총 설

삼상 역 유동층의 수력학, 열전달 및 물질전달 특성

강 용[†] · 이경일 · 신익상 · 손성모 · 김상돈* · 정 헌**

충남대학교 화학공학과 *한국과학기술원 생명화학공학과 **한국에너지기술연구원 (2008년 4월 18일 접수, 2008년 4월 22일 채택)

Characteristics of Hydrodynamics, Heat and Mass Transfer in Three-Phase Inverse Fluidized Beds

Yong Kang[†], Il Kyung Lee, Ik Sang Shin, Sung Mo Son, Sang Done Kim* and Heon Jung**

School of Chemical Engineering, Chungnam National University, 305-764 Daejeon, Korea *Department Chemical and Biomolecular Engineering, KAIST, Daejeon 305-701, Korea **Korea Institute of Energy Research, Daejeon 305-343, Korea (Received 18 April 2008; accepted 22 April 2008)

요 약

삼상 역 유동층은 유동하거나 부유하는 입자의 크기가 매우 작은 경우나 유동입자의 밀도가 액체보다 작은 담체나 접촉매체 또는 촉매전달물질인 경우에 생물반응기, 발효공정, 폐수처리공정, 흡착, 흡수공정 등에 매우 효과적으로 사 용될 수 있어서 그 적용성은 날로 증대되고 있다. 그러나, 삼상 역 유동층에 대해서는 많은 연구가 진행되지 않아 왔 으며 수력학적 특성에 대한 연구조차도 미흡한 실정이다. 삼상 역 유동층에 대해서는 많은 연구가 진행되지 않아 왔 전과 설계 그리고 scale-up을 위해서는 삼상 역 유동층에서 수력학적 특성과 열전달과 물질전달과 같은 이동현상에 대 한 정보는 필수적이라는 것은 자명한 사실이다. 따라서, 본 총설에서는 삼상 역 유동층에 대한 정보들을 공학적 측면 에서 요약하고 재정리하여서 이 분야의 현장에서 필요한 지식들을 제안하고자 하였다. 본 논문은 수력학적 특성, 열전 달 특성 그리고 물질전달 특성의 세 부분으로 이루어져있다. 즉, 수력학적 특성 부분에서는 운전변수가 상 체류량, 기 포의 특성 그리고 유동입자의 분산에 미치는 영향을 검토하였으며, 열전달 특성 부분에서는 운전변수가 상 체류량, 기 포의 특성 그리고 유동입자의 분산에 미치는 영향을 검토하였으며, 열전달 특성 부분에서는 운전변수가 양 차류량, 가 전변수가 연속액상의 축방향 분산계수 및 액상 부피물질전달계수에 미치는 영향에 대해 고찰하였다. 또한, 각 절에 서 유동입자의 최소유동화속도, 상 체류량, 기포특성, 유동입자의 요동빈도수 및 유동입자의 분산 등과 같은 수력학적 특성과 열전달 계수 그리고 연속액상의 축방향 확산계수와 물질전달계수 등을 예측할 수 있는 상관식들을 제안하였다. 본 총설의 마지막 절에서는 삼상 역 유동층의 공업적 응용을 위해 앞으로 더 연구해야하는 내용에 대해 제안을 하였다.

Abstract – Three-phase inverse fluidized bed has been widely adopted with its increasing demand in the fields of bioreactor, fermentation process, wastewater treatment process, absorption and adsorption processes, where the fluidized or suspended particles are small or lower density comparing with that of continuous liquid phase, since the particles are frequently substrate, contacting medium or catalyst carrier. However, there has been little attention on the three-phase inverse fluidized beds even on the hydrodynamics. Needless to say, the information on the hydrodynamics and transport phenomena such as heat and mass transfer in the inverse fluidized beds has been essential for the operation, design and scale-up of various reactors and processes which are employing the three-phase inverse beds. In the present article, thus, the information on the three-phase inverse fluidized beds has been summarized and reorganized to suggest a pre-requisite knowledge for the field work in a sense of engineering point of view. The article is composed of three parts; hydrodynamics, heat and mass transfer characteristics of three-phase inverse fluidized beds. Effects of operating variables on the phase holdup, bubble properties and particle fluctuating frequency and dispersion were discussed in the section of hydrodynamics; effects of operating variables on the heat transfer coefficient and on the heat transfer model were discussed in the section of heat transfer characteristics; and in the section of mass transfer characteristics, effects of operating variables on the liquid axial dispersion and volumetric liquid phase mass transfer coefficient were examined. In each section, correla-

[†]To whom correspondence should be addressed. E-mail: kangyong@cnu.ac.kr

^{*}이 논문은 서강대학교 최청송 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

tions to predict the hydrodynamic characteristics such as minimum fluidization velocity, phase holdup, bubble properties and particle fluctuating frequency and dispersion and heat and mass transfer coefficients were suggested. And finally suggestions have been made for the future study for the application of three-phase inverse fluidized bed in several available fields to meet the increasing demands of this system.

Key words: Three Phase, Inverse Fluidized Bed, Hydrodynamics, Heat Transfer, Mass Transfer, Review

1. 서 론

삼상 역 유동층은 전통적인 삼상 유동층의 장점인 기체, 액체 및 고체상들 간의 접촉 효과가 좋고, 열 및 물질 전달 효과가 다른 다 상반응기에 비하여 매우 우수하므로 이를 사용한 공업적 응용은 날 로 증대되어가고 있다[1-6]. 특히 생물반응기의 경우와 같이 미생물 의 배양을 위하거나, 흡착 및 흡수, 분리 등 다른 용도로 반응기에 투입된 담체나 접촉매체들은 대부분 밀도가 연속 액상보다 작아 반 응기 내부의 연속 액상에서 부력에 의해 부유하게 되므로 이들 접 촉매체들을 효과적으로 유동화 시킬 수 있는 공정으로 삼상 역 유 동층은 매우 적합하기 때문이다. 뿐만 아니라 Fig. 1에서 볼 수 있 듯이 중력이 아닌 부력에 대하여 부유입자매체들을 유동화 시키는 역 유동화의 특성을 이용할 수 있으므로 다공성의 입자나 미소입자 등의 사용에도 그 용도를 확장시킬 수 있다.

삼상 역 유동층은 대부분의 경우 입자의 겉보기 밀도가 작거나



Fig. 1. Experimental apparatus[28]:

1. Liquid calming section

- 2. Liquid distributor
- 3. Gas distributor
- 4. Heater
- 5. Thermocouples
- 6. Pressure taps
- 7. Temperature indicator
- 8. P-Sensor
- 9. Amplifier
- 10. Low-pass filter

15. Reservoir
 16. Gas flowmeter
 17. Liquid flowmeter
 18. Air compressor

14. Control valve

11. A/D converter

12. Computer

13. Vent line

- 19. Liquid pump
- Diquid pt

매우 미소한 입자를 사용하게 되므로 느린 액체 유속으로 유동화가 되기 때문에 에너지 소비가 낮으며, 고체 입자의 마모를 최소화 할 수 있다는 장점도 있다. 또한 삼상의 유동층에서 기체의 유속만으 로도 유동화가 가능하기 때문에 생물 및 생화학 반응, 식료품공업, 신에너지산업 공정, 환경오염 방지 공정, 뿐만 아니라 다른 주변산 업에도 그 응용성은 더욱 확대될 수 있을 것으로 예견된다. 특히, 삼 상 역 유동층은 유동입자의 둘레에 형성되는 생물학적 필름(biofilm) 의 두께를 미세하게 조절할 수 있기 때문에 생물학적 폐수처리 및 반응, 효소고정화 등에 매우 유용하게 응용될 수 있다 하겠다[7-10]. 그러나, 삼상 역 유동층에 대한 연구는 국내외를 막론하고 매우 미흡한 실정이므로 이에 대한 연구와 정보의 제공이 절실히 요청되 고 있다.

2. 수력학적 특성

2-1. 최소유동화속도

삼상 역 유동층은 크게 두 가지의 형태로 나뉘는데 하나는 액체 의 흐름이 연속적으로 일어나는 연속공정과 다른 하나는 액체의 흐 름이 연속적으로 일어나는 연속공정과 다른 하나는 액체의 흐름이 없는 회분식 공정이다. 삼상 역 유동층은 밀도가 작은 고체 유동입 자들이 부유하고 있기 때문에 액체의 유속이 없는 회분식 공정에서 도 기체의 흐름만으로도 부유 고체입자를 유동화 시킬 수 있기 때 문이다.

