

Draft Tube를 이용한 내부순환유동층 반응기의 원리와 응용

김상돈 · 송병호

한국과학기술원 화학공학과

The Principles and Applications of Fluidized Bed Reactor with a Draft Tube

Sang Done Kim and Byung Ho Song

Department of Chemical Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology,
Taejon 305-701 Korea

1. 서 론

내부순환유동층이란 전형적인 기-고체 유동층 내부에 보조장치로서 원형관(draft tube) 또는 평판(partition plate)을 삽입하여 단일용기를 두 개의 층으로 분리하고 층 사이의 개방면적(opening area)을 통하여 입자의 순환이 일어나도록 하는 반응기 형태이다. 이 시스템은 두 개의 층으로 독립적으로 가스를 주입함으로써 반응기내 입자의 순환을 인위적으로 조절할 수 있기 때문에 층물질의 체류시간을 조절할 수 있으며, 고체입자의 agglomeration이나 segregation, 미세입자의 비산을 격감 시킬 수 있으므로^{19,22)} 전형적인 유동층에 비해 높은 전환율을 기대할 수 있다. 최근 이와 같은 내부순환유동층을 석탄가스화공정^{1,3,21,42)} 열분해공정^{46,55)}에 응용하고자 하는 연구가 활발히 진행되고 있다. 아직까지는 이 새로운 반응기 형태에 대한 이해가 충분히 이루어지지는 않았지만 현재까지의 연구결과들을 토대로 내부

순환유동층의 원리와 그 응용분야를 종합검토하는 것은 이 분야의 연구를 위하여 의미있는 일이다.

2. 내부순환유동층의 원리

2-1. Draft tube를 갖는 순환유동층

순환유동층은 주탑에서 비말동반된 입자를 cyclone과 입자포집장치에서 회수하여 주탑으로 재주입함으로써 입자의 순환이 일어나는 외부순환계와, draft tube나 평판을 설치하여 두 개의 층으로 분리한 후 가스분산판 위의 간격(orifice opening)을 통해 입자들을 두 구역사 이로 강제로 순환시키는 내부순환계로 분류할 수 있다. 외부순환식 유동층은 주탑과 보조 bed를 연결하기 위한 부속장치가 필요하며, 통상의 유동층 반응기에 비해 cyclone 입구에서 분진농도가 상당히 높으므로 집진효율이 높은 cyclone이 요구된다. 또한 두 개의 bed를 사용하기 때문에 유동층 구조가 복잡해지고 층의 상당직

김 상 돈



- 카나다 Univ. of Western Ontario
공학박사
- 미국 Illinois 주립대학 에너지 자원
연구소 연구원
- 카나다 동자부 에너지 연구소 초빙
연구원
- 불란서 CNRS 화공 연구소 초빙 연
구원
- 현 Energy-The International Jour
nal, Associate Editor
- 현 한국과학기술원 연구처장, 화공과
교수
- 현 한국과학기술원 부설 에너지 ·
환경 연구센터 소장
- 현 한국화학공학회 사업이사
- 현 한국에너지공학회 학술간사/이사

송 병 호



- '79~'86 한양대 화공과
- '86~'88 한국과학기술원 (석사)
- '88~'93 한국과학기술원 (박사)
- '93~현재 군산대 화공과 전임강사

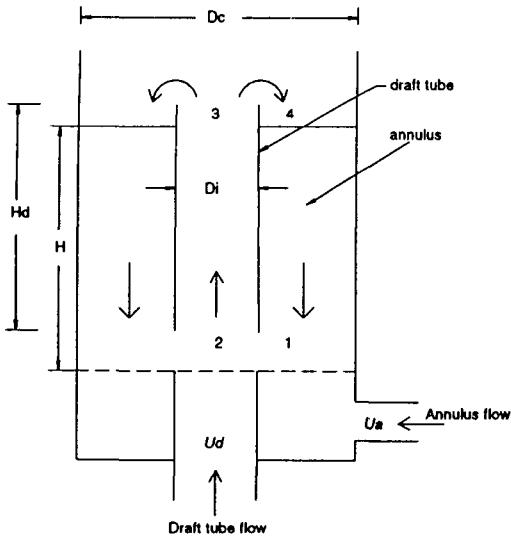


Fig. 1. Fluidized bed with a draft tube

경에 대한 높이의 비(H/D_c)가 커서 장치비가 많이 들며 가압조업에 융통성이 적은 것으로 알려졌다.⁵⁾

Draft tube를 갖는 순환유동층은 Fig. 1에 나타낸 바와 같이 층의 중심부에 축방향으로 draft tube를 삽입하여 두 층 사이로 입자의 순환이 이루어지도록 한 것이다. Draft tube 하부에 위치한 분산판의 중심부를 통해 가스를 주입하면 입자들은 draft tube를 따라 상부로 이송된 후 annulus쪽으로 넘어가 하강한다. Draft tube로 보다 빠른 유속의 가스를 주입함으로써 야기되는 두 층사이의 밀도차가 입자순환의 원동력이 된다. 입자순환을 보다 원활하게 하고 draft tube에서 choking 현상을 방지하기 위해 annulus(원환부)는 보조가스를 주입하여 aeration 시킨다. 보통 annulus는 최소 유동화상태에 가깝도록 유지하며 draft tube 구역은 bubbling 혹은 slugging 상태로 조업한다. Draft tube 하부의 형상을 변화시켜 두 층사이의 가스분산을 조절할 수 있으며 주입가스들을 조절함으로써 입자순환속도를 쉽게 조절할 수 있으므로 반응기설계에 수용폭(flexibility)이 크다. 액체-고체 그리고 액체-기체-고체 접촉반응기에도 이와 유사한 개념이 적용된 바 있다.³⁸⁾

이 시스템은 draft tube를 반응기 내부에 설치하므로 가압조업에 유리하다. 또한 싸이크론을 반응기내부에 설치할 경우 foot-valve를 사용하지 않고도 적절한 압력이 유지되는 구역으로 diplegs를 설치할 수 있으며 미분이 하강하는 annulus 구역으로 주입되므로 재 비산이 격감될 수 있다.⁴³⁾ 순환유동층 석탄연소로의 경우 다음과 같은 장점이 있다.²⁸⁾

- 1) 층 입자의 순환속도를 조절할 수 있으므로 turn-

down이 용이하고, start-up과 shut-down이 간단하다. 2) 높은 입자순환속도로 인해 고체원료 공급점에서 석탄의 caking과 agglomeration이 적고 층내 입자분리(segregation)도 거의 없다. 3) annulus에 형성되는 이동층은 유동층보다 큰 열전달계수를 갖으므로 이동층의 열전달능력을 활용할 수 있다. 4) 구조가 간단하여 반응기의 제어와 설계가 간편하다.

2-2. Draft tube를 갖는 spout-fluid bed

Spouted bed는 유동층과는 조업특성이나 설계조건이 다르긴 하나 그 변형 중의 하나로 초기에는 annulus 구역에 보조기체를 주입하여 기-고체 접촉의 개선을 꾀하였는데,^{8,48)} 이 형태를 spout-fluid bed라고 부르며 이후에 draft tube가 사용되기 시작하였다.³⁰⁾ Draft tube를 갖는 spout-fluid bed는 가스주입을 위해 분산판(distributor) 대신 nozzle을 사용한다는 점에서만 draft tube를 갖는 순환유동층과 차이가 나기 때문에 반응기를 명명하는데 있어 확실한 구별은 이루어지지 않고 있다.

전형적인 spouted bed에서는 층높이 전반에 걸쳐 spout가 annulus의 고체와 계속 접촉하므로 spout jet는 주변의 annular 층을 지지할 수 있어야 한다. 따라서 spout는 annulus 보다 높은 압력을 유지하여야 하는데, 이 압력차이로 인해 spouting 가스는 계속 annulus로 스며들게 된다. Spout가 층을 지지못할 정도로 층이 깊을 경우 층의 전복이 일어나는데 이 때의 층높이를 maximum spoutable bed height라고 한다.³¹⁾ 이 maximum spoutable bed height라는 고유적인 층높이 한계는 고온의 조업하에서는 더 감소하여 반응기로서의 조업성이 제한된다. Draft tube를 삽입하면 draft tube가 annulus의 고체를 지지하여 상기한 층높이의 제한이 없어질 뿐더러 spout 가스의 손실도 격감된다.^{47,55)} 또한 draft tube 하부로 유입되는 고체와 draft tube로 주입되는 기체간에 slip velocity가 매우 크기 때문에 기-고체간의 열전달이 뛰어난다.

