

## 내부순환반응기의 scale-up에 따른 동력학적 특성의 변화

최윤찬 · 박영식 · 서정호 · 김동석 · 송승구  
부산대학교 화학공학과  
(1995년 9월 15일 접수)

### Dynamic Behavior of an Internal Loop Reactor during Scale-up

Yoon-Chan Choi, Young-Seek Park, Jung-Ho Suh, Dong-Seog Kim,  
and Seung-Koo Song

Dept. of Chem. Eng., Pusan National University, Pusan 609-735, Korea  
(Manuscript received 15 September 1995)

The variations of gas hold-up, overall volumetric oxygen mass transfer coefficients and liquid circulation velocity in an internal loop reactor were investigated to manifest scale-up effect. The relationship between superficial gas velocity and gas hold-up were found as  $U_{gr} = 0.045 \epsilon r$  in the pilot-scale and  $U_{gr} = 0.056 \epsilon r$  in the bench-scale reactor. The overall volumetric oxygen mass transfer coefficient,  $K_L a$  was slightly increased in the pilot-scale than in the bench-scale reactor. Flow regime was changed from the bubble flow to the churn-turbulent flow when the superficial gas velocity reached to 3.5 - 4 cm/sec in the pilot-scale.

**Key words :** internal loop reactor, scale-up, superficial gas velocity, gas hold-up, overall volumetric oxygen mass transfer coefficient, liquid circulation velocity

#### 1. 서 론

내부순환반응기(internal loop reactor : ILR)는 air-lift의 한 형태로, 내부에 설치된 포기관(draft tube)내로 공기가 직접 분사되어 액체의 순환이 계속적으로 이루어지는 반응기이다. 반응관(annular tube)에 물보다 비중이 작은 입자를 투입하여 액체의 순환력에 의한 유동상태를 지속하게 될때 역 유동층(inverse fluidized-bed) 이라고도 하며, 이 입자표면에 미생물을 부착시켜 생물공학적인 공정에 응용할 수 있다. 이러한 내부순환 형태의 반응기에서의 물질전달, 열전달 및 혼합특성은 일반적인 삼상 유동층보다 1.5-3 배 뛰어나고, 이를 이용한 호기성

폐수처리 실험에서 일반적인 air-lift 형태 보다 미생물이 포도당을 90% 전환 시키는데는 3.6배의 시간이 단축되고, 최대 기질 섭취 속도는 14.8 배가 높다고 보고하였다(Nikolov and Karamanev, 1990). 김동석 외(1994)는 실험실 규모의 내부순환형 역 유동층 생물막 반응기를 사용하여 동력학적 특성과 합성폐수 처리 실험을 통하여 높은 처리효율을 나타냄을 입증하였다.

내부순환반응기의 설계를 위해서는 gas hold-up, 기-액 계면적, 총괄 부피 산소물질전달계수, 액체순환속도, 액상의 혼합시간, 열전달 계수등을 가장 중요한 수리학적 및 동역학적

변수들로 생각할 수 있으므로(Chisiti, 1989), 본 연구에서는 scale-up에 따른 반응기의 직경 및 높이 변화가 gas hold-up, 총괄 부피 산소물질전달계수, 액체순환속도에 미치는 영향을 고찰하였다.

## 2. 이론적인 배경

### 2.1. 공담기체속도(superficial gas velocity)와 gas hold-up

Gas hold-up은 유입 기체의 분율에 의해 늘어난 액체의 분율을 의미하며, 그 부피만큼 밀려져 나온 액체는 환원관(반응관)으로 유입되어 순환을 유발시키는 동력원이 되며 그 양은 유입 기체 유량에 의하여 조절된다. 기-액 2상에서 gas hold-up은 (1)식으로 표현된다.

$$\varepsilon_r = \frac{V_G}{V_G + V_L} \quad (1)$$

(1)식은 기체 포기 반응기(gas aerated reactor)에서의 총괄 gas hold-up을 나타낸다. 내부순환반응기와 같이 상승부(포기관 내부)와 하강부(반응관)가 있는 형태에서는 넘쳐 나온 액체는 일부의 기체를 동반하고 있으므로 하강부의 gas hold-up을 언급하는 경우가 있으나, 상승부의 gas hold-up에 비하여 그 값이 매우 적기 때문에 무시하고, 상승부의 gas hold-up의 변화만 고려하기로 한다. (1)식은 단면적이 일정한 내부순환반응기의 포기관 내에서 포기시(aerated)와 비포기시(unaerated)의 액체 수위 변화의 항으로 표현할 수 있다.

