

상승관과 유동층 반응기로 이루어진 순환공정에서 압력균형

권학선, 김의식, 조성호*, 진경태*, 이창근*
 충북대학교 화학공학과

*한국에너지기술연구원 유동층기술연구센터

Pressure Balance Consisting of a Riser and a Fluidized Reactor
 in the Circulation Process

H.S. Kwon, Y.S. Kim, S.H. Cho*, G.T. Jin*, C.K. Yi*

Department of Chemical Engineering, Chungbuk National Univ.

* Fluidization Research Center, KIER

1. 서론

고온건식 탈황, FCC 공정등은 두개의 유동층 반응기로 이루어져 있으며, 두 반응기사이의 기체 혼합을 최소화하면서 고체를 연속적으로 순환시켜야 한다. 이러한 기-고 시스템에 있어서 그 고체들을 어떻게 안정되고 연속적으로 순환시키느냐가 공정개발에 있어서 관건이 된다. 상승관 내부의 고체입자의 분포 및 흐름과 고체 순환 속도는 각 영역에서의 압력 균형에 크게 영향을 준다. 상승관과 유동층 반응기의 순환 루프 내의 압력균형에서는 고체체류량 분포가 중요하다.

본 연구에서는 loopseal로 연결된 상승관과 유동층 반응기 전체 루프에 대한 압력 균형을 조사하였다. 반응기의 온도, 유속 및 고체 순환량을 변화시키면서 각각의 실험조건에서 압력변화가 시스템에 미치는 영향을 분석하여 이를 고온건식탈황 공정에 적용하고자 한다.

2. 실험장치 및 방법

Fig.1 은 고온고체순환 BSU 장치의 개략도이다. BSU장치는 크게 상승관, 유동층반응기, 사이클론과 loopseal, downcomer와 수평관으로 구성되어 있다. 유동층반응기는 직경이 97mm, 높이가 1200mm이다. 상승관의 경우는 밑부분의 직경이 35mm, 높이 600mm이고, 위부분은 직경 25mm, 높이 5200mm이고 분산판으로부터 상승관 상단까지의 높이는 5800mm이다. 상승관과 유동층반응기는 loopseal에 의하여 연결되어 있다. Loopseal은 사이클론 하부에 연결되어 있으며, downcomer는 직경 25mm x 길이 2830mm 이고, 고체의 원활한 하강을 위

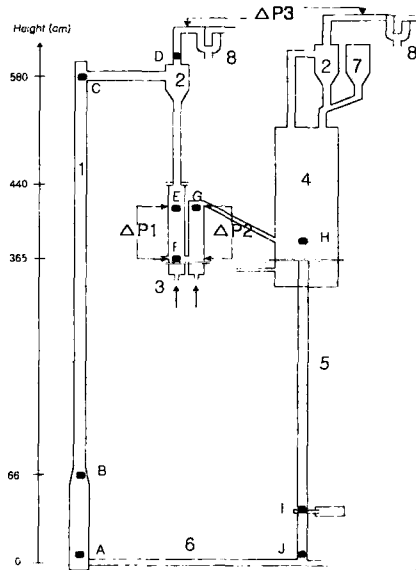


Fig.1 Schematic diagram
 1.Riser 2.Cyclone 3.Loopseal
 4.Fluidized bed 5.Downcomer
 6.Horizontal pipe 7.Hopper
 8.Bag filter

해 슬라이드밸브의 상단 1000mm 지점으로부터 aeration purge gas를 주입할수 있도록 500mm간격의 4개의 tab을 설치하였다. 고체순환속도를 조절하기 위해 수평관 하단으로부터 500mm지점에 슬라이드밸브를 설치하였다. 수평관은 직경 14mm x 길이1100mm이고 수평관에서의 압력강하 측정을 위해 240mm간격의 tab을 설치하였고 고체흐름을 육안으로 확인하기위해 석영 유리관을 설치하였다.

