

선택적 고체순환을 위한 2탑 유동층 시스템 연구

류호정*[†] · 장명수* · 김홍기*^{***} · 이동규**

*한국에너지기술연구원 온실가스연구단
305-343 대전시 유성구 장동 71-2
**충북대학교 공업화학과
361-763 충북 청주시 흥덕구 성봉로 410
(2009년 2월 2일 접수, 2009년 4월 19일 채택)

A Study on Two-interconnected Fluidized Beds System for Selective Solid Circulation

Ho-Jung Ryu*[†], Myoung-Su Jang*, Hong-Ki Kim*^{***} and Dong-Kyu Lee**

*Greenhouse Gas Research Center, Korea Institute of Energy Research, 71-2, Jang-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-343, Korea

**Department of Industrial Engineering Chemistry, Chungbuk National University,
410 Sungbong-ro, Heungduk-gu, Cheong-ju, Chungbuk 361-763, Korea

(Received 2 February 2009; accepted 19 April 2009)

요 약

선택적 고체순환을 위한 신개념 2탑 유동층 공정에 적용하기 위해 고체분리기와 고체순환시스템을 개발하였다. 고체분리기에 의한 고체분리속도는 고체분사노즐의 유속, 고체층 높이, 고체분사노즐의 직경이 증가함에 따라 증가하였으며 유동화 속도의 영향은 크지 않았다. 본 연구에서 개발한 고체분리기를 이용하여 굵은입자(212~300 μm)와 고운입자(63~106 μm)의 분리가 가능하였으며 고체분리속도는 66~453 g/min의 범위를 나타내었다. 고체순환시스템의 고체순환속도는 고체분사노즐의 유속, 고체층 높이, 고체유입구명의 개수가 증가함에 따라 증가하였으며 유동화 속도의 영향은 크지 않았다. 본 연구에서 개발한 고체순환시스템을 이용하여 고운입자의 순환이 가능하였으며 고체순환속도는 65~390 g/min의 범위를 나타내었다. 본 연구에서 개발된 고체분리기와 고체순환시스템을 적용하여 선택적 고체순환이 가능한 2탑 유동층 공정을 구성하였으며 장기연속운전 가능성을 확인하기 위해 약 20시간까지 고체분리-순환 장기연속운전을 실행하였다. 두 유동층의 압력강하 값과 고체분리속도가 안정적으로 유지되어 고체순환이 원활하게 유지되는 것을 확인하였다.

Abstract – To apply to novel two-interconnected fluidized beds system for selective solid circulation, a solid separator and a solid circulation system were developed. The solid separation rate increased as the gas velocity through the solid injection nozzle, solid height, and diameter of solid injection nozzle increased. However, the effect of the fluidization velocity was negligible. Coarse(212~300 μm) and fine(63~106 μm) particles were separated using the solid separator and the solid separation rate was ranged from 66 to 453 g/min. The solid circulation rate increased as the gas velocity through the solid injection nozzle, solid height, and the number of solid intake holes increased. However, the effect of the fluidization velocity was negligible. Fine particle was circulated using the solid circulation system and the solid circulation rate was ranged from 65 to 390 g/min. We also proposed two interconnected fluidized beds system for selective solid circulation equipped with the developed solid separator and the solid circulation system. Long-term operation of continuous solid circulation up to 20 hours has been performed to check feasibility of stable operation. The pressure drop profiles in two beds and the solid separation rate were maintained steadily, and therefore, we could conclude that solid circulation was smooth and stable.

Key words: Solid Separation, Solid Circulation, Fluidized Bed, SEWGS

1. 서 론

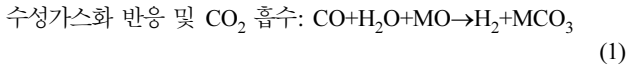
두 개의 유동층이 연결된 2탑 유동층 공정은 Fisher-Tropsch, 고온탈황(high temperature desulfurization), 건식 흡수제를 이용한 이산

화탄소 분리-회수 공정, 매체순환연소(chemical-looping combustion), 매체순환식 수소생산(chemical-looping hydrogen generation), 회수 증진 메탄 수증기 개질(sorption enhanced steam methane reforming, SESMR), 회수 증진 수성가스화반응(sorption enhanced water-gas shift reaction, SEWGS) 등 여러 공정에 사용되고 있다[1-7]. 이러한 공정들 중 회수 증진 메탄 수증기 개질 공정과 회수 증진 수성가스화

[†]To whom correspondence should be addressed.
E-mail: hjryu@kier.re.kr

공정은 환쪽 반응기에서 촉매와 CO₂ 흡수제가 함께 반응하며 다른 쪽 반응기에서는 CO₂ 흡수제의 재생반응이 일어나게 된다[6,7].

회수 증진 수성가스화 반응을 예로 들면, 수성가스화 반응기에서는 식 (1)과 같이 수성가스화 촉매와 CO₂ 흡수제가 함께 존재하는 조건에서 CO가 H₂O와 반응하여 H₂와 CO₂를 생성하며, 발생된 CO₂는 금속산화물(MO, metal oxide) 계열의 CO₂ 흡수체에 흡수된다. CO₂를 흡수한 흡수제는 재생반응기에서 열에 의해 CO₂를 배출하고 초기 상태의 금속산화물로 재생된다[7].



