

두 개의 Loopseal을 갖는 KIER 고체순환 유동층공정에서의 압력균형곡선

이창근[†] · 배달희 · 선도원 · 진경태 · 손재익

한국에너지기술연구소 에너지환경연구부
(1998년 11월 27일 접수, 1999년 4월 8일 채택)

Pressure Balance Curves in KIER Solid Circulating Fluidized Process with Two Loopseals

Chang-Keun Yi[†], Dal-Hee Bae, Dowon Shun, Gyoung-Tae Jin and Jae-Ek Son

Energy Environment Research Department, Korea Institute of Energy Research
(Received 27 November 1998; accepted 8 April 1999)

요 약

고온건식탈황공정은 황화반응기와 재생반응기, 그리고 둘 사이의 고체순환관을 필요로 한다. 본 연구에서는 하나의 유동층 반응기, 하나의 riser 반응기, 그 둘을 이어주는 두 개의 loopseal을 갖는 KIER 고온건식탈황 시스템에서 두 반응기 사이의 고체순환특성을 관찰하기 위하여 압력균형이 측정되었다. 내경 3 cm riser와 내경 7.5 cm의 유동층 반응기의 상온장치 의 여러 점에서 차압이 측정되어 voidage와 기-고 평균 충밀도가 계산되었다. 압력균형고리가 하나의 닫힌 계로 표현되었기 때문에 고체순환이 원활한 것으로 판단되었고, loopseal은 역흐름을 차단하는 역할을 하였기 때문에 본 시스템은 기계적 밸브를 사용하지 않고도 두 종류의 반응이 일어나는 고온건식탈황 반응기에서 사용할 수 있는 가능성을 보여 주었다.

Abstract – KIER hot gas desulfurization system consisting of a reactor of a transport mode, a regenerator of a fluidized bed mode, two loopseals, and two gas streams was tested for the stable operation of circulating solids between two reactors. Pressures in a circulation loop at various conditions were measured in a cold mode (a 0.03 m I.D. riser and a 0.075 m I.D. fluidized bed) with particles of mean diameter of 87×10^{-6} m and the bulk and particle density of 1,900 and 3,300 kg/m³ respectively. The voidages and mixture densities of gas-solid at various sections were analyzed from differential pressures data. The continuous circulation of solids was confirmed by the single closed loop of pressure balance curves. The loopseal took a role of preventing the gas of a reactor from flowing to another reactor.

Key words: Pressure Balance Curve, Two Fluidized Bed Reactors, Loopseal, Voidage, Hot Gas Desulfurization, Particles Circulation, Hydrodynamics

1. 서 론

순환 유동층공정은 필요로 하는 고체순환과 취급가스의 개수에 따라 분류할 수 있다. 첫째, 순환 유동층 연소로, Synthol공정과 같은 한 고리, 한 기체 순환공정(single-loop one-gas system), 둘째, UOP의 FCC, Lurgi의 sand cracking공정과 같은 한 고리, 두 기체 순환공정(single-loop two-gas system), 셋째, Kunii-Kunugi의 thermal cracking공정, Exxon의 FCC 공정과 같은 두 고리, 두 기체 순환공정(double-loop, two-gas system)으로 구분할 수 있다[1]. 그러므로 반응기 형태, 고체순환방식과 밸브의 선택에 따라 각각 독자적인 공정이 이루어진다.

고온건식탈황(hot gas desulfurization)공정은 IGCC의 가스정제부분에 속하며, 가스화로부터 생성되어 나오는 석탄가스 중의 H₂S 및 COS를 제거하여 가스터빈에서의 부식문제 및 공해문제를 해결하는 공정이다. 따라서 석탄가스에 의한 황화반응과 산화성가스에 의한 재생반응이 연

속적으로 일어나야 하며 두 반응기 사이에 기체의 혼합을 최소화하면서 탈황제를 연속적으로 순환시켜야 한다. 이러한 기-고 시스템에 있어서 그 고체들을 어떻게 안정되고 연속적으로 순환시키느냐가 공정개발에 있어서 관건이 된다. 즉, 고체순환시스템의 적절한 설계가 이 공정의 상용화를 위해서 가장 중요한 열쇠가 된다. 기본적인 문제들은 순환 형태의 선택, 관크기의 결정, 기체유속, 고체순환율의 결정 등이다.

Kunii와 Levenspiel[1]은 고체의 순환이 이루어지는 여러 공정에서 공정 내의 고체흐름에 따른 압력균형곡선을 보여주었다. 한국에너지기술연구소는 한 반응기가 유동층, 다른 반응기가 고속의 transport reactor로 유지되고, 고체 순환이 두 개의 loopseal에 의해서 이루어지는 KIER 고체순환 유동층공정을 제안하였다[2]. 본 연구에서는 제안된 공정 전체에서의 압력강하를 측정하여, 한 시스템에서 고체가 원활하게 순환하는지 확인하고, 각 부분에서 충밀도를 예측하여 반응기 설계시 자료로 활용하고자 한다. 또한 두 반응기 사이에 고체흐름을 갖는 유사 유동층공정에서 고체순환기술을 확보하는데에도 그 목적이 있다.

[†]E-mail : ckyi@kier.re.kr

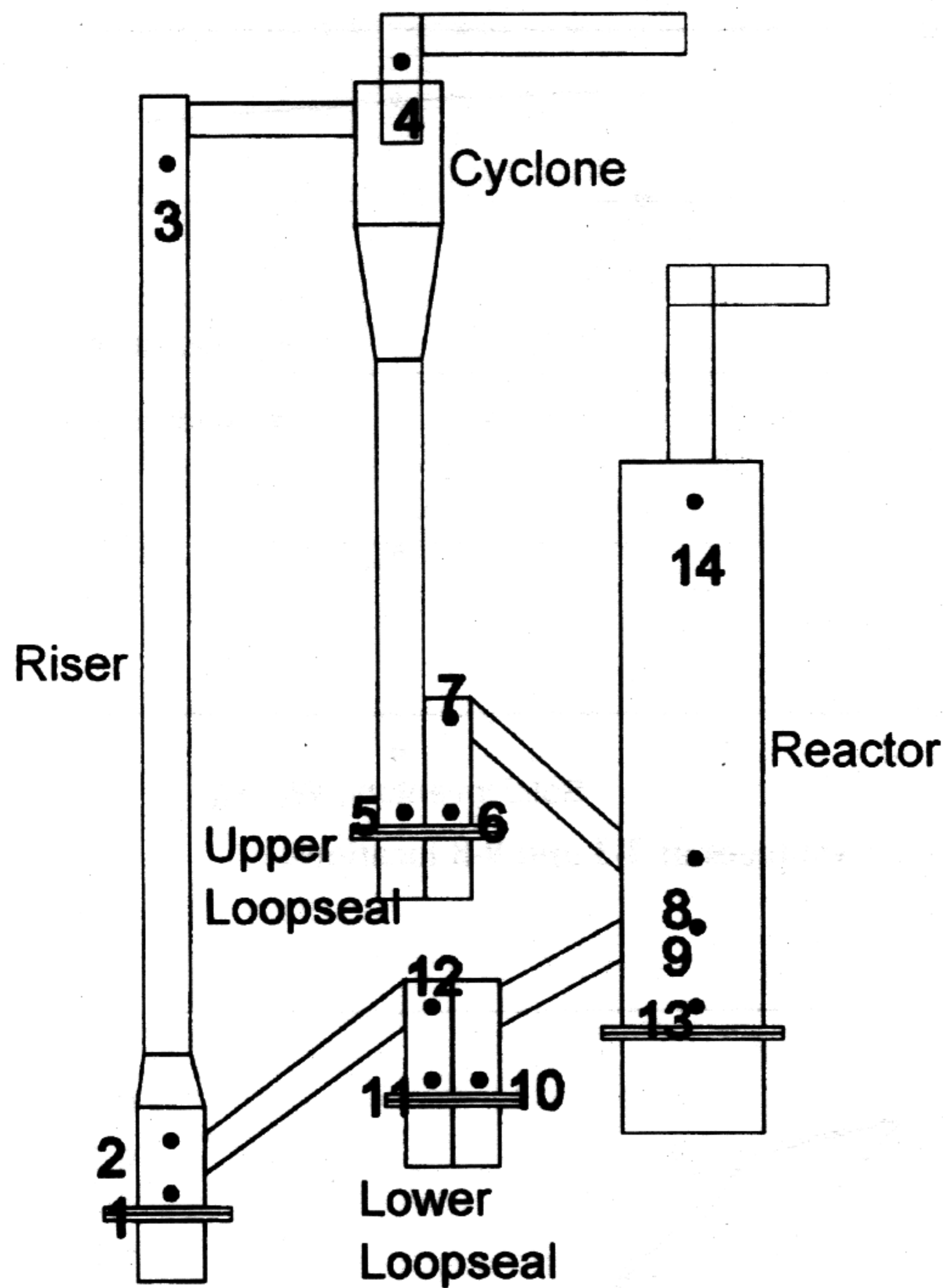


Fig. 1. Schematic of the cold-mode of a solid circulation system with two loopseals.