3. Draft tube를 갖는 순환유동층의 수력학적 특성

입자의 순환은 결국 입자의 체류시간분포, 층내 분산, 혼합특성에 영향을 미칠 뿐만 아니라 기체상의 분산과 밀접한 관계가 있으므로 반응기의 성능을 예측하는데 가장 중요한 변수이다. Non-isothermal 반응의 경우 고체입자들은 열부하의 상당량을 지닌채 반응기내를 순환하므로 이러한 계에서 층물질의 순환속도를 예측하는 것은 매우 중요하다. 또한 독립적으로 주입되는 가스들은 타구역으로 bypass되는 경향이 있는데 만약

Table 1. Summary of test conditions for circulating fluidized bed with a draft tube

Autors [Ref.]	Bed dia. D_c [m]	Draft $D_i \times H_d$ [m]	D_i/D_c	Distributor ⁺⁺ Annulus Draft	Solids $d_p (\rho_s)$ [mm] [kg/m ³]	U_a/U_{mf}	U_d/U_{mf}^{**}	W_s [kg/s]
Ishida and Shirai [15]	0.28*	0.028×0.45	0.10	F Perforated	alumina 0.34	0-1.0	—	—
LaNauze [25]	0.30	0.15×0.6 0.20×1.2	0.50 0.67	F Perforated	sand 0.17 (2630) catalyst 0.07 (900)	0-1.5	16	15.7
Yang and Keairns [55, 56]	0.286*	0.096×1.2	0.34	F, C ND=25	Polyethylene 2.8 (907) epoxy shpere 2.8 (210)	0-1.0	11	3.2
Judd <i>et al.</i> [19]	0.5	0.15×1.5	0.30	C, RS Tuyer	sand 0.64 (2480)	0-1.0	13	10.3
Bolten and Davidson [6]	0.285	0.186×0.37	0.65	C Perforated	vermiculite 0.2 (384)	0-4.5	30	1.0
Song <i>et al.</i> [45]	0.3	0.096×0.3 0.096×0.6	0.32	F, C, RS Bubble cap	sand 0.3 (2620)	0-1.6	20	3.1
Yang and Keairns [58]	0.22 ⁺	0.029	0.13	F ND=15.7	sand 0.61	1.0	45	0.69
Claflin and Fane [11]	0.3	0.05×0.8 0.08×0.8	0.17 0.27	C ND=50	wheat 3.5	—	—	—
Tsuchiya [50]	0.1	0.02×2.15	0.20	C ND=20	iron powder 0.15, 0.21, 0.27 (7680)	0.0	128	0.20
Uemura <i>et al.</i> [51]	0.1	0.02	0.20	C ND=20	glass bead 0.21, 0.28, 0.08, 1.54	0.0	16	0.12
Muir <i>et al.</i> [37]	0.2*	0.023×0.6 0.040×0.6	0.12 0.20	C ND=27	sand 1.02 (2560)	0-0.9	75	1.26
Milne <i>et al.</i> [34]	0.2*	0.031×0.9 0.044×0.9	0.16 0.22	C ND=26	sand 0.61, 1.31	0-1.4	83	0.45

* : Semi-cylindrical bed, + : 2-dimensional, ++ : Annulus base: F=flat, C=conicial, RS=ring sparger, Draft gas supply: ND=nozzle diameter [mm], ** : maximum operating gas velocity

annulus와 draft tube를 각각 상이한 반응구역으로 사용하려는 경우 가스 bypass에 대한 이해가 필요하다. 상기와 같은 반응기내 기-고체 거동을 좌우하는 설계 인자로는 분산판의 형태, annulus와 draft tube의 면적비, 분산판과 draft tube 입구사이의 거리 등이 있다. 이처럼 반응기의 형상변수가 비교적 다양한 관계로 아직은 반응기의 수력학적 거동을 예측하기 위한 상관식 조차 일반화된 것은 없으며 주로 형상변수와 조업변수에 따른 입자순환속도 특성에 대한 연구들이 수행되었다. Table 1에는 draft tube를 갖는 순환유동층 및 spout-fluid bed에서 수력학적 특성에 대한 연구를 요약하였다. 기체상의 cross-flow에 대한 이해는 아직 미흡하며 충내 기포특성이나 미세입자의 비산특성에 관한 연구도 필

요한 상태이지만 현재까지 발표된 연구결과를 바탕으로 형상변수 및 조업변수들이 반응기내 기-고체 거동에 미치는 영향을 알아본다.

3-1. 고체입자의 순환속도

3-1-1. 입자순환속도의 측정

입자순환속도의 측정에 사용되는 여러 가지 방법을 Table 2에 요약하였다. 추적자로는 주로 radio pill이나 금속입자가 사용되고 있으나 이 경우 층물질과 상이한 물성을 갖을 수 있으므로 층물질 자체를 형광물질로 염색하거나 가열하여 추적자로 사용하기도 한다. 염색된 층입자를 사용한 실험에서 추적자의 크기도 영향을 미치는 것으로 확인된 바³⁵⁾ 있으므로 층물질과 유사한

Table 2. Measuring methods of particle velocity

Bed material	d_p [mm]	ρ_p [kg/m ³]	Tracer	Method	References
Sand	0.61	2620	Particle (16 mm)	Stop watch	[56, 57, 58]
PE bead	2.8	907	Radio pill (13-25 mm)		
Sand	0.17	2630	Radio pill (20 mm)	Aerial	[25]
Sand	0.64	2480	Radio pill (6 mm)	Scintillation counters	[19]
Sand	0.1	2600	Particle gluing a tiny Co^{60} source on a fuel grain	γ -detector	[29]
Vermiculite	0.2	384	Metallic pill around the annulus	Two coiles wrapped	[6]
Sand	0.41	2636	Particle dyed with a fluorescent sulphur based dye	Camera & UV filter	[35]
Alumina	0.16	1540	Particle treated with fluorescent dye	Optical fiber probe	[24]
Sand	0.34	2600	Heated sands	Thermistor probes	[10, 45]
Iron powder glass beads		7680	—	Solids separation device and load cell	[16, 50, 51]
Alumina	0.16	1540	—	Measuring box, Wedge- shaped 200 mesh gauz net	[23]
Sand	1.02	2560	—	Mechanical screen weighing separator	[4, 37]
Sand	0.6	2480	—	Probe fitted with a pivot rod and a strain gauge (can be operated at hot conditions)	[17]

밀도를 갖더라도 추적자의 입자크기를 선정할 때 주의가 필요하다 하겠다. 대개의 경우 annulus에서 하강하는 입자의 속도를 측정하는데, annulus 층이 유동화될 경우에는 상승하는 기포로 인하여 측정이 거의 불가능해 진다. 따라서 최근에는 아예 추적자를 사용하지 않고 annulus의 유동 상태에 무관히 입자속도를 측정할 수 있는 “mechanical screen” 방법^[4,37]과 load cell이나 strain gauge를 사용한 측정방법^[12,17]이 고안되었다.

3-1-2. 가스주입부의 형상에 따른 영향

가스주입부의 형상은 가스 bypassing 특성을 좌우하여 결국 입자순환특성에도 크게 영향을 미친다. 가스 주입부는 draft tube와 annulus 주입부를 따로 고려할 필요가 있다. Table 1을 잘 살펴보면 draft 가스주입부의 형태는 draft tube의 직경에 의해 좌우되고 있음을 알 수 있다. 즉 비교적 큰 직경의 draft tube($D_t/D_c > 0.3$)가 사용되는 경우에는 주로 가스분산판(distributor)이 사용되고 있으며, $D_t/D_c < 0.3$ 의 draft tube에는 대부분 가스 노즐(nozzle)이 사용된다. 보조가스 주입을 위한 annulus 가스주입부로는 평판형이나 원추형이 사용된다. 평판형을 사용한 경우 분산판 바로 위의 반응기 벽면구역에서 고체입자들의 정체구역이 관찰된 적이 있으며,^[26] 근래에는 원추형을 사용하는 추세이다. Yang과 Keairns

^[56]는 annulus 가스주입부로 원추형과 평판형을 모두 사용하긴 하였으나 이들이 입자순환에 나타내는 차이를 명확히 설명하지 못하였으며 단지 60과 90도 앙각을 갖는 원추형을 시험해 본 결과 입자순환속도에 별 차이가 없다고 하였다. 원추형분산판을 갖는 반응기 형태에서 annulus의 aeration을 위해 ring sparger가 부가적으로 사용된 바도 있다.^[19,43] Song 등^[45]은 분산판의 형태가 입자순환속도에 미치는 영향을 조사하여 Fig. 2와 같은 결과를 얻었다. 즉 평판형분산판, 원추형분산판, ring sparger의 순서로 보다 큰 입자순환속도를 나타내고 있다. 그러나 가스의 bypass 정도는 평판형분산판을 사용한 경우가 가장 크게 나타나 반대순서를 보여 결국 입자순환속도와 가스 bypass는 서로 보상효과를 보이고 있다.

3-1-3. Draft tube 형상에 따른 영향

Draft tube의 내경은 결국 반응기의 용량을 결정하게 된다. Table 1에 수록한 입자순환속도 W_s 를 내경비 D_t/D_c 와 연관하여 살펴보면 비록 층물질의 물성이 각기 다르지만 입자처리량은 내경비에 어느 정도 비례하고 있음을 알 수 있다. 입자순환속도를 annulus의 단면적에 기초한 mass flux로 표현할 경우에는 큰 내경의 draft tube를 사용할 수록 입자 flux는 증가한다. 직경 0.3 m의

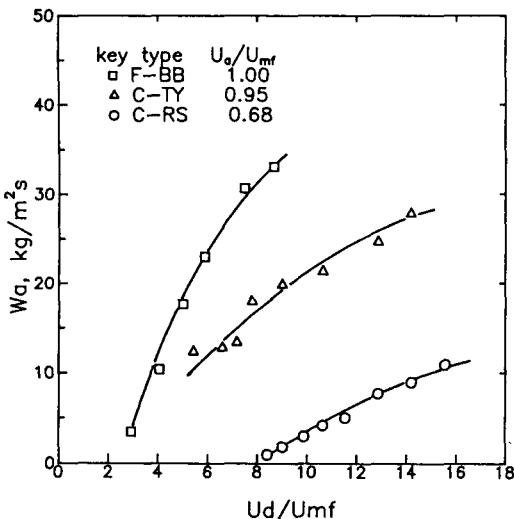


Fig. 2. Effect of draft tube gas velocity on the solids circulation rate with different gas distributors [45]: F-BB; flat base-bubble cap distributor, C-TY; conical base with tuyers, C-RS; ring sparger for annulus aeration

