# Enhancement of Feed Gas Distribution of Heterogeneous Catalytic Fixed-bed Reactor

Ji Hyun Lee†, Beom-Ju Kim, No-Sang Kwak, Jung Hyun Lee, Su Hyun Shin, Sun-Na Hwang, Jae-Goo Shim

*Creative Future Research Laboratory, KEPCO Research Institute, Korea Electric Power Corporation, Korea*
*105 Munji-Ro Yuseong-Gu, Daejeon 305-750, Republic of Korea*
*† jihyun.lee@kepco.co.kr*

**Abstract**

다상 고정층 촉매반응기(Multiphase catalytic fixed-bed reactor)에서 기체 유동과 관련, 반응기 내부 구조 디자인에 따른 feed 가스의 분산성 변화를 분석하였다. 다상 촉매반응기의 경우 feed gas의 투입방법이 전체 공정의 반응효율을 크게 결정하는바 본 연구에서는 산업현장에서 활용도가 높은 환형 가스 주입부로 구성된 다상 고정층 촉매반응기를 대상으로 다양한 조건하에서 촉매 반응기 내부에서의 feed가스 분산성 변화를 분석하였다. 다상 촉매반응기의 feed gas 주입과 관련하여 다양한 방안이 제시되고 있는데 그 중 환형 가스 주입방식을 활용하는 방법은 타 기술대비 상대적으로 저렴한 투자비와 좁은 작업공간하에서 기체의 분산성을 향상 시킬수 있는 특징이 있어 실제 상업 공정에서의 활용성이 매우 높다. 본 논문에서는 특히 기-고 촉매 반응기 내부 반응기체의 분산성 향상을 위해 환형 가스 주입장치 내부에 설치된 가스 주입홀 구성방법에 따른 반응기 내부 유동을 분석하였다. 분석결과 주입홀의 위치가 가스 투입라인의 접선방향에 위치하는 것은 전체 분산성에 큰 영향을 주지 못하며 대부분 가스투입 입구와 맞은편 부분에 위치하는 경우 분산성이 향상되는 것으로 분석되었다. 결과적으로 환형 가스주입장치의 최적 설계는 feed 가스의 분산성에 큰 영향을 미치므로 초기단계에서 이러한 점을 고려한 설계 및 분석연구가 선행되어야 할 것으로 사료된다.

*Keywords: Catalytic Reactor, Gas Distribution, Solid-Gas Reaction*

## I. 서론

다상 촉매반응 공정은 화력발전소, 석유화학 및 정유공장 등의 폭 넓은 분야에서 다양한 목적으로 활용되고 있다. 이에 따라 촉매 반응기의 성능 향상 및 반응 최적화를 위해 촉매 자체의 성능향상에 대한 연구와 함께 공정상에서 촉매와 가스상의 물질전달 속도를 향상시킬수 있는 반응기 설계 연구가 활발히 진행 중에 있다 [1]-[4]. 촉매반응 공정에 있어 물질전달 속도 향상은 반응기 내부에 설치된 촉매와 기체상 화학반응을 촉진하므로 전체 반응이 평형에 도달하는데 요구되는 반응기의 체적이 감소하여 해당 공정의 투자비가 감소되고 공정 관리 운영비용 등 다양한 변동 비용이 낮아지는 장점이 있다.

이에 따라 다양한 연구기관에서 촉매 반응의 물질전달 속도를 위한 방편으로 반응기 내부로 투입되는 기체의 분산성을 향상시킬수 있는 방안에 대하여 연구를 진행 중에 있으며 [5][6] 다양한 형태의 촉매반응기 설계안이 제시되고 있다. 이 중에서 현재 산업 현장에서 사용중인 방법으로 촉매반응기 외부에 설치된 환형가스 주입 장치(Vapor Belt)를 통해 feed 가스를 반응기 내부로 주입하는 방안을 들수 있다. 환형 가스주입장치는 상대적으로 저렴한 투자비와 함께 단순한 공정구성으로 많은 공간을 차지하지 않으면서도 feed 가스의 분산성을 크게 향상시킬수 있으므로 발전소 및 화학플랜트의 적용에 있어서 매우 유용한 방법이라고 할수 있다. 상기 환형 가스주입장치의 설계에 있어 반응기 내부와 연결되어 가스가 투입되는 주입홀의 설계는 가스의 분산성을 좌우하는 매우 중요한 부분이므로 대상 운전조건하에서 최적의 주입홀 설계가 필요하다. 관련하여 본 연구에서는 다상 공정층 촉매 반응기 내부의 feed 가스 분산성 향상을 위해 환형 가스주입장치를 구성하고 다양한 주입홀 구성하에서 최적의 가스 분산성을 향상시킬 수 있는 방안에 대하여 제시하고자 한다.