$$\varepsilon_r = \frac{H_a}{H_a + H_L} \quad (2)$$

포기관내부(상승부)에서의 gas hold-up은 유입 기체 유량의 증가에 따라 증대되고, 사용 기체와 액체의 물리적 성질, 유동층 직경 및 높이의 변화에 영향을 받는다고 알려져 있다. 일반적으로 gas hold-up과 유입 기체 유량은 (3)식과 같이 표현된다(Chisiti, 1989).

$$\varepsilon_r = aUg^\beta \quad (3)$$

여기서  $a$ 는 비례상수이며,  $\beta$ 는 액체가 비뉴턴 액체일때는 1이하의 값을, 뉴턴 액체일 경우에는 1의 값을 갖는다. 본 연구에서 사용된 액체는 20 °C의 수도수여서  $\beta$ 는 1로 둘 수 있으므로 (3)식은 (4)식과 같이 나타낼 수 있다

(Shah et al, 1982 : 김동석외, 1993).

$$\varepsilon_r = aUg \quad (4)$$

### 2.2. 총괄 부피

#### 산소물질전달계수( $K_L a$ )

내부순환반응기를 생물공학적인 공정에 응용할 경우, 용존산소농도는 중요한 변수이며, 미생물에 의한 산소섭취속도(oxygen uptake rate)와 적절한 균형을 이루어야 하므로, 가장 적은 동력으로 적절한 용존산소농도를 유지하고 산소물질전달계수( $K_L a$ )의 특성을 아는 것은 반응기의 설계 및 운전에서 아주 중요한 기본 문제이다. 외부 흐름이 없다고 가정하면, 산소물질전달량은 농도구배가 구동력이며, 산소 flux는 아래와 같이 쓸 수 있다(Moo-Young, 1988).

$$\frac{dC_L}{dt} = K_L a (C^* - C_L) \quad (5)$$

(5)식을  $t = 0$  일때  $C_L = C_{L0}$ 의 초기조건으로 적분하여 다음식을 얻고,

$$\ln \frac{(C^* - C_{L0})}{(C^* - C_L)} = K_L a t \quad (6)$$

(6)식을 시간에 따른 용존산소 농도 변화에 대한 그래프에서  $K_L a$ 를 구한다.

Deckwer(1985)의 연구결과에 의하여  $K_L a$ 와 공담기체속도는 다음과 같은 관계로 나타내어진다.

$$K_L a = bUg^n \quad (7)$$

여기서  $b$ 는 비례상수,  $n$ 은 액체의 물성에 따라 결정되는 값으로서 사용된, 액체가 물일 경우에는 0.8 - 1의 값을 갖고, 전해질 용액에서는 약 0.79의 값을 가진다고 하였다(Shah et al, 1982). 본 연구에서는 수도수를 사용하였으므로  $n$ 을 1로 하여 (7)식의  $b$ 값만을 비교하고자 한다.

### 2.3. 액체순환속도

액체순환속도는 공담기체속도와 다음의 관계에 있다.

$$U_L = \omega U_g^v \quad (8)$$

여기서  $\omega$ 는 사용된 기체와 액체의 특성에 따르는 반면,  $v$ 는 흐름특성(flow regime)과 반응기의 기하학적 형태(reactor geometry)에 의해 결정된다(Weiland, 1984).

내부 순환반응기의 scale-up에 따른 동력학적 특성의 변화

Table 1. Specification of the reactor

Spec.	(unit)	Bench	Pilot
Volume	(L)	4	400
Height	(m)	1.5	4
Diameter	(m)	0.1	0.35
Draft tube height	(m)	0.9	2.8
Draft tube diameter	(m)	0.3	0.15
Solid hold-up	(-)	0.2	0.1
Gas hold-up	(-)	0.3	0.2
Air sparger		porous stone	gas filter
Compressor	(Hp)	0.2	5

3. 실험

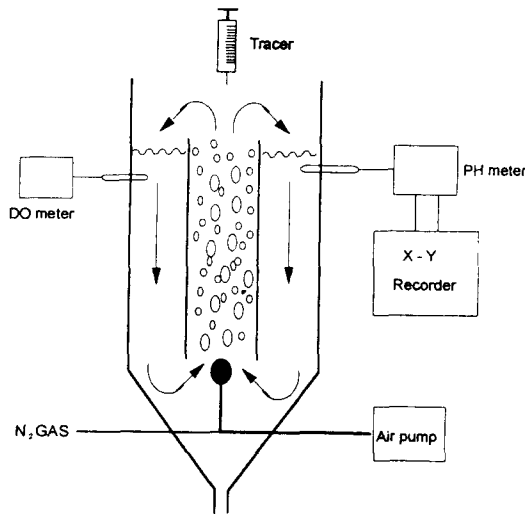


Fig. 1. Schematic diagram for the experiments.