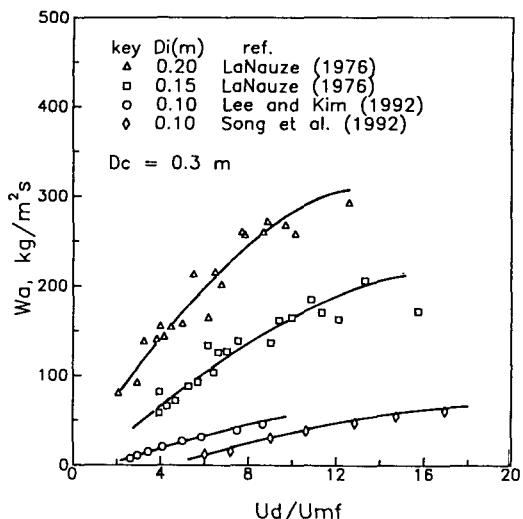


Fig. 3. Effect of draft tube diameter on solids circulation rate

반응기를 사용한 경우^{25,26)}에 대하여 draft tube의 내경에 따른 입자순환속도의 변화를 Fig. 3에 비교하였다. Draft tube의 길이는 입자순환속도에 별 영향이 주지 않는 것으로 나타나고 있는데 이는 draft tube의 길이가 증가한 만큼 전단응력(shear force)도 따라 증가하기 때문이다.^{25,45)} 한편 두 층 사이의 기-고체 접촉을 향상시키기 위해 porous draft tube가 사용되기도 하였다.¹¹⁾

3-1-4. Draft tube 입구와 분산판사이의 간격(gap height)

i) opening 면적은 안정된 입자의 순환을 얻는데 매우 중요하다. 입자순환속도는 gap height의 증가에 따라 크게 증가한다. 즉 좁은 gap height를 사용하면 입자순환속도가 감소하는데 이는 물리적인 장애로 작용할 뿐만 아니라 가스 bypassing도 변화하기 때문이다. Gap을 넓힐 경우 어느 한계까지는 입자의 유연한 흐름을 기대할 수 있다. LaNauze²⁵⁾의 실험에서는 gap을 28 cm 까지 사용하였을 때 가스유속의 제한없이 입자순환속도는 계속 증가하는 것으로 나타났다. 그러나 너무 넓은 gap을 사용할 경우에는 start-up에 문제가 일어날 수 있는 것으로 알려졌다.⁵⁹⁾ Masson²⁹⁾은 피라미드 형상(45°) 분산판을 갖는 사각형 용기($0.18 \times 0.18 \text{ m}$)에서 draft tube의 수직위치에 따른 입자순환속도를 조사한 결과 draft tube 입구가 분산판 상단과 일치될 때를 최적형상으로 지목하였다.

3-1-5. 정지층 높이의 영향

Mohamed 등³⁵⁾은 입자순환속도는 draft tube 위의 층높이에 영향을 받지 않는다는 LaNauze,²⁵⁾ Yang과 Keairns⁵⁷⁾의 결과와는 반대로 jet의 속도와 입자순환속도는 층높이에 민감하며 층높이가 draft tube의 상단 높이와 같을 때 가장 큰 층 공극율, 더 빠른 입자하강 속도를 보인다고 발표하였다. 마찬가지로 Masson,²⁹⁾ Lee와 Kim²⁷⁾의 실험결과에서도 정지층의 높이가 draft tube의 높이와 같을 때 가장 빠른 입자순환속도를 보이고 있다.

3-1-6. 층물질의 영향

층물질에 따른 영향은 단지 보조가스를 주입하지 않은 spouted bed에서 연구되었다. 층입자로 평균직경 0.2~1.5 mm의 glass beads를 사용한 Uemura 등⁵¹⁾은 입자크기의 영향이 별로 없다고 하였으나 iron powder(0.15~2.68 mm)를 사용한 Isoazki 등¹⁶⁾은 입자직경이 작을수록, 층의 무게를 증가할 수록 annulus로의 가스흐름에 저항이 증가하여 draft tube로의 고체유입이 원활해지기 때문에 입자순환속도가 증가한다고 발표하였다. 층입자의 물성에 따른 입자순환속도 및 가스 bypass 현상은 더욱 연구가 이루어져야 할 분야이다.

3-1-7. 가스유속의 영향

반응기의 사용목적에 따라 필요한 입자순환을 얻기 위해 draft tube를 회박상유동으로 조업하거나 저속의 가스를 주입하여 기포층으로 조업할 수 있다.^{15,25)} Fig. 3은 draft tube 주입가스유속에 따른 annulus에서 입자들의 mass flux를 나타낸 것이다. 주입가스의 증가에 따라 입자순환은 꾸준히 증가하다가 높은 유속 범위에서 증가속도는 감소한다. 가스유속이 증가하면 draft tube

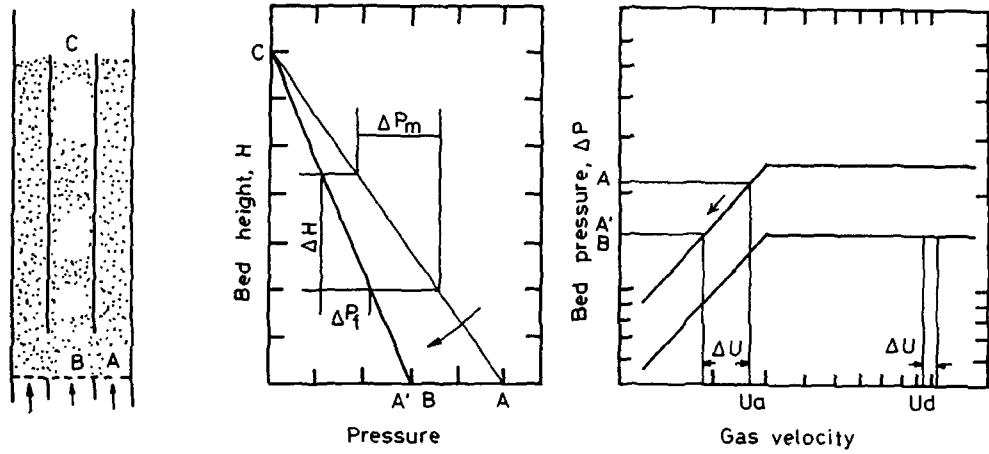


Fig. 4. Pressure-bed height-gas velocity diagrams in a fluidized bed with a draft tube

의 공극율(voidage)이 증가하여 결국 두 층간의 밀도차가 증가하므로 입자순환속도가 증가한다. 한편 가스유속이 증가하면 draft tube로 유입되는 가스 jet의 직경이 커져 draft로 유입되는 고체 cluster의 일부가 이동층으로 손실되고, draft 하부와 충돌하거나 혹은 draft tube 하부에서 입자들의 backmixing이 야기될 수 있으므로 일정유속 이상에서는 입자순환속도가 더 이상 증가하지 않는다. 높은 가스유속에서 오히려 입자순환속도가 감소한 경우도 있는데^{43,45)} 이 경우 draft tube로 주입된 가스의 일부가 annulus로 현저하게 bypass되어 annulus 하부로부터 draft tube 입구로 유입되는 고체의 흐름을 방해할 수 있다. 비교적 큰 직경의 draft tube를 사용한 경우^{43,45)}에는 slugging mode가 관찰되는데 이 그림에서도 draft tube는 대부분의 유속범위에서 slugging 상태로 조업되었다. Draft tube 자체는 전형적인 유동층에 비해 직경대비 길이가 길기 때문에 낮은 가스유속 범위에서도 기포 합체로 인해 tube내에서 큰 기포가 쉽게 형성되어 slugging이 이루어지게 된다.

Annulus에 보조가스를 주입하면 입자순환이 현저히 증가하며 보통 보조가스의 유속이 낮은 범위에서 입자순환이 두드러지게 증가한다. Annulus 가스는 낮은 유속에서 draft쪽으로 bypass되는 경향이 있어 결국 보다 많은 고체가 draft 구역으로 유입되는 것을 돋보인다. 높은 유속의 보조가스를 주입하면 그만큼 annulus로 많은 가스가 상승하여 annulus층의 압력강하를 감소시키며 annulus 고체를 하강시키는 힘은 더 이상 증가하지 않는다. Yang과 Keairns^{56,57)}는 3~18 m/sec의 유속을 사용하여 draft tube내의 고체들을 회박상(dilute phase)으로 수송하였는데 입자순환속도가 현저히 증가하게 되는 최소의 annulus 가스유속(입계유속)이 존재한다고 하였다. Polyethylene을 층물질로 사용한 경우 이러한

입계유속은 $U_a/U_{mf}=0.42/0.76$ 으로 나타났다. 또한 Yang과 Keairns⁵⁵⁾는 고체원료 주입을 위해 가스노즐 주위에 설치한 concentric feeder를 통해 제3의 가스를 주입할 경우 최고의 입자순환을 얻었다고 발표하였다. 이외에 Ta'eed 등⁴⁹⁾은 draft tube 대신에 수평, 수직의 jet을 주입하여 입자를 순환시켜 본 결과 draft tube를 사용하였을 때와 마찬가지로 층유속의 증가에 따라 입자순환속도는 증가하였으며 효과적으로 입자를 순환시킬 수 있는 최적의 jet 흐름이 존재한다고 하였다. Muir 등³⁷⁾은 video camera로 반응기 하부를 관측하여 입자순환특성을 가스 jetting 현상과 관련하여 설명하였다.

Draft tube가 없는 시스템⁴⁸⁾과 draft tube는 있으나 annulus 보조가스를 사용하기 않는 시스템에 있어서는 반응기내 flow regime에 대해 논의된 바 있으나⁵¹⁾ draft tube를 갖는 순환유동층에서의 flow regime에 대한 연구는 전무한 상태이므로 이에 대한 연구가 필요하다 하겠다.