이와 같은 공정에서 CO₂ 흡수제는 수성가스화 반응기와 재생반응기 사이를 순환하면서 CO₂ 흡수-재생을 반복하지만 수성가스화 촉매의 경우에는 재생반응기로 이동할 필요가 없으며, 수성가스화 반응기에 계속적으로 체류하는 것이 공정에 적합하다. 하지만 두 가지 입자(촉매 및 흡수제)가 혼합된 고체혼합물 중에서 하나의 입자를 선택적으로 순환하는 것은 매우 어려우며 지금까지는 촉매와 흡수제를 모두 순환시키면서 수성가스화반응과 재생반응을 모두 거치는 공정들이 고려되고 있다. 수성가스화 촉매가 재생반응기로 순환되면 입자의 마모에 의한 손실이 증가하며 고온에서 조업되는 재생반응기에 도입되면서 열충격에 의한 촉매 활성화저하가 일어날 수 있다. 결과적으로 회수증진 수성가스화 공정의 성능과 경제성 개선을 위해서는 수성가스화 촉매와 CO₂ 흡수제가 혼합되어 있는 고체혼합물 중에서 CO₂ 흡수제를 선택적으로 재생반응기로 순환시킬 수 있는 시스템의 개발이 필요하다[7].

최근 Ryu 등[8]은 금속망을 설치한 고체분리기를 이용하여 비교적 적은 입도차이(고운입자 : 63~106 μm, 굵은입자 : 212~300 μm)를 갖는 혼합입도 중에서 고운입자를 선택적으로 분리할 수 있음을 실증하였으며 고체분리속도는 4.4~127 g/min의 범위를 나타내었다. Ryu 등[8]의 연구는 유동층 반응기에서 고체혼합물의 선택적 분리를 위한 방법으로 사용되던 입도분리(segregation) 현상과 사이클론을 이용하는 기존의 방법들에 비해 입도차이가 적은 입자를 분리할 수 있으며 완벽한 입도분리가 가능하다는 장점이 있다. 한편 Ryu 등[9,10]은 두 가지 반응이 일어나는 유동층 사이에서 고체입자의 순환을 위해 사용하던 기존의 3탑 유동층 시스템(고속유동층-기포유동층-기포유동층)의 단점(복잡한 공정구성, 2~3개의 루프실 필요)을 극복하기 위해 고체분사노즐의 개념을 적용하였으며 기존 시스템에 비해 층내 기체체류시간을 증가시킬 수 있고 루프실없이 기포유동층-기포유동층의 2탑 유동층으로 조업가능한 고체순환시스템을 개발하여 각 변수의 영향을 측정 및 해석하였으며 장기연속운전을 실증한 바 있다. 본 연구에서는 Ryu 등[8]이 적용한 고체분리기에 비해 분리속도를 증가시키기 위해 새로운 형태의 고체분리기를 적용하여 고체분리속도에 미치는 고체분사노즐의 유속, 고체층높이, 고체분사노즐 직경, 유동화속도의 영향을 측정 및 고찰하였으며 Ryu 등[9,10]이 개발한 고체순환시스템을 적용하여 고체분사노즐의 유속, 고체층 높이, 고체유입구멍의 개수, 유동화속도의 영향을 재확인하였다. 최종적으로 고체분리기와 고체순환시스템을 함께 적용하여 고운입자와 굵은입자가 섞여있는 혼합입도의 층물질 중에서 고운입자만을 분리하여 재순환시키는, 선택적 고체순환이 가능한 2탑 연결 유동층의 고체순환 장기연속운전을 실증하였다.

2. 고체분리실험

2-1. 실험

Fig. 1에는 고체분리속도 측정에 사용한 유동층 실험장치를 나타내었다. 전체 실험장치는 플레넘(plenum), 유동층, 고체분리기, 고체분사노즐, 사이클론 및 고체포집을 위한 밸브 등으로 구성되어 있다. 플레넘은 직경 0.15 m, 높이 0.15 m이며 바닥에서 0.09 m 높이에서 유동화기체가 주입되도록 하였다. 기체분산판은 플레넘과 유동층 사이에 위치하며, 1 mm의 구멍이 24개 뚫려있는 다공판(perforated plate)을 사용하였다. 유동층은 하부, 상부의 투명 아크릴판과 가운데 고체분리기의 세 부분으로 구성되어 있으며 직경은 모두 0.15 m, 높이는 아래쪽부터 0.5, 0.3, 0.3 m로 총 높이는 1.1 m가 되도록 하였다. 최소유동화속도의 측정과 원활한 유동화상태의 확인을 위해 차압형 압력변환기(SIEMENS, Smart Type, 0~1,000 mmH₂O)를 설치하였으며 데이터수집 시스템(Agilent, 34970A)에 의해 기록 및 저장되었다. 유동화기체와 고체분사용 기체로는 공기를 사용하였으며 질량유량계(MFC, Brooks, 5851E, 5850E)를 이용하여 주입하였다.

고체의 입도분리 실험을 위한 층물질로는 입도분포가 다른 두 종류의 유리구슬(glass bead)이 사용되었으며 입도분포에 따라 고운입자(fine, 63~106 μm)와 굵은입자(coarse, 212~300 μm)로 구분하였다.

고체분리기 내부에는 수직선으로부터 30°의 각도를 갖도록 금속망(80 mesh, 180 μm)을 설치하였으며(Fig. 1의 4) 금속망을 통과해 안쪽으로 이동한 고운입자는 고체분리기 하부의 고체순환관과 밸브

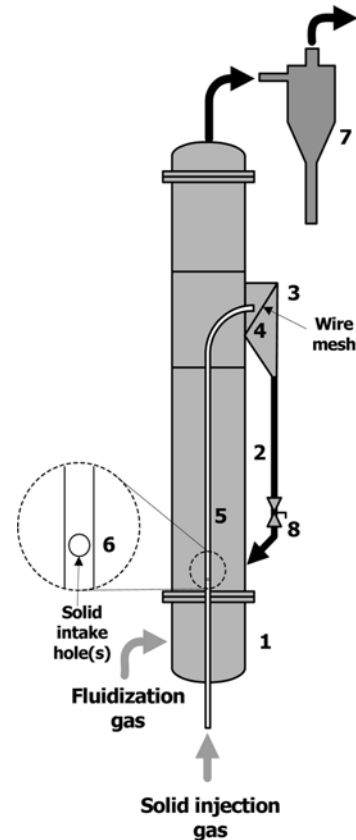


Fig. 1. Schematic of solid separation test apparatus.
 1. Plenum
 2. Fluidized bed
 3. Solid separator
 4. Wire mesh
 5. Solid injection nozzle
 6. Solid intake hole(s)
 7. Cyclone
 8. Valve

를 거쳐서 유동층으로 재순환되도록 하였다. 고체분리기 내부 금속망의 면적은 0.017 m²였다.