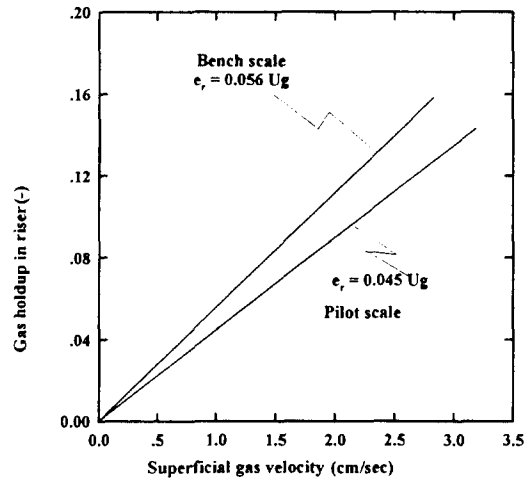


Fig. 3. Comparison of gas hold-up and superficial gas velocity between two reactor.

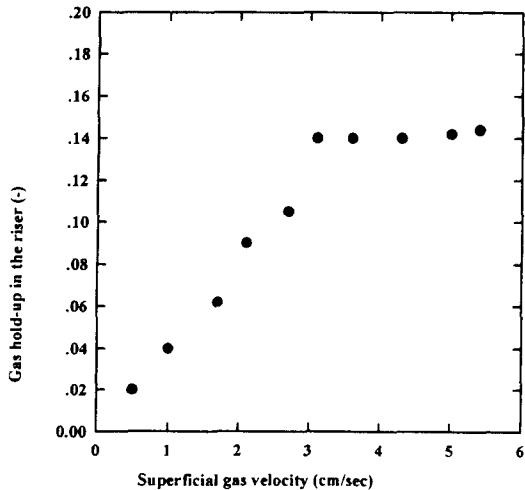


Fig. 2. The variation of gas hold-up in the riser of the pilot-scale ILR.

3.1. 실험장치

실험에 사용된 내부순환반응기를 Fig.1에 나타내었다. 내부순환반응기는 크게 상승부(포기관)과 하강부(반응관)로 나누어져 있으며, 압축기의 공기가 하부에 위치한 공기 분배기(air distributor)를 통하여 포기관으로 유입된다. 유입 기체의 분율 만큼의 액체가 상승부를 흘러 넘쳐 하강부로 유입되어 계속적으로 순환하게 된다. 반응기는 투명 아크릴을 사용하여 원형관으로 제작 되었으며, 제원은 Table 1과 같다. Pilot 규모의 반응기는 실험실 규모보다 높이와 직경이 3배 정도씩 증가되어 부피가 30배로 증가되었다. 유입 기체 유량은 rotameter (Dwyer, USA)로, 용존 산소량은 DO meter

(YSI, USA)에 의해서 측정 되었다.

### 3.2. Gas hold-up, $K_L a$ , 액체순환속도

Air-lift나 기포탑(bubble-column)에서 gas hold-up의 측정법은 포기시와 비포기시의 액체 밀도차에 의한 압력강하를 manometer로 읽어 계산하는 방법과 probe를 설치하여 기포의 높이를 측정하는 방법 또는 층의 높이를 실측하는 것이 일반적이다(Koide et al., 1984). 본 연구에서는 실험실 규모와 pilot 규모에서 모두 실측하여 gas hold-up을 측정하였다.  $K_L a$ 의 값은 먼저 유동층내로 질소 가스를 주입하여 용존산소농도가 1ppm 이하로 떨어졌을 때, 포기를 시작하여 시간에 따른 용존산소농도의 증가를 구하여 계산하였다 (Bandyopadhyay and Humphrey, 1967). 실험실 규모에서는 장치의 상단에서 150 mm 아래부분에서 측정하였고, pilot 규모에서는 상단에서 1500 mm 아래부분에서 측정하였다. 액체순환속도는 추적자의 분산실험을 통하여 구하였다. 즉, 장치의 상단에 pH meter를 설치하고 추적자로서 황산용액을 순간적으로 투입하면, 추적자는 순환하게 된다. 1회의 순환에 걸리는 시간을 측정후 포기관의 길이의 2배를 추적자의 진행거리로 보고 액체순환속도를 환산하였다 (Garnier et al, 1990).