3-2. 가스의 bypass 현상

Draft tube를 갖는 순환유동층에서는 입자순환속도가 장치하부의 형상에 크게 영향을 받게 되는데 이는 결국 두 개의 구역으로 주입된 가스가 상호 타 구역으로 bypass되기 때문이다. 이러한 관계는 가스 bypassing 특성의 이해가 필수적임을 의미한다. 만약 두 개의 층에 상이한 반응가스를 주입함으로써 두 개의 반응구역을 유지하고자 할 때는 가능한 한 양쪽 구역으로 반응가스들을 완전히 분리해주어야 할 것이다. Draft tube를 갖는 순환유동층에서 가스 bypass의 원리는 이상적인 ‘압력-유속’과 ‘압력-층높이’ 관계를 도시한 그림에서 알아 볼 수 있다(Fig. 4). 그림에서와 같이 조업조건에서 양쪽 층이 수력학적으로 독립되어 있다고 가정하면

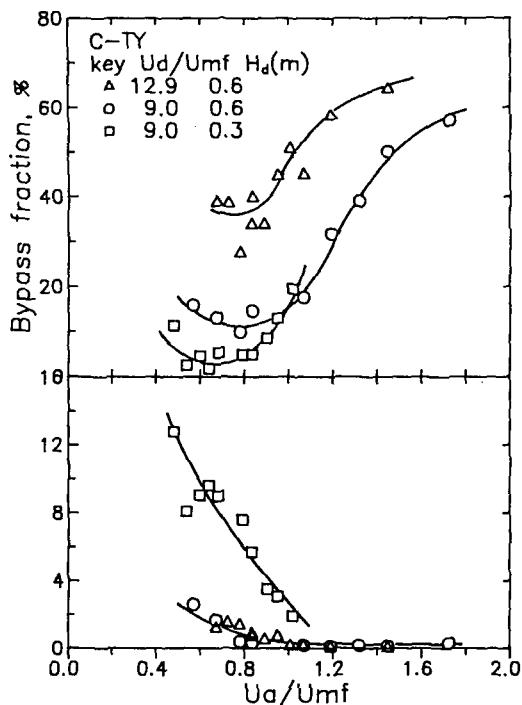


Fig. 5. Effect of annulus aeration on the gas bypass fraction [45]: Above; annulus to draft tube, Below; from draft tube to annulus

draft tube로 보다 높은 유속의 가스가 주입되어 draft tube의 총 공극율이 증가하고 annulus에 비해 압력강하가 적어진다. 만약 두 층이 수력학적으로 연결되면 annulus 주입가스는 두 가지 가능한 경로를 통해 흐를 수 있다: A-C 혹은 A-B-C. Draft tube 주입가스는 B-C 혹은 B-A-C의 경로로 흐를 수 있다. 그러나 뒤쪽 경로는 압력구배와 반대되는 경로이므로 무의미하다. Annulus 주입가스는 그림에서 나타난 바와 같이 압력강하가 평형이 되는 두 개의 경로로 나뉘어 질 것이다. Annulus 주입가스의 일부는 ΔU 만큼 draft tube로 흐르게 되는데 이 'bypass' 흐름은 경로 A-C에 따른 보상으로 이루어지며 결국 annulus를 통한 압력구배는 감소한다. Annulus를 통한 압력강하는 가스흐름의 변화에 매우 민감하나 draft tube는 가스흐름의 변화에 압력강하가 거의 영향을 미치지 않는 범위에서 조업된다. Annulus로부터 bypass로 인한 draft tube의 유속변화는 draft tube의 총 공극율에 약간의 변화를 주어 조업점도 약간 달라진다.

고체순환 혹은 draft tube의 slugging 거동 등과 같은 몇 가지 인자들도 상기한 이상적인 관계에 어느 정도 영향을 미칠 수 있으나 그 원리는 변하지 않는다. 즉

총내 가스흐름의 경로는 반응기의 형상변수 및 조업변수를 조절함으로써 변화시킬 수 있다. 그러나 아직까지는 가스 bypassing에 대한 이해가 부족한 편이다. 가스 bypassing의 측정에는 이산화탄소나 헬륨같은 가스추적자를 사용하여 추적자의 물질수치료부터 bypass되는 분율을 계산할 수 있다.²¹⁾ 이 때 annulus를 통과 상승하는 가스상은 혼합이 좋지 않은 것으로 알려진 바³⁶⁾ 있으므로 annulus 구역에서의 가스채취에는 주의가 필요하다.

Yang과 Keairns⁵⁷⁾는 입자순환속도가 가스 bypassing에 선형적으로 의존함을 제시하였다. 입자순환속도와 가스 bypassing량을 계산하기 위해 총내 각 부위의 압력균형을 토대로 수학적 전개를 시도하였으나 draft tube가 회박상 수송인 조건에서만 적용할 수 있다. 이들은 또한 원주형분산판을 사용한 실험에서 gap height가 14.1 cm로 좁을 때는 annulus로부터 draft로의 bypass가 지배적으로 나타나며 gap height가 21.7 cm로 넓을 경우 기체유속 비에 따라 지배적인 bypass의 방향이 뒤바뀌는 것으로 발표하였다.⁵⁶⁾

보조가스를 사용하지 않은 경우 annulus를 통과하는 가스량은 nozzle 주입가스량의 증가에 따라 최소값을 갖으며 gap height 및 충입자의 직경이 증가함에 따라 증가하는 것으로 나타났으며⁵¹⁾ draft tube 주입가스의 약 70%까지도 annulus쪽으로 bypass되는 것이 관찰된 바 있다.³⁶⁾ 보조가스유속에 따른 가스 bypass 분율을 조사한 결과를 Fig. 5에 보였다. 보조가스(U_d)를 주입하면 nozzle로부터 분출되는 jet 주변의 압력을 증대시켜 annulus쪽으로의 가스 bypass는 급격히 줄어드는 대신 보조기체는 draft tube쪽으로 많이 흐르게 된다. Draft tube쪽으로 bypass되는 보조기체는 draft tube 하부로의 고체이송을 증가시키는 효과를 주어 입자순환속도를 증가시킨다.^{36,45)} Draft tube 주입가스(U_d)를 증가시키면 draft 구역의 고체층에 걸리는 압력이 감소하여 보조가스가 보다 쉽게 draft tube로 bypass하게 된다. 최근 draft tube를 분산판 바닥까지 연장시킨 후 draft tube에 원형 orifice 수개를 뚫어놓은 새로운 형태가 시험된 결과 가스 bypass를 거의 없앨 수 있다고 발표되었다.³⁴⁾

3-3. 입자의 체류시간분포, 비산(elutriation)특성, 기포특성

Judd 등¹⁹⁾은 내경 0.5 m, 높이 3.3 m의 cold-rig에서 scintillation counters로 방사성 입자를 추적함으로써 총높이에 따른 입자의 하강속도를 측정하였다. 낮은 가스유속에서는 일정한 총높이에서 고체체류시간이 부분적으로 최고값을 보였으나 높은 가스유속에서는 최고값을 나타내지 않아 보다 균일한 고체혼합이 이루어

진다고 하였다. Kuramoto *et al.*²³⁾은 원통형 용기 내부에 두 개의 수직평판을 직각으로 삽입하여 층을 네 부분으로 나누고 두 부분은 유동층인 상승층으로 다른 두 부분은 기포가 존재하지 않는 하강층으로 순환계를 구성하였다. 층입자보다 체적이 큰 polyethylene과 나무조각을 하강층에 주입한 후 상승층에서 그물로 채취하는 방법으로 주입된 입자들의 체류시간분포를 측정하였으며, 그 결과 층률질과 비교하여 polyethylene은 빠른 순환을, 나무조각은 매우 느린 순환을 보였다.

Judd 등¹⁹⁾은 내부순환계에서 미세입자(20 μm)의 비산이 감소될 수 있다고 제안하였는데 층의 하부에서보다 층높이의 2/3 지점에서 고체원료를 공급할 경우 미세입자의 holdup이 최고 50배까지도 증가한다고 발표하였다. 평판을 설치한 사각형의 내부순환유동층에서 입자순환에 따른 미세입자의 RTD, 비산속도에 대한 정량적인 데이터가 발표된 바 있으나²²⁾ draft tube를 갖는 원통형의 내부순환유동층의 경우 미세입자의 비산특성에 대한 정량적 데이터는 거의 없는 형편이므로 이에 대한 연구가 필요하다 하겠다. 아울러 비산특성을 전형적인 유동층과 비교해보는 것이 요구된다.

기포특성에 대한 연구는 더욱 미흡하다. 역시 평판을 갖는 사각용기에서는 상승층인 유동층에서 가스유속에 따른 기포특성이 조사된 바 있으나^{10,24)} draft tube를 갖는 순환유동층에서는 단지 slug의 상승속도만 측정되었을 뿐이다.⁴³⁾

3-4. 수력학적 모델

이미 기술하였듯이 draft tube를 갖는 내부순환계는 그 형상이 다양할 뿐더러 수력학적 데이터도 부족한 형편이므로 반응기의 거동을 묘사할 수 있는 상관식이나 모델식을 일반화하기는 어려우며 주어진 반응기 형상이나 반응기의 응용에 적합한 모델이 필요하다. Spout-fluid bed의 거동을 묘사하기 위한 수력학적 모델들이 발표된 바 있으며 Epstein과 Grace¹³⁾과 관련 모델식들을 정리하였다. Draft tube를 갖는 순환유동층에서 고체순환속도를 예측하기 위한 몇 가지 모델들을 다음에 소개한다.