각 압력점에서 차압변압기를 설치하여 고체순환량, 층높이 측정과 압력균형을 측정하였다. 측정된 모든 값은 PLC를 거쳐 컴퓨터에 저장된다. 고온 고압 상태에서 탈황제 순환은 반응기 하부의 슬라이드 밸브를 이용하여 탈황제의 순환 배출량을 조절하여 두 반응기의 층높이 변화와 탈황제 순환량을 제어하였다. 유동층반응기 하부에서 배출된 탈황제는 상승관을 통과하여 사이클론에서 포집되며, 가스의 역흐름을 막기위한 loopseal을 통과하여 유동층반응기로 들어가 순환된다. 수평관에서 주입된 기체는 전량 상승관을 통과하여 사이클론을 빠져 나간다. 각 반응기 후단에는 필터가 설치되어 미분의 시료를 포집한다. 실험에 사용된 시료는 spray drying 법에 의하여 제조된 아연계 탈황제 ZAC-C를 사용하였다. 아연계 탈황제의 평균입경은 $92\mu\text{m}$, 입자 밀도는 1.42g/cm^3 이다.

3. 이 론

3-1 질량수지

전체 순환루프내 고체량은 다음과 같이 나타낼수 있다.

$$W_T = W_r + W_{ls} + W_f + W_d \quad (1)$$

여기서, W_r , W_{ls} , W_f , W_d 는 각각 상승관, loopseal, fluidized bed, downcomer 의 고체량으로 다음식들에 의해 나타낼수 있다.

$$W_r = \frac{\Delta P_r A_r}{g} = \rho_s A_r \left(\epsilon_{sd} z_d + \int_{z_d}^{z_e} \epsilon_s dz \right) \quad (2)$$

$$W_{ls} = \rho_s (1 - \epsilon_{mf}) (L_{k,1} A_{k,1} + L_{k,2} A_{k,2}) \quad (3)$$

여기서 첨자 1,2는 고체가 공급되는 층의 높이, 나가는 층의 높이를 나타낸다.

$$W_d = \rho_s (1 - \epsilon_{mf}) L_d A_d \quad (4)$$

$$W_f = \rho_s (1 - \epsilon_f) L_f A_f \quad (5)$$

Kunii 와 Levenspiel(1991) 에 의하면, 기포유동층은 간단히 2상 모델로 나타낼수 있다. 유동층반응기에서 식(5)의 average bed voidage, ϵ_f 는 다음과 같이 구할수 있다.

$$\epsilon_f = \delta + (1 - \delta) \epsilon_e \quad (6)$$

고체입자가 Geldart A group에 속하기 때문에 $\epsilon_e \approx \epsilon_{mb}$ 로 나타낼수 있다.

기포유동층반응기의 유속이 $u_0=5\text{cm/s}$ 로 $u_0 \gg u_{mf}$ 이므로 다음과 같다.

$$\delta = \frac{u_0}{u_b} \quad (7)$$

bubble의 상승속도, u_b 는 Werther(1986)가 제안한 다음 식을 이용하였다.

$$u_b = 1.55 [(u_0 - u_{mf}) + 14.1(d_b + 0.005)] d_t^{0.32} + u_{br} \quad [m/s] \quad (8)$$

u_{br} 은 Davidson 와 Harrison(1963)가 제안한 식을 적용하였다.

$$u_{br} = 0.711(gd_b)^{1/2} \quad (9)$$

이 입자에 대해 버블크기 d_b 는 Werther(1981)가 제시하였다.

$$d_b = 0.853[1 + 0.272 (u_0 - u_{mf})^{1/3} (1 + 0.0684z)^{1.21}] \quad (10)$$

3-2 압력수지

전체 시스템을 구성하는 압력수지는 수평관, 상승관, 사이클론에서의 압력강하와 loopseal, 유동충반응기, downcomer, 슬라이드 밸브에서의 압력강하가 서로 균형을 이루면서 조업된다.

$$\Delta P_{hr} + \Delta P_r + \Delta P_c = \Delta P_k + \Delta P_f + \Delta P_d + \Delta P_v \quad (11)$$

3-2-1 수평관에서의 압력강하

희박상(dilute phase) 수송에 대한 수평관에서 압력강하는 다음과 같다.

$$\Delta P = \frac{1}{2} \epsilon \rho_g U_g^2 + \frac{1}{2} (1 - \epsilon) \rho_s U_s^2 + F_{gw}L + F_{sw}L \quad (12)$$

F_{ws} 는 Hinkle(1953)이 제안한 다음 식을 이용하였다.