## II. 본론

### A. 분석 절차

본 연구의 다상 고정층 촉매반응기(Multiphase catalytic fixed-bed reactor) 내 feed 가스 분산성 분석을 위해 상용유동해석(Computational Fluid Dynamics, CFD) 프로그램을 활용하였으며 세부 분석 절차는 다음과 같다. 기본 유동 분석을 위한 해석 모델은 촉매 반응기 외벽에 환형으로 feed가스 주입이 이루어지는 공정으로 구성하였으며 기본 geometry 및 운전조건은 문헌을 참조하였다 [7]. 확보된 설계자료 및 운전 데이터를 바탕으로 CFD 분석을 위한 격자 생성(Meshing) 작업을 실시하고 기본 공정 하에서 유동 분포 분석을 수행하였다. 기본 공정 하에서 확인된 feed 가스 분산성 결과를 바탕으로 가스 주입장치 내 주입 홀의 다양한 구성방식에 따른 가스 유동을 분석하였다. 기본 안에 대한 분석결과를 바탕으

Manuscript received November 14, 2016, revised December 1, 2016, accepted December 2, 2016
ISSN 2465-8111(Print), 2466-0124(Online), DOI http://dx.doi.org/10.18770/KEPCO.2016.02.04.595
This paper is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International License. This paper is available online at http://journal.kepco.co.kr

Fig. 1. 다상 고정층 촉매반응기 개략도 및 Geometry [7].

로 기존 시스템 하에서 주입홀 위치에 따라 분산성을 향상시킬 수 있는 방안을 수립한 후 이를 바탕으로 다시 분석을 수행하였다. 상기 분석에서 있어서 case별 반응기내 기체 분산성을 정량적으로 비교하기 위하여 반응기의 표면을 가상의 4분면으로 구성하여 각각의 4분면으로 투입되는 feed 가스 질량 유속비를 비교하였다.

B. 분석 대상

본 논문에서 기-고 촉매반응기의 유동 분석을 위한 대상공정은 HETRAN사에서 공급하는 shell-tube 열교환기 형상의 다상 고정층 촉매반응기를 대상으로 하였으며 상용공정 설치자료 및 본 논문의 분석에 사용된 공정의 Geometry 형상은 다음의 Fig. 1과 같다. Fig. 1에 제시된 바와 같이 촉매반응기로 투입되는 가스는 feed gas 라인을 통해 주입되고, 이후 환형 가스주입장치(Vapor belt)를 거쳐서 반응기 내부로 고르게 분산되어 고정층 촉매와 반응한다.

Table 1. 설비구조 및 기본 운전조건

| Geometry | Unit | Figure | Operating conditions | Unit | Figure |
|---|---|---|---|---|---|
| Outside diameter | mm | 2,500 | Mass flow rate of feed gas | Ton/hr | 150 |
| Inside diameter | mm | 2,000 | Temperature | ºC | 40 |
| Vapor | mm | 1,200 | Pressure | bar | 1.0 |
| Feed gas hole distance | degree | 5 | | | |
| Height of Feed gas hole | mm | 800 | | | |

분석을 위한 주요 운전 조건은 현재 발전소에 설치된 설비의 표준 운전조건을 참조하여 air로 가정한 feed 가스가 시간당 약 150톤 규모로 반응기 내부로 투입하는 것으로 하였다. 대상 system은 외부 가스 feed라인 및 내부의 주입홀로 구성된 환형가스 주입 장치로 한정하였으며 대상 공정의 구조 및 기타 운전조건은 Table 1과 같다.