삼상 역 유동층의 최소유동화속도에 대해서 회분식 공정에서는 보고된 것이 거의 없는 반면 연속공정에서 액체의 최소유동화속도 에 대한 연구 결과는 보고되고 있다. 삼상 역 유동층에서 액체의 최 소유동화속도는 일정한 기체 유속의 조건에서 유동층 내부에서 압 력차 또는 유동층의 팽창을 측정하여서 결정되고 있다[11-15]. 이들 연구에 의하면 액체 최소유동화속도는 기체의 유속이 증가함에 따 라 감소하는 것으로 보고되고 있다. 삼상 역 유동층에서 액체 최소 유동화속도는 기체교란액체모텔(gas perturbed liquid model)을 변형 한 식 (1)로부터 얻을 수 있다[11-15].

$$Re_{Lmf} = \sqrt{33.7^2 + 0.0408 ArP - 33.7}$$
(1)

여기서, $P = 1 - 7.89 Ar^{-0.208} Re_G^{0.299}$ 이다.

2-2. 상 체류량

삼상 역 유동층에서 각 상의 체류량은 반응기나 공정에서 다상들 간의 접촉 효율이나 반응전환율 결정뿐만 아니라 반응물이나 생산 물의 처리효율(production efficiency)과 처리량의 결정 그리고 다상 반응기나 처리 공정의 부피 결정 등에 매우 중요한 요소가 된다.

삼상 역 유동층에서 각 상들의 체류량은 일반적인 삼상 유동층의 경우와 같이 유동층의 시험 영역(Test Section)에서 압력 강하를 측

화학공학 제46권 제3호 2008년 6월



Fig. 2. Effects of gas velocity on the individual phase holdups in three-phase inverse fluidized beds (Particle : Polypropylene (spheres), $\mu_L = 11 \times 10^{-3}$ [Pa.s])[20].

정하여 정압 압력강하 측정법(Static Pressure Drop Method)[4,5]에 의해 결정되고 있다.

삼상 역 유동층에서 기체, 액체, 그리고 유동고체 입자 등 각 상 들의 체류량에 대한 연구는 기체유속, 액체의 유속, 유동입자의 종 류나 밀도 그리고 액체의 점도 변화에 따른 각 상의 체류량의 변화 를 고찰하여 상관식을 도출하는 연구가 주종을 이루고 있다[16-18]. 현재까지 보고되고 있는 문헌들에 의하면 Fig. 2에서 보는 바와 같 이 기체의 유속이 증가함에 따라 기체의 체류량과 액체의 체류량은 증가하나 고체 유동입자의 체류량은 감소하는 것으로 알려져 있다. 또한, 삼상 역 유동층에서 액체의 유속이 증가함에 따라서도 기체 와 액체의 체류량은 증가하나 고체 유동입자의 체류량은 감소하는 것으로 보고되고 있다. 삼상 역 유동층에서 액체의 점도가 각상의 체류량에 미치는 영향은 유동입자의 밀도와 종류에 따라 약간 다르 게 나타나나 일반적으로 액체의 점도가 증가함에 따라 기체의 체류 량과 유동입자의 체류량은 감소하고 액체의 체류량은 증가하는 것 으로 나타나고 있다[19](Fig. 3).

한편, 삼상 역 유동층에서 층공극률은 기체와 액체의 유속 그리



Fig. 3. Effects of liquid viscosity on the individual phase holdups in three-phase inverse fluidized beds ($U_G = 0.002$ [m/s], Particle : Polypropylene(spheres) [20].

고 액체의 점도가 증가함에 따라 모두 증가하는 것으로 보고되고 있다(Fig. 4).

삼상 역 유동층에서 기체와 액체의 체류량을 나타내는 가장 최근 의 상관식은 식 (2)와 (3)이며

$$\varepsilon_G = 5.517 (U_G)^{0.383} (U_L)^{0.426} (\mu_L)^{-0.071} \left(\frac{\rho_S}{\rho_L}\right)^{11.357}$$
(2)

$$\varepsilon_L = 4.014 (U_G)^{0.136} (U_L)^{0.155} (\mu_L)^{0.056} \left(\frac{\rho_S}{\rho_L}\right)^{2.009}$$
(3)

층공극률의 상관식은 식 (4)와 같이 보고되고 있다[20].

$$1 - \varepsilon_S = 5.568 (U_G)^{0.158} (U_L)^{0.169} (\mu_L)^{0.048} \left(\frac{\rho_S}{\rho_L}\right)^{2.762}$$
(4)

2-3. 기포특성

삼상 역 유동층에서 기포특성에 대한 연구는 기포의 크기 분포 및 크기, 상승속도 그리고 기포의 빈도수 등을 각 실험조건에서 측 정하여 실험변수의 상관식으로 나타냄으로써 삼상 역 유동층 반응



Fig. 4. Effects of liquid viscosity on the bed porosity in three-phase inverse fluidized beds ($U_G = 0.002$ [m/s], Particle(A): Polyeth-ylene(spheres), Particle(B): Polypropylene(spheres) [20].

기나 공정의 운전이나 설계에 필요한 정보를 제공하려는 연구들이 진행되고 있다[21-24]. 기포의 측정방법은 전기저항탐침(electric resistivity probe)을 이용하여 측정하고 있다. 기포의 크기결정은 Fig. 5 와 같은 측정된 기포크기의 확률밀도함수를 사용하여 결정하고 있다.

폴리프로필렌과 폴리에틸렌을 유동입자로 사용하고 연속액상으 로는 물을 사용할 경우 삼상 역 유동층에서 기포의 크기는 Fig. 6에 서 보는 바와 같이 기체 유속과 액체의 유속이 증가함에 따라 증가 하였으며, 같은 유동조건에서 유동입자의 밀도가 상대적으로 작은 폴리프로필렌의 경우가 밀도가 상대적으로 큰 폴리에틸렌의 경우보 다 기포의 크기는 더 큰 것으로 보고되고 있다.

삼상 역 유동층에서 기포의 빈도수도 기체와 액체의 유속이 증가 함에 다라 증가하였으며, 기포의 상승속도는 기체의 유속이 증가함 에 따라 증가하였으나 액체의 유속이 증가함에 따라서는 감소하는 것으로 보고되고 있다.

한편, 점성유체에서 액체의 점도가 기포의 크기에 미치는 영향은 Fig. 7에서 보는 바와 같이 액체의 점도가 증가함에 따라 삼상 역 유동층에 존재하는 기포의 크기는 증가함을 알 수 있다. 이는 연속 액상의 점도가 증가함에 따라 기포의 합체 현상이 증가하기 때문으 로 설명되고 있다. 일반적으로 다상 유동층에서 기포의 상승속도는



Fig. 5. Effects of U_G on the Probability density of bubble chord length in three-phase inverse fluidized beds ($U_L = 0.04$ m/s, Particle: Polyethylene(spheres) [22].



Fig. 6. Effect of U_G on the bubble chord length in three-phase inverse fluidized beds ($\mu_L = 0.961 \times 10^{-3}$ [Pa.s], Particle(A): Polypropy-lene(spheres), Particle(B): Polyethylene(spheres) [22].

기포의 크기에 비례하는 것으로 나타나며, 기포의 상승속도도 액체 의 점도가 증가함에 따라 증가하는 경향을 나타내고 있으나(Fig. 8) 기포의 빈도수는 액체점도의 증가에 따라 점차 감소되는 것으로 보 고되고 있다[22].

삼상 역 유동층에서 기포의 수직 길이(chord length)와 상승속도 그리고 빈도수는 기체와 액체의 유속, 유동입자의 밀도 그리고 액 체상의 점도 등의 상관식으로 나타낸 식 (5)~(7) 등이 보고되고 있 다[22].