유동층의 내부에는 플레넘과 분산관을 관통하여 고체분리기 입구까지 연결된 고체분사노즐을 설치하였다. 고체분사노즐에는 고체유입구멍(Fig. 1의 6)이 뚫려있으며 이 구멍을 통해 고체입자가 유입된다. 고체입자 분사방법은 다음과 같다. 혼합입도의 층물질을 유동층에 장입한 후 일정 유속에서 유동화시킨다. 유동화된 고체는 유체(fluid)와 같은 흐름특성을 지니므로 고체분사노즐의 고체유입구멍을 통해 내부로 유입된다. 이 상태에서 고체분사노즐 하부에서 기체를 주입하면 고체유입구멍을 통해 유입된 고체가 상부로 이송되며 고체분리기의 금속망에 고체를 분사한다. 고체분사노즐을 이용한 고체분사방법의 원리 및 여러 변수들의 영향에 대해서는 Ryu 등 [9, 10]의 보고에 자세히 나타나 있다.

실험방법은 다음과 같다. 먼저 고운입자(fine, 63~106 μm)와 굵은입자(coarse, 212~300 μm)를 2대 1로 혼합하여 유동층에 주입하고 원하는 유속에서 유동화시킨다. 층의 압력강하가 거의 일정해지면 고체분사용 기체를 주입하여 혼합입도의 고체입자를 고체분리기에 분사한다. 분사된 고체는 고체분리기 내부에 설치된 금속망과 접촉하고 금속망의 간극(aperture)보다 작은 입자는 고체분리기 내부로 이동한 후 중력에 의해 떨어져 재순환관을 통해 유동층으로 재순환된다. 고체분리속도 측정을 위해 먼저 재순환관의 밸브 위쪽으로 임의 높이에 눈금을 표시하고, 밸브와 눈금선 사이에 채워지는 고체의 무게를 측정하였다. 다음으로는 각 조업조건에서 정상적인 입도분리와 고체순환이 이루어짐을 확인한 후 재순환관의 밸브를 순간적으로 차단하여 일정높이까지 고체가 채워지는데 걸리는 시간을 측정하여 고체분리속도(solid separation rate, g/min)를 계산하였다.

본 연구에서는 실험변수로 고체분사노즐의 유속, 유동화속도, 고체층 높이, 고체분사노즐의 형상을 변화시키면서 고체분리속도의 변화를 측정 및 고찰하였으며 실험조건 및 변수를 Table 1에 요약하여 나타내었다.

2-1. 고체분리실험 결과

조업조건 결정을 위해 고운입자와 굵은입자가 혼합된 층물질의 최소유동화속도를 측정하였다. 최소유동화속도는 유속변화에 따른 층의 압력강하를 측정하여 도시한 후 최소유동화속도의 정의에 따라 층의 압력강하가 일정해지기 시작하는 유속으로 결정하였다. 본 연구에 사용된 층물질의 최소유동화속도는 0.008 m/s로 나타났다.

Table 1. Summary of experimental conditions and variables(solid separation test)

| Item | Values |
|---|--|
| Solids (glass beads) | Fine (63~106 μm) + Coarse (212~300 μm) |
| Mixing ratio of fine to coarse | 2 |
| Minimum fluidization velocity [m/s] | 0.008 |
| Separation area [m ²] | 0.017 |
| Static bed height [m] | 0.3, 0.4, 0.5 |
| Fluidization velocity [m/s] | 0.016(2U _{mf}), 0.024(3U _{mf}), 0.032(4U _{mf}) |
| Solid injection nozzle inside diameter [mm] | 3.7(1/4"), 7.5(3/8") |
| Solid intake hole diameter [mm] | 5 |
| No. of solid intake holes [#] | 4 |
| Solid injection velocity [m/s] | 1.08~2.95 |

고체분리기를 이용한 고운입자의 분리여부를 확인하기 위해 고체분사노즐을 통해 이송되어 고체분리기의 금속망을 통과하여 재순환관으로 분리된 고체를 채취하여 표준체(140 mesh, 106 μm)를 이용하여 입도를 측정하였다. 분리된 고운입자는 모두 106 μm 이하였으며 결과적으로 고체분리기를 이용하여 고운입자의 분리가 가능함을 확인하였다.

Fig. 2(a)와 (b)에는 고체분사노즐의 내경이 3.7 mm인 경우와 7.5 mm인 경우 각각에 대해 고체분사노즐의 유속, 고체층높이 및 유동화속도 변화에 따른 고체분리속도의 변화를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 두 가지 고체분사노즐 모두에 대해 고체분사노즐의 유속이 증가함에 따라 고체분리속도가 증가하였다. 이와 같은 경향은 고체분사노즐의 유속이 증가함에 따라 고체이송능력이 증가하여 고체분리기의 금속망에 접촉할 수 있는 고체량이 증가하기 때문으로 사료되었다. 또한 측정된 고체분리속도는 두 가지 고체분사노즐 모두에 대해 고체층의 높이가 증가함에 따라 증가하였으며 이와 같