C. 분석 방법

본 논문에서 촉매 반응기 내부 feed가스 분산성 향상을 위한 CFD 해석은 상용 소프트웨어 (FLUENT)를 기반으로 하였다 [8]. 해석 영역은 주입홀에 따른 환형가스 주입장치만으로 한정하였으며 반응기 내부에 동일한 간격으로 가스 주입홀이 구성될 수 있도록 배치하였다 [Fig. 2]. CFD 해석을 위한 격자 생성(Meshing) 작업은 Ansys Meshing을 활용하였으며 격자의 개수는 일차로 3만개, 7만개, 10만개 수준에서 생성 후, 각각의 case에 대한 mesh skewnesss 분석 및 메모리 사용량 등을 고려하여 7만개로 선정하였다 [Fig. 3]. 계산에 있어 운전조건은 촉매 반응기 내부로 투입되는 feed가스의 선속도가 충분히 높은 상태로 난류영역에 속하기 때문에 전체 계산은 이에 적합한 난류 모델을 적용하였다.

상기 시스템을 대상으로 한 유동 분석에 있어서 계산시간을 단축하고 컴퓨터 메모리 사용량을 최소화하기 위하여 최종결과에 큰 영향을 주지 못하는 인자에 대하여서는 다음과 같은 가정을 설정하였다.

가) 화학반응 없음: 반응이 유동에 미치는 영향은 제외함.
나) 유체물성 일정: 반응기 내 점도 및 밀도 변화 없음
다) 난류가정 적용: standard k-epsilon model 적용

다양한 난류 모델 계산 방법으로 FLUENT/CFX에서는 standard k-epsilon model, RNG k-e model, Shear stress transport k-w model등을 포함하는 다양한 방법 등이 지원되나 model의 건전성과 계산시간을 고려하여 본 논문에서는 일반적인 난류 모델 solver인 standard k-epsilon model을 사용하였다. 촉매반응기 내부 가스 유동 해석을 위한 standard k-epsilon model에서 standard transport equation은 Eq. 1～2와 같다.

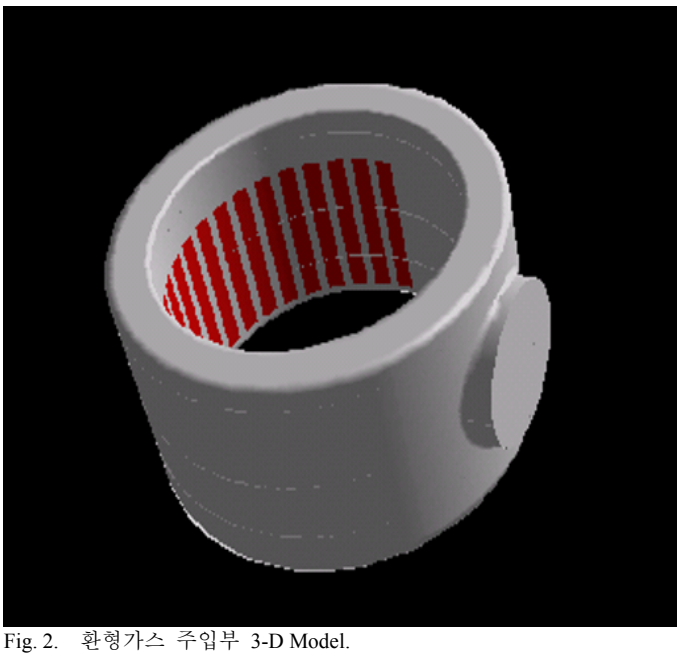


Fig. 2. 환형가스 주입부 3-D Model.