Yang과 Keairns⁵⁶⁾는 반응기내 각 부위의 압력 terms를 구하는 과정을 이용하여 입자순환속도를 얻을 수 있는 식을 다음과 같이 전개하였다. Fig. 1에 보인 시스템에서 각 부위의 압력에 대하여 다음식을 적용할 수 있다.

$$\Delta P_{1,4} = \Delta P_{1,2} + \Delta P_{2,3} + \Delta P_{3,4} \quad (1)$$

$\Delta P_{3,4}$ 는 거의 제로에 가깝고 $\Delta P_{1,2}$ 는 실제 측정이 어려우나 annulus에서의 압력구배 즉 $d(P_{1,4})/dL$ 로 나타낼

수 있다. $\Delta P_{1,4}$ 는 modified Ergun식으로 구할 수 있다.

$$\Delta P_{1,4} = \frac{L}{g}$$

$$\left(\frac{150 \mu (U_a + V_a)(1 - \epsilon_a)^2}{(d_p \phi_s \epsilon_a)^2} + \frac{1.75 \mu (U_a + V_a)^2 (1 - \epsilon_a)}{d_p \phi_s \epsilon_a} \right) \quad (2)$$

Draft tube에서의 압력강하 $\Delta P_{2,3}$ 은 고체입자가 zero velocity로부터 가속되기 때문에 더 복잡하다. 이 가속항은 draft tube가 짧은 경우 더 중요해진다. 가속에 필요한 가속길이는 force balance로부터 구해진 다음식을 수치적분하여 계산한다.

$$\Delta L = \int_{V_{d1}}^{V_{d2}} \frac{V_d}{\frac{3}{4} C_{DS} \epsilon_d^{-4.7} \frac{\rho(U_d + V_d)^2}{(\rho_s - \rho)d_p} - \left(g_c + \frac{f_p V_d^2}{2D_i} \right)} dV_d \quad (3)$$

여기서 고체마찰계수 f_p 는 Yang⁵⁴⁾이 제안한 식으로 구할 수 있다.

$$f_p = 0.0206 \frac{(1 - \epsilon_d)}{\phi_s^2 \epsilon_d^3} \left[(1 - \epsilon_d) \frac{(R_e)_t}{(R_e)_p} \right]^{-0.869} \quad (4)$$

적분의 하한 V_{d1} 은, $\epsilon_d = 0.5$ 로 하여

$$W_d = V_d \rho_s (1 - \epsilon_d) \quad (5)$$

적분의 상한은 다음 식으로 구해진다.

$$V_{d2} = U_d - U_t \sqrt{\left(1 + \frac{f_p V_d^2}{2g_c D_i} \right) \epsilon_d^{4.7}} \quad (6)$$

Draft tube를 통한 압력강하는 다음 식으로 표현된다.

$$\Delta P_{2,3} = \int_0^l \rho_s (1 - \epsilon_d) dL + \int_0^l \frac{2f_p \rho U_0^2}{g_c D_i} dL + \int_0^l \frac{f_p \rho_s (1 - \epsilon_d) V_d^2}{2g_c D_i} dL + \left[\frac{\rho_s (1 - \epsilon_d) V_d^2}{g_c} \right]_{stl} \quad (7)$$

만약 draft tube의 길이가 가속길이 보다 짧으면 draft tube를 빠져나오는 고체의 속도와 총고체순환율은 $\Delta P_{1,4}$ 를 알면 식(1), (2), (7)으로 구할 수 있다. Draft tube의 길이가 가속길이보다 길 경우에는 (7)식을 총가속길이에 대해 적분하고 여분의 길이에 대한 압력강하까지도 포함되어 $\Delta P_{2,3}$ 가 계산된다. (1)-(7)식을 시행오차법을 사용하여 풀면 총고체순환율을 얻을 수 있다.

Yang과 Keairns⁵⁶⁾은 draft tube를 회부상 유동으로 조업하였기 때문에 반응기 하부의 gap을 orifice로 간주하여 그 압력강하를 입자순환속도와 상관할 수 있었으나 LaNauze²⁵⁾는 그의 실험에서 농후상(dense phase)

Table 3. Applications of circulating fluidized bed with a draft tube to the various chemical processes

Process [Ref.]	Dimensions [m] $D_c \times$ height	Draft [m] $D_i \times H_d$	Solid feeding	Distributor**	Bed dia [mm]	material	Remarks
Coal devolatilization [56]	0.3×6.1	0.096×1.8	Bottom*	F & C	sand 0.75		Design procedures
Hydrocarbonization of coal [60]	0.1×1.5	0.02×0.74	Bottom*	F Nozzle	coal 0.16		Coal feed=4.5 kg/h
Gasification of Black shale [3]	0.4×3.0	0.2	Wall	F Nozzle	char 0.5		Solid residence time can be prolonged by adapting the slit type annulus
Gasification of fine coals [19]	0.5×4.3	0.15×1.5	Wall	C, RS Tuyers	sand 0.64		Pilot scale test; coal feed=40-100 kg/h, $H_2/CO=1-3$
Ultrapyrolysis of propane [46]	0.2×1.65	0.04×0.6	Gas phase reaction	C Nozzle	sand 1.03		Model to predict reactor performance

* : pneumatic feeding, ** : same in Table 1

으로 draft tube를 조업하였기 때문에 반응기 하부에서의 압력차이를 무시하였으며 draft tube와 annulus 사이의 충밀도차와 벽에서의 전단응력(shear stress)으로 인한 에너지손실을 입자순환의 추진력으로 가정하여 입자순환속도를 예측하는 모델을 다음과 같이 제시하였다(Fig. 1).

$$\Delta P_{1-2} = 0, \Delta P_{1-4} = \Delta P_{2-3}$$

Annulus의 농후상에서 force balance는

$$\Delta P_{1-4} = \rho_o g H (1 - \varepsilon_a) - \tau_a S_a / A_a \quad (8)$$

Draft tube에서의 force balance는

$$\Delta P_{2-3} = \rho_o g H (1 - \varepsilon_d) + \tau_d S_d / A_d \quad (9)$$

윗 두 식을 더하면

$$\rho_o g H (\varepsilon_d - \varepsilon_a) = \tau_d S_d / A_d + \tau_a S_a / A_a \quad (10)$$

최소유동화 상태를 유지하는 annulus에서의 기포공극율(bubble voidage), $\varepsilon_a = 0$ 이며, draft tube에서의 기포공극율 ε_d 는 slug의 상승속도식³²⁾으로부터 예측할 수 있다. 고체입자의 순수한 공탕상승속도(net upward superficial particle velocity) v_o 는 다음 식으로 정의되고,

$$W_d = \rho_s v_o \quad (11)$$

결국 draft tube에서의 bubble voidage는 다음 식으로 표현된다.

$$\varepsilon_d = \frac{U_d - U_o - v_o \varepsilon_o / (1 - \varepsilon_o)}{U_d - U_o + v_d + 0.35 \sqrt{g D_i}} \quad (12)$$

반응기 벽에서의 shear stress는 다음 식으로 가정되었다.

$$\tau = (1/4) \rho_0 v / (1 - \varepsilon_0) U \quad (13)$$

여기서, $U = -U_o + v \varepsilon_o / (1 - \varepsilon_o)$ 를 사용한다.

즉, 상기 식(10)-(13)으로부터 각 조업유속에 대한 고체입자순환속도를 계산할 수 있다.

LaNauze의 모델은 전단응력을 실험적으로 측정해야 하는 불편함을 있을 뿐더러 고체흐름이 전단응력 이외의 인자에 의해 제한될 경우 이론 자체가 혼들리는 단점이 있다. 따라서 Bolton과 Davidson⁶⁾은 유동층벽에서의 전단응력에 대한 근사치를 낼 수 있는 이론식과 orifice를 통한 압력강하에 관한 경험식 및 draft tube내의 기포성장에 대한 식을 힘 수지(force balance)에 조합함으로써 여러 변수에 따른 입자순환속도를 예측할 수 있는 이론적인 모델을 전개하였다. 최근들어 draft tube를 갖는 spout-fluid bed에서 비등온 반응을 수행할 때 기체의 가열속도와 체류시간을 예측하기 위하여 물질수지, momentum balance, 에너지수지를 고려한 반응기 모델이 전개된 바 있으며 이 모델을 propane의 급속열분해 반응에 적용하여 생성가스 조성을 예측하기도 하였다.^{46,47)} 이 밖에 평판을 갖는 사각유동층의 경우 개방면적과 이동층의 단면적비, 개방면적을 통한 압력강하를 입자순환속도에 상관하거나²⁴⁾ 기체유속, 정지층 높이, 개방면적, 평판의 높이를 입자순환속도와 상관하기도 하였다.⁹⁾

4. Draft tube를 갖는 내부순환 반응기의 응용

Draft tube를 갖는 spout bed는 이미 의약품제조,^{7,52)}

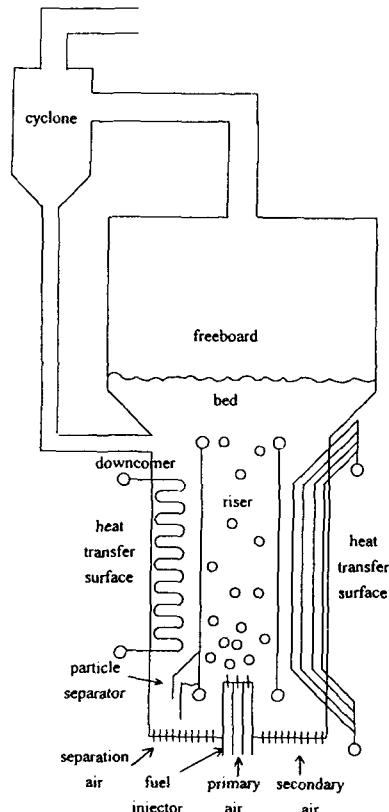


Fig. 6. Circulating fluidized bed boiler[20]