## 4. 결과 및 고찰

### 4.1. Gas hold-up

액체 수위를 포기관의 수위와 동일하게 유지한 상태에서 pilot 규모의 공탑기체속도에 따른 gas hold-up의 변화를 Fig. 2에 나타내었다. 공탑기체속도가 증가함에 따라 gas hold-up이 증가하는 일반적인 경향을 나타내고 있지만, 공탑기체속도가 3.5 cm/sec 이상에서는 그 증가폭이 둔해짐을 알 수 있었다. 이와 같은 현상은 실험조건을 바꾸어도 동일하였는데, 그 이유는 포기관 내부의 흐름양상이 bubble flow에서 churn-turbulent flow로 변화하였기 때문이라고 판단되었다. Churn-turbulent flow에서는 상대적으로 큰 기포가 많이 형성되어 기포의 합체(coalescence)가 일어나 기체속도의 계속적인 증가에도 불구하고 gas hold-up이 증대되지

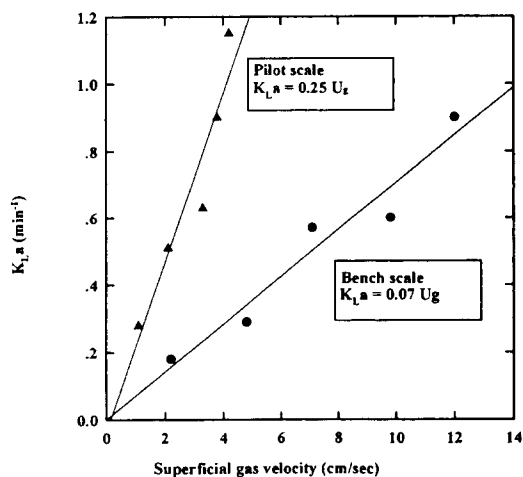


Fig. 4. The variation of overall volumetric oxygen mass transfer coefficient with the superficial gas velocity.

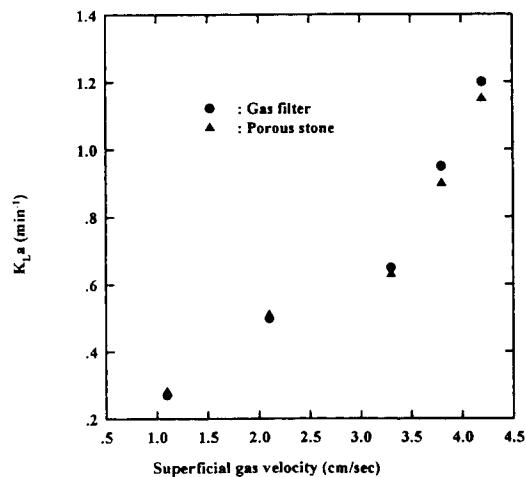


Fig. 5. The variation of overall volumetric oxygen mass transfer coefficient with the sparger type in a pilot-scale ILR.

않았다. Fig. 3에서 공탑기체속도와 gas hold-up이 1차적인 상관관계에 있는 부분까지의 직선영역을 실험실 규모와 pilot 규모 반응기에서의 결과와 비교하였다. 실험실 규모에서 공탑기체속도와 gas hold-up의 관계는 (4)식에서  $a = 0.056$  이었으며, pilot 규모에서는 0.045로 나타나  $a$ 의 값이 pilot 규모에서 20% 정도로 낮아진 것을 알 수 있었으며, scale-up함에 따라 gas hold-up이 감소하였다. 연구자들