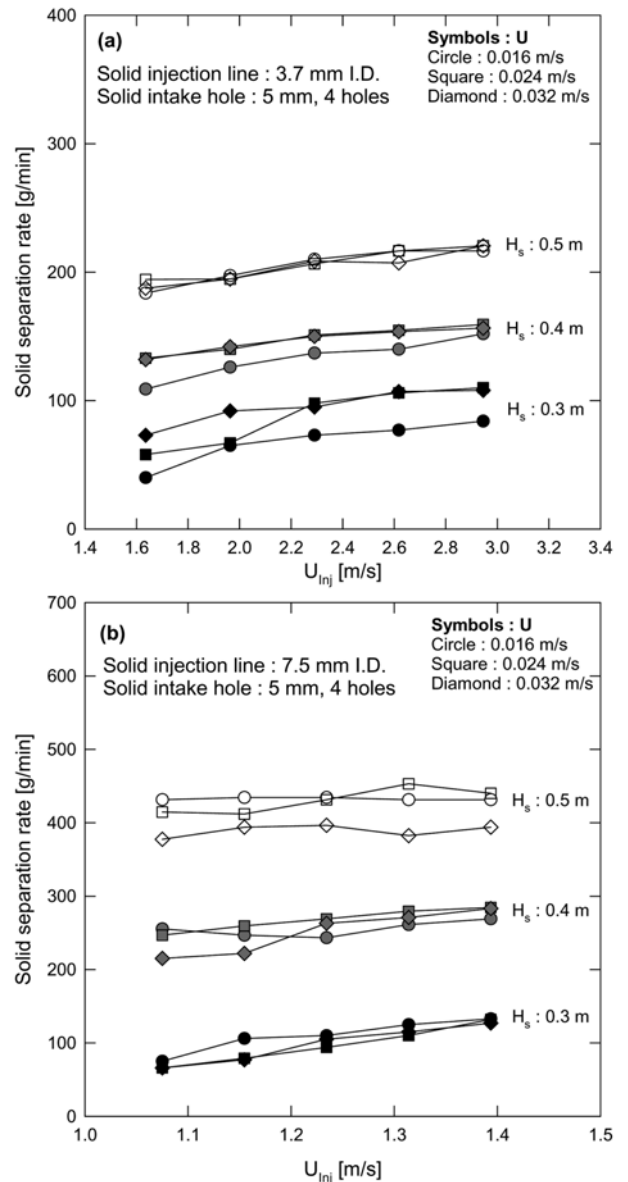


Fig. 2. Solid separation rate versus gas velocity through the solid injection nozzle.

은 경향은 고체유입구 상부에 존재하는 고체의 높이가 증가함에 따라 아래 방향으로 작용하는 압력이 증가하므로 고체유입구를 통한 고체유입속도가 증가하기 때문으로 사료되었다. Fig. 2(a)와 (b)를 비교하면 같은 유동화속도, 고체층높이 조건에서 고체분사노즐의 직경이 증가하였을 때 더 낮은 고체분사노즐 유속조건에서도 더 높은 고체분리속도를 나타내었으며 이는 고체분사노즐의 직경이 증가함에 따라 고체이송량이 증가하기 때문으로 사료되었다. 한편 Fig. 2(a)와 (b) 모두에서 기포유동층의 유동화속도 변화는 고체분리속도에 큰 영향을 미치지 않았는데, 이와 같은 경향은 층 내부가 유동화되어 기포유동층 조건에 해당하는 경우, 고체유입구를 통한 고체유입속도는 거의 일정하게 유지되는 것을 의미한다[9, 10].

본 연구에서 적용된 고체분리기의 고체분리속도를 종합적으로 고려하면 본 연구의 실험범위 내에서 고체층의 높이, 고체분사노즐의 유속, 고체분사노즐의 직경변화에 따라 66~453 g/min의 변화범위를 나타내었으며 결과적으로 각 변수의 조절을 통해 원하는 고체분리속도를 얻기 위한 고체분리기 및 고체분사노즐의 설계 및 설치방법을 도출할 수 있다. 한편 본 연구에서 적용한 고체분리기를 이용하여 Ryu 등[8]의 결과(4.4~127 g/min)에 비해 높은 고체분리속도를 얻을 수 있었다.

3. 고체순환실험

3-1. 실험

고체분리기를 이용한 실험에서는 분리된 고체입자가 유동층으로 재순환되었으나(Fig. 1), 실제 2탑 연결 유동층 공정에서는 분리된 고체입자가 다른 쪽 반응기로 유입되어 반응하게 되며, 다른쪽 반응기에서 일정시간 체류한 후에는 원래의 반응기로 재순환되어야 한다. 본 연구에서는 두 반응기 사이에 고체를 순환시키기 위한 방법으로 고체분리실험에서 사용한 고체분사노즐을 적용하였다. Fig. 3에는 고체순환실험에 사용된 실험장치를 나타내었다. 전체 실험장치는 플레넘(plenum), 유동층, 고체분사노즐, 상승관(riser), 사이클론 및 재순환관으로 구성되어 있다. 플레넘은 직경 0.15 m, 높이 0.15 m이며 바닥에서 0.09 m 높이에서 유동화기체가 주입되도록 하였다. 기체분사관은 플레넘과 유동층 사이에 위치하며, 1 mm의 구멍이 24개 뚫려있는 다공판(perforated plate)을 사용하였다. 유동층은 직경 0.15 m, 높이 0.8m의 투명 아크릴관으로 제작되었다. 최소 유동화속도의 측정과 원활한 유동화상태의 확인을 위해 분산판으로부터 높이 0.03, 0.77 m 높이에 있는 압력탭에 차압형 압력변환기(SIEMENS, Smart Type, 0~1,000 mmH₂O)를 설치하였으며 압력강하 측정값은 데이터 수집 시스템(Agilent, 34970A)에 의해 기록 및 저장되었다. 유동화기체와 고체분사용 기체로는 공기를 사용하였으며 질량유량계(MFC, Brooks, 5851E, 5850E)를 이용하여 주입하였다. 고체순환실험을 위한 충물질로는 고체분리기에서 분리되어 순환되는 입자를 고려하기 위해 고운입자(fine, 63~106 μm)에 해당하는 유리구슬(glass bead)을 사용하였다.