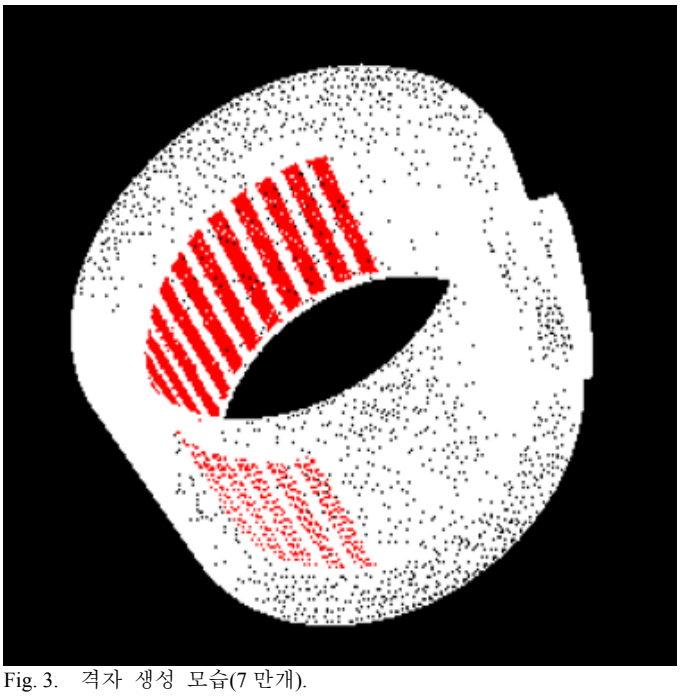


Fig. 3. 격자 생성 모습(7 만개).

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k)+\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho k u_i)=\frac{\partial}{\partial x_i}\left[\left(\mu+\frac{\mu_t}{\rho_k}\right)\frac{\partial k}{\partial x_i}\right]+P_k+P_b-\rho\varepsilon-Y_M+S_K \tag{1}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho\varepsilon)+\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho\varepsilon u_i)=\frac{\partial}{\partial x_j}\left[\left(\mu+\frac{\mu_t}{\rho_\varepsilon}\right)\frac{\partial k}{\partial x_j}\right]+C_{1\varepsilon}\frac{\varepsilon}{k}(P_k+C_{S\varepsilon}P_b)-C_{2\varepsilon}\rho\frac{\varepsilon^2}{k}+S_\varepsilon \tag{2}$$

Turbulent (or eddy) viscosity, $\mu_t$ 는 다음과 같이 위의 식에서 도출된 $k$와 $\varepsilon$을 통해 다음의 Eq. 3에 의해 계산이 된다.

$$\mu_t=\rho C_\mu\frac{k^2}{\varepsilon} \tag{3}$$

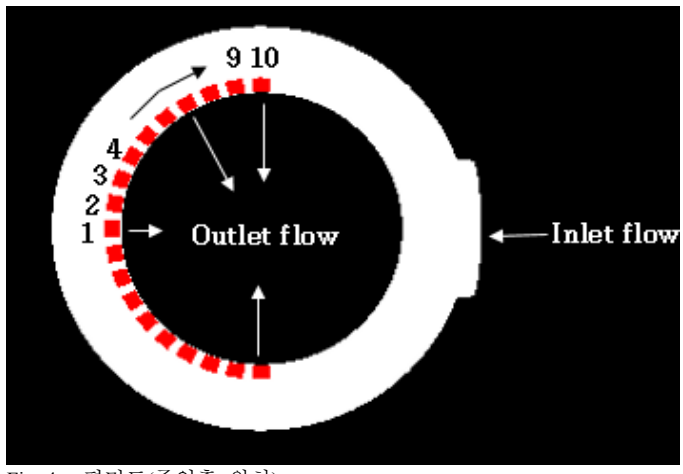



Fig. 4. 평면도(주입홀 위치).

$k$ 생성도, $P_k$는 다음과 같다

$$P_k=-\rho\overline{u_i u_j}\frac{\partial u_j}{\partial u_i} \tag{4}$$

$$P_k=u_j S^2 \tag{5}$$

$S$는 mean rate-of-strain tensor modulus 이며 다음과 같이 정의된다. $P_b$는 부력의 효과로 다음과 같이 정의된다.

$$P_b=\beta g_i\frac{\mu_t}{Pr_t}\frac{\partial T}{\partial x_i} \tag{8}$$

여기서 $Pr_t$는 난류 Prandtl 수, $g_i$는 $i$방향의 중력항이다. Thermal expansion 상수 $\beta$는 다음과 같이 정의된다.

