으로부터 0.3 m 높이에 위치한 기체분사관을 통해 추가적인 기체를 공급하여 고속유동층 조건에서 고체를 상부로 이동시켰다. 비산된 고체는 사이클론에서 포집되어 기포유동층 조건의 상부 루프실로 유입되며, 상부 루프실을 통과한 후

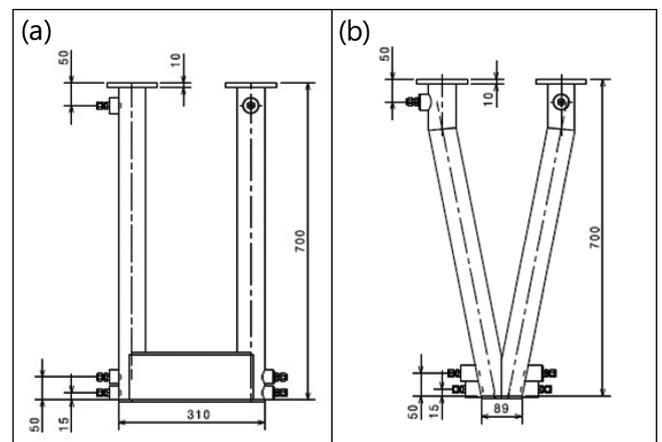


Fig. 3. Detail view of (a) vertical type lower loop seal and (b) inclined type lower loop seal.

Table 2. Summary of experimental conditions and variables

CO ₂ absorbent	P-78 (106~212 μm)
Static bed height [m]	0.7
Minimum fluidization velocity, U _{mf} [m/s]	0.0085
Lower loop seal type	Vertical type, Inclined type
Temperature, pressure	Ambient
Total riser gas velocity [m/s]	2.03, 2.32, 2.61, 2.90, 3.19
Flow rate of lower loop seal [NI/min]	Vertical type : 2.9, 3.4, 3.9, 4.4, 4.9 (3.0, 3.5, 4.0, 4.5, 5.0 Q _{mf,v}) Inclined type : 1.6, 2.0, 2.4, 2.8, 3.2, 3.6, 4.0 (2.0, 2.5, 3.0, 3.5, 4.0, 4.5, 5.0 Q _{mf,i})
Gas velocity in the upper loop seal [m/s]	0.0128 (1.5 U _{mf})
Fluidization gas	Air

SEWGS 반응기, 하부 루프실, 재생반응기를 거친 후 다시 상승관으로 재순환되도록 하였다.

2-3. 실험조건 및 방법

먼저, 유동화 입자인 P-78 CO₂ 흡수체에 대해 상온, 상압 조건에서 수직형 하부 루프실과 경사형 하부 루프실의 유동화를 위해 필요한 최소 유량을 측정하였다. 측정된 유량 기준으로 상온, 상압, 고체층 높이 0.7 m 조건에서 하부 루프실의 유량과 상승관의 유량 변화에 따른 고체순환량을 측정하였으며 이를 바탕으로 안정적인 고체순환을 위해 필요한 최소 유량을 결정하였다. 각 조건에서의 고체순환속도 측정을 위한 실험조건 및 변수를 요약하여 Table 2에 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

하부 루프실의 형태 변화에 따른 고체순환특성 변화를 해석하기에 앞서 수직형 하부 루프실과 경사형 하부 루프실을 유동화시키기 위해 필요한 최소 유량을 결정하였다. Fig. 4에는 상온, 상압 조건에서 수직형 하부 루프실과 경사형 하부 루프실에 대해 유량변화에 따라 측정된 압력강하(pressure drop) 값의 변화를 나타내었다. 하부 루프실의 압력강하는 루프실 바닥으로부터 0.05 m와 0.65 m 높이에 설치된 압력탭(Fig. 3 참조)에 차압형 압력변환기(differential pressure transducer)를 설치하여 측정하였다. 그림에서 유량(flow rate)은 각 하부 루프실의 바닥으로부터 0.015 m 높이에 양쪽으로 설치된 기체 분사관을 통해 주입된 기체 중 한쪽의 유량을 의미하며, 유동화기체가 하부루프실의 양쪽에서 동일한 양이 주입되도록 하였다. 그림에 나타난 바와 같이 초기에는 유량(유속)이 증가함에 따라 압력강하가 증가하였으며 일정 유량 이상에서는 압력강하가 다소 감소한 후 일정해지는 현상을 나타내었다. 최소유동화속도의 정의와 유사하게 층의 압력강하가 감소하기 전 최대 압력강하 값을 나타내는 유량을 하부 루프실을 유동화시킬 수 있는 최소 유량으로 선정하여 각각 수직형 하부 루프실과 경사형 하부 루프실의 최소유동화유량 (Q_{mf,v}, Q_{mf,i})으로 결정하였다. 그림에 나타난 바와 같이 경사형 하부루프실의 경우(Fig. 4(b))가 수직형 하부 루프실(Fig. 4(a))에 비해 최소유동화유량이 적게 나타났는데 이는 Fig. 3(b)에 나타난 바와 같이 수직형 하부 루프실의 경우 SEWGS 반응기와 재생반응기 사이의 거리에 의해 수평부분이 존재하게 되며, 이 영역의 면적이 경사형 하부 루프실에 비해 넓기 때문에 이 영역에 존재하는 고체입자의 유동화를 위