Fig. 7. Effects of liquid viscosity on the bubble chord length in threephase inverse fluidized $beds(U_G = 0.002 \text{ [m/s]})[22].$



Fig. 8. Effects of liquid viscosity on the bubble rising velocity in threephase inverse fluidized $beds(U_G = 0.002 \text{ [m/s]})[22].$

$$L_{V} = 0.117 \left(\frac{U_{G} + U_{L}}{1 - \varepsilon_{G}}\right)^{0.446} \left(\frac{\rho_{S}}{\rho_{L}}\right)^{-2.78} (\mu_{L})^{0.191}$$
(5)

$$U_{B} = 0.108 \left(\frac{U_{G} + U_{L}}{1 - \varepsilon_{G}} \right)^{-0.219} \left(\frac{\rho_{S}}{\rho_{L}} \right)^{-2.89} (\mu_{L})^{0.076}$$
(6)

$$F_B = 30.846 \left(\frac{U_G + U_L}{1 - \varepsilon_G}\right)^{0.404} \left(\frac{\rho_S}{\rho_L}\right)^{6.732} (\mu_L)^{-0.002}$$
(7)

2-4. 유동입자의 확산

삼상 역 유동층에서 유동입자의 확산은 유동층의 팽창과 수축 거 동을 통계학적으로 분석함으로써 고찰되고 있다. 즉, 삼상 역 유동 층이 일정한 실험조건의 정상상태(Steady State)에서 유지되고 있을 때 갑자기 액체의 유속이나 기체의 유속을 계단함수(Step Function) 로 바꾸어주면 유동층은 기체나 액체의 유속변화에 따라 팽창 또는 수축을 하게 된다. 만일 역 유동층이 액체나 기체의 유속이 갑자기



Fig. 9. Variation of pressure difference with time after step change of gas velocity in gas-liquid inverse fluidized beds(U_L=0 [m/s]), Particle: Polypropylene(spheres)[27].

변화함에 따라 수축이나 팽창하게 될 때에 유동층은 2단계를 거치 면서 수축 또는 팽창하게 된다. 예를 들어 유동층이 팽창하는 경우 에 첫 번째 단계는 액체나 기체의 유속이 갑자기 변화함에 따라 불 균일하게 팽창(heterogeneous expansion)하며 어느 정도 시간이 지 난 후에는 유동층은 팽창의 두 번째 단계인 균일하게 팽창 (homogeneous expansion)하면서 유속이 변화한 최종의 상태에 맞는 새로운 정상상태에 도달하게 된다(Fig. 9). 유동층이 불균일 팽창한 후에 균일팽창을 시작하는 지점을 이완점(relaxation point)이라 하 는데 유동층이 이완점을 지난후의 균일팽창거동의 통계적 처리로부 터 유동층의 균일 팽창시 유동층 내부의 시험영역에서의 고체 체류 량의 시간에 따른 변화를 식 (8)과 같이 나타낼 수 있다[25-27].

$$\overline{\varepsilon_{S}}(t) = \overline{\varepsilon_{S0}} + (\overline{\varepsilon_{SR}} - \overline{\varepsilon_{S0}})\exp(-Ft)$$
(8)

식 (8)에서 $\overline{\epsilon_s}(t)$ 는 시간의 변화에 따른 유동입자의 유동층 내부 시험영역에서 체류량의 변화를 나타내고 $\overline{\epsilon_{s0}}$ 는 변화한 유속의 최 종상태에서 유동입자의 체류량을 나타내며 F는 유동층의 팽창시 유 동입자의 요동빈도수를 나타낸다. 한편, 유동층의 균일 팽창시 유동 입자의 시험영역에서의 이탈분율은 식(9)와 같이 나타낼 수 있으므 로 식 (8)과 식 (9)의 시간에 대한 일차도함수로부터 유동입자의 시 험영역에서의 이탈 또는 팽창속도는 식 (10)과 같이 나타낼 수 있 다[25, 27].

$$E(t) = 1 - \frac{\overline{\varepsilon_{SR}}}{\overline{\varepsilon_{SR}}}$$
(9)
$$R_E(t) = F\left(1 - \frac{\overline{\varepsilon_{S0}}}{\overline{\varepsilon_{SR}}}\right) \left(\frac{\overline{\varepsilon_S}(t) - \overline{\varepsilon_{S0}}}{\overline{\varepsilon_{SR}} - \overline{\varepsilon_{S0}}}\right)$$
(10)

삼상 역 유동층에서 유동입자의 시험영역에서의 확산계수는 유동 입자 거동을 통계적 해석에 의해 식 (11)과 같이 나타낼 수 있으므 로, 실험적으로 삼상 역 유동층의 시험영역에서 유동입자의 요동빈 도수 F를 식 (10)에서 구하고 식 (11)에 의해 유동입자의 축방향 확

Korean Chem. Eng. Res., Vol. 46, No. 3, June, 2008



Fig. 10. Effects of gas and liquid velocities on the fluctuating frequency of particles in the test section $(\mu_L = 24 \times 10^3 \text{ [Pa.s]})[25]$.

산계수를 구하고 이들의 상관식들이 문헌에 보고되고 있다[25, 27].

$$\mathbf{D}_{p} = \frac{\mathbf{F}}{2} \mathbf{L}^{2} \frac{\overline{\varepsilon_{S0}}}{\varepsilon_{SR}} \left[1 - \frac{\overline{\varepsilon_{S0}}}{\varepsilon_{SR}} \right]$$
(11)

삼상 역 유동층에서 기체의 유속과 액체의 유속이 유동입자의 요 동빈도수에 미치는 영향은 Fig. 10에서 보는 바와 같이 기체와 액 체의 유속이 증가함에 따라 유동입자의 요동빈도수인 F 값은 증가 하고 있다. 그러나, 유동입자의 요동빈도수는 액체의 점도가 증가함 에 따라 점차 감소하는 것으로 보고되고 있다.

삼상 역 유동층의 회분식 공정에서 Buffiere와 Moletta[1]는 유동 입자의 유동층 내부에서 충돌회수와 요동빈도수는 기체의 유속이 증가함에 따라 증가하나 유동입자의 체류량이 증가함에 따라서는 최대값을 나타낸다고 보고하고 있다. 기체의 유속이 증가함에 따라 유동고체입자의 충돌회수와 요동빈도수가 증가하는 것은 회분식 공 정이 아닌 연속공정에서도 다른 연구자들의 연구결과[25, 27]와 유 사하나, 유동입자의 체류량이 증가함에 따라서 이들 유동입자의 충 돌회수와 요동빈도수가 최대값을 나타내고 있다는 것은 다른 연구 자들의 연구결과와 다소 차이가 있다. 즉, 손 등[27]과 이 등[25]의 연구결과에 의하여 유동입자의 요동빈도수는 유동입자의 체류량이 증가함에 따라 증가하는 것으로 보고되고 있다.

삼상 역 유동층에서 유동입자의 요동빈도수(fluctuating frequency) 는 식 (12)에 의해 구할 수 있다[25].

$$F = \left[\frac{(U_G + U_L)^2}{gd_P}\right]^{0.108} \left[\frac{d_P^3 \rho_L (\rho_L - \rho_S)g}{\mu_L^2}\right]^{-0.630}$$
(12)

삼상 역 유동층에서 유동입자의 축방향 분산계수 D_p 역시 액체 와 기체의 유속이 증가함에 따라 증가하는 경향을 나타내고 있으며 (Fig. 11), 액체의 점도가 증가함에 따라 감소하는 것으로 보고되고 있다(Fig. 12). 삼상 역 유동층에서 유동입자의 축방향 분산계수는 무차원군인 Peclet수로 Archimedes수, Froude수 그리고 Reynolds수 의 함수로 식 (13)와 같이 나타낼 수 있다[25].

$$Pe = 3035 Ar^{0.156} Fr^{1.081} Re^{-1.283}$$
(13)

화학공학 제46권 제3호 2008년 6월



Fig. 11. Effects of gas and liquid velocities on the particle dispersion coefficient in the test section of three-phase inverse fluidized beds with viscous liquid medium ($\mu_L = 24 \times 10^{-3}$ [Pa.s])[25].



Fig. 12. Effects of liquid viscosity on the particle dispersion coefficient in the test section of three-phase inverse fluidized beds with viscous liquid medium $(U_L = 0.02 \text{ [m/s]})[25]$.

3. 열전달 특성

삼상 역 유동층이 폐수처리나 발효공정 등을 위해 생물반응기로 사용될 경우 미생물들이 잘 성장할 수 있게 하기 위해선 반응기의 온도 조절이 필수적이다. 삼상 역 유동층과 같은 다상 유동공정이 연속적으로 조작될 때 반응기 내부에 온도변화에 매우 민감하게 작 용하는 미생물에 자극을 주지 않으면서 외부의 변화에 적절히 대응 하기 위해서는 열전달계에 대한 정보가 매우 긴요한 요소로 사료된다. 삼상 역 유동층에서 열전달특성은 내부 수직열원과 유동층간의 열전달계(Fig. 1)에서 총괄열전달계수의 실험적 측정으로 고찰되고

될진될게(Fig. 1)에서 공필될진될게구의 실험적 특징으도 고실되고 있다. 총괄열전달계수의 결정은 일반적인 삼상 유동층의 경우와 유

 Table 1. The properties of solid materials used in the literature[29]

Particle	Shape	Average diameter	Density (kg/m ³)
Polypropylene	Spheres	4 mm ID	877.3
Polypropylene	Plate	$4 \times 4 \times 1 \text{ mm}$	846.2
Polyethylene	Spheres	4 mm ID	966.6
Polyethylene	Plate	$4 \times 4 \times 2 \text{ mm}$	896.4

사하게 일정 실험조건에서 열원 표면과 유동층 영역 간의 온도차를 구하고 열원표면에서 유동층에 전달되는 열량을 계산하여 구하고 있다.