$$F_{sw}L = \frac{2f_s \rho_s (1 - \epsilon) U_s^2 L}{D_t} \quad (13)$$

$$U_s = U(1 - 0.0638 d_b^{0.3} \rho_s^{0.5}) \quad (14)$$

$$f_s = \frac{3}{8} \frac{\rho_g}{\rho_s} \frac{D_t}{d_b} C_D \left[\frac{U_g - U_s}{U_s} \right]^2 \quad (15)$$

기체와 관벽과의 마찰은 Fanning friction factor로 나타낼수 있다.

$$F_{gw}L = \frac{2f_g \rho_g U_g^2 L}{D_t} \quad (16)$$

3-2-2 상승관에서의 압력강하

상승관은 크게 하부 농후상과 상부 희박상 영역으로 나눌수 있다.

$$\Delta P_r = \rho_g \left(\epsilon_{sd} z_d + \int_{z_c}^{z_d} \epsilon_s dz \right) \quad (17)$$

본 연구에서 출구효과를 받지 않는 상승관 하부에서의 고체체류량 분포를 구하기 위해 기존 smooth exit를 갖는 상승관에서 제안된 식을 사용한다.

$$\frac{\epsilon_s - \epsilon_{s,*}}{\epsilon_{sd} - \epsilon_{s,*}} = \exp[-a(z - z_d)] \quad (18)$$

감쇄상수, a 는 Lei 와 Horio(1998)가 제시한 식을 사용하였다.

$$aD_r = \left[\frac{U_g}{\sqrt{(gD_r)}} \right]^{-0.32} \left[\frac{G_s}{\rho_g U_g} \right]^{-0.22} \left[\frac{\rho_s - \rho_g}{\rho_g} \right]^{0.41} \quad (19)$$

식(18)에서 하부 농후상 및 무한 높이에서 고체체류량을 구하기 위해서는 Bai 와 Kato(1999)가 제시한 식을 사용하였다.

$$\frac{\epsilon_{s,d}}{\epsilon_s^*} = 1 + 6.14 \times 10^{-3} \left[\frac{U_g}{G_s/\rho_s} \right]^{-0.23} \left[\frac{\rho_s - \rho_g}{\rho_g} \right]^{1.21} \left[\frac{U_g}{\sqrt{g D_r}} \right]^{-0.383} \quad (20)$$

$$\epsilon_{s*} = 4.04 \epsilon_s^{*1.214} \quad (21)$$

$$\epsilon_s^* = G_s / [\rho_s (U_g - U_t)] \quad (22)$$

출구효과 고려에 대해 최근에 Kunii 와 levenspiel(1995) 은 그 차이를 다음과 같이 제시하였다.

$$\Delta \epsilon = \epsilon_s - \epsilon_{s, \text{without reflux}} = C_e \epsilon_{se} \exp[-a_e (H_r - z_f)] \quad (23)$$

C_e 와 a_e 는 김 등(2000)이 제시한 상관관계식을 사용하였다.

$$C_e = 0.046 \left[\frac{(U_g - U_t)^2}{gD_r} \right]^{0.46} \left[\frac{G_s}{\rho_s (U_g - U_t)} \right]^{-0.31} \left[\frac{H_e}{d_p} \right]^{0.38} \left[\frac{D_e}{D_r} \right]^{-0.72} \quad (24)$$

$$a_e D_r = 1.27 \left[\frac{(U_g - U_t)^2}{gD_r} \right]^{0.49} \left[\frac{G_s}{\rho_s (U_g - U_t)} \right]^{-0.54} \left[\frac{D_e}{D_r} \right]^{-0.55} \left[\frac{\rho_s - \rho_g}{\rho_g} \right]^{-1.00} \quad (25)$$

Abrupt출구를 갖는 상승관의 경우, 축방향 고체체류량 분포는 식 (24)과 (25)를 식 (23)에 적용한 후, 이를 식 (18)에서 구한 값에 보정함으로써 구할수 있다. 또한 상승관에서의 압력강하는 이 값을 식 (17)에 적용하여 구할수 있다.