2. 실험

2-1. 실험장치 및 방법

Fig. 1은 실험에 사용된 고체순환 상온장치이다. 재질은 Plexi-glass로 만들어져 있으며, 왼편의 riser는 밑부분이 내경 0.05 m×높이 0.25 m, 윗부분은 내경 0.03 m×높이 1.59 m의 두 부분이 길이 0.05 m의 reducer관에 의하여 연결되어 있다. 오른쪽 반응기는 내경 0.075 m×높이 0.75 m의 유동층 반응기로 공기분산판과 연결되어 있다. Riser와 반응기는 두 개의 loopseal에 의하여 연결되어 있는데, 윗쪽 loopseal은 사이클론 하부에 연결되어 있으며 반응기 분산판위 0.35 m위치에 연결되어 있으며, 아랫쪽 loopseal은 반응기 분산판위 0.15 m위치와 riser 분산판위 0.15 m위치에 연결되어 있다. 사이클론에서 나가는 출구와 반응기에서 나가는 출구는 서로 분리되어 있다. Loopseal의 aeration시키는 곳은 윗쪽 loopseal은 밑에서 두 군데, 옆쪽 5번, 아랫쪽 loopseal은 밑에서 두 군데, 옆쪽 10번이다. 유량은 rotameter를 사용하여 조절할 수 있다. 각 압력점에는 manometer를 연결하여 대기압과의 상대압을 측정하며, 측정은 매 분 사진을 찍어 동시에 읽도록 하였다. 사이클론과 반응기 출구에 필터를 설치하여 실험 중 비산 마모에 의해 포집되는 양을 측정하였다.

2-2. 입자의 특성

본 실험에 사용된 입자는 spray drying 법에 의하여 제조된 금속산화물 탈황제(EZ1)를 사용하였다. 아연계 탈황제의 평균입경은 87×10^{-6} m, skeletal 밀도는 $4,700 \text{ kg/m}^3$, particle 밀도는 $3,300 \text{ kg/m}^3$, bulk 밀도는 $1,900 \text{ kg/m}^3$ 이다. Fig. 2는 EZ1의 입도분포를 보여준다. 최소 30×10^{-6} m부터 최대 200×10^{-6} m까지 고른 정상분포(normal distribution)를 보여주고 있으며 원시료의 크기인 sub-micron의 크기도 약간 보이고 있다. 이 입자는 Geldart의 입자분류법에 따르면 B group에 속한다고 볼 수 있다[3].

2-3. 실험범위

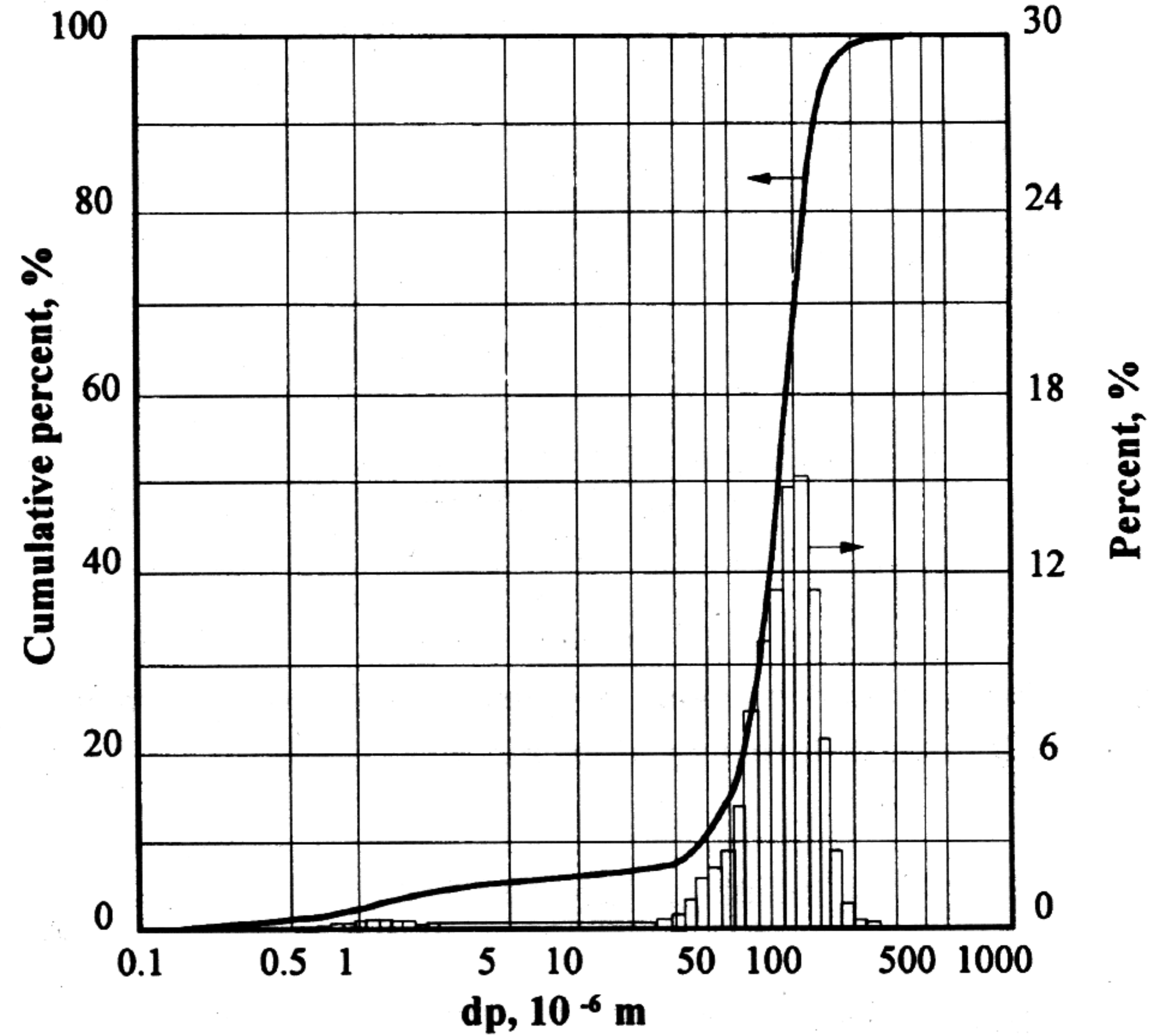


Fig. 2. Size distribution of used particle(EZ1).