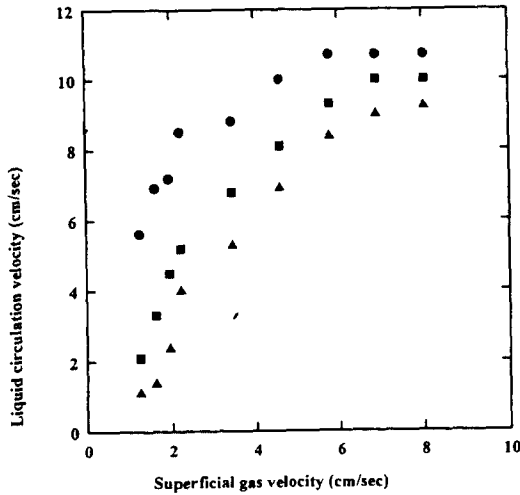


Fig. 6. The variation of liquid circulation velocity in a bench-scale ILR. Liquid height difference between the draft tube and liquid level  
● : 0 cm    ■ : 2 cm    ▲ : 4 cm

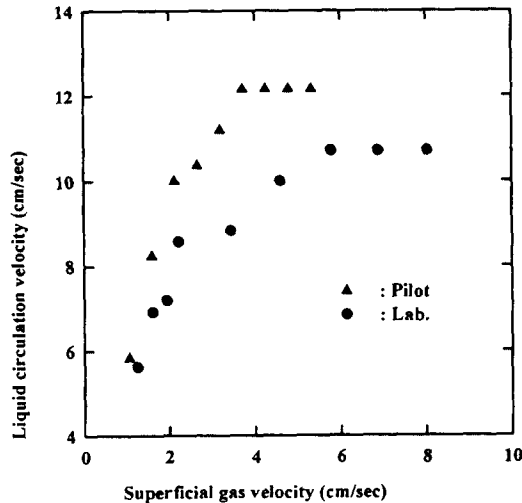


Fig. 7. The change of liquid circulation velocity with the superficial gas velocity in a bench-scale and a pilot scale of the ILR.

(Chisiti, 1989 : Kataoka, 1979 : Koide, 1984)의 결과에 의하면 유동층의 직경변화는 gas hold-up의 크기 변화에 큰 영향을 미치지 않는다고 하였으며, Chisti(1989)는 split-

cylinder형 air-lift 반응기에서 동일한 동력이 주어진 상태에서 반응기의 높이가 1.2 m에서 3.6 m로 3배 증가됨에 따라 gas hold-up이 27% 정도 감소 하였다고 보고하였다. 역 유동층에서 고체입자가 없는 물-공기 계인 경우에 반응기의 높이가 1 m에서 4 m로 4배 증가됨에 따라 gas hold-up이 20% 감소하였으며, 이는 반응기의 높이 증가와 함께 포기관내에서 기포의 합체가 많이 발생하기 때문으로 사료된다.

#### 4.2. 총괄 부피 산소물질전달계수( $K_La$ )

Fig. 4에 두 내부순환반응기에서 공탑기체속도에 따른  $K_La$ 의 변화를 나타내었다. 직선은 data의 regression에 의한 것이며, (6)식의 b 값은 실험실 크기에서는 0.07, pilot 규모에서는 0.25로 나타나 b의 값은 2.8배로 pilot 규모에서 크게 나타났다. 이러한 차이는 사용된 기체 분산기의 종류가 달라 이에 따른 기포의 특성이 변화하는 것과, scale-up에 따른 반응기의 직경과 높이의 변화에 기인하는 두가지 영향으로 사료되었다. 실험실 규모에서는 관상용 다공성 stone을, pilot 규모에서는 stainless steel을 압축 소결한 필터를 기포 분산기로 사용하였다. 먼저 기포 분산기의 영향을 알기 위해 각각의 기포분산기에 따른  $K_La$ 를 측정하여 그 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 실험범위 내에서 두 종류의 기포분산기에 의한  $K_La$ 의 영향은 미미한 것으로 판단되었다.

Kataoka 외(1979)는 반응기 직경이 0.6 m 인 반응기의 높이를 1 - 5.5 m로 변화시키면서 높이에 따른  $K_La$ 의 변화를 고찰한 결과,  $K_La$ 는 반응기의 높이에 무관하다고 하였으나, 이에 반해 Lindert 외(1992)는 2 L, 80 L, 800 L 크기의 air-lift 반응기에서  $K_La$ 측정 실험을 통하여 air-lift 반응기의 scale-up시 물질전달 속도에 가장 큰 영향을 미치는 기하학적 인자는 반응기의 높이로서, 이는 반응기내 평균압력을 결정하며, 포화농도에 영향을 미쳐 물질 전달 구동력을 지배하기 때문이라고 하였다. 또한, Chisiti(1989)는 반응기의 높이가 증가할 때, 동일조건에서 발생한 동일크기의 기포가 발생된 기포의 대부분을 차지한다면, 높이에 따라 반응기내 평균압력의 증가로 기포가 반응기내에서 평균적으로 체류하는 시간이 증대하