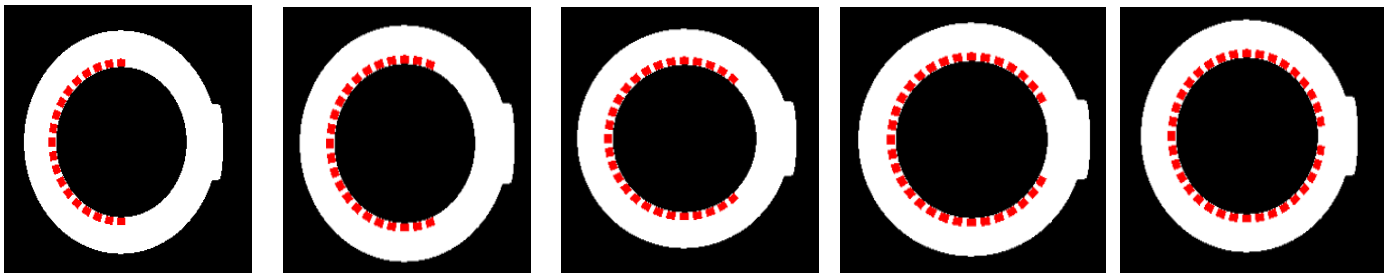
$$\beta=\frac{-1}{\rho}\left(\frac{\partial\rho}{\partial T}\right)_P \tag{9}$$

여기서 $k$는 turbulent kinetic energy, $\varepsilon$는 rate of dissipation이다 [6]. 상기 제시된 모델을 바탕으로 기준 운전 조건하에서 환형가스 주입장치를 통해 촉매반응기 내부로 투입되는 가스의 유량을 계산하고 이를 기초하여 Fig. 4와 같이 가상으로 설정된 반응기 4분면에서의 가스 분산성을 분석하여 최적 설계안을 탐색하였다.

Fig. 4의 방법으로 주입홀의 위치를 확인하고, 각 사분면을 기준으로 하여 내부로 투입되는 feed가스의 질량유속(mass flow rate)을 산출함으로써 종합적으로 반응기 내부의 분산성을 확인하고자 하였다.