문헌에 보고되고 있는 삼상 역 유동층에서 총괄열전달계수에 미 치는 독립변수들로는 유동입자의 특성, 기체 및 액체의 유속 그리 고 연속액상의 점도 등이 검토되고 있다.

삼상 역 유동층에서 열전달 특성 연구에 사용한 유동입자와 용액 은 물과 CMC용액 및 폐수 등이 있으며 이들 액체의 물성은 각각 Table 1 및 Table 2와 같다.

3-1. 조작변수가 총괄열전달계수에 미치는 영향

삼상 역 유동층에서 기체의 유속이 총괄열전달계수(h)에 미치는 영향은 Fig. 13에서 보는바와 같이 모든 경우에 총괄열전달계수는 기체의 유속이 증가함에 따라 증가하였으며, 유동입자의 밀도가 큰 경우(폴리에틸렌)가 유동입자의 크기가 작은 경우(폴리프로필렌) 보 다 열전달계수는 큰 값을 나타내고 있다. 이는 기체의 유속이 증가 함에 따라 삼상 역 유동층의 팽창률이 더 증가하고 기포의 체류량 도 증가하여 역 유동층 내부의 난류현상의 증가를 가져와 총괄열전 달계수가 증가하는 것으로 보고되고 있다[28-31]. 또한, 기체의 유 속증가는 일반적인 삼상 유동층의 경우와 같이 기포의 크기와 기포 의 개수 그리고 상승속도의 증가를 가져와 역 유동층 내부에 위치 한 내부 열원 표면에 형성되는 열적 경계층과 기포의 접촉에 의해 경계층의 두께를 감소시키는 효과를 가져와 결과적으로 총괄열전달 계수는 증가되는 것으로 보고되고 있다[28].

삼상 역 유동층에서 액체의 유속이 총괄 열전달계수에 미치는 영 향은 Fig. 14에서 보는 바와 같이 총괄열전달계수는 액체유속의 증 가에 따라 국소적인 최대값을 나타내는 것을 알 수 있다. 즉, 열전 달계수인 h 값은 낮은 액체 유속의 범위에서는 액체의 유속이 증가 함에 따라 증가하였으나 액체 유속이 높은 범위에서는 액체의 유속 이 증가함에 따라 h 값은 감소하는 것으로 보고되고 있다. 이와 같 은 현상은 액체의 유속이 낮은 범위에서는 액체의 유속이 증가함에 따라 액체의 체류량이 증가하면서 역 유동층의 팽창률이 증가하게 되고 역 유동층 내부에서 기포의 상승속도를 감소시켜 기포의 체류 량도 증가시켜서 역 유동층 내부에서 기포, 액체 및 유동입자의 접 촉 횟수와 접촉에 의한 난류강도(turbulence intensity)의 증가를 가 져와 역 유동층 내부에서 열전달계수는 증가하는 것으로 알려져 있 다[28, 29]. 그러나, 액체의 유속이 높은 범위에서는 액체의 유속이 점점 더 증가함에 따라 액체의 체류량과 기포의 체류량이 증가하므 로 이에 따라 층 팽창률이 더욱 증가하여 유동고체입자의 체류량이

Table 2. Liquid Physical properties and fluids now rate range 2	Table 2.	. Liquid	Physical	properties	and fluids	flow rate	range[2
---	----------	----------	----------	------------	------------	-----------	---------



Fig. 13. Effects of gas velocity on h in three-phase inverse fluidized beds [29].



Fig. 14. Effects of U_L on h in three-phase inverse fluidized beds [29].

심각하게 감소하는 결과를 가져온다. 따라서, 유동고체입자에 의해 생성되는 난류도 그만큼 감소하게 되어 역 유동층 단위체적 당 난 류강도도 감소하게 되고 따라서 역 유동층 내부에서 열전달 계수도 감소하는 것으로 설명되고 있다[29]. 이와 같은 상반되는 현상 사이 에서 어느 일정한 액체의 유속 범위에서 열전달 계수는 최대값을 나타내고 있다. 이와 같이 삼상 역 유동층에서 유동입자의 체류량 은 열전달 현상에 미치는 영향이 매우 큰데 이는 Fig. 15에서 볼 수 있듯이 역 유동층의 층 공극률이 변화함에 따라 총괄 열전달 계수 는 최대값을 나타낸다.

	$\mu_{L,app} \times 10^3$ (Pa.s)	$\rho_L \times 10^3 (\text{N/m})$	$\sigma_L \times 10^3 (\text{N/m})$	$K(mPa \cdot S^n)$	n	$U_G \times 10^2 (m/s)$	$U_L \times 10^2 (m/s)$
pure water	0.961	72.9	1000	1	1	0.05-0.8	1-5
Aqueous solution of CMC 0.1 wt%	11	73.2	1001	21.69	0.882	0.05-0.8	1-5
Aqueous solution of CMC 0.2 wt%	24	73.3	1002	43.82	0.847	0.05-0.8	1-5
Aqueous solution of CMC 0.3 wt%	38	73.6	1003	71.69	0.825	0.05-0.8	1-5



Fig. 15. Effects of bed porosity on h in three-phase inverse fluidized beds $(\mu_L = 24 \times 10^{-3} \text{ [Pa.s]}, \text{ U}_G = 0.002 \text{ [m/s]})[29].$



Fig. 16. Effects of solid density on h in three-phase inverse fluidized beds ($\mu_L = 24 \times 10^{-3}$ [Pa.s])[29].

삼상 역 유동층에서 유동입자의 밀도가 유동층 내부 열원과 유동 층간의 총괄열전달계수에 미치는 영향은 Fig. 16에서 볼 수 있듯이 일반적으로 유동입자의 밀도가 증가함에 따라 총괄열전달계수는 증 가하는 것으로 보고되고 있다. 이는 유동입자의 밀도가 증가함에 따 라 유동하는 입자들의 운동량이 증가하여 이들 입자들의 유동에 의 해 생성되는 난류현상의 강도가 증가하기 때문이며, 더욱이 유동입 자의 운동량 증대는 유동입자들의 내부 열원 표면과 접촉할 때에 열원표면에 형성된 경계층(boundary layer)에 전달되는 힘의 크기가 증대되어 더욱 효과적으로 열적 경계층을 공격하며 열적 경계층의 두께를 감소시켜 열원영역에서의 열전달 효과가 증대되기 때문으로 설명되고 있다[28-30].

삼상 역 유동층에서 액체상의 점도가 총괄 열전달계수에 미치는 영향은 Fig. 17에서 볼 수 있듯이 모든 경우에 액체의 점도가 증가 함에 따라 열전달계수는 감소하는 것으로 보고되고 있다. 흐름만으

화학공학 제46권 제3호 2008년 6월



Fig. 17. Effects of μ_L on h in three-phase inverse fluidized beds[29].

로도 유동입자의 유동이 가능하며 이 경우에도 기체의 유속이 증가 하며 열전달계수는 증가하는 것으로 알려져 있다.