3-2-3 유동층반응기에서의 압력강하

질량수지로부터 구한 average bed voidage, ϵ_f 와 L_f 로부터 구할 수 있다.

$$\Delta P_f = (\rho_s - \rho_g)(1 - \epsilon_f)gL_f \quad (26)$$

3-2-4 Downcomer에서 압력강하

Underflow standpipe형식으로 설치된 downcomer에서의 압력강하는 moving bed형태로 고체가 순환하기 때문에 고체입자의 무게에 지배를 받는다.

$$\Delta P = (1 - \epsilon)(\rho_s - \rho_g)gL_d \quad (27)$$

4.결과및 고찰

4-1 밸브 열림에 따른 압력강하

초기입자 7kg을 반응기에 충전하고 유동층반응기 유속 0.05m/s, loopseal 0.01m/s, riser 상부 유속을 3m/s로 일정하게 유지한후 downcomer 하단의 슬라이드밸브를 이용하여 고체 순환량을 변화시켰다. 고체 순환량 측정은 정상상태에 도달한후 loopseal을 정지시키면 고체입자의 흐름이 정지되므로 이때 유동층반응기의 층높이 감소값으로 계산하였다. Fig. 2에서 밸브열림이 증가함에 따라 고체 순환속도는 계속 증가하다가, 개구비 40%, 200℃에서 33kg/m²/s, 400℃에서는 22kg/m²/s로 선형적으로 증가 경향을 보였다. 개구비가 50% 이상에서는 관의 지

름이 작은수평관의 고체수송한계 때문에 고체순환량의 증가현상이 둔화 된것으로 사료된다. 또한 온도에 따른 영향은 온도가 증가할수록 고체순환량은 감소하였는데 이는 온도가 증가함에 따라 기체밀도의 감소로 비산되는 입자의 감소현상이 나타난다. 따라서 층높이 감소로 인한 고체순환량이 줄어든 것으로 사료된다. Fig. 3는 밸브 열림정도에 따른 Gs변화를 상승관에서 높이에 따른 voidage로 표현하였다. 상승관 두지점간의 평균 bulk 밀도를 이용하여 두지점간의 기체 voidage를 계산하였다. 고체순환량이 많아질수록 상승관의 voidage가 감소함을 알 수 있으며 고체순환량이 1atm, 400°C에서 최대 26kg/m²/s 에서 상승관 하부에서 0.935 , 상부에서 0.952이다. 슬라이드 밸브에 의해 조절되는 고체순환량 변화에 따른 전체 시스템의 압력균형곡선을 Fig. 4에 나타내었다. 고체순환량이 증가할수록 반응기[G] 내 기-고 혼합의 평균 bulk 밀도는 감소하여 압력강하는 감소하고 수평관[J-A]과 상승관[A-B-C]에서는 평균 bulk 밀도가 증가하여 압력강하가 높아졌음을 알 수 있다. 또한 loopseal[E]의 압력강하도 높아짐을 확인할수가 있다.

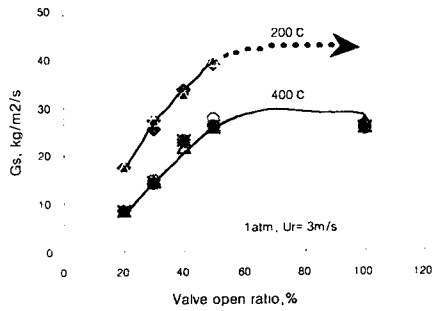


Fig. 2 Effect of valve opening ratio on solid circulation rate.