유동층의 내부에는 플레넘과 분산판을 관통하여 상승관 입구까지 연결된 고체분사노즐을 설치하였다. 고체분사노즐에는 고체유입구멍(Fig. 3의 4)이 뚫려있으며 이 구멍을 통해 고체입자가 유입되어 상승관까지 이송된다. 기포유동층에 주입된 기체 유량은 최소유동화상태 이상의 기포유동층 조건에 해당하지만 상승관에서는 단면적 감소에 의해 입자의 종말속도(terminal velocity) 이상으로 유속이 빨

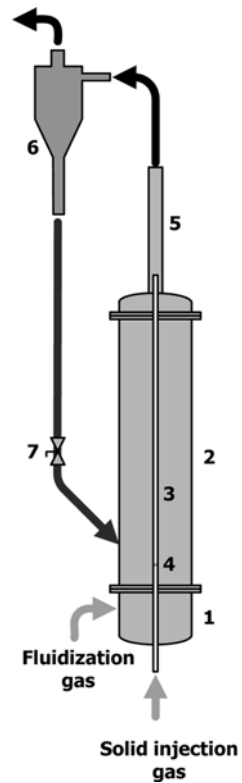


Fig. 3. Schematic of solid circulation test apparatus.

- 1. Plenum
- 2. Fluidized bed
- 3. Solid injection nozzle
- 4. Solid intake hole(s)
- 5. Riser
- 6. Cyclone
- 7. Valve

리지면서 상승관에 유입된 고체를 비산시켜 사이클론으로 이송시킨다. 사이클론에서 포집된 고체는 재순환관을 통해 다시 기포유동층으로 유입되게 된다.

실험방법은 다음과 같다. 먼저 고운입자(fine, 63~106 μm)를 유동층에 주입하고 원하는 유속에서 유동화시킨다. 층의 압력강하가 거의 일정해지면 고체분사용 기체를 주입하여 고체입자를 상승관으로 분사시킨다. 상승관에 도달한 입자는 고속의 기체에 의해 비산되고 사이클론과 재순환관을 통해 유동층으로 재순환된다. 고체순환속도 측정을 위해 먼저 재순환관의 밸브 위쪽으로 임의 높이에 눈금을 표시하고, 밸브와 눈금선 사이에 채워지는 고체의 무게를 측정하였다. 다음으로는 각 조업조건에서 정상적인 입도분리와 고체순환이 이루어짐을 확인한 후 재순환관의 밸브를 순간적으로 차단하여 일정높이까지 고체가 채워지는데 걸리는 시간을 측정하여 고체순환속도(solid circulation rate, g/min)를 계산하였다.

Table 2. Summary of experimental conditions and variables(solid circulation test)

| Item | Values |
|---|--------------------|
| Solid (glass bead) | Fine (63~106 μm) |
| Static bed height [m] | 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 |
| Fluidization velocity [m/s] | 0.03, 0.04 |
| Solid injection nozzle inside diameter [mm] | 3.7 |
| Solid intake hole diameter [mm] | 2 |
| No. of solid intake holes [#] | 2, 4 |
| Solid injection velocity [m/s] | 0.82~1.64 |

본 연구에서는 실험변수로 고체분사노즐의 유속, 유동화속도, 고체층 높이, 고체유입구명 개수를 변화시키면서 고체분리속도의 변화를 측정 및 관찰하였으며 실험조건 및 변수를 Table 2에 요약하여 나타내었다.

3-2. 고체순환실험 결과

Fig. 4(a)와 (b)에는 고체분사노즐의 고체유입구명이 2개인 경우와 4개인 경우 각각에 대해 고체분사노즐의 유속, 고체층높이 및 유동화속도 변화에 따른 고체분리속도의 변화를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 두 가지 고체분사노즐 모두에 대해 고체분사노즐의 유속이 증가함에 따라 고체순환속도가 증가하였다. 이와 같은 경향은 고체분리속도의 경우와 마찬가지로 고체분사노즐의 유속이 증가함에 따라 고체이송능력이 증가하기 때문으로 사료되었다. 또한 측정된 고체순환속도는 두 가지 고체분사노즐 모두에 대해 고체층의 높이가 증가함에 따라 증가하였으며 이와 같은 경향도 고체분리

속도의 경우와 마찬가지로 고체유입구 상부에 존재하는 고체의 높이가 증가함에 따라 아래 방향으로 작용하는 압력이 증가하므로 고체유입구를 통한 고체유입속도가 증가하기 때문으로 사료되었다. Fig. 4(a)와 (b)를 비교하면 같은 유동화속도, 고체층높이 조건에서 고체유입구명의 개수가 증가하였을 때 더 높은 고체순환속도를 나타내었으며 이는 고체유입구명 개수 증가에 따라 고체유입량이 증가하기 때문으로 사료되었다. 한편 Fig. 2에 나타난 바와 마찬가지로 Fig. 4(a)와 (b) 모두에서 기포유동층의 유동화속도는 고체순환속도에 거의 영향을 미치지 않았다. 본 연구에서 측정된 고체순환속도를 종합적으로 고려하면 본 연구의 실험범위 내에서 고체층의 높이, 고체분사노즐의 유속, 고체유입구명의 개수 변화에 따라 65~390 g/min의 변화범위를 나타내었으며 결과적으로 각 변수의 조절을 통해 원하는 고체순환속도를 얻기 위한 고체분사노즐의 설계 및 설치방법을 도출할 수 있다.

4. 2탑 유동층 고체분리-순환 연속운전 실증

앞서 개발한 고체분리기와 고체순환시스템을 적용하여 2탑 유동층의 한쪽 반응기에서는 고온입자와 굵은입자의 혼합입도 층물질을 유동화시키고, 고체분리기를 이용하여 고온입자를 선택적으로 분리하여 다른 쪽 반응기로 이송시키고, 다른쪽 반응기에서는 고온입자를 다시 원래의 반응기로 재순환시키는 시스템을 구성하였으며 연속운전을 실증하였다.