Table 1. Experimental range of variables

Variables	Range
Initial charge of particles, W_s	3.5-4.5 kg
Gas velocity at riser U_{rs}	3.93-6.29 m/s
Gas velocity at reactor, U_r	0.22-0.35 m/s
Gas flow rate at lower loopseal, Q_{loop}	0.1-0.4 Nm^3/h

본 실험에서의 실험변수는 초기 입자 충전량(W_s), riser에서의 유속(U_{rs}), 반응기에서의 유속(U_r), loopseal에서의 기체유량(Q_{loop})이다. 실험범위는 Table 1과 같다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 압력 균형곡선

Fig. 3은 두 개의 loopseal을 갖는 두 유동층 반응기에서의 고체순환을 압력으로 표시한 그림이다. 입자를 3.5 kg 충전하고 reactor에서의 유속이 0.22 m/s, riser에서의 유속이 3.93 m/s인 조건에서 압력균형곡선이다. 2-3-4-5-6-7-8-9-10-11-12-2가 닫힌 계(closed-loop)로서 하나의 순환고리를 나타내고 있으며, 1-2, 13-9, 14-8번이 꼬리모양으로 달려 있는 형상을 보이고 있다. 아래 loopseal의 10번을 기준으로 즉 $\Delta P_{10,9} + \Delta P_{9,8} + \Delta P_{8,14}$ (그림의 점선으로 표시된 폐순환고리의 아랫선)은 아래 loopseal의 11번 기준으로 $\Delta P_{11,12} + \Delta P_{2,3} + \Delta P_{3,4}$ 의 합(그림의 일점쇄선

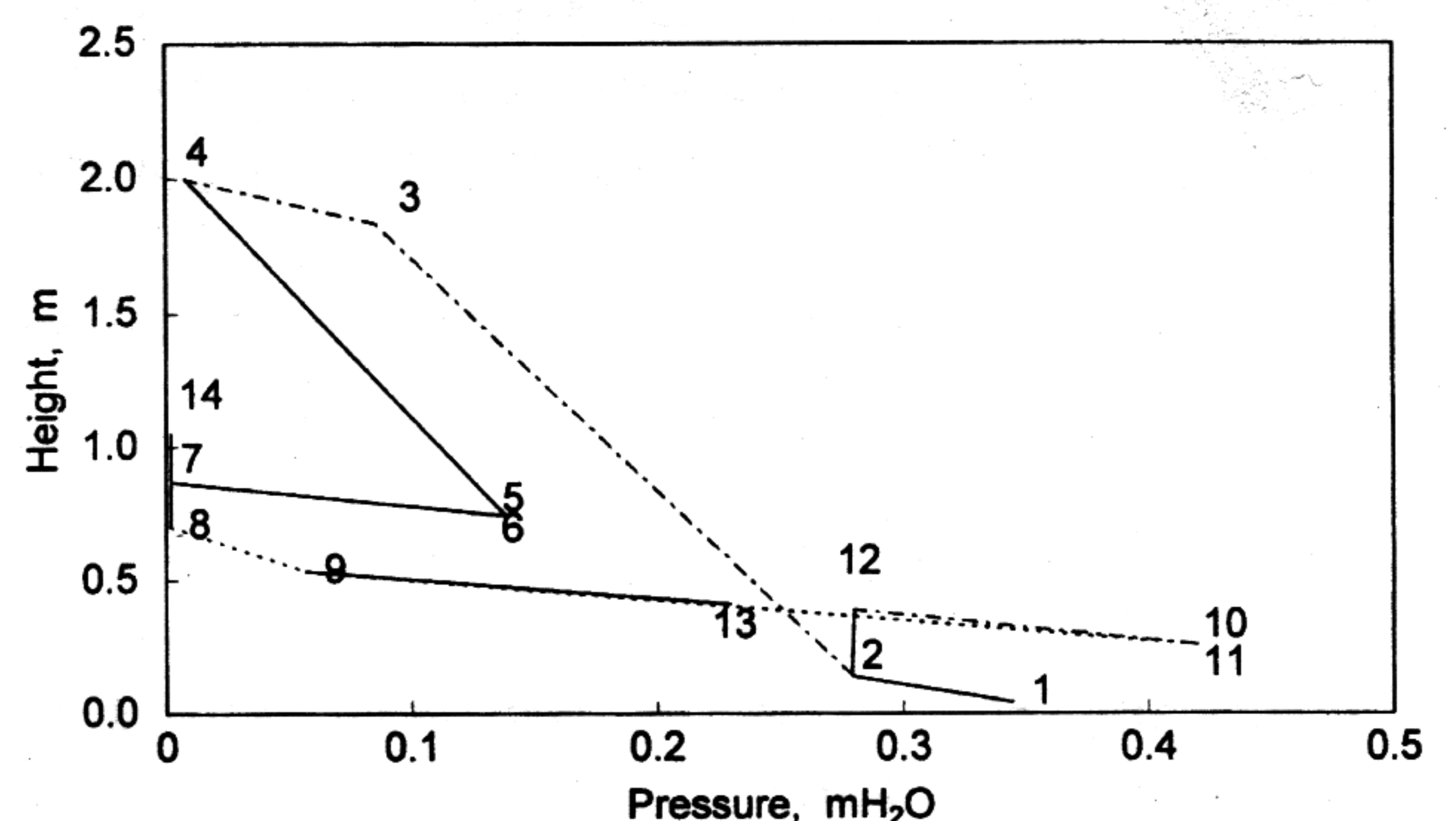


Fig. 3. Pressure balance curve of two loopseal system($W_s=3.5 \text{ kg}$; $U_r=0.22 \text{ m/s}$; $U_{rs}=3.93 \text{ m/s}$).

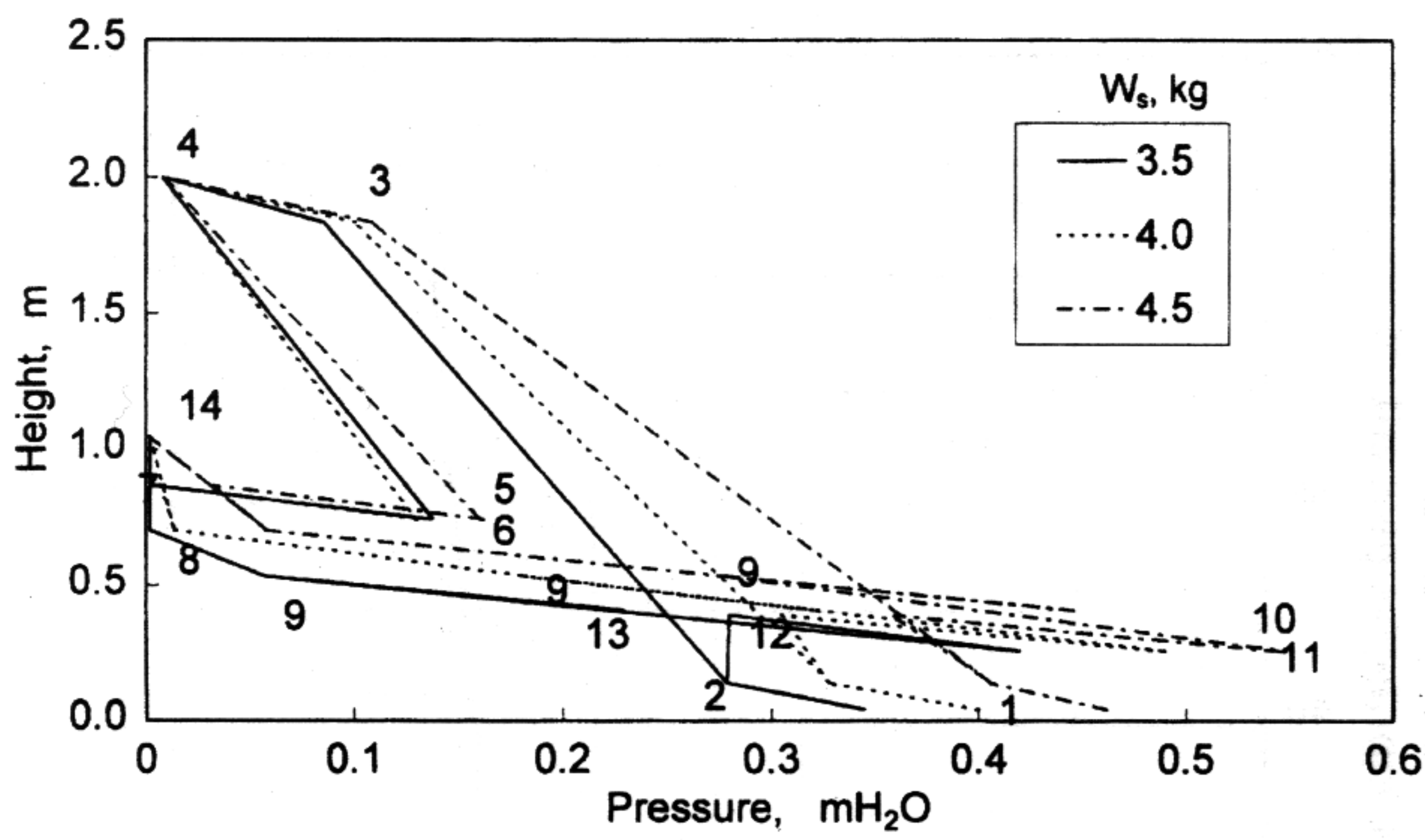


Fig. 4. Effects of solid inventory on pressure balance ($U_{rs}=3.93$ m/s; $U_{rr}=0.22$ m/s; high velocity at loopseal).