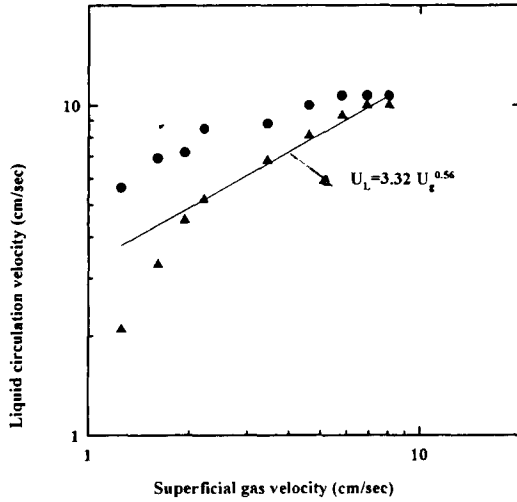


Fig. 8. Correlation of the liquid circulation velocity in a pilot scale ILR.

여, 기-액 접촉시간이 길어져 물질전달량이 증가한다고 하였다. 반응기 직경에 의한  $K_L a$ 의 변화는 관찰되지 않으므로, 본 연구에서 scale-up 후  $K_L a$ 가 증가된 것은 반응기의 높이 증가에 기인하는 것으로 사료되었다.

#### 4.3. 액체순환속도

Fig. 6에 실험실 규모의 장치에서 포기관내의 초기 액체수위를 변화시키면서 공탑기체속도에 따른 액체순환속도의 변화를 나타내었다. 액체 수위가 포기관 높이에 접근할수록 일정한 공탑기체속도에서 액체순환속도가 증가함을 알 수 있다. 이는 포기관내의 기체 분을 만큼의 액체가 밀려 원환관으로 이동되어야 액체가 순환되므로 액체 수위를 조절함에 따라 액체순환속도를 조절할 수 있음을 알 수 있었다. 이러한 현상은 pilot 규모에 대해서도 유사하였다. 그림에서 공탑기체속도가 증가함에 따라 액체순환속도는 일정하게 증가하다가, 계속적인 기체속도의 증가에도 불구하고 증가폭은 둔화되는데, 이것은 포기관내의 액흐름이 bubble flow에서 churn turbulent flow로 변함에 따라 gas hold-up이 증가하다 일정하게 유지됨으로서 액체순환속도의 증가폭이 감소하기 때문이다. Fig. 7은 실험실 규모와 pilot 규모의 반응기에 대하여 초기 액체수위가 포

기관과 동일한 상태에서의 액체순환속도를 비교하였으며, Pilot 규모에서의 액체순환속도가 상대적으로 높게 나타났다. 이는 역 유동층의 높이 증가에 따라 기체유입에 의해 발생된 액체속도에 상승기포속도가 부가되어 액체순환속도가 더욱 커지게 된다. Chsiti(1989)는 액체순환속도는 반응기 높이의 제곱근에 비례한다고 하였고, Heijinen 외(1993)는 액체순환속도는 중력가속도, 반응기의 높이 및 gas hold-up에 관계가 있다고 하였다.

pilot 규모의 장치에서 공탑기체속도와 액체수위의 변화에 따른 액체순환속도의 실험결과를 curve-fitting하여 Fig. 8에 나타내었다.  $\omega$ 의 값은 3.32,  $\nu$ 는 0.56로 구해졌고, 각 계수에 대한 신뢰도는 97%, 96%였으며, standard error는 0.09, 0.11로 나타났다.

#### 5. 결 론

내부순환반응기의 scale-up에 따른 gas hold-up, 총괄 부피 산소 물질 전달계수 및 액체순환속도의 변화를 고찰하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. Gas hold-up은 공탑기체속도의 증가에 따라 일정하게 증가하다, 점차 그 증가폭이 작아지는 현상을 나타내는데, 이는 상승부에서 흐름의 양상이 bubble flow에서 churn-turbulent flow로 변하는 것이 큰 원인으로 사료되었다. 또한, scale-up 후 gas hold-up이 실험실 규모보다 약 20%의 감소가 있었는데, 이는 반응기내 상승부의 높이의 증가에 연유하는 것으로 판단되었다.