4-1. 실험

Fig. 5에는 고체분리-순환 연속운전 실증에 사용된 실험장치를 나타내었다. 왼쪽의 유동층 A는 Fig. 1의 고체분리 실험장치를, 오른쪽의 유동층 B는 Fig. 3의 고체순환 실험장치를 사용하였으며 세부

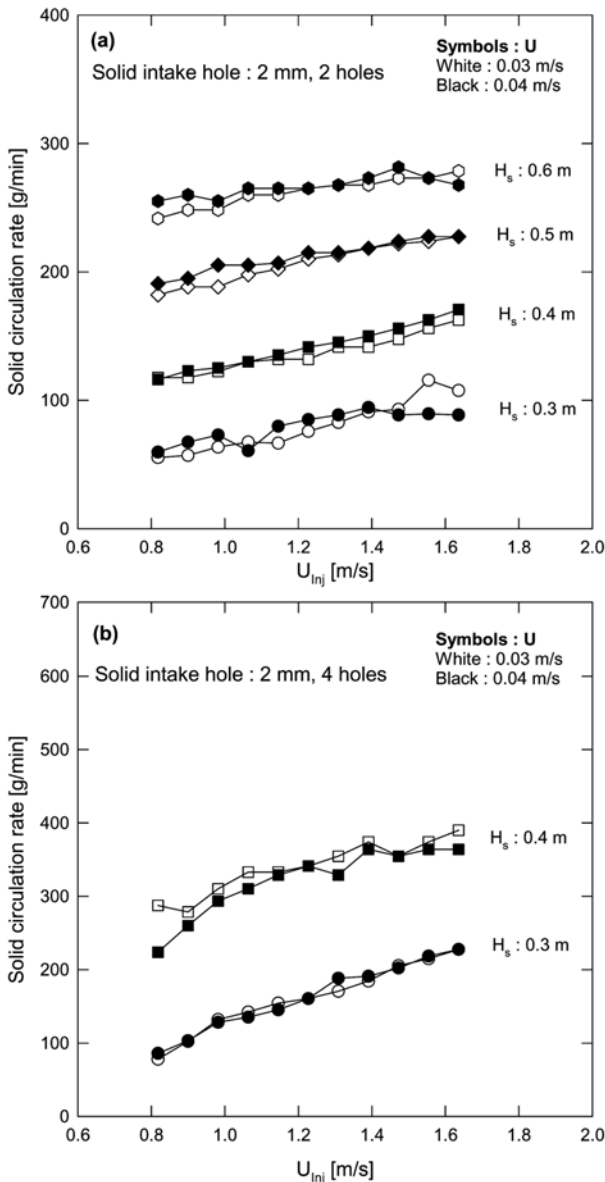


Fig. 4. Solid circulation rate versus gas velocity through the solid injection nozzle.

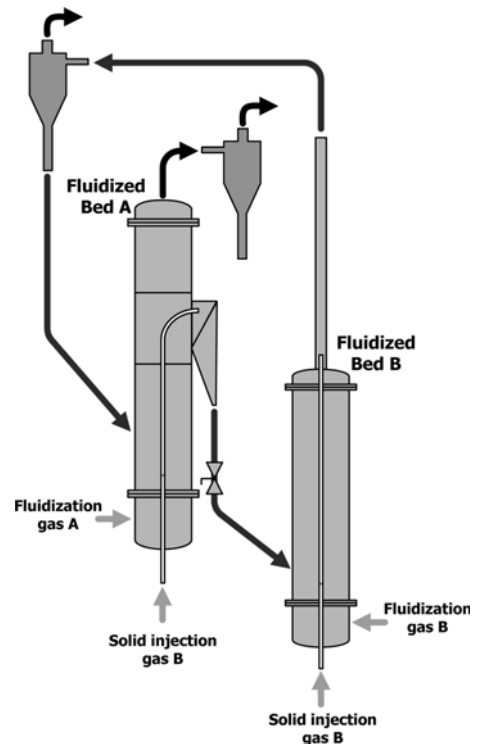


Fig. 5. Schematic of solid separation and circulation continuous operation test apparatus.

사양은 앞서 설명한 바와 동일하다. 두 유동층 모두 유동화기체와 고체분사용 기체로는 공기를 사용하였으며 질량유량계(MFC, Brooks, 5851E, 5850E)를 이용하여 주입하였다. 유동층 A의 경우 직경 5 mm의 고체유입구멍 4개가 뚫려있는 내경 7.5 mm의 고체 분사노즐을 사용하였으며, 유동층 B는 직경 2 mm의 고체유입구멍 1개가 뚫려있는 내경 3.7 mm의 고체분사노즐을 사용하였다. 고체 분리-순환 실험을 위한 층물질로는 입도분포가 다른 두 종류의 유리구슬(glass bead)이 사용되었으며 입도분포에 따라 고운입자(fine, 63~106 μm)와 굵은입자(coarse, 212~300 μm)로 구분하였다.