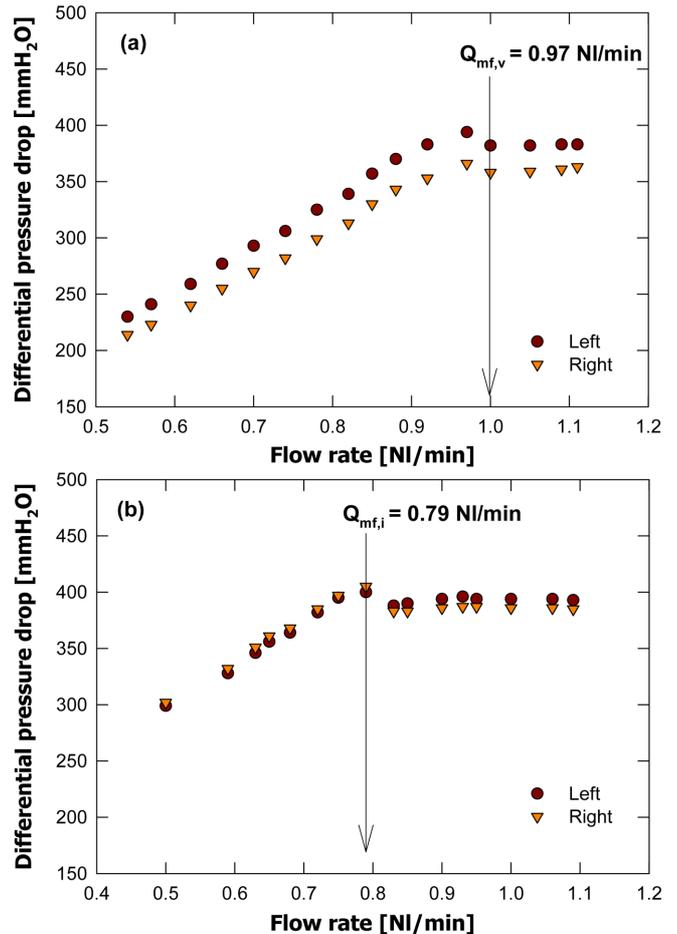


Fig. 4. Differential pressure drop versus flow rate for (a) vertical type lower loop seal and (b) inclined type lower loop seal.

해 더 많은 유량이 필요한 것으로 사료되었다. 결과적으로 경사형 하부 루프실을 사용하는 경우 원활한 고체순환을 위해 필요한 유량이 수직형 하부 루프실에 비해 적다는 것을 확인할 수 있었다.

다음으로 고체순환속도에 미치는 상승관 유속의 영향을 측정 및 고찰하였다. 주어진 조건에서 재생반응기와 상승관을 거쳐서 SEWGS 반응기로 순환되는 고체순환속도는 상부 루프실을 이용하여 측정하였다. 정상상태 고체순환 조건에서 상부 루프실 하부와 SEWGS 반응기 사이를 연결하는 밸브(Fig. 2 참조)를 개방하여 상부 루프실의 고체를 SEWGS 반응기로 이동시킨 후, 다시 밸브를 잠가 상부 루프실이 다시 채워지는데 걸리는 시간을 측정하였다. 상부 루프실의 부피는 이미 알고 있으며, CO₂ 흡수제의 벌크밀도 값을 이용하여 상부 루프실의 부피를 채우기 위한 입자의 무게를 계산하였으며, 상부 루프실이 채워지는 시간으로 나누어 단위시간당 고체순환량, 즉 고체순환속도를 계산하였다.

Fig. 5에는 원활한 고체 순환이 일어나는 정상상태 구간, 상부 루프실을 비우는 구간, 다시 상부 루프실이 채워지는 구간에 대해 상부 루프실의 압력강하 변화를 대표적으로 나타내었다. 그림에는 하부 루프실로 수직형 하부 루프실을 사용하고, 상부 루프실의 유속은 0.0128 m/s(1.5 U_{mf}), 상승관 유속 2.03 m/s, 고체순환속도 68 kg/h인 경우를 나타내었다. 상부 루프실의 압력강하는 루프실 바닥으로부터 0.02 m와 0.80 m 높이에 설치된 압력탭에 차압형 압력변환기를 설