으로 표시된 폐순환고리의 윗선)과 거의 같다.

3-2. 역흐름의 가능성고찰

두 개의 반응기를 사용하는 시스템에서 각 반응기의 가스흐름은 분리가 되어 있어야 하고 다른 반응기로의 역흐름이 일어나서는 안된다. 그러므로 본 시스템에서도 한 쪽 가스가 다른 쪽 반응기로 흘러 들어가는지 조사하는 것이 필요하다.

아랫쪽 loopseal에서의 결과를 보면 riser 2번에서 riser 상부 3번으로 가스가 흐르지만, loopseal 쪽인 12번으로 흐를 가능성을 고찰해 볼 수 있다. 2번 위치에서 가스는 3번 또는 12번으로 흐를 수 있다. 그런데 P3과 P12를 비교해 보면 P3이 P12에 비해 훨씬 작기 때문에 가스는 P3쪽으로 흐른다. Fig. 3에서 P2가 P12보다 크기 때문에 12번 쪽으로도 약간 흐르지만 P10과 P11이 크기 때문에 역흐름을 차단한다. 즉 아래 loopseal의 높이가 낮게 설치될수록, 또는 loopseal의 길이가 길수록 seal로서의 고체의 역할은 증가하는 것이다.

윗쪽 loopseal에서도 같은 결과를 볼 수 있다. 8번, 7번, 14번의 압력을 비교해 보면, 모두 같은 압력이므로 양방향으로 흐를 수 있지만 P6과 P5가 P7에 비하여 월등히 크기 때문에 가스는 14번 쪽으로 흐른다. 본 실험에서는 두 loopseal의 크기가 거의 같기 때문에 6-7사이의 간격과 11-12사이의 간격이 같게 나타나고 있다.

3-3. 충전량(W_s)의 영향

Fig. 4는 riser에서 유속이 3.93 m/s, reactor에서의 유속이 0.22 m/s에서의 조건에서 초기 충전량을 3.5 kg, 4.0 kg, 4.5 kg으로 상승시켰을 때 pressure balance 곡선이 어떻게 변화하는지 본 것이다. 충전량이 증가함에 따라 가장 눈에 띄는 변화는 1번의 절대 압력이 증가하여 오른쪽으로 움직이며, 2-3사이의 차압이 증가하여 오른쪽으로 움직이고, 8-9의 차압도 증가하여 오른쪽으로 이동하였다. 이는 riser에서 1-2-3사이의 차압이 증가하여 riser 내의 충밀도 또는 충높이가 증가하고 있음을 알 수 있다. Reactor 내에서도, 8-9의 차압도 충전량의 증가에 따라 증가하는데 이는 전체 충전량 증가에 의한 충높이 상승을 보여주는 것이다.

이 그림으로부터 또한 두 지점간의 기고 평균 bulk 밀도와 voidage를 구할 수 있다.

$$P_j - P_i + \frac{\bar{\rho}_{i,j} g (h_j - h_i)}{g_c} + \Delta P_{i,j,fric} = 0$$

윗 식에서 $\Delta P_{i,j,fric}$ 의 값은 마찰손실로 riser의 내경이 커서 wall effect가 작을 경우 무시할 수 있다.

Fig. 5는 2-3번, 9-8번 사이의 평균 voidage를 보여준다. 반응기에서 9-8사이의 평균 voidage가 초기충전량이 증가함에 따라 감소하는 것

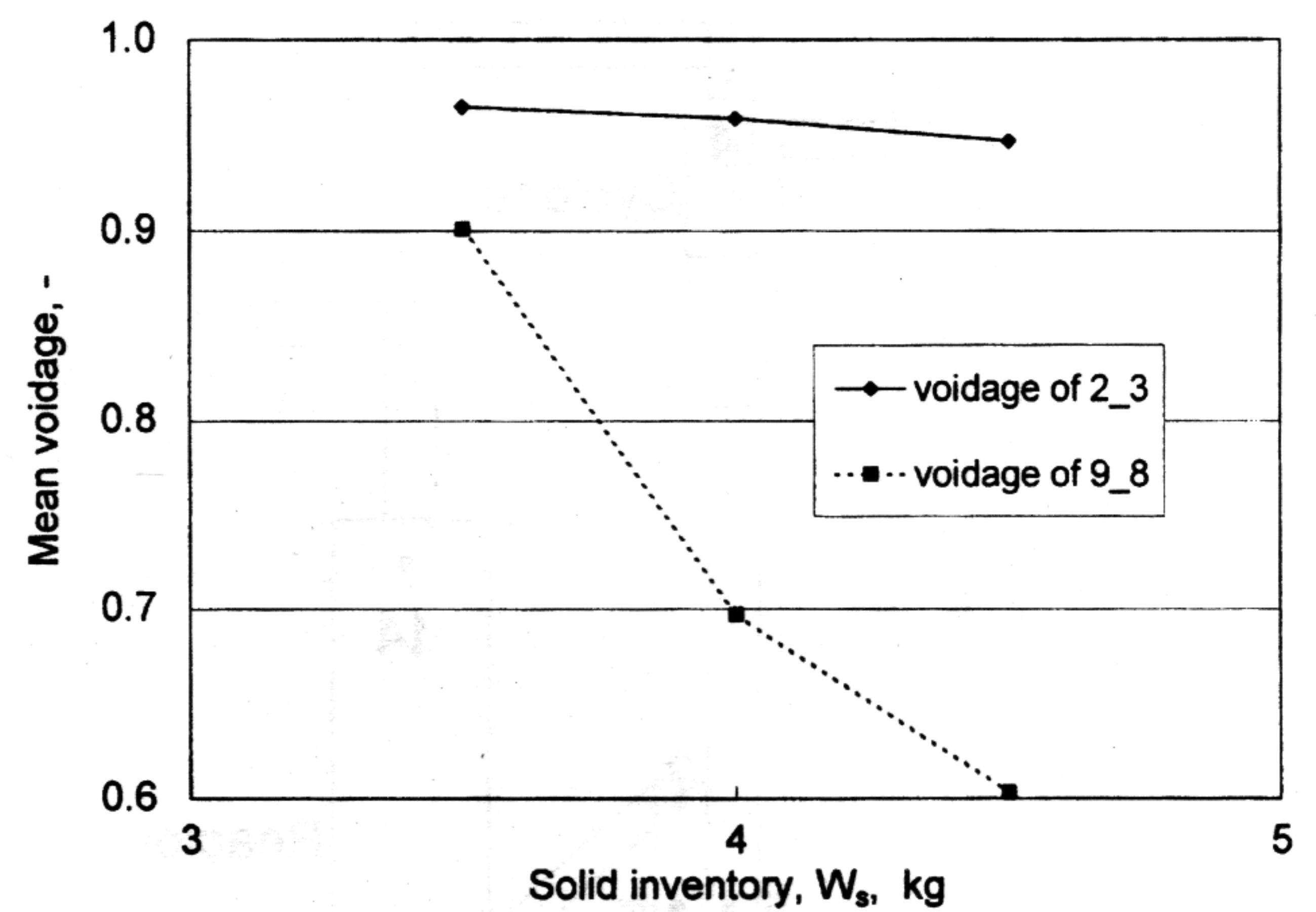


Fig. 5. Mean voidages at 2-3 and 9-8 locations.