실험방법은 다음과 같다. 먼저 유동층 A에 고운입자(fine, 63~106 μm)와 굵은입자(coarse, 212~300 μm)를 2대 1로 혼합한 층물질을 0.4 m 높이로 주입하고, 유동층 B에 고운입자를 0.3 m 높이로 주입하였다. 층물질이 주입된 상태에서 유동화기체를 주입하여 원하는 유속에서 유동화시킨다. 층의 압력강하가 거의 일정해지면 먼저 유동층 A에 고체분사용 기체를 주입하여 혼합입도의 고체입자를 고체분리기에 분사하여 고운입도의 입자를 분리한다. 분리된 입자가 유동층 B로 순환되는 것을 확인한 후, 유동층 B에 고체분사용 기체를 주입하여 고운입자를 다시 유동층 A로 재순환시킨다. 두 유동층의 유동화 유속과 고체분사노즐의 유속을 변경하여 두 반응기 사이의 고체순환이 원활하게 이루어지고 두 유동층의 고체층 높이 변화가 거의 없는 조건을 선정하였으며, 이 조건에서 장기연속운전을 수행하였다. 고체분리-순환 연속운전 과정에서 고체분리기에 설치된 금속망의 눈막힘 현상 여부를 파악하기 위해 고체분리기에서 유동

Table 3. Summary of experimental conditions and variables(solid separation and circulation test)

| Item | Fluidized bed A | Fluidized bed B |
|---|--|------------------------------|
| Solids (glass beads) | Fine (63~106 μm) + Coarse (212~300 μm) | Fine (63~106 μm) |
| Mixing ratio of fine to coarse | 2 | - |
| Separation area [m^2] | 0.017 | - |
| Static bed height [m] | 0.4 | 0.3 |
| Fluidization velocity [m/s] | 0.030 | 0.015 |
| Solid injection nozzle inside diameter [mm] | 7.5(3/8") | 3.7(1/4") |
| Solid intake hole diameter [mm] | 5 | 2 |
| No. of solid intake holes [#] | 4 | 1 |
| Solid injection velocity [m/s] | 1.2 | 0.7 |

층 B로 고체입자를 이송시키는 재순환관에 밸브를 설치하여 연속 운전 중의 고체분리속도 변화를 측정하였다. 2탑 유동층에서 고체 분리-순환 장기연속운전 실험조건을 Table 3에 요약하여 나타내었다.

4-2. 고체분리-순환 연속운전 결과

Fig. 6(a)부터 (d)까지는 고체분리-순환 연속운전 실험동안 유동층 A와 B의 유동화 유량, 고체분사노즐 유량, 층 압력강하 및 고체분리속도의 변화를 나타내었다. 그림에 나타난 바와 같이 총 조업시

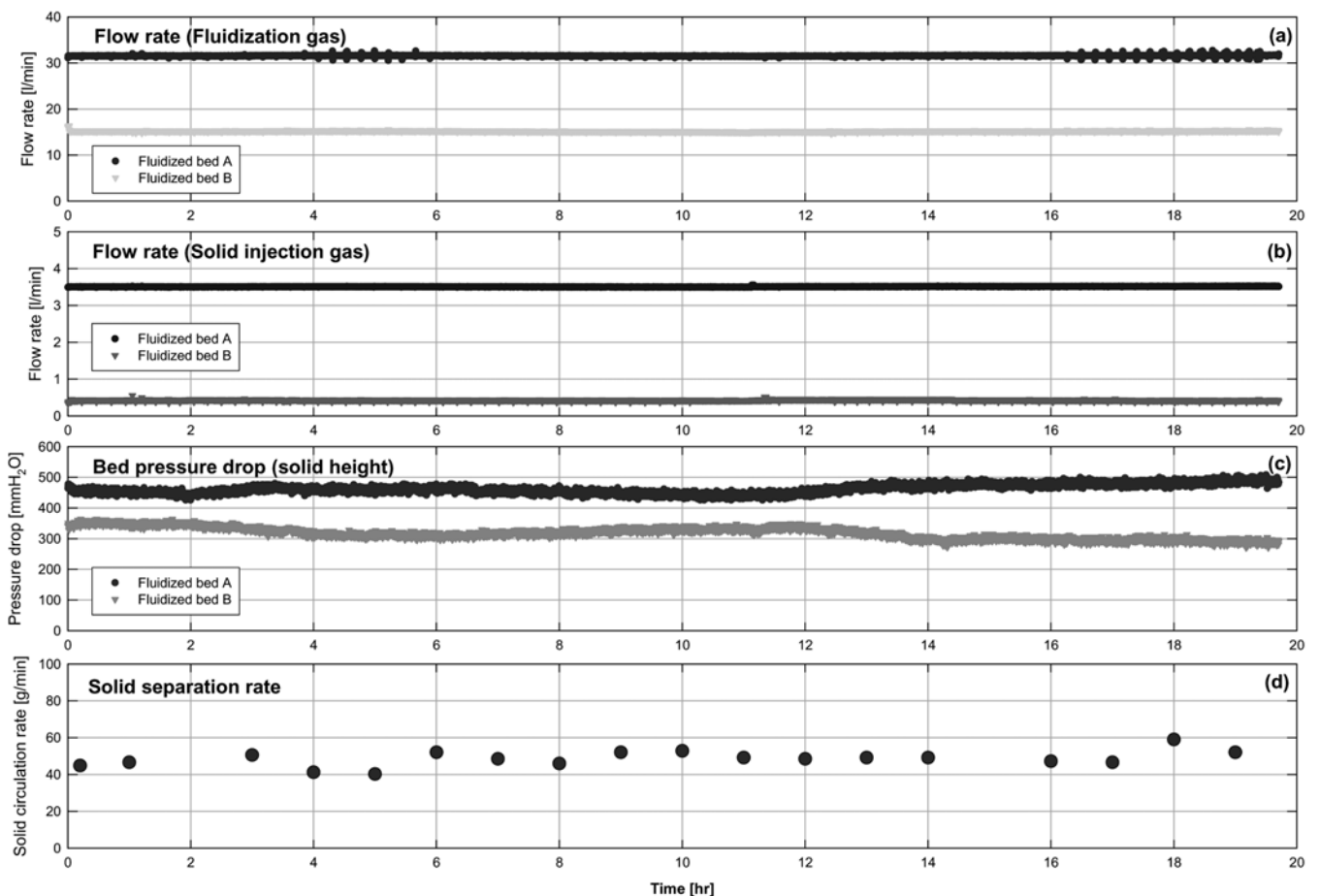


Fig. 6. Traces of gas flow rate, pressure drop, and solid circulation rate during long-term operation.