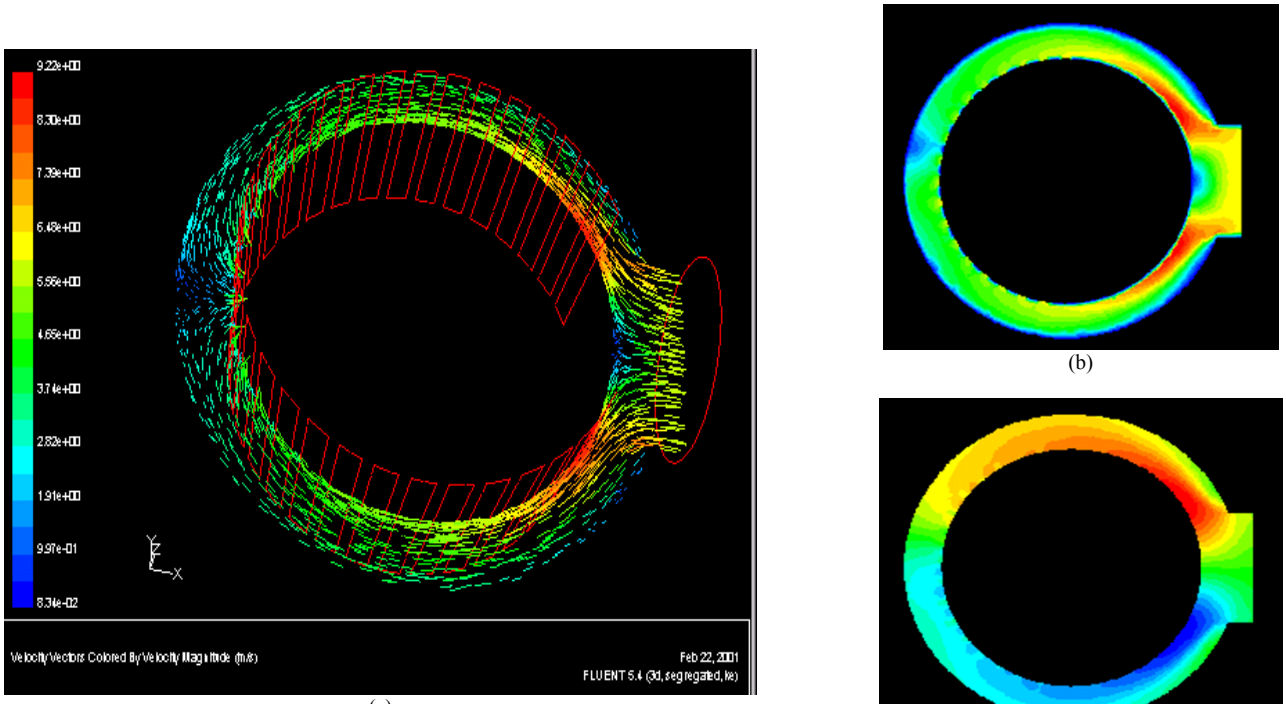
## D. 분석대상

다양한 설계조건 하에서 촉매 반응기 내부 feed가스 분산성 향상을 위한 최적의 주입홀 구성안을 도출하기 위하여 다음과 같이 다양한 경우에 대해 주입홀을 구성하였다. 구체적인 구성방법으로는 다음의 Fig. 5와 같이 4분면상에 구성된 전체 주입홀의 개수가 19개에서 시작



C case-a) hole: 19 case-b) hole: 23 case-c) hole: 27 case-d) hole: 31 case-e) hole: 35

Fig. 5. 분석 Case.




(a) (b) (c)

Fig. 6. Baseline 유동 분석. (a) velocity vector. (b) Radial flow. (c) tangential flow.

하여 상/하단부가 각각 2개씩 증가하여 전체적으로 23, 27, 31, 35개 까지 주입홀을 증가시킨 경우에 대하여 분석을 수행하였다. 이때 주입홀 간 간격은 동일(5도)하게 유지하였으며 1,2 사분면과 3,4분면에 주입홀이 동일한 방식으로 배치되는 것으로 하였다.

## III. 분석 결과

### A. Baseline case

상기 분석안에 대하여 환형 가스 주입장치 내부에서의 가스상 흐름을 이해하기 위해 다양한 방법으로 분석을 수행하였다. Fig. 5의 case a (주입홀 19개)에 대하여 상기 제시된 운전조건에 따른 유동해석을 분석한 결과는 다음과 같다. 환형 가스 주입장치 중앙부 단면도(평면)에서의 속도 벡터 분석결과(Fig. 6) 주입홀 #1에서 주입홀 #5 부근에서는 촉매 반응기 내부로 유입되는 가스의 흐름이 생기지만 주입홀 #10 이상에서는 접선 방향의 흐름이 우세하여 고정상 촉매 반응기 내부로 유입되는 가스의 유량이 크지 않음을 확인할 수 있다. 이는 Fig. 6(b) 및 6(c)의 velocity contour 분석에서도 확인할 수 있다. 즉 가스 주입구 위치에서의 빠른 유속으로 인해 환형 가스주입장치의 접선부근에서는 반응기 내부로 투입되는 가스의 양이 적으며 가스 주입부의 맞은편이 가장 높은 것으로 평가되었다. 이러한 내용을 좀더 정량적으로 분석하기 위하여 각각의 주입 홀에서 가스의 질량 유속을 Fig. 7에 나타내었다. 분석결과 상기 유동 분석에서 확인한 바와 같이 환형 가스 주입장치 내부에 설치된 주입홀이 가스 주입구 위치와 가까운 곳에 위치할수록 주입 홀로 투입되는 가스의 질량 유속이 감소함을 확인할 수 있다.

### B. 주입홀 구조에 따른 가스 분산성 비교

상기 내용을 바탕으로 가스 주입홀의 구조에 따른 feed가스 분산성 비교를 위하여 앞서 제시된 바와 같이 다양한 주입홀 개수에 따른 유동분석을 수행하였다 (Fig. 8 참조). 분석결과 feed gas 투입구와 거리가 먼 주입홀에서 촉매반응기 내부로 투입되는 feed 가스의 유속이 컸으며, 주입홀의 번호가 증가할수록(즉, feed gas 투입구와

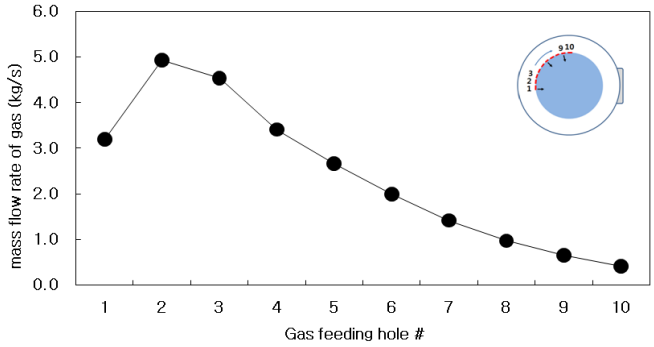



Fig. 7. 주입홀별 질량유속 분석(baseline case).