3-2. 열전달 계수의 상관식

삼상 역 유동층에서 총괄열전달계수의 상관식을 얻기 위하여 손 등은[29]표면갱신이론(surface renewal theory)을 도입하였다. 즉, 역 유동층에서 열전달이 유동층 내에 흐르는 유체의 유체요소(fluid element)와 열원 표면의 접촉에 의해 일어난다는 생각에 기초하여 열전달은 연속액상의 열원 표면에서의 표면갱신속도(surface renewal rate)에 의해 좌우된다는 이론을 도입하였다. 연속액상의 표 면갱신속도는 역 유동층 내부에서의 난류강도(turbulence intensity) 에 의해 지배된다고 가정하면, 연속 액상의 난류성분(liquid eddy)이 열원표면에 머무는 접촉시간 0동안에 열원의 단위면적당 단위시간 당 전달되는 열량 (heat flux)의 평균값은 식 (14)와 같이 쓸 수 있 다[29].

$$q = \sqrt{\frac{\alpha_L}{\pi \theta}} \rho_L C_{PL} (T_w - T_i)$$
(14)

열전달계수의 일반적인 정의와 식 (14)을 비교하면 열전달계수 h는 식 (15)과 같은 관계식으로 나타낼 수 있다.

$$h \propto \left(k_L \rho_L C_{PL} / \theta \right)^{1/2} \tag{15}$$

여기서, 연속액상의 난류성분이 열원 표면에 머무는 시간인 접촉시 간 θ는 Kolmogoroff의 등방난류이론(isotropic turbulence theory) 에 기초하며 작은 규모의 난류성분길이(η)와 속도(ω)를 식 (16)와 같이 나타낼 수 있다.

$$\theta = \eta/\omega \tag{16}$$

한편, 난류영역에서 작은 규모의 연속 액상 난류성분(microscale eddy)의 길이와 속도는 차원해석(dimensional analysis)에 의해 동점 도(kinematic viscosity)와 에너지소멸속도(energy dissipation rate)에 의해 식 (17)와 (18)로 각각 나타낼 수 있다

$$\eta = (v_L^3 / P_L)^{1/4}$$
(17)

$$\omega = \left(\mathbf{v}_L \mathbf{P}_L\right)^{1/4} \tag{18}$$

따라서, 식 (14)~(18)에서 열전달계수 *h*는 식 (19)와 같이 나타낼 수 있다.

$$h \propto [k_L \rho_L C_{PL} (P_V / v_V)^{1/2}]^{1/2}$$
(19)

여기서, 삼상 역 유동층에서 연속액상의 단위질량당 에너지 소멸 속도 P,는 식 (20)과 같이 쓸 수 있으므로,

$$\mathbf{P}_{V} = [(\mathbf{U}_{L} - \mathbf{U}_{G})(\rho_{L}\varepsilon_{L} + \rho_{G}\varepsilon_{G} + \rho_{S}\varepsilon_{S}) - (\mathbf{U}_{G}\rho_{G})]g/\varepsilon_{L}\rho_{L}$$
(20)

총괄열전달계수 h는 식 (21)와 같이 쓸 수 있다.

h =

$$C[k_L \rho_L C_{PL} \{ (U_L + U_G) (\rho_L \varepsilon_L + \rho_G \varepsilon_G + \rho_S \varepsilon_S) - (U_G \rho_G) g / \varepsilon_L \mu_L \}^{1/2}]^{1/2}$$
(21)

식 (21)에서 C는 상수 값으로 현재까지 발표된 삼상 역 유동층에 서 열전달 계수에 대한 데이터들에 대한 상관식으로 0.058이 상관 계수 0.94로 가장 잘 맞는 것으로 알려져 있다.

한편, 삼상 역 유동층에서 열전달계수를 예측하기 위한 무차원군 에 의한 상관식으로 식 (22)이 보고되고 있다[29].

$$N_{u} = \frac{hd_{P}(1 - \varepsilon_{S})}{k_{L}\varepsilon_{S}} = 38.52 \left(\frac{C_{PL}\mu_{L}}{k_{L}}\right)^{0.870} \left(\frac{D_{P}\rho_{L}(U_{G} + U_{L})}{\mu_{L}\varepsilon_{S}}\right)^{1.018}$$
(22)

4. 물질전달 특성

4-1. 액상의 축방향 분산 모델

삼상 역 유동층에서 물질전달 특성에 대한 연구는 액상의 축방향 분산과 같이 검토되고 있으며 이를 위해서 액상의 축방향 분산모델 을 주로 적용하고 있다. 즉, 삼상 역 유동층에서 액상의 축방향 용 존산소 양을 측정하여 액상의 축방향 분산모델에 의해 작성된 용존 산소의 수지식에 대입하여 액상의 축방향 분산계수와 액상의 부피 물질전달계수(Volumetric mass transfer coefficient)를 구하는 연구가 일반적으로 되어있다[32-37].

삼상 역 유동층에서 용존산소의 수지를 세우기 위해 좌표축의 방 향을 액상의 흐름방향인 상부에서 하부로 잡고 있으며, 축방향 좌 표의 원점은 유동층 상부의 액체 분산판 지점으로 잡고 있다. 삼상 역 유동층에서 축방향 분산모델에 의해 액상에 녹아있는 용존산소 양의 수지로부터 식 (23)을 얻고 이 식을 풀기위한 경계조건으로 식 (24)와 (25)을 도입하여 식 (23)의 해를 구한 후 측정된 용존산소의 양으로부터 무차원군인 Peclet 수와 Stanton 수의 값을 구하여 액상 의 축방향 분산계수(axial dispersion coefficient) D₂와 부피물질전달 계수 k_ra를 각각 구하고 있다.

$$\frac{1}{Pe_{L}d\xi^{2}} - \frac{dC}{d\xi} + St(C^{*} - C) = 0$$
(23)

$$X = 0, C = C_V + \frac{1}{\text{Ped}X} \Big|_{X=0}$$
(24)

$$X = 1, \frac{dC}{dX}\Big|_{X=0} = 0$$
⁽²⁵⁾

여기서,

$$Pe_{L} = \frac{u_{L}L}{\varepsilon_{L}D_{Z}}, S_{t} = k_{L}a\frac{L}{u_{L}}, X = \frac{Z}{L}$$
(26)

이며 C*는 산소의 용액에서의 평형농도를 식 (27)와 같이 나타내 어 구하고 있다[33, 34].

$$C^* = a + bX \tag{27}$$

식 (25)에서 a, b는 상수이며 이들은 각각 식 (28)과 (29)로부터 구할 수 있다.

$$\mathbf{a} = \left(\frac{\mathbf{y}}{\mathbf{H}}\right) (\mathbf{P} + \boldsymbol{\rho}_L \mathbf{q} \boldsymbol{\varepsilon}_L \mathbf{L}) \tag{28}$$

$$\mathbf{b} = -\left(\frac{\mathbf{y}}{\mathbf{H}}\right)\boldsymbol{\rho}_{L}\boldsymbol{\varepsilon}_{L}\mathbf{L} \tag{29}$$

4-2. 액상의 축방향 분산

삼상 역 유동층에서 액상의 축방향분산계수를 구하기 위해서 도 입되고 있는 액상의 축방향 분산모델의 사용이 적절하기 위해서는 역 유동층에서 액상에 용해되어있는 용존산소의 축방향분포가 축방 향 분산모델을 적용하기에 적합하여야 한다. 삼상 역 유동층에서 측 정되어 보고되고 있는 연속 액상의 축방향 용존산소의 양은 Fig. 18 에서 보는바와 같이 축방향 분산모델을 적용하여도 무명한 것으로 알려져 있다. 삼상 역 유동층에서 연속상인 액상의 축방향 분산에 미치는 독립변수들로는 기체 및 액체의 유속, 유동입자의 물성 그 리고 연속액상의 점도 등이 연구되고 있다.



Fig. 18. Dissolved oxygen concentration profile in the axial direction of the three-phase inverse fluidized beds $(U_I = 0.01 \text{ [m/s]})[34]$.

Korean Chem. Eng. Res., Vol. 46, No. 3, June, 2008

459



Fig. 19. Effects of gas velocity on the axial dispersion coefficient of liquid phase in three-phase inverse fluidized beds $(U_L=0.02 \text{ [m/s]})[34]$.

삼상 역 유동층에서 기체의 유속이 액상의 축방향 분산계수에 미 치는 영향은 Fig. 19에서 볼 수 있듯이 기체의 유속이 증가함에 따 라 모든 경우에 액상의 축방향 분산계수는 증가하는 것으로 보고되 고 있다. 삼상 역 유동층에서 기체 유속의 증가는 유동층 내부에서 기포의수와 크기의 증가를 가져와 기체의 체류량이 증가하게 되며 부력에 의해 상승하는 기포의 거동을 연속액상이 유동층 내부에서 순환하는 흐름을 유발하여 액상의 혼합을 증가시키는 효과가 있기 때문에 액상의 분산계수는 기체유속이 증가함에 따라 증가하는 것 으로 설명되고 있다.

삼상 역 유동층에서 연속 액상의 축방향 분산계수는 액체의 유속 이 증가함에 따라 Fig. 20에서 볼 수 있듯이 증가되고 있다. 이는 일 정한 기체 유속과 유동조건에서 연속액상의 흐름속도 증가는 유동 입자의 팽창률의 되어 연속 액상의 혼합효과가 증가 한다고 보고되 고 있다. 이와 같은 현상은 낮은 액체유속의 범위에서는 뚜렷이 나 타나나, 높은 액체 유속의 범위에서는 유동입자의 층 팽창이 과도



Fig. 20. Effects of liquid velocity on the axial dispersion coefficient of liquid phase in three-phase inverse fluidized beds[33].