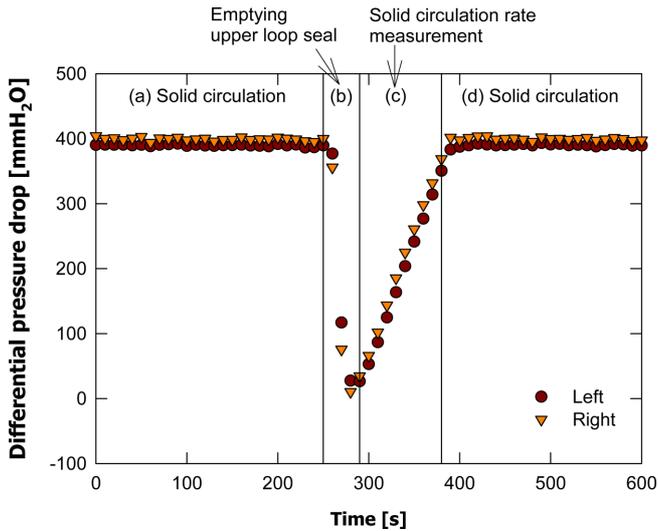


Fig. 5. Typical trend of differential pressure drop in the upper loop seal before and after solid circulation rate measurement.

치하여 루프실의 왼쪽과 오른쪽 두 방향에서 측정하였다. 그림에 나타난 바와 같이 원활한 고체순환이 일어나는 경우 고체순환에 의해 주입된 고체량 만큼 상부 루프실을 거친 후 배출되므로 상부 루프실의 고체높이는 일정하게 유지되며, (a) 영역과 같이 상부 루프실의 압력강하는 왼쪽과 오른쪽 모두 거의 일정한 값을 나타내었다. 이 상태에서 상부 루프실 하부와 SEWGS 반응기 상부를 연결하는 밸브를 개방하면 (b) 영역과 같이 상부 루프실의 고체입자가 비워지면서 고체층높이가 감소하므로 압력강하가 급격히 감소한다. 이후 상부 루프실과 SEWGS 반응기 사이의 밸브를 잠그면 상승관으로부터 비산되어 순환되는 고체가 상부 루프실에 다시 채워지면서 고체층 높이가 증가하므로 그림의 (c) 영역과 같이 시간이 경과함에 따라 압력강하가 증가한다. 이후 고체층 높이가 상부 루프실의 높이만큼 증가하면 주입된 고체량 만큼 다시 배출되므로 그림의 (d) 영역과 같이 압력강하가 일정하게 유지된다.

Fig. 6에는 두 가지 하부 루프실 형태에 대해 안정적인 고체순환이 이루어지는 조건에서 상승관의 기체유속 변화에 따라 측정된 고체순환속도의 변화를 나타내었다. 그림에서 고체순환속도는 하부 루프실의

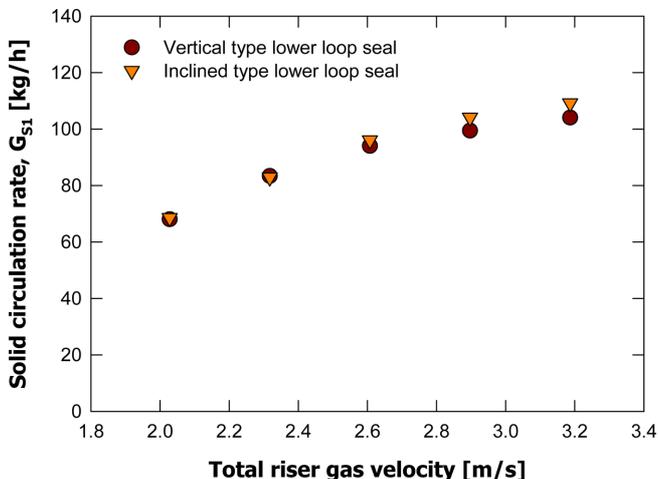


Fig. 6. Effect of total riser gas velocity on solid circulation rate for two different lower loop seals.

유량이 하부 루프실의 최소유동화유량($Q_{mf,v}$ 또는 $Q_{mf,i}$)의 3.5, 4.0, 4.5 배인 조건에서 측정된 값들의 평균값을 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 상승관에 주입되는 기체유속이 증가함에 따라 고체순환속도가 증가하는 일반적인 경향을 나타내었으며, 본 연구의 상승관 유속범위(2.03~3.19 m/s) 내에서 68~109 kg/h로 고체순환속도를 변화시킬 수 있었다. 한편, 그림에 나타난 바와 같이 고체순환이 연속적으로 일어나는 조건에서는 하부 루프실 형태가 변화되어도 고체순환속도는 거의 유사한 값을 나타내었다. 결과적으로 하부 루프실의 형태 변화는 안정적인 고체순환을 위해 하부 루프실에 필요한 유량에만 영향을 미칠 뿐이며 안정적인 고체순환이 일어나면 고체순환 속도에는 영향을 미치지 않는 것으로 사료되었다.