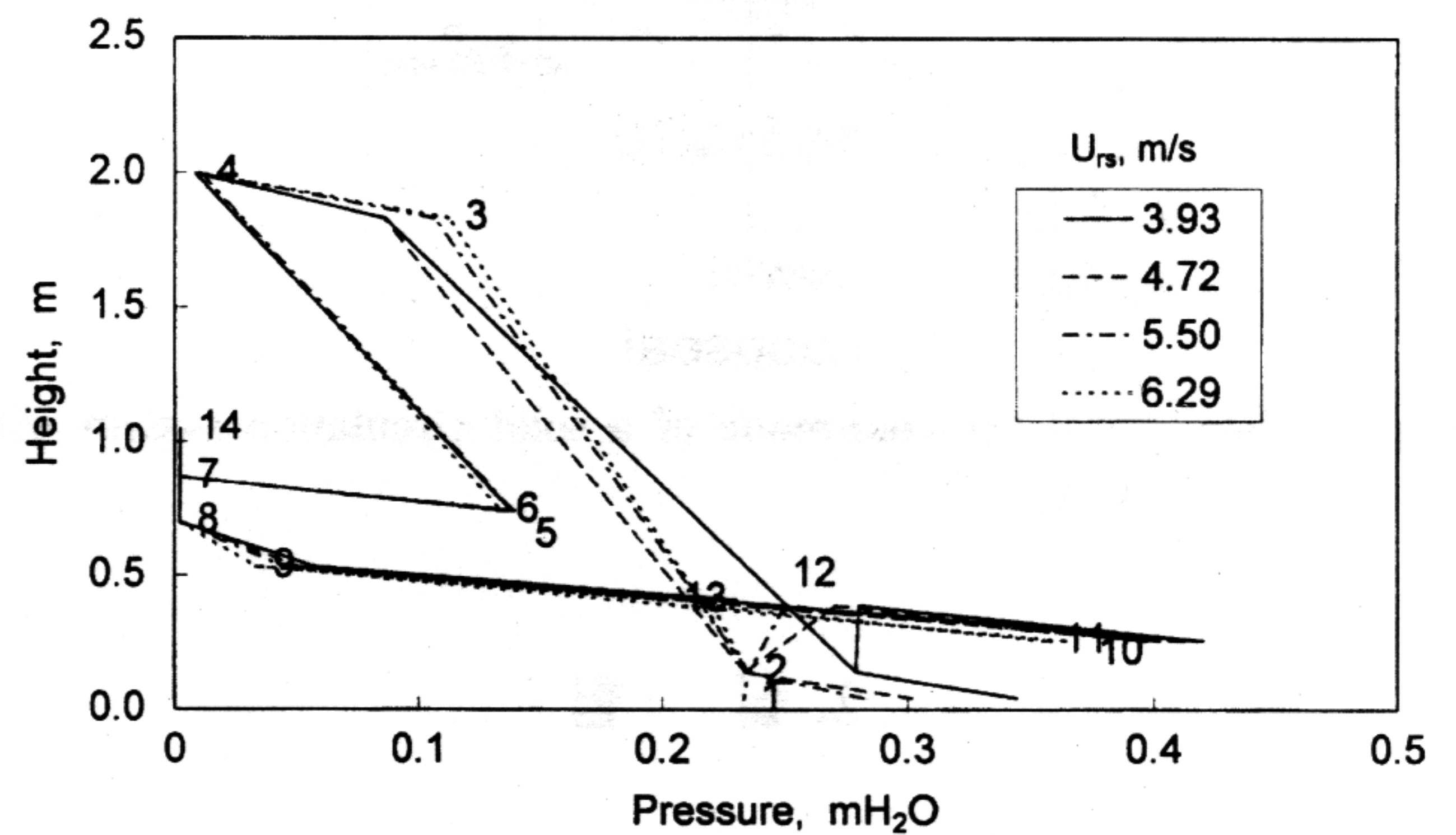


Fig. 6. Effects of gas velocities at riser on pressure balance curves ($W_s=3.5$ kg; $U_{rr}=0.22$ m/s; high velocity at loopseal).

은 고정충높이가 상승함을 보여준 것이다. Riser에서는 초기충전량이 증가함에 따라 voidage가 감소하고 있다. 이는 riser의 평균충밀도가 상승함을 보여주고 있으나 반응기에서의 보여준 voidage 감소율에 비하여 riser에서의 감소율이 상당히 작다. 이는 초기 충전량이 증가하더라도 그 증가분의 대부분은 반응기쪽에 쌓여 충높이 상승으로 나타난다는 것을 보여주는 것이다. 즉 loopseal의 크기가 같음에도 불구하고 아랫쪽 loopseal이 고체순환속도의 율속단계가 되고 있음을 간접적으로 보여주는 것이다.

3-4. Riser에서의 유속변화에 따른 압력 balance

Riser에서의 유속을 변화시켰을 때 압력균형곡선이 어떻게 변하는지를 관찰하였다. Fig. 6은 초기 충전량 3.5 kg, 반응기에서의 유속이 0.22 m/s인 조건에서의 압력균형곡선의 변화를 보여준다. Riser에서의 유속이 3.93 m/s이상에서는 riser에서 압력요동 현상이 생기지 않았기 때문에 그 이상의 유속에서 실험이 수행되었다. 유속이 3.93에서 6.29 m/s로 증가시킴에 따라 압력균형곡선의 하부인 8-9-10-11의 선은 거의 변화가 없었으며, riser에서의 변화 즉 2-3번의 기울기가 가장 큰 변화를 보여주었다. 즉 유속(U_{rs})이 증가함에 따라 2-3번의 기울기가 점점 증가하고 있는데 이는 평균 voidage가 증가하고 기고 혼합의 평균 bulk 밀도가 감소하는 것을 보여주는 것이다.

Fig. 7은 Fig. 6의 2-3번의 기울기를 평균 voidage로 환산한 그림이다. Riser에서의 유속이 증가함에 따라 riser 내의 voidage는 증가함을 보여준다. 이 현상은 정확한 고체순환량의 측정과 그의 복합적인 해석이 필요하다. 정량적으로 본 실험 범위에서 voidage는 0.94에서 0.98 정도의 값을 보여주고 있다. Riser에서의 충분한 반응을 위해서 voidage가