Fig. 21. Effects of liquid viscosity on the axial dispersion coefficient of liquid phase in three-phase inverse fluidized beds $(U_G = 0.004 \text{ [m/s]})[34]$.

하게 일어나 유동입자에 의한 난류강도가 현저히 감소하기 때문에 액체 유속의 증가에 따라 액상의 축방향분산계수의 증가가 크지 않 는 것으로 설명되고 있다[33-35].

삼상 역 유동층에서 유동입자의 밀도가 액상의 축방향 분산계수 에 미치는 영향은 Figs. 19와 20에서 볼 수 있듯이 유동입자의 밀도 가 큰 경우(폴리에틸렌)가 유동입자의 밀도가 작은 경우(폴리프로필 렌)에 비하여 비교적 큰 값을 나타냄을 알 수 있다. 이는 역 유동층 에서 유동입자의 밀도가 큰 경우가 유동층내부에서 기체나 액체의 흐름에 의해 비교적 쉽게 유동하고 층 팽창이 이루어지므로 유동입 자의 팽창과 흐름거동에 의한 난류현상증가고 밀도가 비교적 큰 입 자의 경우에 액상의 혼합계수도 비교적 큰 값을 나타내는 것으로 설명되고 있다.

삼상 역 유동층에서 연속액상의 점도가 액상의 축방향 분산계수 에 미치는 영향은 Fig. 21에서 볼 수 있듯이 연속액상의 점도가 증 가함에 따라 축방향 분산계수는 서서히 감소해가는 것을 알 수 있 다[34]. 이는 연속액상의 흐름거동이 점도의 증가에 따라 감소하기 때문으로 설명되고 있다. 즉, 연속액상의 흐름요서(fluid element)의 거동이 연속액상의 점도가 증가함에 따라 감소할 뿐만 아니라 유동 고체입자의 유동 움직임(mobility)도 연속액상의 점도가 증가함에 따라 유동입자가 가지고 있는 운동력에서 액체와의 접촉표면에서 점성힘(viscous force)에 의한 손실이 커지기 때문에 유동운동량이 감소하게 되어 유동입자의 유동에 의한 난류의 강도도 감소하게 되 어 액상의 혼합효과가 감소하는 것으로 알려져 있다.

삼상 역 유동층에서 연속 액상의 축방향 분산계수 는 역 유동층의 운전변수들에 의해 식 (30)와 같은 상관식으로 보고되고 있다[34].

$$D_Z = 0.157 U_G^{0.263} U_L^{0.225} \mu_L^{-0.018} \left(\frac{\rho_S}{\rho_L}\right)^{2.26}$$
(30)

식 (30)의 적용범위는 0.2 cm/s ≤ U_G ≤ 0.8 cm/s, 1.0 cm/s ≤ U_L ≤ 0.4 cm/s, 0.961 mPa·s ≤ µ_L ≤ 38 mPa·s 그리고 0.875 ≤ ρ_S/ρ_L ≤ 0.966 으로 제안되고 있다.



Fig. 22. Effects of gas velocity on the $k_L a$ in three-phase inverse fluidized beds[34].

		- 🔳 -	-•-	-▲-	-▼-	- 🗆 -	-0-		-7-	$\cdots \diamondsuit \cdots$
$\mu_L \!\!\times\!\! 10^3 [Pa.s]$:	0.961	11.0	24.0	38.0	0.961	11.0	24.0	38.0	1.0
Particle	:	Р	olypro	opylen	ie	I	Polyet	hylene	е	Polystyrene
$\rho_S [kg/m^3]$:		87	7.3			96	6.6		650.0
d_p [mm]	:		4	1			4	4		3.5
$U_L \times 10^2 [m/s]$:		2	2				2		2.83
				K	im et a	al.(200	3)			Nikolov et al.(2000)

4-3. 물질전달 특성

삼상 역 유동층에서 물질전달 특성에 대한 연구는 액상의 부피물 질전달계수에 대한 연구가 주를 이루고 있다. 삼상 역 유동층에서 액상의 부피물질전달계수는 액상의 축방향 분산계수를 구하는 것 같이 축방향 분산모델의 해석으로부터 구하고 있다[34-37].

삼상 역 유동층에서 기체의 유속이 액상의 물질전달계수 k_ta에 미치는 영향은 Fig. 22에서 보는 바와 같이 기체의 유속이 증가함 에 따라 점차 증가하는 경향을 나타내고 있다. 이는 기체 유속이 증 가함에 따라 유동층 내부에 기체 체류량이 증가하며 이에 따라 기 포속에 포함된 산소의 양도 많아지기 때문에 일정한 액체 유속의 조건에서 기체-액체 계면을 통해 액체로 전달되는 산소의 양이 많 아지기 때문이라고 설명되고 있다. Fig에서 Nikolov 등[35]이 구한 물질전달계수의 값은 김 등[34]이 구한 물질전달계수 값이 비해 다 소 작은 값을 나타내고 있는데 이는 Nikolov 등이 사용한 유동입자 인 폴리프로필렌이나 폴리에틸렌 입자들의 밀도보다 작기 때문으로 사료된다. 실제로, 김 등이 구한 물질전달계수 값에서도 유동입자의 밀도가 큰 폴리에틸렌(p=966.6 kg/m³)의 경우보다 더 큰 값을 나타내고 있다. 따라서, 삼상 역 유동층에서 유동입자의 밀도가 큰 경우가 작은 경우보다 물질전달계수는 증가하는 것을 알 수 있다.

삼상 역 유동층에서 액체의 유속이 액상의 물질전달계수에 미치 는 영향은 Fig. 23에서 볼 수 있듯이 액체의 유속이 낮은 범위에서 는 유속이 증가함에 따라 부피물질전달계수는 증가하는 경향을 나 타내고 있으나 액체의 유속이 비교적 큰 경우에는 물질전달계수는 거의 일정한 값을 나타내고 있다. Fig에서 Nikolov 등[35]이 구한 물질전달계수 값은 액체의 유속이 변화함에 따라 최소값을 나타내



Fig. 23. Effects of liquid velocity on the $k_L a$ in three-phase inverse fluidized beds[34].

	-∎●▲▼-	• -∐○△▽-	
$\mu_L \times 10^3$ [Pa.s] :	0.961 11.0 24.0 38.0	0.961 11.0 24.0 38.0	1.0
Particle :	Polypropylene	Polyethylene	Polystyrene
$\rho_S [kg/m^3]$:	877.3	966.6	650.0
d _p [mm] :	4	4	3.5
$U_G \times 10^2 [m/s]$:	0.6	0.6	2.8 1.4 0.7
	Kim et	Nikolov et al.(2000)	



Fig. 24. Effects of liquid viscosity on the k_La in three-phase inverse fluidized beds($U_L = 0.02$ [m/s])[34].

고 있으나 김 등[34]이 구한 물질전달계수 변화양상이 더 설득력이 있는 것으로 판단된다. Nikolov 등[35]의 데이터에서도 액체의 유속 이 일정크기 이상이 되면 물질전달계수는 크게 변화하지 않아서 김 등[34]이 구한 물질전달계수의 변화경향과 일치하는 것을 알 수 있 다. 이와 같은 현상은 기체의 유속이 일정한 조건에서 액체의 유속 이 증가하면 유동층의 팽창이 급격히 증가하기 시작하므로 액체 유 속이 낮은 범위에서는 유동층의 팽창이 심하지 않아서 역 유동층 내부에서 물질전달에 필요한 충분한 난류현상이 발생되지만 액체의 유속이 어느 정도 이상 증가하면 역 유동층의 팽창이 심각하여져서 유동층 단위부피당 물질전달계수는 거의 일정하게 유지된다고 해석 되고 있다.

삼상 역 유동층에서 연속액상의 점도변화가 연속액상의 부피물질 전달계수에 미치는 영향은 Fig. 24에서 보는 바와 같이, 액체의 점 도가 증가함에 따라 모든 경우에 부피물질전달계수는 서서히 감소 하는 것으로 보고되고 있다. 이는 삼상 역 유동층의 상 체류량 특성 에서 설명되었듯이 연속액상의 점도가 증가하면 연속액상의 체류량 은 증가하는 반면 기포의 체류량은 감소하게 되어 기체와 액체의 접촉에 의한 기-액 물질전달계수는 감소하게 되는 것으로 설명되고 있다.