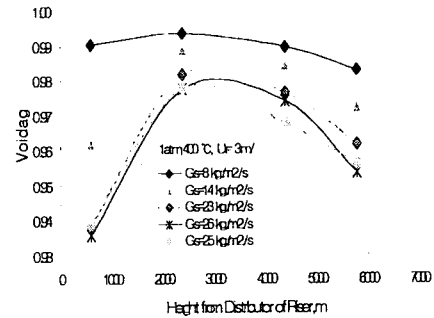


Fig. 3. Effect of solid circulation rate on axial voidage

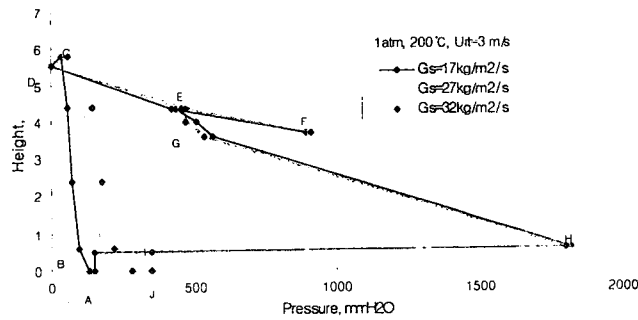


Fig. 4 Effect of solid circulation rate on pressure balance curve

4-2 유속변화에 따른 압력강하

1atm, 200℃에서 충전탈황제 7kg, 반응기 유속 0.05m/s 조건에서 상승관의 유속을 2.5~4.0m/s로 변화시켰을 때 고체순환속도 및 voidage, 압력강하를 알아본 것이다. Fig. 5에서 유속이 증가함에 따라 Gs는 다소 증가하는 경향이 있으나 고체순환속도에 큰 영향을 미치지 못하는 듯하였다. Fig. 6은 유속이 높을수록 기체 voidage는 감소하여 2.5m/s에서 상승관 하부에서 0.882, 상부에서 0.94의 값을 보여주고 있다.

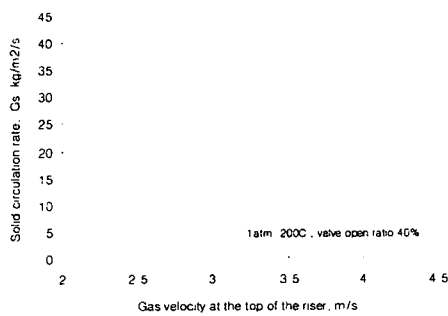


Fig. 5 Effect of gas velocity on solid circulation ratio.

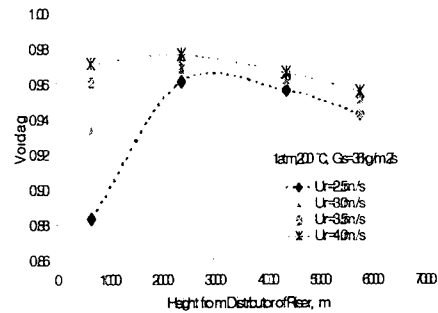


Fig. 6 Effect of gas velocity at the riser on axial voidage profile.

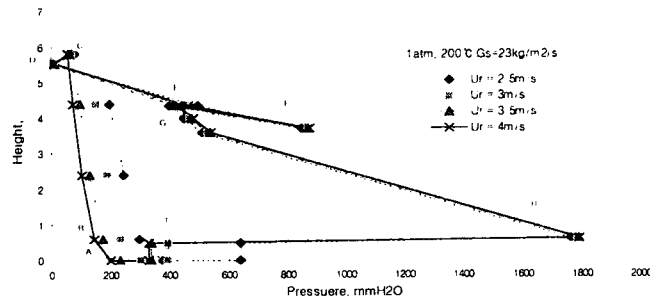


Fig. 7 Effect of gas velocity at the riser on pressure balance curve.

Fig. 7은 밸브 개구비를 조절하여 일정한 고체순환량에서의 유속변화에 따른 압력 balance이다. 수평관에서의 압력강하가 $U_r=2.5\text{m/s}$ ($U_{\text{horizontal}} = 6.1\text{ m/s}$)에서 급격히 증가하였다. 상승관에서의 유속이 증가함에 따라 사이클론에서 순환 loop 밖으로 나가는 고체의 양이 증가함으로써 순환 loop내에 남아있는 고체량은 줄어들게 되고 평균밀도는 점점 작아지는 것이다. 이에 따른 loopseal[E]에서 압력강하와 반응기[H]의 압력강하를 확인할 수 있다.