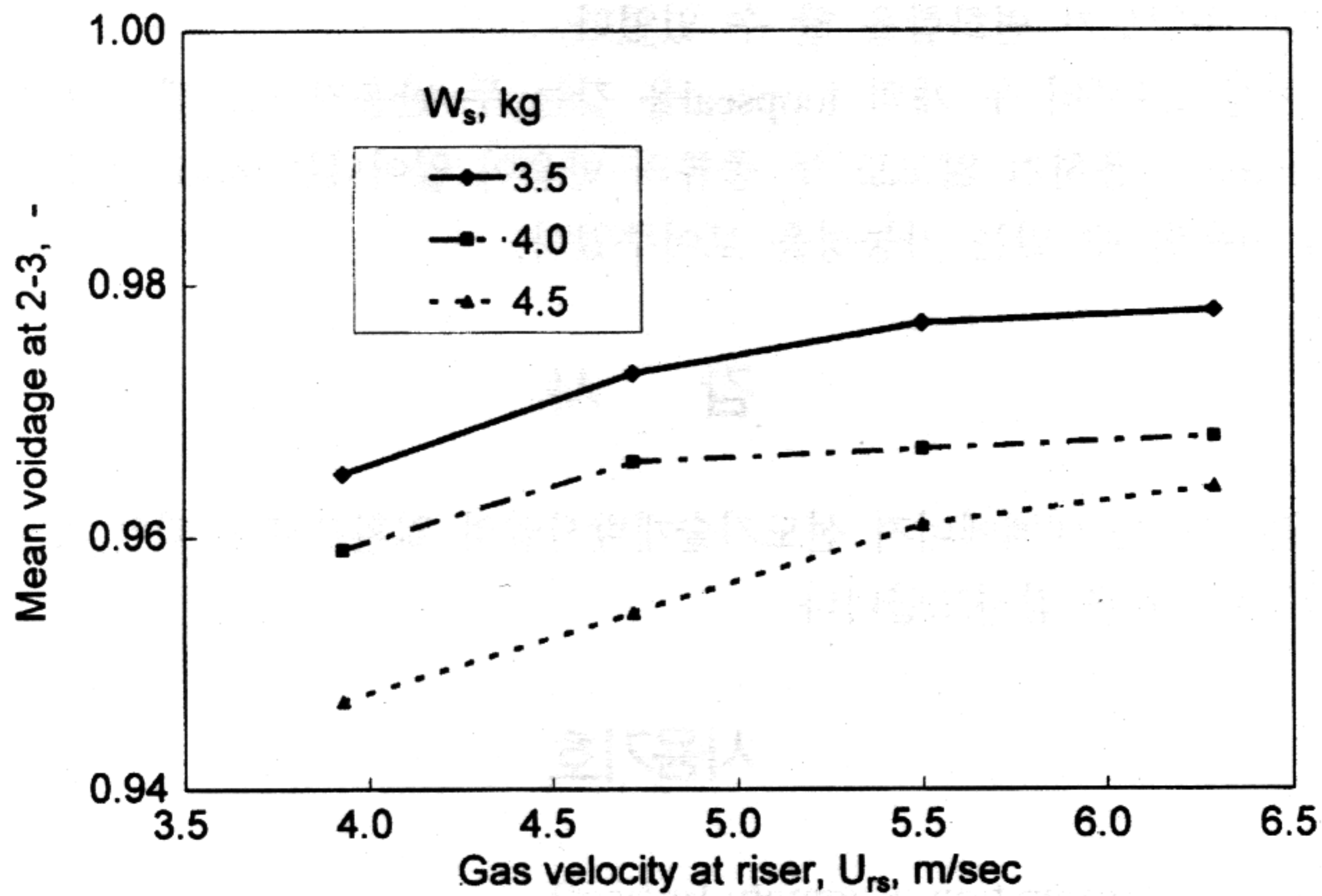


Fig. 7. Effects of gas velocity at riser on mean voidage at 2-3 location.

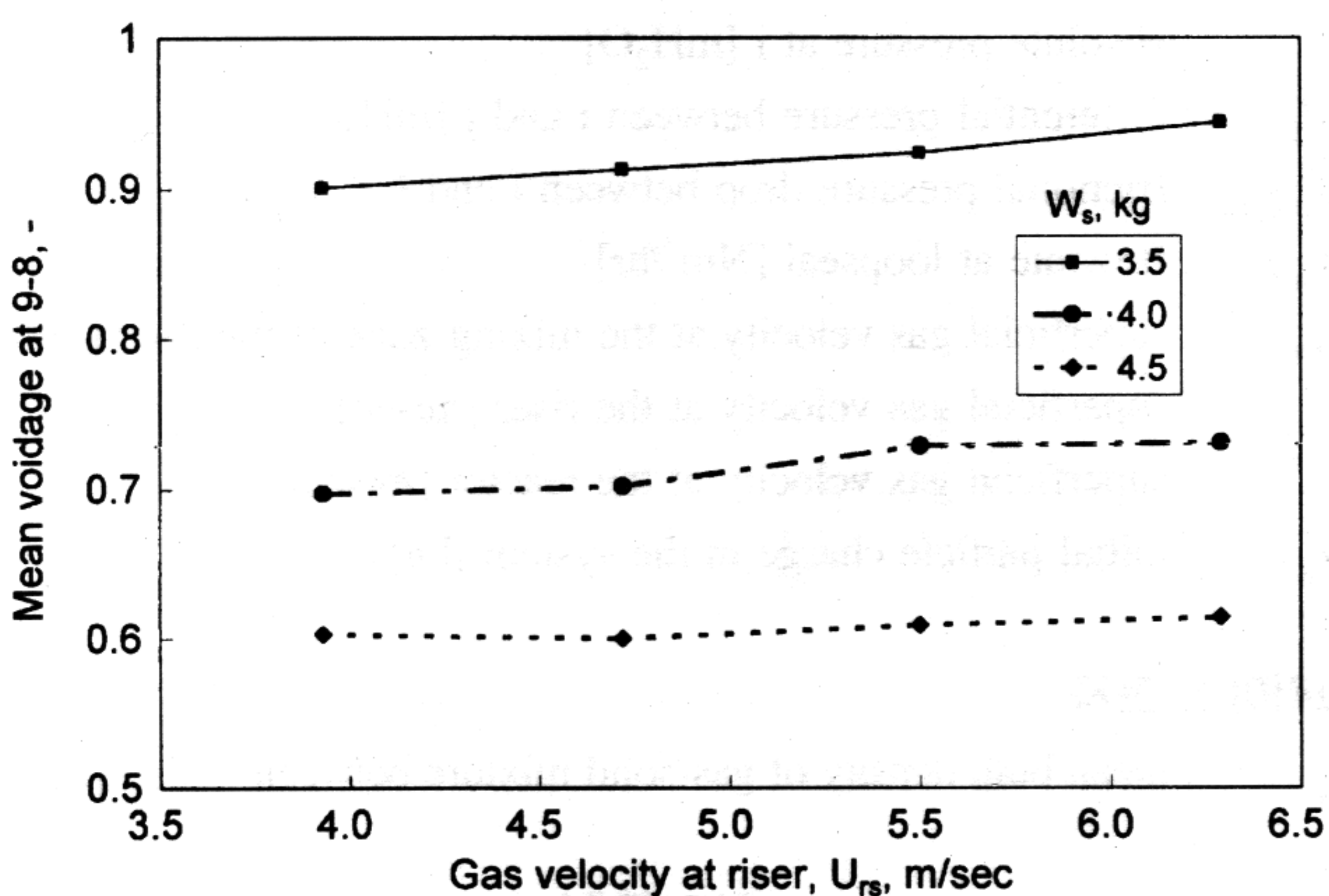


Fig. 8. Effects of gas velocity at riser on mean voidage at 9-8 location.

낮을수록 기-고의 충분한 접촉과 혼합을 보장해 준다. 그러므로 충전량의 증가(또는 고체순환량의 증가)와 riser 유속의 감소에 의하여 충밀도를 증가시키는 방안을 고려하여야 한다.

Fig. 6의 9-8 직선도 같은 경향을 보여주고 있다. Riser에서의 유속이 증가함에 따라 기울기는 점점 커지고 그에 따라 8-9사이의 층평균 bulk 밀도는 감소하고 있다. 이는 riser에서의 유속이 반응기 내의 층평균 밀도에까지 영향을 미치고 있음을 보여주는 것이다. Fig. 8은 9-8 위치의 평균 voidage를 보여준다. 유속이 증가함에 따라 반응기 9-8 위치에서의 평균 voidage가 약간씩 증가하고 있음을 보여준다. 이는 riser에서의 유속이 반응기에까지 영향을 준다고 하기 보다는 높은 유속에서 시스템 밖으로 유출되는 고체의 양이 많아져서 반응기의 층높이가 약간 감소하였기 때문인 것으로 사료된다. 실험 시작 4분후에 riser cyclone 출구에서 밖으로 나간 양은 유속이 3.93 m/s에서 0.121 kg, 4.72 m/s에서 0.217 kg, 5.50 m/s에서 0.307 kg, 6.29 m/s에서 0.503 kg으로 증가하는 것으로 측정되었다. Riser에서의 유속이 증가함에 따라 순환 loop 밖으로 떨어져 나가는 고체량이 증가함으로 순환 loop 내에 남아 있는 고체량은 줄어들기 때문에 평균밀도는 점점 작아지는 것이다.