안정적인 고체순환 조건에서 하부 루프실을 통해 주입되는 기체는 SEWGS 반응기 또는 재생반응기를 통해 배출되므로, 반응에 의해 생성되는 기체의 순도를 높이기 위해서는 하부 루프실에 주입되는 기체의 유량이 적은 것이 유리하다. 본 연구에서 고려한 두 가지 하부 루프실에 대해 안정적인 고체순환을 위한 최소 필요 유량을 결정하기 위해 하부 루프실에 주입되는 유량 변화에 따른 SEWGS 반응기와 재생반응기의 압력강하(즉, 고체층높이)와 고체순환량을 측정 및 해석하였다. Fig. 7(a)와 (b)에는 각각 수직형 하부 루프실과 경사형 하부 루프실을 사용하였을 경우에 대해, 상승관 유속이 2.03 m/s 인 조건에서 고체가 순환될 경우 하부 루프실의 양쪽으로 주입되는 개별 유동화 유량을 감소시키면서 측정된 SEWGS 반응기, 재생반응기 및 하부루프실의 압력강하 및 그 때 측정된 고체순환속도를 나타내었다.

Fig. 7(a)에 나타난 바와 같이 수직형 하부 루프실을 사용하였을 경우 하부 루프실의 양쪽으로 주입되는 유량을 감소시키면 SEWGS 반응기의 고체층 높이가 증가하고 재생반응기의 고체층 높이가 감소하는 경향을 나타내었다. 이와 같은 현상은 하부 루프실의 유량이 감소함에 따라 하부 루프실을 통한 고체순환이 어려워져 SEWGS 반응기의 고체층 높이가 상승한 후, 고체층에 의해 하부 루프실에 가해지는 압력이 일정한 값 이상이 되면 다시 고체순환이 가능해지기 때문으로 사료되었다. 그림에 나타난 바와 같이 하부 루프실의 유량이 감소함에 따라 SEWGS 반응기의 고체층 높이는 지속적으로 증가하였고 재생반응기의 고체층 높이는 지속적으로 감소하였으며 실험장치의 높이 한계에 의해 더 이상 고체층 높이를 유지할 수 없었다. 한편, Fig. 7(b)에 나타난 바와 같이 경사형 하부 루프실을 사용하였을 경우에는 하부 루프실의 양쪽으로 주입되는 개별 유량을 감소시켜도 SEWGS, 재생 반응기 및 하부 루프실의 압력강하가 일정하게 유지되었으나 하부 루프실의 개별 유량을 1.2 NL/min (1.5 $Q_{mf,i}$)으로 감소시키면 하부 루프실을 통한 고체순환이 일어나지 않게 되어 SEWGS 반응기의 층높이가 급격히 증가하고 재생반응기의 층높이는 반대로 급격히 감소하는 경향을 나타내었다. Fig. 7(a)와 (b)를 비교하면, 경사형 하부 루프실의 경우 주입되는 유량이 적은 경우에도 안정적인 고체순환과 고체층 높이 유지가 가능하였으며 반대로 수직형 하부 루프실의 경우, 루프실로 주입되는 유량이 감소하면 SEWGS 반응기와 재생반응기 사이의 층높이 차이가 증가함을 알 수 있었다. 결과적으로 경사형 하부 루프실을 사용하는 경우가 수직형 하부 루프실을 사용하는 경우에 비해 낮은 유량에서 안정적인 고체순환이 가능하고 두 반응기 사이의 고체층 높이 차이도 발생하지 않게 된다.

Fig 7에 나타난 경우와 동일한 실험을 상승관 유속을 2.03 m/s 이

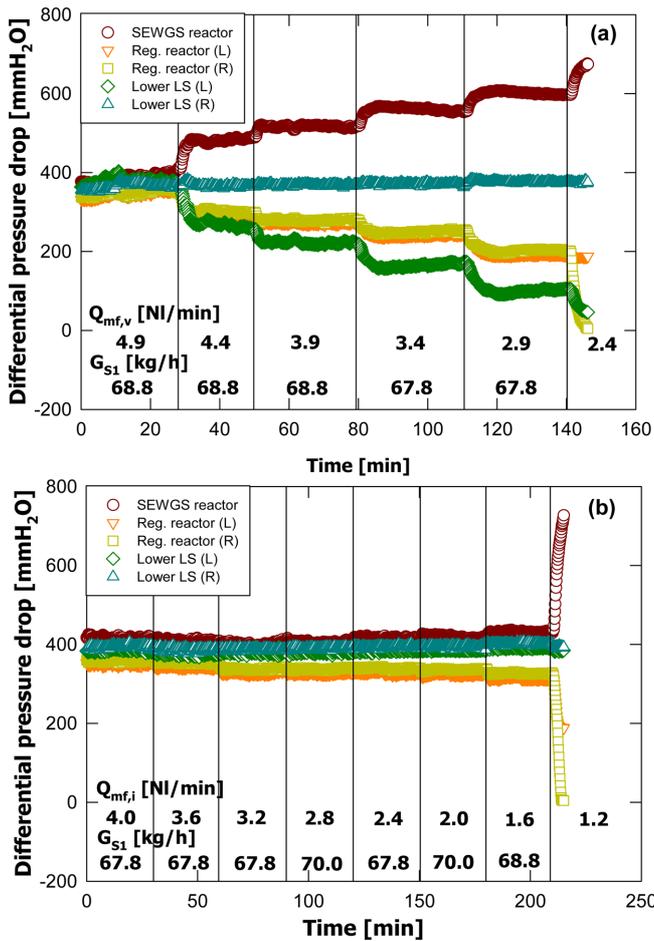


Fig. 7. Typical trends of differential pressure drop in the SEWGS reactor, regeneration reactor and lower loop seal as the flow rate through lower loop seal decreased (a) vertical type lower loop seal and (b) inclined type lower loop seal.