미세분말의 granulation⁵³⁾이나 agglomeration⁵³⁾ 혹은 blending, mixing⁴⁴⁾ 공정에 사용된 바 있으며 oil gasification을 위해 여러 개의 draft tube를 사용하기도 하였다.³³⁾ 근래에 이루어진 순환유동층의 응용 연구를 Table 3에 요약하였는데 주로 석탄공급장에 그 응용이 시도되고 있다. British Gas Council에서는 오일과 석탄의 가스화를 위한 반응기에서 산소주입부의 hot spot을 방지하고 오일의 주입부 부근에서 오일에 젓는 입자들을 조속히 제거하기 위해 deep bed 형태의 내부순환유동층을 이용한 hydrogenator를 개발하였다.^{14,39)} Keairns 등²⁰⁾은 전형적인 유동층 보일러에서 고체의 취급 및 start-up, turn-down을 개선하고자 draft tube를 사용한 유동층 보일러(Fig. 6)를 개발하였으며 입자를 순환시킴으로써 층입자의 분리, 석탄의 agglomeration을 격감시킬 수 있었다. Westinghouse에서는 복합발전공정에서 저열량가스를 생산하기 위해 2단 유동층 석탄가스화 공정을 개발하였는데 pilot scale의 PDU(process development unit) 시범조업에서 1단의 coal devolatilizer로서 Fig. 7과 같은 반응기를 사용하였다. 건조된 석탄을 draft 기체공급부에 함께 설치된 석탄주입관을 통해

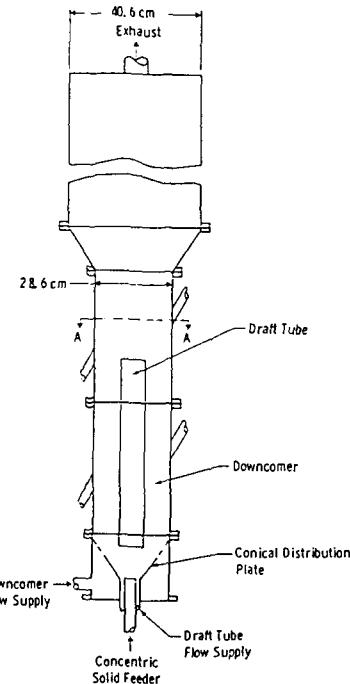


Fig. 7. Cold-rig coal devolatilizer [56]

draft tube 하부로 주입하여 석탄공급량의 100배 정도의 양이 draft tube 내에서 혼합된 회박상 형태로 4.6 m/s 이상의 속도로 상부로 이송된다.²⁾ Hydrocarbon Research Inc.에서는 1950년대에 heavy crude oil을 처리하기 위해 개발한 Dynacracking process를 수정 보완하는데 draft tube를 사용한 바 있다.⁴⁾ 중유를 급속열분해(ultrapyrolysis)하면 탄화수소를 보다 낮은 점도의 액체로 변환시킬 수 있으며 불필요한 coke deposition을 격감시킬 수 있는데 이 반응은 가스의 체류시간이 500 ms 이하의 조건에서 10⁶ K/s의 가열속도가 필요하다. 따라서 반응물의 체류시간을 조절하기 위해 draft tube를 사용한 바 있다.⁴⁷⁾ Park⁴⁰⁾은 석탄연소로에 평판을 갖는 내부순환유동층을, Lee²⁶⁾은 CWM(coal-water mixture)의 연소로에 draft tube를 갖는 순환유동층을 사용하여 전형적인 유동층연소로에 비해 나은 연소효율을 얻은 바 있다.

5. 석탄가스화 공정에서의 응용

석탄의 가스화는 기-고체 유동층 기술이 최초로 적용된 반응으로 Winkler Process가 1926년에 상용화된 바 있다. 부가적으로 약 15개의 대형 프렌트가 상용화를 위해 건설되었으며 특히 1960년대 초기에서부터 많은 연구가 이루어졌다. 그럼에도 불구하고 상용화된 유동층

Table 4. Comparison of generating efficiency

Technology	Net efficiency (% LHV)
PF+FGD	38.3
CFBC	39.1
PFBC	40.8
IGCC	41.7
BCTC (CFBC)	46.4

PF+FGD : Pulverized fuel with Flue Gas Desulphurization; CFBC : Circulating Fluidized Bed Combustion; PFBC : Pressurized Fluidized Bed Combustion; IGCC : Integrated Gasification Combined Cycle; BCTC (CFBC) : British Coal Topping Cycle-CFBC Option; LHV : Lower heating value

Net efficiency = generated electrical energy/energy in the coal

가스화반응기들은 하드웨어면에서 아직도 완전히 만족되지 못하고 있다. 전형적인 유동층 가스화기술에 있어 다음과 같은 문제점들이 존재한다.⁴³⁾

a) 미세입자들의 비산으로 탄소의 이용율이 감소하고 생성가스 중 미분이 많다. 비산포집된 미분을 충대로 재순환하여도 다시 비산되며 쉬우므로 재순환 시스템에 미세입자가 쌓일 수 있다.

b) 유동층 시스템은 가스 bypassing이 일어날 수 있어 과량의 산소 혹은 공기는 생성가스를 연소시켜 폭발의 위험성이 있으며 스팀의 소비 또한 양론상의 요구량보다 크다.

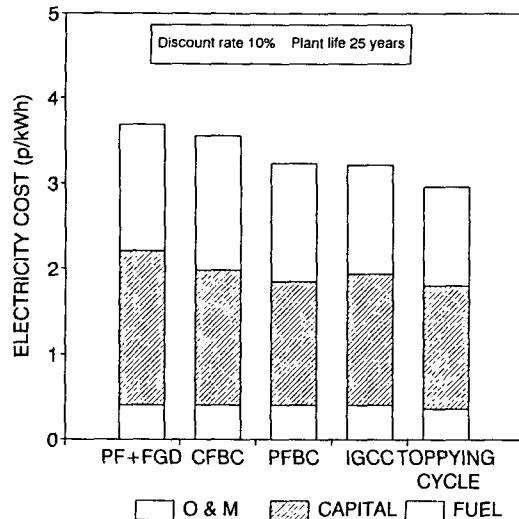
c) 석탄과 산소의 주입부에서 clinkering으로 인해 석탄의 주입이 어렵다.

d) H₂/CO비가 낮다. 이는 합성가스를 목적으로 할 때 바람직하지 않다.

e) 입자크기분포에 관련하여 충물질의 조절이 어려워 회분제거도 쉽지 않다.

단순한 기포층인 Winkler process는 더 이상의 큰 장점을 얻을 수 없으며 반응기의 조업 및 효율면에서 유동화 현상을 약간 변형시키는 수단이 필요하다. 예를 들어 draft tube를 설치할 경우 단일용기 내에 연소구역과 가스화구역의 두 구역을 형성시킬 수 있다. Annulus는 초기유동화 상태를 유지시키면서 가스화체를 주입하여 가스화반응을 수행하고, draft tube 구역으로는 산화체로 공기를 주입하여 가스화반응에 필요한 열을 생성시킨 후 순환되는 입자를 heat carrier로 사용하여 가스화구역인 annulus에 열을 직접 공급한다. 이 경우 다음과 같은 장점을 얻을 수 있으며 상기한 문제점들을 어느 정도 해결할 것으로 기대된다.²¹⁾

a) 고체원료를 annulus 구역의 입자하강 흐름에 주

**Fig. 8. Costs of electricity**

입하면 초기에 층으로부터 입자비산이 감소된다. 또한 미세입자들의 충내 체류시간을 증대시켜 석탄 전환율을 높일 수 있고 비교적 낮은 온도에서 타르와 오일을 열분해(cracking) 할 수 있다.

b) 석탄연소반응과 가스화반응을 독립된 구역에서 각각 수행함으로써 반응가스의 소비를 줄일 수 있다. Annulus는 최소 유동화조건 근처에서 조업되므로 가스 bypass를 야기하는 매개체인 ‘기포’를 효과적으로 제거할 수 있다.

c) 반응들을 독립된 구역에서 수행함으로써 불필요한 연소생성가스를 가스화생성가스와 분리하기 쉽다.

남아프리카(Durban-Westville 대학교)에서는 용도가 거의 없는 미분탄을 가스화하기 위해 pilot scale unit(석탄처리용량=40~100 kg/h)가 시험조업된 바 있으며,¹⁸⁾ 최근 KAIST에서는 내부순환유동층을 이용한 석탄가스화반응기의 bench-scale unit가 시험되고 있다.²¹⁾

British Coal Co.에서는 저열량가스 생산을 위하여 석탄전환 효율이 95% 이상이며 swelling coal을 전처리 없이 사용할 수 있는 air-blown spouted fluidized bed 가스화 상압공정을 개발하였다.¹⁹⁾ 이 공정에서는 또한 생성가스에 타르함량을 격감시켜 건식의 분진제거 시스템을 사용할 수 있도록 하여 가스세정 공정에서의 열손실을 격감시켰다. 1970년대 중반에 개발이 시작되어 1982년에는 0.5 ton/h의 pilot plant가 가동되었고, 용량을 증가시켜 전력생산을 위한 integrated partial gasification combined cycle(British Coal Topping Cycle)의 한 부분으로 사용하기 위해 가압 반응기가 개발 중이다. 석탄가스화 복합발전은 석탄이용 효율이 향상되고 분진,