2. 산소 물질전달계수  $K_L a$ 와 액체순환속도는 scale-up후 증가되었는데, 이는 장치의 높이 증가에 따른 기-액 접촉시간의 증가와 상승기포속도가 부가됨에 의한 것으로 사료되었다.

#### 사 용 기 호

- $C^*$  : steady state dissolved oxygen concentration ( $g/cm^3$ )
- $C_L$  : instaneous concentration of oxygen in bulk liquid ( $g/cm^3$ )
- $C_{LO}$  : initial concentration of oxygen in liquid ( $g/cm^3$ )

내부 순환반응기의 scale-up에 따른 동력학적 특성의 변화

Dd : diameter of draft tube (cm)  
 Dr : diameter of reactor (cm)  
 $\epsilon_r$  : gas hold-up in the riser (-)  
 H : height of reactor (cm)  
 Ha : liquid height at aerated condition (cm)  
 $H_L$  : initial liquid height at unaerated condition (cm)  
 $K_{L,a}$  : overall volumetric oxygen mass transfer coefficient ( $\text{min}^{-1}$ )  
 t : time (min)  
 $U_g$  : superficial gas velocity (cm/sec)  
 $U_L$  : liquid circulation velocity when initial liquid height difference is varied (cm/sec)  
 $V_G$  : aerated liquid volume ( $\text{cm}^3$ )  
 $V_L$  : unaerated liquid volume ( $\text{cm}^3$ )

참 고 문 헌

- 김동석, 윤준영, 최윤찬, 박경기, 송승구, 1994, 역 유동층 생물막 반응기에서 액체순환속도가 생물막에 미치는 영향, 한국환경과학회지, 3(1), 49-56.
- 김동석, 서봉국, 이민규, 송승구, 1993, 역 유동층의 동력학적 특성연구, 화학공학, 31(5), 563-569.
- Bandyopadhyay, B. and A.E. Humphery, 1967, Dynamic Measurement of the Volumetric Oxygen Transfer Coefficient in Fermentation Systems, Biotech. Bioeng., 4, 533-544.
- Chsiti, M.Y., 1989, Airlift Bioreactors, Elsevier Applied Science.
- Deckwer, W.D., 1985, Biotechnology, Vol. 2, VCH.
- Garnier, A., C. Chavarie, G. Andre and D. Klvana, 1990, The Inverse Fluidization Airlift Bioreactor, PART I., Chem. Eng. Comm., 98, 31-45.
- Heijnen, J.J., M.C.M. Loosdrecht and R. Mulder, 1993, Development and Scale-up of an Aerobic Biofilm Air-Lift Suspension Reactor, Wat. Sci. Tech., 27(5,6), 253-261.
- Kataoka, H.H., K. Takuchi, M. Nakao, T. Yagi, T. Tadaki, T. Otake, K. Watanabe and F. Yoshida, 1979, Mass Transfer in Large Bubble Column, J. Chem. Eng. Japan, 12, 105.
- Koide, K., S. Iwamoto and H. Kuboda, 1984, Liquid Circulation Gas hold-up and Pressure Drop in Bubble Column with Draught Tube, J. of Chem. Eng. Japan, 17(6), 611-618.
- Lindert, M., B. Kochbeck, J. Pruss, H.J. Warnecke and P.C. Hempel, 1992, Scale-up of Airlift-Loop Bioreactors based on Modelling the Oxygen Mass Transfer, Chem. Eng. Sci., 47(9-11), 2281-2286.
- Murray Moo-Young, 1988, Comprehensive Biotechnology, Vol. 2, 7-14.
- Nikolov, L.N. and D.G. Karamanev, 1990, The inverse fluidized bed biofilm reactor : a new laboratory scale apparatus for biofilm research, J. Fermentation & Bioengineering, 69(4), 265-267.
- Shah, Y.T., B.G., Kelkar, S.P. Godbole and W.D. Deckwer, 1982, Design Parameters Estimations for Bubble Column Reactors, AIChE Journal, 28(3), Journal Review, 353-379.
- Weiland, P., 1984, Influence of Draft Tube Diameter on Operation Behavior of Airlift Loop Reactors, Ger. Chem. Eng., 7, 374-385.