외에도 2.32, 2.61, 2.90, 3.19 m/s로 변화시키면서 고체순환속도가 높은 조건에서도 수행하였으며 모든 상승관 유속 조건에서 유사한 경향을 나타내었다. 또한 Fig. 7(a)와 (b)에 나타난 바와 같이 하부 루프실로 주입되는 유량이 충분할 경우 고체순환속도는 하부 루프실 유량과 무관하게 거의 일정한 값을 나타내었다.

Fig. 7(a)에 나타난 바와 같이 수직형 하부 루프실을 사용할 경우 하부 루프실에 주입되는 기체유량이 감소하는 경우에 SEWGS 반응기의 고체층 높이는 증가하고 재생반응기의 고체층 높이는 감소하는 이유를 해석하고, 이러한 현상이 Fig. 7(b)에 나타난 바와 같이 경사형 하부 루프실의 경우에는 발생하지 않는 이유를 해석하고자 추가적인 실험을 진행하였다.

본 연구에서는 수직형 하부 루프실의 경우, 하부 루프실에 주입되는 기체유량이 감소하는 경우에 SEWGS 반응기의 고체층 높이가 증가하고, 재생반응기의 고체층 높이가 감소하는 원인으로 1) 수직형 하부 루프실의 기체유량이 감소할 경우 하부 루프실을 통과할 수 있는 고체순환량이 제한되며, 2) 하부 루프실을 통한 고체순환량은 감소하지만 상승관에서 이송되어 SEWGS 반응기로 유입되는 고체순환량은 일정하므로 SEWGS 반응기의 고체층 높이는 증가하는 반면 재생반응기의 고체층 높이는 감소하고, 3) SEWGS 반응기의 고체층 높이가 증가하여, 하부루프실에 수직방향으로 가해지는 고체층에 의

한 압력이 증가함에 따라 하부 루프실을 통과할 수 있는 고체순환량이 증가하게 되고, 4) 상승관, 상부루프실, SEWGS 반응기를 통해 하부루프실로 주입되는 고체순환량과 하부루프실을 통과할 수 있는 고체순환량이 균형을 이루게 되면 SEWGS 반응기의 층높이와 재생반응기의 층높이가 일정한 값을 유지하면서 고체순환이 이루어지는 것으로 가정하였다. 이와 같은 가정을 확인하기 위해서는 SEWGS 반응기의 고체층 높이와 하부 루프실에 주입되는 기체유량 변화에 따라 하부루프실을 통과할 수 있는 고체순환량의 변화를 측정 및 해석해야 한다.

본 연구에서는 앞서 Fig. 6에 나타난 바와 같은 상승관, 사이클론, 상부루프실을 통한 고체순환속도(G_{S1})와는 달리 SEWGS 반응기, 하부루프실, 재생반응기를 통한 고체순환속도, 즉 하부루프실에서 이송시킬 수 있는 고체순환속도를 G_{S2} 로 정의하였으며 두 가지 하부 루프실 형태에 대해 SEWGS 반응기의 고체층 높이와 하부 루프실 유량 변화에 따라 G_{S2} 를 측정 및 해석하였다. 측정을 위해 먼저 SEWGS 반응기와 재생반응기에는 고체를 장입하지 않은 상태에서 하부루프실의 상단까지만 유동화 고체를 채운 후 원하는 유량조건에서 하부 루프실을 유동화 시켰다. 하부 루프실에 설치한 차압형 압력변환기에 의해 측정되는 압력강하가 일정해지면 안정적인 유동화가 일어나는 것으로 고려하였으며, 이후 SEWGS 반응기의 고체층 높이가 0.76, 0.89, 1.00 m에 해당하는 유동화 고체를 SEWGS 반응기 상단에서 가능한 빠른 시간 내에 순간적으로 주입하였다. 주입된 고체는 하부루프실을 거쳐서 재생반응기로 이동하게 되며, 시간이 경과함에 따라 SEWGS 반응기의 고체층높이는 감소하고 재생반응기의 고체층높이는 증가한 후 일정한 높이를 유지하게 된다. 이와 같은 시간 변화에 따른 SEWGS 반응기와 재생반응기의 압력강하 변화(즉, 고체층 높이 변화)를 측정하고, SEWGS 반응기와 재생반응기의 부피, 고체입자의 벌크밀도 값을 사용하여 하부루프실을 통해 순환된 고체순환속도(G_{S2})를 계산하였다. G_{S2} 를 측정하기 위한 실험조건을 요약하여 Table 3에 나타내었다. 표에 나타난 변수 이외에 다른 변수들은 Table 2에 나타난 조건과 동일하게 유지하였다.