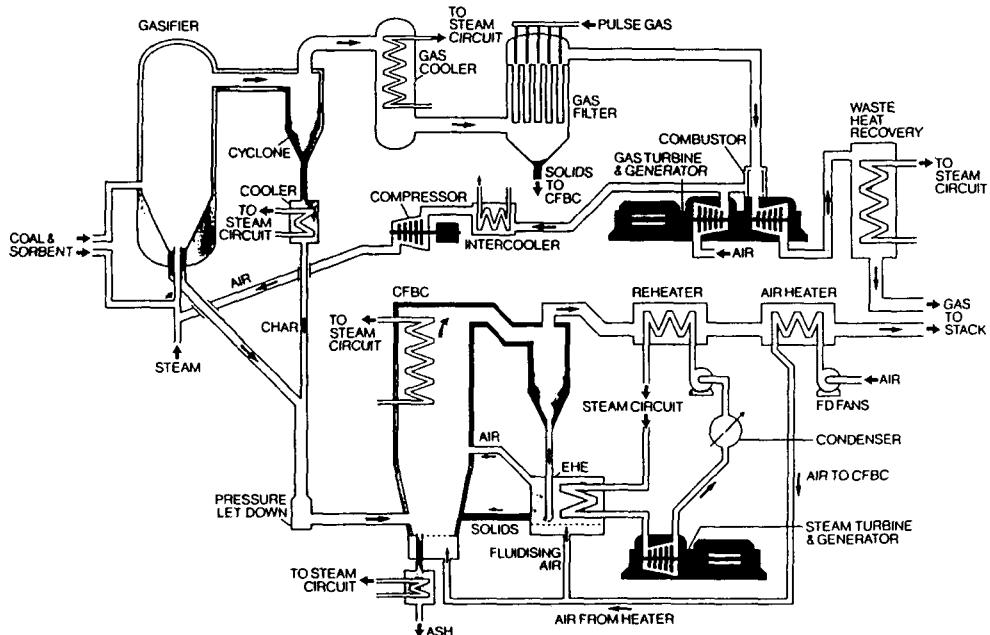


Fig. 9. The British coal topping cycle [1]

황산화물 및 질소산화물의 제거가 용이하여 많은 나라에서 개발되고 있다. 새로운 석탄이용 기술들을 이용한 공정들에 대하여 발전효율과 전력비를 비교하여 Table 4와 Fig. 8에 보였다. 이 Topping Cycle은 공정특성상 공해물질의 배출을 억제할 수 있을 뿐더러 미분탄연소 발전에 비해 전력비를 20% 이상 줄일 수 있는 잠재력을 갖고 있으며, 가스세정 방법을 달리 하거나 spouted fluidized bed partial gasifier로부터 생성되는 촉의 연소단계에 가압유동층이나 순환유동층을 사용함으로써 공정에 여러 변형을 줄 수 있는 것으로 알려졌다.¹⁾

British Coal에서 선택한 공정의 개략도를 Fig. 9에 나타냈다. 이 상압공정은 submerged spouted bed를 주 반응기로 사용하며 유동화가스(공기와 스텁)는 두 개의 흐름으로 구성된다. 원추형 base의 바닥에 위치한 공기노즐을 통해 주입되는 spout gas는 내부의 고체순환을 야기시켜 caking coal의 agglomeration을 방지하며, 원추형 base의 벽에 설치된 노즐들을 통해 주입되는 보조ガ스는 cone 구역에서의 입자혼합을 복돋아 준다. 반응온도는 950~1020°C이며 생성가스의 발열량은 약 4 MJ/m³이다. 최적의 효율을 얻기 위해서는 가스화단계의 가압이 필요하기 때문에 현재 1.8 MPa까지의 가압이 가능한 12 ton/d의 pilot plant가 건설되었으며 2000년 초기까지는 상업용 prototype을 완성할 예정에 있다.

6. 결 언

Draft tube를 갖는 순환유동층 반응기는 전형적인 유동층반응기에 비해 여러 장점을 보이므로 활발한 응용이 기대되고 있다. 따라서 본고에서는 draft tube를 갖는 유동층 순환계의 수력학적 거동 및 화학공정에서의 응용에 대해 알아보았다. 내부순환 유동층반응기의 설계 및 이를 응용한 공정개발을 위해서는 반응기의 형상변수와 조업변수들에 따른 충입자의 순환특성 및 반응가스의 bypass 특성 그리고 미세입자의 비산특성에 대한 이해가 필수적이다. 특히 가스의 bypass 거동과 입자의 거동은 매우 밀접한 관계를 갖고 있어 이론적인 해석이 요구되는 분야이다. 유동층 반응기에서 미세입자의 비산특성은 기·고체 반응의 전환율을 좌우함에도 불구하고 내부순환 유동층에서의 비산특성 데이터는 거의 없는 형편이며 draft tube 내의 기포특성에 관한 연구도 미흡하므로 앞으로 상기 분야의 연구가 더 이루어져야 할 것이다.

감 사

이 연구는 에너지관리공단에서 주관하는 대체에너지 기술개발사업 과제의 연구결과 중 일부입니다. 그 동안의 연구비 지원에 감사드립니다.

사용기호

- A : wall area [m^2]
 C_{DS} : drag coefficient on a single particle
 D_c : diameter of main column [m]
 D_t : diameter of draft tube [m]
 d_p : mean diameter of particle [mm]
 f_g : Fanning friction factor
 f_p : solid friction factor
 g_c : gravitational acceleration [m/sec^2]
L : height of draft tube [m]
 ΔL : distance required to acceleration [m]
H : bed height [m]
 H_d : total height of draft tube [m]
 H_a : total height of draft tube [m]
P : pressure [N/m^2]
S : cross-sectional area [m^2]
U : superficial gas velocity [m/sec]
 U_o : incipient fluidizing gas velocity [m/sec]
 U_{mf} : minimum fluidization gas velocity [m/sec]
 U_t : terminal velocity of the solid particle [m/sec]
V : solid particle velocity [m/sec]
 v_u : net upward superficial particle velocity [m/s]
 W_a : solids circulation rate based on the annulus area [$kg/m^2/sec$]
 W_d : solids circulation rate based on the draft tube area [$kg/m^2/sec$]
 W_s : total solids circulation rate [kg/sec]

그리스어

- ϵ_0 : voidage at incipient fluidization
 ϵ : bubble voidage
 μ : viscosity of the fluid [$kg/sec/m$]
 ρ : density of the fluid [kg/m^3]
 ρ_0 : bulk density at incipient fluidization [kg/m^3]
 ρ_s : density of particle [kg/m^3]
 τ : shear stress at the wall [kg/m^2]
 ϕ_s : sphericity of solid particles [-]

하침자

- a : annulus side
d : draft tube side

참고문헌

1. Arnold, M.St.J., Gale, J.J. and Laughlin, M.K.: "The

- British Coal Spouted Fluidized Bed Gasification Process," *Can. J. Chem. Eng.*, **70**, 991 (1992).
2. Archer, D.H. and Keairns, D.L.: "Improved Mutistage Fluidized Bed Gasification Process," U. S. Patent, 3,847,563 (1974).
3. Berggren, J.C., Bjerle, I., Eklund, H., Karlsson, H. and Svensson, O.: "Application of Chemical and Physical Operations in a Circulating Fluidized Bed System," *Chem. Eng. Sci.*, **35**, 446 (1980).
4. Berruti, F., Muir, J.R. and Behie, L.A.: "Solids Circulation in a Spout-Fluid Bed with Draft Tube," *Can. J. Chem. Eng.*, **66**, 919 (1988).
5. Bolin, C.: "International Separator for Circulating Fluidized Bed Combustion Boiler," *Circulating Fluidized Bed Technology*, Basu, P., ed. p. 385-396, Pergamon Press, Oxford (1986).
6. Bolton, L.W. and Davidson, J.F.: "Dense Phase Circulating Fluidized Beds," *Chem. Eng. Comm.*, **62**, 31 (1987).
7. Brudney, N. and Toupin, P.Y.: *Can. Pharm. J.*, **94**, 18 (1961).
8. Chatterjee, A.: "Spout-Fluid Bed Technique," *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **9**, 340 (1970).
9. Choi, Y.T.: "Hydrodynamic Properties and Combustion Characteristics in an Internal Circulating Fluidized Bed," Ph. D. Thesis, KAIST, Seoul, Korea (1991).
10. Choi, Y.T. and Kim, S.D.: "Bubble Characteristics in an Internally Circulating Fluidized Bed," *J. Chem. Eng. Japan*, **24**(2), 195 (1991).
11. Claflin, J.K. and Fane, A.G.: "Spouting with a Porous Draft-Tube," *Can. J. Chem. Eng.*, **61**, 356 (1983).
12. Davis, C.E. and Harris, B.J.: "A Device for Measuring Solids Flowrates : Characteristics, and Application in a Circulating Fluidized Bed," *Fluidization VII*, Potter and Nicklin eds., p. 741-748, Engineering Foundation, New York (1992).
13. Epstein, N. and Grace, J.R.: "Spouting of Particulate Solids" in "Handbook of Powder Science and Technology," Fayed, M.E. and Otten, L., eds., Ch. 11, 507-536, Van Nostrand Reinhold, New York (1984).
14. Horsler, A.G., Lacey, J.A. and Thompson, B.H.: "High Pressure Fluidized Bed," *Chem. Eng. Progr.*, **65**(10), 59 (1969).
15. Ishida, M. and Shirai, T.: "Circulation of Solid Particles within the Fluidized Bed with a Draft-tube," *J. Chem. Eng. Japan*, **8**(6), 477 (1975).