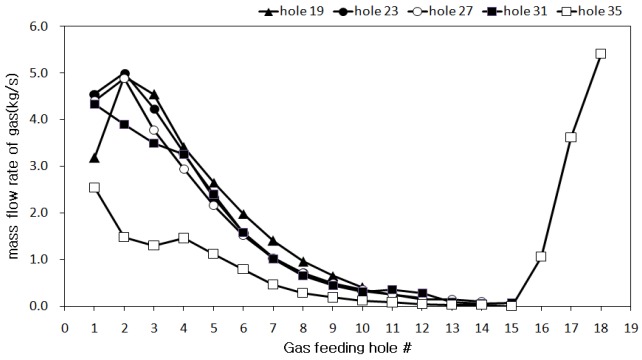


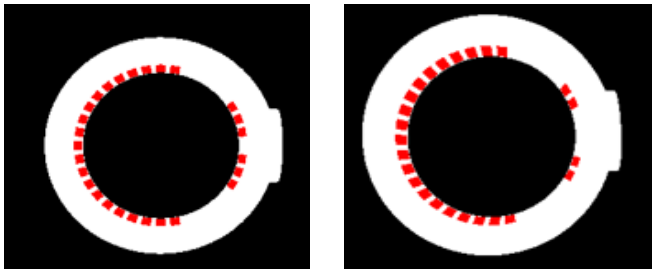

Fig. 8. 주입홀 구조별 질량유속 분석.

거리가 가까워 질수록) 촉매 반응기 내부로 투입되는 가스의 유속이 점점 낮아지는 것으로 예측되었다. 이러한 추이는 계속 지속되어 feed gas 투입홀 주변의 경우에는 촉매 반응기 내부로 투입되는 가스의 유속이 대단히 낮아서, 실제로 주입홀이 있음에도 feed 가스의 분산성 측면에서 효과가 미미할 것으로 사료되었다.

### C. 추가 분석

상기 유동 분석 및 주입홀 구조에 따른 질량유속 분석결과 기존의 경우에서 접선 방향으로 주입홀을 더 뚫어 주더라도 접선 방향의 속도가 우세해지므로 실제로 환형 가스장치를 통해 반응기 내부로 투입되는 가스의 분산성은 향상되지 않는다. 따라서 이러한 분석결과에 따라 이후에는 접 선방향에 위치한 주입홀의 위치는 제거하고 그 대신 주입구 위치 부근에 주입홀을 추가하여 사분면 상 가스의 질량 유속 분포에 관하여 살펴보았다(case-f, case-g, Fig. 9 참조)

앞선 분석결과 case-f, case-g를 적용한 결과와 기존의 경우 및 접선 방향으로 주입홀을 증가 시켰을 때와의 고정상 촉매반응기 내부로의 질량 유속을 비교한 결과(Fig. 10 참조) feed gas주입홀을 35개까지 뚫어준 경우(case e)와 feed가스 주입구 부근에 6개의 주입홀을 뚫어준 경우(case-f) 유사한 질량 유속 분포를 나타내었으며 가스 주입구 부근에 4개의 주입홀을 뚫어 준 경우(Case-g)에도 case c 대비 우수한 가스 분포 특성을 갖는 것으로 분석되었다. 결론적으로 주입홀 위치 최적화를 통해서 충분히 우수한 유속 분포의 확보가 가능할 것으로 예측되었다.



Case-f) hole: 31 Case-g) hole: 31

Fig. 9. 추가 분석 Case.