삼상 역 유동층에서 액상의 부피물질전달계수는 k_La는 식 (31)와 같은 실험변수의 상관식으로 나타내고 있다[34].

$$k_L a = 0.229 U_G^{0.414} U_L^{0.245} \mu_L^{-0.066} \left(\frac{\rho_S}{\rho_L}\right)^{0.854}$$
(31)

식 (31)의 적용범위는 0.2 cm/s ≤ U_G≤ 0.8 cm/s, 1.0 cm/s ≤ U_L≤ 0.4 cm/s, 0.961 mPa·s ≤ µ_L≤ 38 mPa·s 그리고 0.875 ≤ ρ_S/ρ_L≤ 0.966 으로 제안되고 있다.

5.제 언

삼상 역 유동층은 최근 폐수처리 공정, 생물화학공정, 바이오 필 름 및 전극 반응 공정 등에 촉매 반응과 광촉매에 의한 기체-액체 반응뿐만 아니라 수소 생산 공정 등에 그 효용 가치가 매우 증대 되 고 있다. 그러나 반응 자체나 촉매의 개발에 대부분의 연구가 집중 되어 있어 이들 반응이나 공저의 효율적 수행을 위한 중간 기술 (medium technology)의 개발은 매우 미흡한 실정이다. 삼상 역 유 동층 반응기나 접촉 공정 기술의 개발을 위한 기초 연구나 공학적 연구가 앞으로 절실히 요청되는데, 대부분의 공정이나 장치 구성을 외국 기술에 의존하고 있는 우리나라로써는 공정이나 장치 산업 등 의 중간 기술 개발에 과감한 투자 없이는 연구자들의 실험실에서 제안된 개발 기술의 scale-up이나 산업화, 공업화는 앞으로는 현재 보다 더 큰 어려움을 겪게 될 것으로 전망되므로 이에 대한 대책이 시급히 요청된다.

삼상 역 유동층에 대한 연구는 국내외를 막론하고 기초 적인 연 구 수준에 머물고 있으므로 수력학적 특성과 전달 현상 등에 대한 체계적인 연구가 요망된다. 즉, 유동고체입자들의 물성이 각각의 공 정에서 매우 다르게 사용되므로 유동 고체 입자의 물성 변화가 삼 상 역 유동층의 수력학적 특성과 열 및 물질 전달 특성에 미치는 영 향 등이 앞으로 고찰되어야 할 것이다. 또한 유동 고체 입자가 특수 성분이나 물질의 흡착이나 흡수제로 사용되는 경우 촉매 전달 물질 (catalyst carrier)등으로 사용될 경우 대부분 접촉 면적의 증대를 위 해 다공성 입자를 사용하므로 유동 고체 입자가 다공성 입자일 경 우 이들이 삼상 역 유동층의 성능(performance)에 미치는 영향 등도 앞으로 검토 되어야 할 것이다. 또한 앞으로 각 동정에서 상용될 것 으로 예측되는 삼상 역 유동층의 연속 액상인 액체의 물성, 즉, 표 면 장력, 점도, 밀도 및 전기 전도도, 이온역(ionic strength)등이 삼 상 역 유동층 공정에서 전달 현상 및 성능에 미치는 영향에 대한 연 구는 매우 중요할 것으로 사료된다. 특히, 새로운 촉매나 신소재의 개발에서 유동 고체 입자들의 크기가 매우 작아지면서 이들 미세 입자들의 2차 가공이나 표면 처리 등이 매우 어려운 문제로 대두 되고 있는 시점에서 연속상인 액체의 물리적 화학적 그리고 전기적 물성이 이들 유동 고체 입자의 표면 특성변화에 미치는 영향이 매 우 클 것으로 예견되고 있으므로 이들 연속 액상 물성의 광범위한 변화에 따른 각 공정에서 사용되는 삼상 역 유동층의 특성과 성능 을 예측할 수 있는 실험적, 공학적 자료에 대한 연구가 필요하다고 하겠다.

한편, 삼상 역 유동층 내부에서 각 상들의 접촉 시간과 접촉 강 동 및 접촉 효율을 증대시키거나 감소시킬 수 있는 역 유동층의 구 조적 변형에 대한 연구도 앞으로 수행되어 각 현장에서 주어진 임 무에 적합한 삼상 역 유동층 공정의 개발에 대한 연구는 필요한 시 점이다.

감 사

본 논문은 서강대학교 최청송 교수님의 정년기념논문으로 준비되 었습니다. 또한, 본 논문은 한국에너지기술연구원의 합성석유생산반 응기 기술개발연구(A7-2802)의 지원으로 수행되었으며 귀 기관에 감사드립니다.

사용기호

- A : surface area of heater $[m^2]$
- a : constant in Eq. (27)
- Ar : Archimedes number $[d_P \rho_L((\rho_L \rho_P)g/\mu_L^2)]$
- b : constant in Eq. (27)
- C : oxygen concentration [mol/l]
- C^{*} : equilibrium concentration [mol/l]
- C_0 : initial oxygen concentration [mol/l]
- C_{PL} : heat capacity of liquid phase [kcal/kg·K]
- d_P : particle diameter [m]
- D_P : particle dispersion coefficient [m²/s]
- Dt : Column Diameter [m]
- D_Z : axial dispersion coefficient of liquid phase $[m^2/s]$
- E(t) : entrained particle fraction
- F : fluctuating frequency of fluidizing particle [1/s]
- Fr : Froude number $[(U_L + U_G)^2/(gd_P)]$
- g : gravitational acceleration $[m/s^2]$
- h : heat transfer coefficient $[W/m^2 \cdot K]$
- H : bed height [m]
- k_L : conductivity of liquid phase [W/m²·K]
- k_La : volumetric mass transfer coefficient [1/s]
- L : arbitrary location of fluidizing particle [m]
- N : number of particles in unit volume
- Pe : Peclet number $(U_G + U_L)D_t/D_P$
- P_T : pressure at the top of the column [Pa]
- P_V : specific energy dissipation rate [m²/s³]
- ΔP : pressure drop [N/m²]
- Q : heat flow [W]
- q : heat flux [W/m²]

화학공학 제46권 제3호 2008년 6월

- Re : Reynolds number $[D_t(U_G + U_L)\rho_L/\mu_L]$
- $R_E(t)$: exiting velocity of the particle from the test section [1/s]
- St : stanton number defined in Eq. (23)
- t : time [s]
- T_B : boundary layer temperature [K]
- T_H : heater surface temperature [K]
- T_i : internal bed temperature [K]
- T_W : wall temperature [K]
- U : superficial velocity [m/s]
- U_G : gas velocity [m/s]
- U_{Gf} : final gas velocity [m/s]
- U_{Gi} : initial gas velocity [m/s]
- U_L : liquid velocity [m/s]
- $U_{\it mf}\,$: minimum fluidization velocity [m/s]
- W : solid weight [kg]
- X : dimensionless distance defined in Eq. (26)
- y : gas phase mole fration of oxygen
- z : axial distance [m]

그리스 문자

- α : thermal diffusivity [m²/s]
- ϵ : phase holdup
- $\eta \quad : \text{length of microeddy } [m]$
- θ : contact time [s]
- $\mu \quad : viscosity \ [Pa.s]$
- ν : kinematic viscosity [m²/s]
- π : the circular constant
- ρ : density, [kg/m³]
- ω : microeddy speed [m/s]

하첨자

- 1 : test section
- 2 : ambient region below the testsection
- G : gas phase
- L : liquid phase
- O : steady state
- R : relaxation state
- S : solid phase

참고문헌

- 1. Buffiere, P. and Moletta, R., "Some Hydrodynamic Characteristics of Inverse Three Phase Fluidized-bed Reactors," *Chem. Eng. Sci.*, **54**, 1233-1242(1999).
- Legile, P., Menard, G., Laurent, C., Thomas, D. and Bernis, A., "Contribution to the Study of An Inverse Three-phase Fluidized Bed Operating Countercurrently," *Int. Chem. Eng.*, 32, 41-50(1992).
- Fan, L. S., "Gas-Liquid-Solid Fluidization Engineering," Butterworths, Bosten, 368-374(1989).
- 4. Kim, S. D. and Kang, Y., "Hydrodynamics, Heat and Mass Transfer in Inverse and Circulating Three-phase Fluidized-bed Reactors for Waste Water Treatment," *Studies surface science*

and catalyst, 159, 103-108(2006).