Fig. 8(a)에는 하부 루프실에 주입되는 기체유량과 고체층 높이 변화에 따른 수직형 하부 루프실을 통한 고체순환속도(G_{S2})를 나타내었으며, Fig. 8(b)에는 경사형 하부 루프실에 대한 결과를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이, 수직형 하부 루프실의 경우 하부 루프실의 유량과 SEWGS 반응기의 층높이가 증가할수록 G_{S2} 가 증가하는 경향을 나타내었으며, 고체층 높이가 증가할수록 기체유량 증가에 따른 G_{S2} 의 증가 기울기가 커지는 경향을 나타내었다. 이와 같은 경향은 앞서 Fig. 4에서 설명한 바와 같이 수직형 하부 루프실의 경우 SEWGS 반응기와 재생반응기 사이의 거리에 의해 수평구간이 존재하게 되며, 이 구간을 통과하는 동안 입자끼리 또는 입자와 하부 루프실 벽과의 마찰력을 이겨내야 하기 때문에 더 높은 고체순환속도(G_{S2})를 얻기 위해서는 SEWGS 반응기의 고체층 높이에 의해 하부에 작용하는 압력이 증가하거나 하부 루프실에 주입되는 유량이

Table 3. Summary of experimental conditions for solid circulation rate through lower loop seal

Static bed height [m]	0.76, 0.89, 1.00
Flow rate of lower loop seal [NI/min]	Vertical type : 2.9, 3.4, 3.9, 4.4, 4.9 (3.0, 3.5, 4.0, 4.5, 5.0 $Q_{mf,v}$) Inclined type : 2.9, 3.4, 3.9, 4.4, 4.9 (3.7, 4.3, 4.9, 5.6, 6.2 $Q_{mf,i}$)

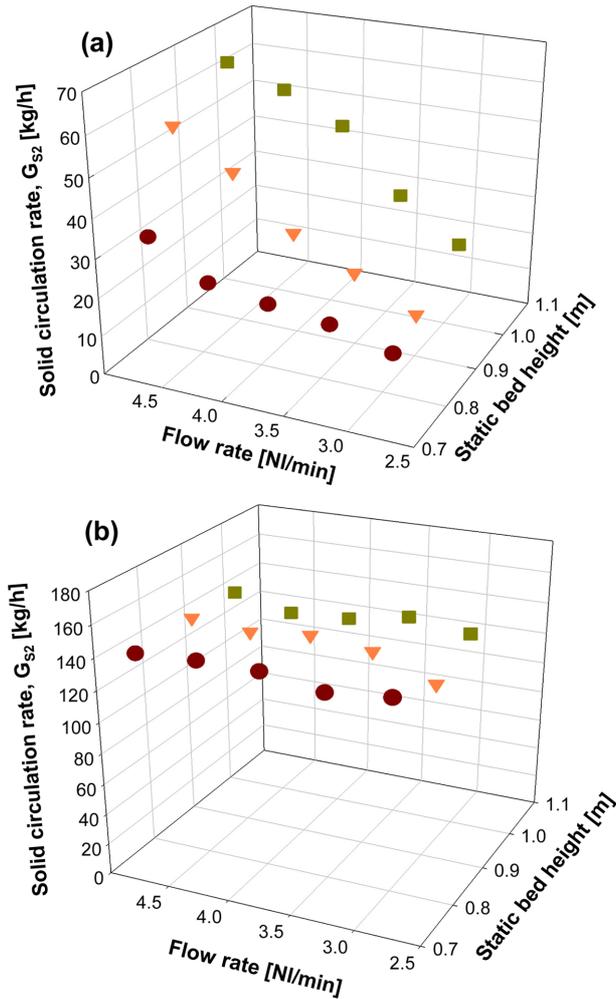


Fig. 8. Effects of flow rate through the lower loop seal and initial solid dumping height on solid circulation rate through the lower loop seal, (a) vertical type lower loop seal and (b) inclined type lower loop seal.

증가하여야 하는 것으로 사료되었다. 한편, 경사형 하부 루프실의 경우 수직형 하부 루프실에 비해 고체순환속도(G_{S2})가 매우 높게 나타났으며, 본 연구의 실험범위에서 하부 루프실에 주입되는 기체유량 및 SEWGS 반응기의 고체층 높이 변화에 따른 G_{S2} 의 변화는 거의 없는 것으로 나타났다.