간은 약 20시간(19.7시간)이었으며 연속운전 시간동안 고체분사노즐 유량의 변화는 없었으나 Fig. 6(a)에 나타난 바와 같이 3시간부터 6시간 사이 및 16시간부터 실험 종료시까지 유동층 A의 질량유량계에 이상이 발생하여 유량이 다소 요동하는 현상을 보였으며, 19.7시간 이후에 이러한 현상이 심해져 연속운전을 종료하였다. 한편 Fig. 6(c)에 나타난 바와 같이 두 유동층의 압력강하는 전체 운전시간 동안 거의 일정하게 유지되었으며 이는 두 유동층의 고체층 높이가 거의 일정하게 유지되었음을 의미한다. 결과적으로 유동층 A에서 분리되어 유동층 B로 주입된 고체량만큼, 유동층 B에서 유동층 A로 고체입자가 재순환되었음을 의미한다. Fig. 6(d)에는 연속운전 시간동안 고체분리속도의 변화를 나타내고 있다. 그림에 나타난 바와 같이 고체분리속도는 거의 일정하게 유지되었으며 평균값은 49 g/min으로 나타났다. Fig. 6(a)부터 (d)에 나타난 바와 같이 본 연구에서 개발된 선택적 고체순환이 가능한 2탑 유동층 시스템은 약 20시간 동안 조업조건의 변화 없이 장기연속운전이 가능하였으며 두 유동층 사이의 원활한 고체순환이 가능하였고 유동화조건 유지가 가능하였다. 또한 고체분리속도의 변화가 크지 않았으므로 고체분리기 금속망의 눈막힘 현상은 크지 않은 것으로 사료되었다.

5. 결 론

선택적 고체순환이 가능한 신개념 2탑 유동층 공정에 적용하기 위한 고체분리기와 고체순환시스템을 개발하였으며 고체분리속도와 고체순환속도에 미치는 여러 변수들의 영향을 고찰하였다. 또한 개발된 고체분리기와 고체순환시스템을 적용하여 선택적 고체순환이 가능한 2탑 유동층 공정을 구성하였으며 고체분리-순환 장기연속운전을 실증하였다. 본 연구의 실험범위에서 얻어진 결론은 다음과 같다.

- (1) 본 연구에서 개발한 금속망을 이용한 고체분리기를 이용하여 굵은입자(212~300 μm)와 고운입자(63~106 μm)의 분리가 가능하였으며 본 연구의 실험범위에서 고체분리속도는 66~453 g/min의 범위를 나타내었다.
- (2) 고체분리기에 의한 고체분리속도는 고체분사노즐의 유속, 고체층 높이, 고체분사노즐의 직경이 증가함에 따라 증가하였으며 유동화 속도의 영향은 크지 않았다.
- (3) 본 연구의 실험범위에서 고체순환시스템의 고체순환속도는 65~390 g/min의 범위를 나타내었으며 고체분사노즐의 유속, 고체층 높이, 고체유입구멍의 개수가 증가함에 따라 증가하였고 유동화 속도의 영향은 크지 않았다.
- (4) 고체분리기와 고체순환시스템을 적용하여 선택적 고체순환이 가능한 2탑 유동층 공정을 구성하였으며 약 20시간 동안 안정적인 고체분리-순환 장기연속운전을 실증하였다.

감 사

본 연구는 지식경제부 에너지·자원기술개발 사업의 일환으로 수행되었습니다. 연구비 지원에 감사드립니다.

사용기호

- H_s : solid height in the fluidized bed [m]
 U : fluidization velocity [m/s]
 U_{inj} : gas velocity through the solid injection nozzle [m/s]

참고문헌

1. Kunii, D. and Levenspiel, O., *Fluidization engineering*, 1st Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York(1969).
2. Yi, C. K. and Luyben, W. L., "Dynamic Model and Control Structure for a Hot Gas Desulfurization Fluidized Process," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **38**, 4290-4298(1999).
3. Yi, C. K., Jo, S. H., Seo, Y., Lee, J. B. and Ryu, C. K., "Continuous Operation of the Potassium-based Dry Sorbent CO₂ Capture Process with Two Fluidized-Bed Reactors," *Int. J. of Greenhouse Gas Control*, **1**, 31-36(2007).
4. Ryu, H. J. and Jin, G. T., "Conceptual Design of 50 kW Thermal Chemical-Looping Combustor and Analysis of Variables," *Energy Engg. J.*, **12**(4), 289-301(2003).
5. Ryu, H. J. and Jin, G. T., "Chemical-Looping Hydrogen Generation System: Performance Estimation and Process Selection," *Korean J. Chem. Eng.*, **24**(3), 527-531(2007).
6. Ryu, H. J., "Hydrogen Generation Characteristics of SMART System with Inherent CO₂/H₂ Separation," *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, **18**(4), 382-390(2007).
7. Ryu, H. J., Yi, C. K., Shun, D. and Jin, G. T., "Conceptual Design and Performance Estimation of SEWGS Process for Precombustion CO₂ Capture," *Theories and Applications of Chem. Eng.*, KICChE, **14**(2), 294(2008).
8. Ryu, H. J., Park, Y. C., Lee, S. Y. and Kim, H. K., "Development of Solid Separator for Selective Solid Circulation in Two-interconnected Fluidized Beds System," *Korean Chem. Eng. Res.*, **47**(2), 195-202(2009).
9. Ryu, H. J., Park, Y. C., Jo, S. H. and Park, M. H., "Development of Novel Two-Interconnected Fluidized Bed System," *Korean J. Chem. Eng.*, **25**(5), 1178-1183(2008).
10. Ryu, H. J., Park, J., Kim, H. K. and Park, M. H., "Solid Circulation Characteristics in a 3 kW Chemical-looping Combustor," *Korean Chem. Eng. Res.*, **46**(6), 1057-1062(2008).