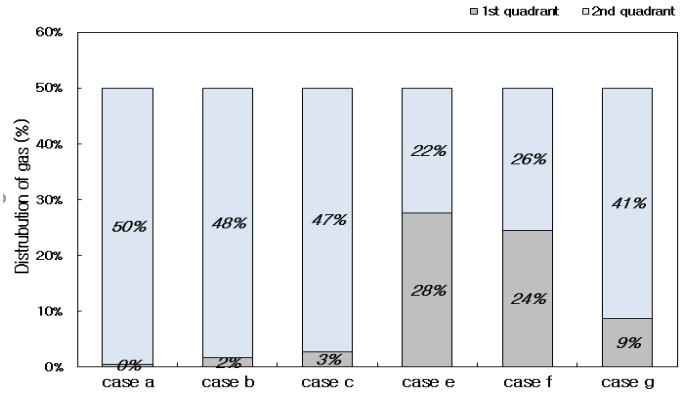



Fig. 10. 추가 분석 Case.

## IV. 결 론

다상 고정층 촉매반응기 최적설계 방안의 일환으로 반응기 내부로 투입되는 feed가스의 분산성 향상에 대한 연구를 수행하였다. 이를 위해 촉매반응에 참여하는 기상의 반응물이 반응기 외부에 설치된 환형 형태의 가스 주입 장치를 통해 반응기 내부로 주입하는 방안에 대해 다양한 조건하에서의 기체 분산성을 연구하였다. 상기 환형 가스주입 장치를 통해 반응기 내부로 투입되는 방식은 타 기술 대비 상대적으로 저렴한 투자비와 함께 좁은 영역하 에서 기체의 분산성을 향상시킬 수 있는 특징이 있어 실제 상업 공정에서의 활용성이 매우 높다. 본 논문에서는 상기 기-고 촉매반응기의 기체 분산성 분석을 위해 환형 가스 주입장치 내부 주입 홀에 대한 위치 및 구성을 달리하여 다양한 조건에서 분석을 수행하였다. 분석결과 주입홀의 위치가 가스 투입 라인의 접선 방향에 위치하는 것은 전체 분산성에 큰 영향을 주지 못하며 대부분 가스투입 라인 주변 그리고 맞은편 홀에 위치하는 경우에 분산성이 향상되는 것으로 분석되었다. 따라서 일부 불필요한 가스 주입홀은 환형 가스주입 장치의 비용 상승을 야기할 수 있으므로 기체의 분산성을 고려하여 최적화된 설계가 필요함을 알 수 있었다. 향후 본 연구에서 확보한 촉매반응기에 대한 기체 분산성 향상 방안은 많은 유사한 공정의 최적화 및 설계에 효과적으로 사용될 수 있을 것으로 기대된다.

## REFERENCES

[1] Hui Pan, Xi-Zhong Chen, Xiao-Fei Liang, Li-Tao Zhu, Zheng-Hong Luo, “CFD simulations of gas–liquid–solid flow in fluidized bed reactors A review”, Powder Technology, 299, 235-258, 2016.

[2] Xi Gao,Ya-PingZhu,Zheng-hongLuo , " CFD modeling of gas flow in porous medium and catalytic coupling reaction from carbon monoxide to diethyl oxalate in fixed-bed reactors", Chemical Engineering Science 66, 6028–6038, 2011.
[3] Qi Yang, Abdallah S. Berrouk, Yupeng Du, Hui Zhao, Chaohe Yang, Mohammad Abdur Rakib, Abdulhamid Mohamed, Anood Taher, "CFD investigation of hydrodynamics, heat transfer and cracking reactions in a large-scale fluidized catalytic cracking riser", Applied Mathematical Modelling 40, 9378–9397, 2016.
[4] Abdel-Samea Abdel-Fattaha, Seif-Eddeen K. Fateena,b,∗,Tarek M. Moustafaa, Mai M.K. Fouad, "Three-dimensional CFD simulation of industrialClaus reactors", chemical engineering research and design 112, 78-87, 2016.
[5] Efrain Quiroz-Perez, Efraín Quiroz-Pérez, Richart Vázquez-Román, Florianne Castillo-Borja, Roberto Hernández-Barajas, "A CFD model for the FCC feed injection system", Fuel, 186, 100-111, 2016
[6] Ji Hyun Lee et al., "Analysis of the gas distribution at the gas sweetening absorber using CFD", Korean Chem. Eng. Res., 52(3), 314-320, 2014
[7] www.heatran.com
[8] FLUENT/CFX, ANSYS, INC