결과적으로 Fig. 8(b)와 Fig. 7(b)를 함께 해석하면, 경사형 하부 루프실을 사용할 경우, 모든 하부 루프실 유량조건 및 SEWGS 반응기의 고체층 높이 조건에서 하부 루프실을 통한 고체순환속도(G_{S2})가 상승관에서 이송되는 고체순환속도(G_{S1})보다 크기 때문에, 즉 하부 루프실에서 충분한 고체순환량을 처리할 수 있으므로 Fig. 7(b)에 나타난 바와 같이 SEWGS 반응기 및 재생반응기의 고체층 높이 변화 없이 안정적인 고체순환이 가능한 것으로 해석할 수 있었다. 한편, Fig. 8(a)와 Fig. 7(a)를 함께 해석하면, 상승관에서 이송되는 고체순환속도(G_{S1})가 일정한 조건에서 하부 루프실에 주입되는 기체유량이 감소하면, 하부 루프실에서 처리할 수 있는 고체순환속도(G_{S2})가 감소하며, SEWGS 반응기의 고체층 높이가 상승한 후, 고체층에 의해 하부 루프실에 가해지는 압력이 증가하면 G_{S2} 가 증가하므로 안정적인 고체순환이 가능한 것으로 해석할 수 있었다.

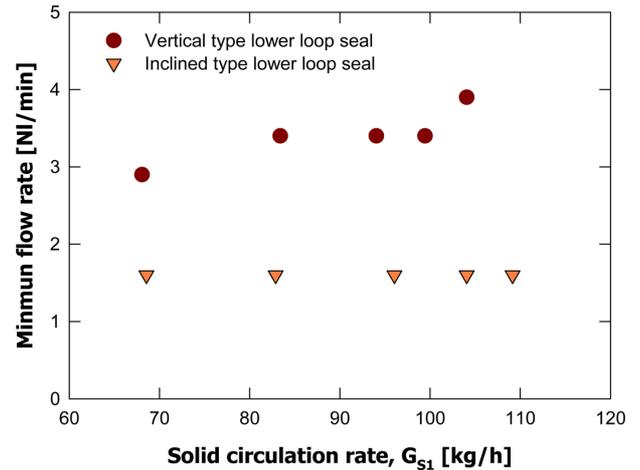


Fig. 9. Comparison of minimum gas flow rate requirement through the lower loop seal for stable solid circulation with variation of solid circulation rate, G_{S1} .

Fig. 9에는 수직형 하부 루프실과 경사형 하부 루프실에 대해 고체순환속도가 변화할 때 안정적인 고체순환을 위해 하부 루프실에 주입되어야 하는 최소 유량의 변화를 비교하여 나타내었다. 두 가지 하부 루프실 모두 왼쪽과 오른쪽에 설치된 기체분산관을 통해 양쪽에서 동일한 양의 기체를 주입하였으며, 그림에는 한쪽에서 주입되는 유량을 기준으로 표시하였다. Fig. 9에 나타난 바와 같이 경사형 하부 루프실의 경우, 하부 루프실에서 처리할 수 있는 고체순환속도(G_{S2})가 높기 때문에 모든 고체순환속도 조건에 대해 낮은 하부 루프실 유량에서도 안정적인 고체순환이 가능한 반면, 수직형 하부 루프실의 경우 고체순환속도가 증가함에 따라 안정적인 고체순환을 유지하기 위해 필요한 하부 루프실의 최소 유량이 증가하는 경향을 나타내었다. 결과적으로 수직형 하부 루프실을 사용할 경우, 수평구간이 존재하기 때문에 하부 루프실을 통한 고체순환속도(G_{S2})의 범위가 작으며, 이를 극복하기 위해서는 하부 루프실에 더 많은 유량을 공급하거나 SEWGS 반응기의 고체층 높이가 높게 유지되어야 한다. 한편 경사형 하부 루프실의 경우 하부 루프실에서 처리할 수 있는 고체순환속도(G_{S2})가 높기 때문에 낮은 유량에서도 안정적인 고체순환이 가능하며 두 반응기 사이의 고체층 높이 차이도 발생하지 않는 것으로 나타났다.

5. 결 론

상온, 상압 3탑 아크릴 유동층 실험장치를 이용하여 하부 루프실의 형태, 루프실 유량 및 상승관 유속 변화에 따른 고체순환속도 변화, 고체층 높이의 변화 및 안정적인 고체순환을 위해 필요한 최소유량을 측정 및 해석하였다. 하부 루프실을 유동화시키기 위한 최소 유량은 수직형 하부 루프실이 경사형 하부 루프실에 비해 높게 나타났으며 상승관을 통한 고체순환속도(G_{S1})는 두 가지 하부 루프실 모두 상승관의 유속이 증가함에 따라 증가하는 경향을 나타내었으며 하부 루프실의 형태 변화에 따른 차이는 크게 나타나지 않았다. 안정적인 고체순환을 유지하기 위해 필요한 최소 유량은 경사형 하부 루프실을 사용한 경우가 수직형 하부 루프실을 사용한 경우보다 적게 나타났으며 두 반응기 사이의 고체층 높이 차이도 발생하지 않는 것으로

나타나 SEWGS 시스템에서 적은 하부 루프실 유량으로 안정적으로 고체를 순환하기 위해서는 경사형 하부 루프실을 사용하는 것이 유리할 것으로 사료되었다.