3-5. 반응기에서의 유속의 변화에 따른 압력균형

Riser에서의 유속을 고정시키고 반응기에서의 유속을 상승시켰을 때의 압력변화를 실험하였다. Fig. 9는 riser에서의 유속이 3.93 m/s이고, 전체 충전량을 4.5 kg일 때 반응기에서의 유속변화에 따른 pressure balance 연결선을 볼 수 있다. 유속이 변했음에도 불구하고 8-9-10-11의 압력균형곡선은 거의 변하지 않고 있다. 반응기에서의 유속을 변

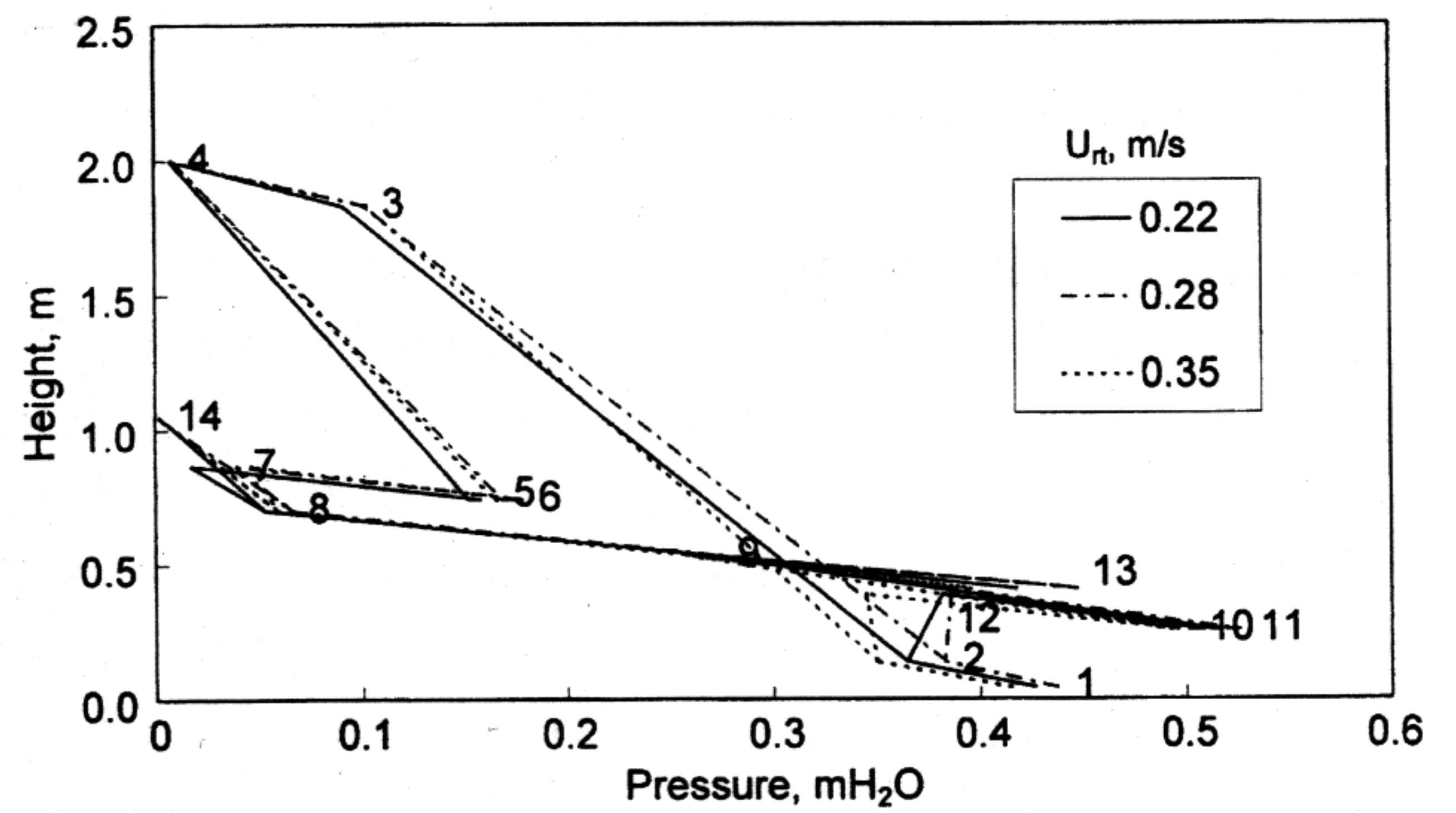


Fig. 9. Effects of gas velocities at reactor(U_r) on pressure balance curves($W_s=4.5$ kg; $U_{rs}=3.93$ m/s; high velocity at loopseal).

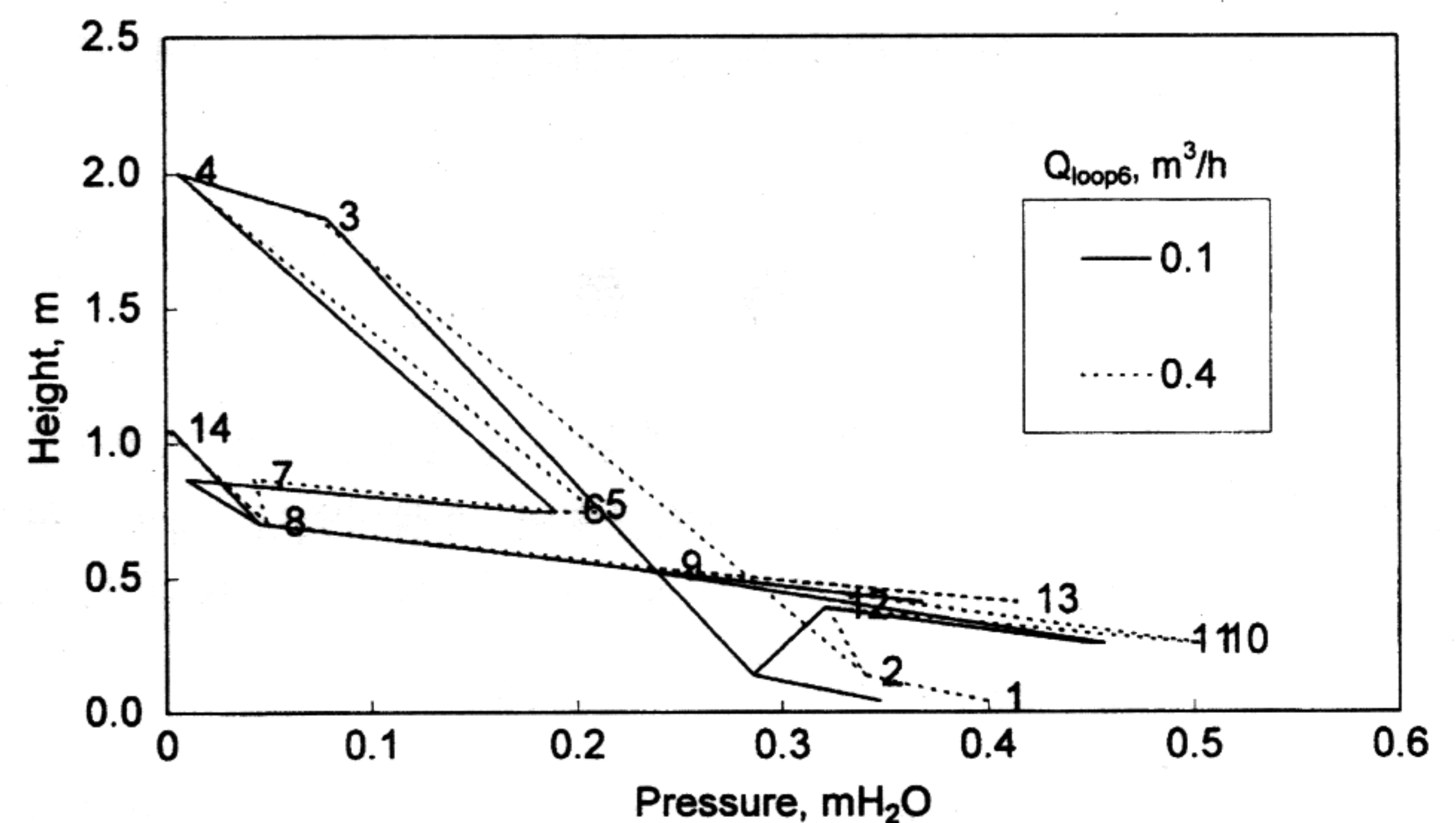


Fig. 10. Effects of gas flow rate of loopseal on pressure balance curve ($W_s=4.5$ kg; $U_{rs}=3.93$ m/s; $U_r=0.28$ m/s).

화시켰음에도 불구하고 오히려 riser에서의 압력균형곡선이 약간 변하였으나 뚜렷한 경향성은 찾을 수 없었다.