4-3 압력차의 영향

가압 공정에서는 고체의 원활한 순환을 위해 상승관과 유동층반응기 사이의 압력차가 중요한 변수가 된다. 이는 역흐름 방지를 위한 loopseal의 seal로서의 역할을 결정하는 핵심인자이다. Loopseal의 하강부위와 상승부위가 같을때 고체순환에 있어 가장 이상적인 조업을 할 수 있다. Fig. 8 는 $\Delta P1$ 과 $\Delta P2$ 가 같은 조건에서 반응기 층높이에 따른 상승관과 반응기 사이의 압력차($\Delta P3$)를 나타낸다. 상승관과 반응기 사이의 압력차는 bag filter 전단에서 측정하였다. 반응기의 층높이가 증가할수록 loopseal의 압력균형을 위해 두반응기사이의 압력차가 선형적으로 증가하는 경향을 보이고 있다. Fig. 9는 상승관과 반응기 사이의 압력차($\Delta P3$)가 200mmH₂O 로 일정할때 반응기의 층높이에 따른 loopseal의 압력강하($\Delta P1-\Delta P2$)를 나타낸 그림이다. 층높이가 160~225mmH₂O일때 loopseal에서의 압력강하는 +100~-100mmH₂O로 $\Delta P1$ 과 $\Delta P2$ 의 압력차이가 안정되어 고체순환이 원활하게 이루어지는 것을 확인할수 있었고, 반응기의 층높이가 감소함에 따라 loopseal에서의 압력균형이 깨지는 것을 볼수 있다. 이상으로부터 loopseal이 안정한 상태에서 원활한 작동을 하기 위해서는 상승관과 반응기 사이의 압력차가 반응기 층높이와 비례하여 증가해야 한다는 것을 알 수 있다.

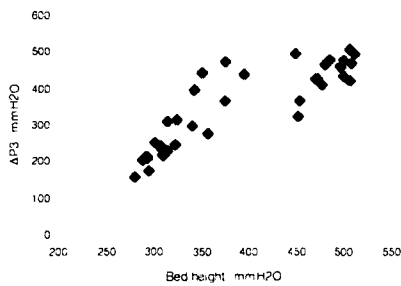


Fig. 8 Effect of pressure difference between riser and reactor($\Delta P3$) on bed height

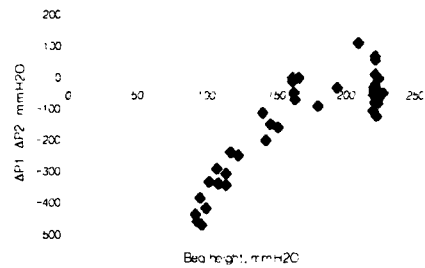


Fig. 9 Variation of Pressure drop of loopseal($\Delta P1-\Delta P2$) on bed height, at $\Delta P3 = 200\text{mmH}_2\text{O}$

5. 결론

Loopseal을 가지는 상승관과 반응기 사이의 고체순환장치에서 고체 순환특성을 관찰하기 위해 압력균형을 측정하였다. 압력균형고리가 하나의 단히계로 표현되었기 때문에 고체 순환이 원활한 것으로 판단되었고 반응기의 층높이에 따라 공정상 조업되는 상승관과 반응기 사이의 압력차이를 결정할수 있었다.

1atm, 400℃, 3m/s로 일정한 상승관 내 유속에서 고체순환 속도가 26kg/m²/s 일때 상승관 하부 0.935, 상부 0.952로 voidage 감소로 인한 압력강하가 증가하였다. 1atm, 200℃, Gs=36kg/m²/s 의 일정 고체순환속도에서 상승관의 유속이 2.5m/s일때 voidage는 상승관 하부 0.882, 상부 0.94이고, 4.0m/s일때는 각각 0.97, 0.955로 voidage 감소로 인한 압력강하가 증가하였다.

감사의 글

본 연구는 대체에너지 선도기술개발(G7)사업의 일환으로 수행되었습니다. 연구비 지원에 감사드립니다.

참고 문헌

1. 김성원, 안정렬, 김상돈, 한국에너지공학회, 143(2000)
2. Bai D., Kato K., Powder Tech., 101, 183(1999)
3. Bi H., Zhu J., AIChE, 39(8), 1272(1993)
4. Geldart, Gas Fluidization Short Course, University of Bradford(1992)
5. Hong J., Shen Y., Powder Tech., 77, 107(1993)
6. Klinzing G.E., Myler C.A., Powder Tech., 58, 187(1988)
7. Kunii D., Levenspiel O., "Fluidization Engineering" 2nd ed., Butterworth-Heinemann(1991)
8. Kunii D., Levenspiel O., Powder Tech., 84, 83(1995)
9. Lei H., Horio M., J. Chem. Eng. Japan, 31, 83(1998)
10. Rhodes M., Introduction to Particle Technology(1998)
11. White B.R., Schulz J.C., J. Fluid Mech., 81, 497(1977)
12. Yi C.K., Cho S.H., Bae D.H., Shun D.W., Jin G.T., Son J.E., J. Chem. Eng. Japan, 34(2), 269(2001)