감 사

본 연구는 2011년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술 평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다(2011201020004B). 연구비 지원에 감사드립니다. 본 연구에 사용된 CO₂ 흡수제를 제공 해주신 한전전력연구원 류청걸 박사님 연구그룹에도 감사드립니다.

Nomenclatures

- $Q_{mf,v}$: Minimum fluidization gas flow rate for vertical type lower loop seal [Nl/min]
 $Q_{mf,i}$: Minimum fluidization gas flow rate for inclined type lower loop seal [Nl/min]
 U_{mf} : Minimum fluidization gas velocity [m/s]
 G_{S1} : Solid circulation rate from riser through cyclone to upper loop seal [kg/h]
 G_{S2} : Solid circulation rate from SEWGS reactor through lower loop seal to regeneration reactor [kg/h]

References

- James, R., "Clean Coal technology Status: CO₂ Capture and Storage," *Technology Briefing for Colorado Rural Electric Association*, EPRI(2007).
- Ryu, H. J., "Selection of Process Configuration and Operating Conditions for SEWGS System," *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, **20**(2), 168-178(2009).
- Ryu, H. J., Hyun, J. S., Kim, H. and Hwang, T. S., "Reaction Characteristics of WGS Catalyst with Fraction of Catalyst in a Batch Type Fluidized Bed Reactor," *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, **22**(4), 465-473(2011).
- Lee, K. B., Beaver, M. G., Caram, H. S., Sircar, S., "Performance of Na₂O Promoted Alumina as CO₂ Chemisorbent in Sorption-enhanced Reaction Process for Simultaneous Production of Fuel-cell Grade H₂ and Compressed CO₂ from Synthesis Gas," *J. Power Sources*, **176**, 312-319(2008).
- Lee, J. B., Min, Y. J., Lee, K. B., Jeon, S. G., Na, J. G. and Ryu, H. J., "Enhancement of CO₂ Sorption Uptake on Hydrotalcite by Impregnation with K₂CO₃," *Langmuir*, **26**(24), 18788-18797(2010).
- Lee, J. B., Eom, T. H., Choi, D. H., Park, K. W., Ryu, J., Baek, J. I., Ryu, C. K. and Ryu, H. J., "Study on Hybrid Materials of WGS Catalyst and CO₂ Sorbent for SEWGS Process," *International Symposium on Low Carbon & Renewable Energy Technology*, Lotte Hotel, Jeju, Korea, 372(2010).
- Ryu, H. J., Kim H. S., Lee, S. Y., Lee, D. H. and Kim, J. V., "Effects of Operating Variables on Sorption Capacity of CO₂ Absorbent for SEWGS Process," *Korean Chem. Eng. Res.*, **50**(6), 994-1001(2012).
- Ryu, H. J., Lee, D. H., Lee, S. Y. and Hwang T. S., "Reaction Characteristics of WGS Catalyst for SEWGS Process in a Pressurized Fluidized Bed Reactor," *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, **23**(4), 337-345(2012).
- Ryu, H. J., Park, Y. C., Jo, S. H. and Park, M. H., "Development of Novel Two-Interconnected Fluidized Bed System," *Korean J. Chem. Eng.*, **25**(5), 1178-1183(2008).
- Basu, P. and Butler, J., "Studies on the Operation of Loop-seal Circulating Fluidized Bed Boilers," *Applied Energy*, **86**, 1723-1731(2009).
- Basu, P. and Cheng, L., "An Analysis of Loop Seal Operations in a Circulating Fluidized Bed," *Tran IChemE*, **78**(part A), 991-998(2000).
- Cheng, L. and Basu, P., "Effect of Pressure on Loop Seal Operation for a Pressurized Circulating Fluidized Bed," *Powder Technol.*, **103**, 203-211(1999).
- Kim, S. W. and Kim, S. D., "Effects of Properties on Solids Recycle in Loop-seal of a Circulating Fluidized Bed," *Powder Technol.*, **124**, 76-84(2002).
- Namkung, W. and Cho, M. Y., "Loop-seal Operation of Iron Ore Particles in Pneumatic Conveying," *Korean J. Chem. Eng.*, **19**(6), 1066-1071(2002).
- Kim, S. W., Namkung, W. and Kim., S. D., "Solid recycle Characteristics of Loop-seals in a Circulating Fluidized Bed," *Chem. Eng. Technol.*, **24**(8), 843-849(2001).
- Ryu, H. J., Lee, D. H., Moon, J. H., Park Y. C. and Jo, S. H., "The Characteristics of Attrition of Absorbents for Pre-combustion CO₂ Capture," *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, **24**(5), 428-436(2013).
- Ryu, H. J., Yoon, J. Y., Lee, D. H., Shun, D. W., Park, J. Y. and Park, Y. S., "Hydrodynamic Characteristics of Absorbent and Catalyst for Pre-combustion CO₂ Capture," *Clean Technology*, **19**(4), 437-445(2014).