- Kim, S. D. and Kang, Y., "Heat and Mass Transfer in Threephase Fluidized-bed Reactors-an Overview," *Chem. Eng. Sci.*, 52, 3639-3660(1997).
- Wild, G., Saberian, M., Schwarty, J. and Charpentier, J. C., "Gasliquid-solid Fluidized-bed Reactors: State of Art and Industrial Possibilities," *International Chem. Eng.*, 24, 639-678(1984).
- Garcia-Calderon, D., Buffiere, P., Moletta, R. and Elmaleh, S., "Anaerobic Digestion of Wine Distillery Wastewater in Downflow Fluidized Bed," *Wat. Res.*, **32**, 3593-3600(1998).
- Ibrahim, Y. A. A., Briens, C. L., Margaritis, A. and Bergongnou, M. A., "Hydrodynamic Characteristics of a Three-phase Inverse Fluidized-bed Column," *AIChE J.*, **42**, 1889-1900(1996).
- Kang, Y., Fan, L. T., Min, B. T. and Kim, S. D., "Promotion of Oxygen Transfer in Three-phase Fluidized-bed Bioreactors by Floating Bubble Breakers," *Biotechnol. Bioeng.*, 37, 580-586(1991).
- Tokuyama, H., Nii, S., Kawaizumi, F. and Takahashi, K., "Removal of Dilute Nitric Acid by Anion Exchange Using a Countercurrent Multistage Fluidized-bed Column," *Ind. Eng. Che. Res.*, 41, 3447-3453(2002).
- Krishnaiah, K., Gum, S. and Sekar, V., "Hydrodynamic Studies in Inverse Gas-liquid-solid Fluidization," *Chem. Eng. J.*, **51**, 109-112(1993).
- Lee, D. H., Epatein, N. and Grace, J. R., "Hydrodynamic Transition from Fixed to Fully Fluidized Beds for Three-phase Inverse Fluidization," *KJChE*, **17**, 684-690(2000).
- Renganathan, T. and Krishnaiah, K., "Prediction of Minimum Fluidization Velocity in two and Three Inverse Fluidized Beds," *Can. J. Chem. Eng.*, 81, 853-860 (2003).
- Fan, L. S., Muroyama, K. and Shern, S. H., "Hydrodynamic Characteristics on Inverse Fluidization in Liquid-solid and Gasliquid-solid Systems," *Chem. Eng. J. and Biochem. Eng. J.*, 24, 143-150(1982a).
- Fan, L. S., Muroyama, K. and Shern, S. H., "Some Researches on Hydrodynamics of Inverse Gas-liquid-solid Fluidization," *Chem. Eng. Sci.*, 37, 1570-1572 (1982b).
- Han, H. D., Choi, H. S., Kang, Y and Kim, S. D., "Effects of Surface Property of Solid Particles on the Hydrodynamic Characteristics of Three-phase Inverse Fluidized Beds," *J. KIChE*, 40, 209-217(2002).
- Kim, U. Y., Son, S. M., Kang, S. H., Kang, Y and Kim, S. D., "Residence Time Distribution and Dispersion of Gas Phase in a Wet Gas Scrubbing System," *Korean J. Chem. Eng.*, 24, 892-896 (2007).
- Kim, S. D. and Kang. Y., "Dispersed Phase Characteristics in Three-phase Fluidized Beds," Mix Flow Hydrodynamics, Advances in Engineering Fluid Mechanics Series, N. P. Cheremisinoff Edn. Gulf Comp. Houston(1996).
- Comte, M. P., Bastoul, D., Hebrard, G., Roustan, M. and Lazarova, V., "Hyrodynamics of a Three-phase Fluidized Bed - the Inverse Turbulent Bed," *Chem. Eng. Sci.* 52, 3971-3977(1997).
- 20. Shin, I. S., Son, S. M., Kang, Y., Kang, S. H. and Kim, S. D., "Phase Holdup Characteristics of Viscous Three-Phase Inverse Fluidized Beds," *J. Ind. Eng. Chem.*, **13**, 971-978(2007).
- 21. Son, S. M., Yun, J. H., Kim, H. T., Song, P. S., Kang, Y. and Kim, S. D., "Axial Variation and Distribution of Bubble Properties in Gas-liquid Countercurrent Fluidized Beds," *Korean Chem.*

Eng. Res., 42, 235-240(2004).

- 22. Son, S. M., Kang, S. H., Kim, U. Y., Kang, Y. and Kim, S. D., "Bubble Properties in Three-Phase Inverse Fluidized Beds with Viscous Liquid Medium," *Chem. Eng. Processing*, **46**, 736-741 (2007).
- 23. Kim, H. T., Song, P. S., Choi, G. S., Kim, S. W. and Kang, Y., "Size, Frequency and Rising Velocity of Bubbles in a Three-Phase Inverse Fluidized Bed," *J. Korean Ind. Eng. Chem.*, **13**, 691-696 (2002).
- 24. Son, S. M., Song, P. S., Lee, C. G., Kang, S. H., Kang, Y. and Kusakabe, K., "Bubbling Behavior in Gas-liquid Countercurrent Bubble Column Bioreactors," *J. Chem. Eng. Japan.*, 37, 990-998 (2004).
- 25. Lee, K. I., Son, S. M., Kim, U. Y., Kang, Y., Kang, S. H., Kim, S. D., Lee, J. K., Seo, Y. C. and Kim, W. H., "Particle Dispersion in Viscous Three-phase Inverse Fluidized Beds," *Chem. Eng. Sci.*, 62, 7060-7067(2007).
- 26. Kang, S. H., Lee, C. G., Jung, S. H., Son, S. M. and Kang, Y., "Chaos Analysis of Pressure Fluctuations at Steady State and Unsteady State in Aerobic Three-phase Inverse Fluidized Beds," *J. KSEE*, **26**, 1191-1197(2004).
- Son, S. M., Kim, H. T., Kang, S. H., Kang, Y. and Kim, S. D., "Analysis of Dispersion Behavior of Fluidized Particles in Gasliquid Countercurrent Fluidized Beds," *Korean Chem. Eng. Res.*, 42, 332-337(2004).
- 28. Cho, Y. J., Park, H. Y., Kim, S. W., Kang, Y. and Kim, S. D., "Heat Transfer and Hydrodynamics in two- and Three-phase Inverse Fluidized Beds," *I&EC Research.*, 41, 2058-2063(2002).

- 29. Son, S. M., Lee, K. I., Kang, S, H., Kang, Y. and Kim, S. D., "Heat Transfer Coefficient in Viscous Three-phase Inverse Fluidized Beds," *AIChE J.*, 53, 3011-3016(2007).
- Hatate, Y., Tajiri, S., Fukumoto, T., Uemura, Y. and Hano, T., "Heat Transfer Coefficient in Three-phase Vertical Downflows of Gas-liquid-fine Solid Particles System," *J. Chem. Eng. Japan*, 23, 370-372(1990).
- 31. Park, H. Y., Kim, S. W., Cho, Y. J., Kang Y. and Kim, S. D., "Heat Transfer Characteristics of Three-phase Inverse Fluidized Beds," *J. KIChE*, **39**, 619-623(2001).
- Nikov, I. and Karamanev, D., "Liquid-solid Mass Transfer in Inverse Fluidized Bed," *AIChE J.*, 37, 781-784(1991).
- 33. Kim, S. W. Song, P. S., Kang, Y. and Kim, S. D., "Mass Transfer Characteristics in Aerobic Three-phase Inverse Fluidized Beds," *J. KIChE*, 40, 482-487 (2002).
- 34. Kim, S. W., Kim, H. T., Song, P. S., Kang, Y. and Kim, S. D., "Liquid Dispersion and Gas-liquid Mass Transfer in Three-phase Inverse Fluidized Beds," *Can. J, Chem. Eng.*, 81, 621-625(2003).
- Nikolov, V., Farag, I. and Nikov, I., "Gas-liquid Mass Transfer in Bioreactor with Three-phase Inverse Fluidized Bed," *Bioprocess Eng.*, 23, 427-430(2000).
- 36. Song, P. S., Kang, S. H., Choi, W.K, Jung, C. H., Oh, W. Z. and Kang. Y., "Recovery of Copper Powder from Wastewater in Three-phase Inverse Fluidized Bed Reactors," *Studies Surface Science and Catalyst*, **159**, 537-540 (2006).
- Tang, W. T. and Fan, L. S., "Gas-liquid Mass Transfer in a Three-phase Fluidized Bed Containing Low Density Particles," *I&EC Research*, 29, 128-133(1990).