16. Isozaki, Y., Ijichi, K., Tanaka, Y., Uemura, Y. and Hatake, Y.: "Hydrodynamics of Spouted Bed with a Draft Tube," The 4th Student Symp. on Chem. Eng. KAIST-KYUSHU, p. 377-382, Taejon (1991).
17. Judd, M.R. and Bernhardt, H.W.: "Flowmeter for the Measurement of Solids Circulation Rate in a CFB," Proc. of Third Int. Conf. on Circulating Fluidized Beds, Basu *et al.*, eds., p. 621-626, Nagoya (1990).
18. Judd, M.R. and Rudolph, V.: "Gasification of Coal in a Fluidized Bed with a Draft Tube," Proc. of the 5th Eng. Foundation Conf. on Fluidization, Ostergaard and Sorensen, eds., p. 505-512, Elsinore (1986).
19. Judd, M.R., Masson, H. and Meihack, W.: "Solid Circulation and Gasification Experiments in a Fluidized Bed with a Draft Tube," Proc. of Fourth Int. Conf. on Fluidization, Kunii, D. and Toei, R. eds., p. 663-670, Kashikojima (1984).
20. Keairns, D.L., Archer, D.H., Hamm, J.R., Newby, R.A., O'Neill, E.P., Smith, J.R. and Yang, W.C.: Evaluation of the Fluidized-Bed Combustion Process, Vol. II, EPA-650/2-73-048, Dec. (1973).
21. Kim, S.D., Song, B.H., Kang, S.K., Lee, W.J. and Kim, Y.T.: "Development of a Circulating Fluidized-Bed Coal Gasifier I(I)," Report 911E103-331 FG1, Ministry of Energy and Resources, Korea (1992).
22. Kinoshita, O., Kojima, T. and Furusawa, T.: "Increased Retention of Fines in a Circulating System of Fluidized Particles," *J. Chem. Eng. Japan*, **20**(6), 641 (1987).
23. Kuramoto, M., Furusawa, T. and Kunii, D.: "Development of a New System for Circulating Fluidized Particles within a Single Vessel," *Powder Technol.*, **44**, 77 (1985).
24. Kuramoto, M., Kunii, D. and Furusawa, T.: "Flow of Dense Fluidized Particles through an Opening in a Circulation System," *Powder Technol.*, **47**, 141 (1986).
25. LaNauze, R.D.: "A Circulating Fluidized Bed," *Powder Technol.*, **15**, 117 (1976).
26. Lee, W.J.: "Hydrodynamics and CWM (Coal-Water-Mixture) Combustion Characteristics in a Circulating Fluidized Bed with a Draft Tube," M.S. Thesis, KAIST, Seoul (1991).
27. Lee, W.J. and Kim, S.D.: "Hydrodynamics and CWM Combustion Characteristics in an Internally Circulating Fluidized Bed Combustor," Fluidiza-
- tion VII, Potter and Nicklin eds., p. 479-486, Engineering Foundation, New York (1992).
28. Lee, Yaverbaum: "Fluidized Bed Combustion of Coal and Waste Materials," Noyes data Co., New Jersey (1977).
29. Masson, H.A.: "Effect of a Draft tube on Fuel Grain Circulation in A Fluid Bed Combustor," Proc. of the 5th Engineering Foundation Conf. on Fluidization, Ostergaard and Sorensen, eds., p. 177-184, Elsinore (1986).
30. Mathur, K.B. and Epstein, N.: "Spouted Beds," Academic Press, Inc., New York (1974).
31. Mathur, K.B. and Gishler, P.E.: "A Technique for Contacting Gases with Coarse Solid Particles," *AIChE J.*, **1**, 157 (1955).
32. Matsen, J.M.: "Flow of Fluidized Solids and Bubbles in Stannips and Risers," *Powder Technology*, **7**, 93 (1973).
33. McMahon, J.F.: "Fluidized Bed Reactor," U. S. Patent 3,825,477 (1975).
34. Milne, B.J., Berruti, F., Behie, L.A. and De Brujin, T.J.W.: "The Internally Circulating Fluidized Bed (ICFB) : A Novel Solution to Gas Bypassing in Spouted Beds," *Can. J. Chem. Eng.*, **70**, 910 (1992).
35. Mohamed, M., Ta'eed, O. and Gibbs, B.M.: "Cold Modelling of the Hydrodynamics of a Recirculating Fluidized Bed," Proc. of the First Int. Conf. on Circulating Fluidized Beds, Basu, P. ed., p. 431-436, Halifax, Canada (1985).
36. Muir, J.R.: "Solids Circulation in Spouted and Spout-Fluid Beds with Draft-Tubes," M.S. Thesis, University of Calgary, Calgary, Alberta (1988).
37. Muir, J.R., Berruti, F. and Behie, L.S.: "Solids Circulation in Spouted and Spout-Fluid Beds with Draft-tubes," *Chem. Eng. Comm.*, **88**, 153 (1990).
38. Oguchi, U. and Kubo, J.: "Liquid-Solid Particles or Liquid Gas-Solid Particle Contacting Method," U.S. Patent 3,754,993 (1973).
39. Ohoka, I. and Conway, H.L.: "Progress in the Gasification of Heavy Hydrocarbon Oils in a Recirculating Fluidized Bed Hydrogenator," paper presented at the 5th Synthetic Pipeline Gas Symposium, Chicago, October (1973).
40. Park, S.S.: "Coal Combustion and Heat Transfer Characteristics in an Internal Circulating Fluidized Bed Combustor," M.S. Thesis, KAIST, Seoul (1990).
41. Rakow, M.S. and Calderon, M.: "The Dynacracking Process-An Update," *Chem. Eng. Prog.*, **31**,

- Feb. (1981).
42. Riley, R.K. and Judd, M.R.: "The Measurement of Char-Steam Gasification Reaction for the Design of a Fluidized Bed Coal Gasifier which contains a Draft tube," *Chem. Eng. Comm.*, **62**, 151 (1987).
 43. Rudolph, V. and Judd, M.R.: "Circulation and Slugging in a Fluidized Bed Gasifier Fitted with a Draft Tube," Proc. of the First Int. Conf. on Circulating Fluidized Bed, Basu, P., ed., p. 437-442, Halifax, Canada (1985).
 44. Slot, P.E.: "Airlift Blending Apparatus," U.S. Patent 3,647,188 (1972).
 45. Song, B.H., Kim, Y.T. and Kim, S.D.: "Solids Circulation and Gas Bypassing in An Internally Circulating Fluidized-Bed," Proc. Third Asian Conf. on Fluidized-Bed & Three-Phase Reactors, Chun, H.S. and Kim, S.D., eds., p. 558-565, KyongJu (1992).
 46. Stocker, R.K., Eng., J.H. and Behie, L.A.: "Hydrodynamic and Thermal Modelling of High Temperature Spouted Bed Reactor with a Draft Tube," *Can. J. Chem. Eng.*, **68**, 302 (1990).
 47. Stocker, R.K., Eng. J.H., Svrcek, W.Y. and Behie, L.A.: "Ultrapyrolysis of Propane in a Spouted-Bed Reactor with a Draft Tube," *AICHE J.*, **35**, 1617 (1989).
 48. Sutanto, W., Epstein, N. and Grace, J.R.: "Hydrodynamics of Spout-Fluid Beds," *Powder Technol.*, **44**, 205 (1985).
 49. Ta'eed, O., Mohamed, M. and Gibbs, B.M.: "Hydrodynamics of a Recirculating Fluidized Bed," Proc. of the 5th Engineering Foundation Conf. on Fluidization, Ostergaard and Sorensen, eds., p. 169-176, Elsinore (1986).
 50. Tsuchiya, M.: "Solids Circulation Rate and Hold-up in a Spouted Bed with a Draft Tube," M.S. Thesis, Kagoshima Univ., Kagoshima, Japan (1991).
 51. Uemura, Y., Churei, S., Miyauchi, M., Imamura, S., Ijichi, K., Tanaka, Y., King, D.F. and Hatake, Y.: "Solids Circulation and Annulus Gas Flow Rates in a Circulating Fluidized Bed with a Draft Tube," Proc. of Third Int. Conf. on Circulating Fluidized Bed, Basu *et al.*, eds., p. 645-650, Nagoya (1990).
 52. Wurster, D.E. and Lindlor, J.A.: "Particle Coating Apparatus," U.S. Patent 3,241,520 (1966).
 53. Wurster, D.E., Lindlof, J.A. and Battista, J.Y.: "Process for Preparing Agglomerates," U.S. Patent 3, 207,84 (1965).
 54. Yang, W.C.: "Correlations for Solid Friction Factors in Vertical and Horizontal Pneumatic Conveyings," *AICHE J.*, **20**, 605 (1974).
 55. Yang, W.C. and Keairns, D.L.: "Studies on the Solid Circulation Rate and Gas Bypassing in Spouted Fluid-Bed with a Draft Tube," *Can. J. Chem. Eng.*, **61**, 349 (1983).
 56. Yang, W.C. and Keairns, D.L.: "Design of Recirculating Fluidized Beds for Commercial Applications," *AICHE Symp. Ser.*, **74**(176), 218 (1978).
 57. Yang, W.C. and Keairns, D.L.: "Comparison of Recirculating Fluidized Bed Performance in Two-Dimensional and Three-Dimensional Beds," *Fluidization Technology Vol. II*, Keairns, D.L. ed., p. 51-64, Hemisphere Pub. Co., Washington (1976).
 58. Yang, W.C. and Keairns, D.L.: "Recirculating Fluidized-Bed Reactor Data Utilizing a Two-Dimensional Cold Model," *AICHE Symp. Ser.*, **70**(141), 27 (1974).
 59. Yang, W.C., Margaritis, P.J. and Keairns, D.L.: "Simulation and Modeling of Start-Up and Shutdown in a Pilot-Scale Recirculating Fluidized Bed Coal Devolatilizer," *AICHE Symp. Ser.*, **74**(176), 87 (1978).
 60. Youngblood, E.L., Cochran, H.D., Jr., Westmoreland, P.R., Brown, C.H. Jr., Oswald, G.E. and Miller, C.T.: "Hydrocarbonization of Coal in a Fluidized Bed," *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev.*, **19**, 29 (1980).