3-6. Loopseal에서의 유속영향

Fig. 10은 두 개의 loopseal에 들어가는 6군데의 유량을 0.1, 0.1, 0.1, 0.1, 0.1, 0.1 Nm³/hr에서 0.1, 0.1, 0.1, 0.1, 0.1, 0.4 Nm³/hr로 증가하였을 때 압력균형곡선을 보여준다. 즉 아래쪽 loopseal의 10번 위치 옆으로 주입되는 가스의 양을 증가시킨 것이다. 이 경우 고체순환량의 변화가 생겨서 압력균형곡선에도 변화를 가져 왔다. Loopseal의 유량이 0.1에서 0.4 Nm³/hr로 증가하였을 경우 riser의 2-3번 직선이 오른쪽으로 이동하면서 기울기가 낮아지고 있다. 이는 고체순환량의 증가에 의하여 riser에서의 기-고 혼합 충밀도가 증가하는 것을 보여주

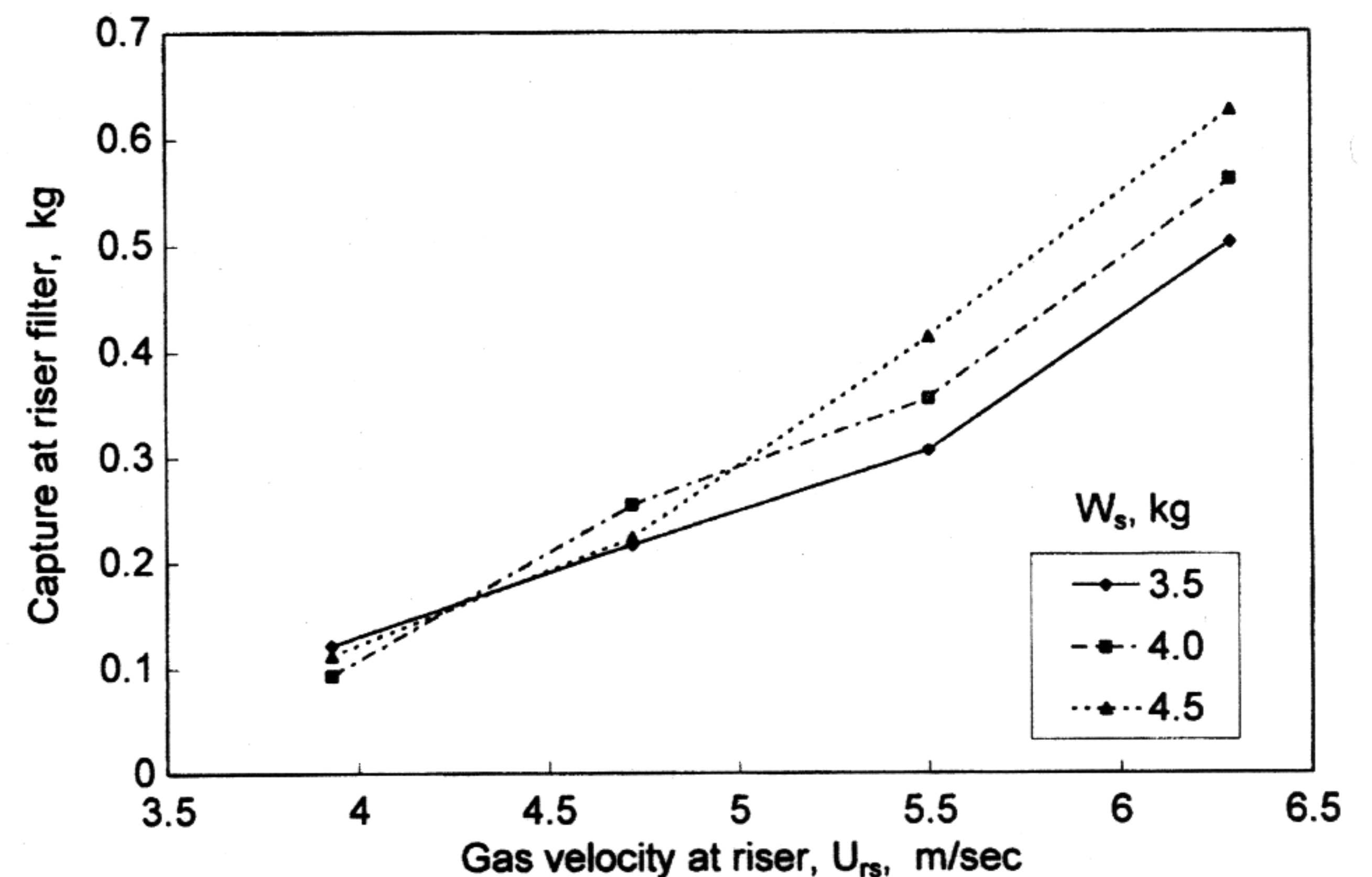


Fig. 11. Capture at riser filter in 4 minutes after each test run was started.

는 것이다. 또한 6-7번이 약간 짧아졌음을 알 수 있는데 이는 유량증가에 의해 loopseal 내부의 voidage가 커졌음을 의미하는 것이다.

3-7. 실험에 있어서의 개선점

Fig. 11은 반응기에서의 유속 0.22 m/s의 조건하에서 실험시작 후 4분 후에 riser 후단에 붙어 있는 필터에 포집된 미분의 무게를 보여준다. 유속이 증가함에 따라 초기충전량이 증가함에 따라 시스템 밖으로 비산되어 유출되는 양은 증가한다. 6 m/sec이상의 유속에서는 4분 후에 초기충전량의 약 14% 정도가 시스템에서 떠나가기 때문에 현상을 해석할 때 비산유출을 고려하여야 한다. 본 실험의 정확성을 높이기 위해서는 riser에서 비산된 입자를 2차 싸이클론에서 포집하거나 필터에 포집된 미분을 재순환하는 방안도 고려하여야 할 것이다. 또는 한 조건당 실험시간을 줄여서 실험전과 실험후의 충전량이 변하지 않는 한도에서 실험을 수행하여야 할 것이다. 본 실험결과와 효율성을 높이고, 반응기의 설계에 본 실험결과를 이용하기 위해서는 고체순환량의 측정이 필요하다.

4. 결 론

Loopseal을 두 개 갖는 KIER 고체순환 유동충공정에서 고체순환특성을 관찰하기 위하여 상온장치 압력균형이 측정되었다. 압력균형고리가 하나의 닫힌 계로 표현되었기 때문에 고체순환이 원활한 것으로 판단되었고, loopseal은 역흐름을 차단하는 역할을 하였다.

(1) 두 반응기 사이에 loopseal 설치로 가스의 역흐름을 차단하는 역할을 하였다.

(2) 초기충전량의 증가로 riser 내의 충밀도를 증가시킬 수 있었다.

(3) 아래쪽 loopseal이 고체순환의 율속단계로 작용하였다.

(4) Riser의 유속증가에 따라 riser 내의 공극률은 증가하여 기-고 충밀도는 감소하였다.

(5) 반응기 내의 유속증가에 따라서는 riser 내의 공극률은 의미있는 경향성을 보여주지 않았다.

(6) Loopseal에서의 유량변화에 의하여 좁은 범위이지만 고체순환

량과 충밀도가 변화함을 알 수 있었다.

이상으로부터 두 개의 loopseal을 갖는 두 반응기 시스템은 기계적 valve를 사용하지 않고도 두 종류의 반응이 일어나는 기-고 반응기에 사용될 수 있는 가능성을 보여주었다.

감 사

본 연구는 대체에너지 선도기술개발사업의 일환으로 수행한 것으로 연구비지원에 감사드립니다.

사용기호

g	: acceleration of gravity [m/sec ²]
g_c	: conversion factor of gravitational acceleration
h_i	: height of i position [m]
P_i	: absolute pressure at i [mH ₂ O]
ΔP_{ij}	: differential pressure between i and j [mH ₂ O]
$\Delta P_{ij, fric}$: frictional pressure drop between i and j
Q_{loop}	: flowrate at loopseal [Nm ³ /hr]
U_{mix}	: superficial gas velocity at the mixing zone of the riser [m/sec]
U_{rs}	: superficial gas velocity at the riser [m/sec]
U_{rr}	: superficial gas velocity at the reactor [m/sec]
W_s	: initial particle charge in the system [kg]

그리스 문자

$\bar{\rho}_{ij}$: mean bulk density of gas-solid mixture between i and j [kg/m ³]
-------------------	---

참고문헌

1. Kuni, D. and Levenspiel, O.: "Fluidization Engineering", 2nd ed., Butterworth-Heinemann, Boston, 36 and 359(1991).
2. Korean Patent: 0223776(1999).
3. Geldart, D.: *Powder Technology*, 7, 185(1978).