

원추형 분립유동층에서 미세입자의 유출특성

신문권, 김은미, 한귀영, 윤기준, 이동현*
 성균관대학교 화학공학과
 (dhlee@skku.edu*)

**Elutriation Characteristics of Fine Powders in the Conical
 Powder-Particle Fluidized Beds**

Moon Kwon Shin, Eun Mi Kim, Gui Young Han, Ki June Yoon, Dong Hyun Lee*
 Department of Chemical Engineering, SungKyunKwan University
 (dhlee@skku.edu*)

서론

현재 인간이 이용할 수 있는 에너지원으로서 그 역할을 충실히 이행해오고 있는 화석연료는 그 사용량이 계속해서 증가하고 있지만, 화석연료의 매장량은 한정되어 있다. 그리고 화석연료 사용결과 발생하는 CO₂가스에 의한 온실현상, 산성비, 오존층의 파괴 등의 심각한 환경오염 문제를 야기 시키고 있다. 그러한 이유로 화석연료를 대체할 수 있는 환경 친화적인 대체 에너지 자원에 대한 연구가 활발히 진행되고 있고, 그중 수소에너지가 가장 이상적인 대체 에너지원의 하나로 인식되고 있다[1].

그러나 자연계에 H₂ 형태로 존재하는 수소의 양은 매우 적어서 직접적인 채취를 통한 이용은 불가능하다. 수소는 직접채굴을 통해 에너지원으로 사용하는 것이 아니라, 화합물 형태로 존재하는 수소를 여러 방법들을 이용하여 분리해 낸 이후, 에너지로 이용해야 하는 2차적인 에너지 자원이다. 그러므로 에너지원으로서 수소를 이용하기 위해서는 수소에너지의 다양한 응용 및 활용에 대한 연구와 더불어 수소를 얻기 위한 방법에 대한 연구가 필연적으로 수반되어야 한다. 현재 사용 및 연구되고 있는 수소 생산방법에는 수증기 개질, 열화학 사이클 기술, 물의 전기분해 등이 있다. 그러나 이러한 방법들은 공정 중 발생하는 CO₂가스의 제거를 위한 장치 및 고온의 열원을 필요로 하며, 고온 상태에서는 수소분해가 이루어지는 등 여러 가지 문제점을 지니고 있다. 이러한 점으로 볼 때, 현재 활발한 연구가 진행되고 있는 천연가스 열분해법은 CO₂가스를 발생시키지 않고 고 순도의 수소를 생산할 수 있는 환경 친화적인 방법이다. 동시에 이 기술은 반응부산물로서 여러 분야에 유용하게 이용되는 고 순도의 카본블랙(carbon black)을 얻을 수 있는 장점을 가지고 있다. 상온유동층에서 탄화수소의 촉매분해에 사용되는 카본블랙 촉매의 유동특성을 해석하여 유동층을 이용한 연속반응기의 설계가능성을 검토하고자 한다.

본 연구에 사용되는 탄화수소는 액화천연가스(LNG)의 주성분인 메탄(CH₄)과 액화석유가스(LNG)의 주성분인 프로판과 부탄이 사용될 수 있다. 메탄, 프로판 및 부탄은 카본블랙을 촉매로 사용하여 분해하며, 반응 후 카본블랙과 수소를 생산한다. 이상의 반응과정에서 생성된 카본블랙과 수소는 고체와 기체의 혼합 상태로 얻어지므로 기-고 분리기를 이용하여 각각을 분리할 수 있으며, 반응기 내에 생성되는 카본블랙을 연속적으로 제거하여 주는 것이 필요하다. 그러나 카본블랙은 단일 입자의 크기가 15에서 58 nm로 매우 미세한 Geldart group C 입자이다. Geldart group C 입자들은 입자들의 크기가 매우 작아서 입자간의 응집현상이 일어나기 때문에 균일하게 유동화 시키기 어려운 입자이다. 그러므로 Geldart group C 입자인 카본블랙을 균일하게 유동화 시키기 위하여 Geldart group A 입자인 Alumina F-150 입자와 혼합하여 유동특성을 개선하고, 혼합 입자의 유동 현상을 관찰하였다. 또한 탄화수소를 분해한 후

생성되는 카본블랙을 반응기로부터 연속적으로 제거하기 위한 카본블랙의 유출(elutriation) 실험도 실시하였다.

실험

상온유동층에서 카본블랙의 유동특성을 고찰하기 위하여 반응기의 직경은 0.1m, 높이가 0.6m이고, 원추각은 10°인 원추형 투명 아크릴 관으로 제작되었으며, 유동층 실험장치의 개략도를 그림1에 나타내었다. 모든 실험은 상온, 상압에서 실시되었으며, 기체유속은 오리피스타입의 유량계 (FLT, Korea Flow Cell Co.)를 이용하여 유속 범위는 0~0.1m/s이다. 본 실험에 사용된 고체입자는 카본블랙 (Korea Carbon Black Co., HI-900L)을 포함하여 알루미늄(F-150, F-220)와 PVC 입자를 사용하였으며 표1에 사용된 입자들의 물리적 특성값을 나타내었다.

원추형 기-고 유동층에 투입된 층 물질의 압력강하를 측정하기 위하여 11개의 압력tap이 층의 중심축을 기준으로 설치되었다. 한 압력 tap은 분배기위의 인접지역에 설치하였으며, 다른 압력 tap들은 분배기 위의 5cm지점부터 5cm간격으로 설치하여 하부 압력 tap과의 차압을 측정하였다. 모든 실험은 완전 유동화 상태에서 기체유속을 감소시키면서 고정층에 도달할 때까지 수행한 후 그 다음에 고정층 상태에서 기체유속을 증가시켜 완전 유동화상태까지 변화시키면서 실험을 실시하였다.

원추형 분립 유동층에서 Geldart group A입자인 알루미늄 F-150을 제외한 Geldart group C 입자인 카본블랙을 유출시키는 실험을 실시하였다. 기체 유속을 혼합입자의 최소유동화속도(U_{mf})에 따라 $5U_{mf}$ 에서 $12.5U_{mf}$ 까지 변화시키면서 기체유속에 따라 카본블랙의 유출속도(W)를 측정하였다. 원추형 유동층 반응기 아래에는 전자저울이 설치되어있어 시간에 따른 반응기 전체 질량의 변화를 실시간으로 데이터화하여 유출속도 측정을 간편하게 하였다.

결과 및 고찰

그림 2는 각각의 유속에서 측정된 층 전체의 압력강하($-\Delta P_B$)를 기체유속에 따라 도시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 유속이 증가함에 따라 층 전체의 압력강하가 증가하다가 일정해진다. 기체유속이 증가함에 따라 $-\Delta P_B$ 가 증가하는 것은 고정층에서 제시된 Ergun equation으로 알 수 있다. 최소유동화 속도 이상에서는 기체유속이 증가하여도 $-\Delta P_B$ 값이 증가하지 않는데 이는 유동화 상태에서는 고체입자의 무게를 단위면적으로 나눈 값과 같아지기 때문이다. 그리고 각 입자들의 정지층높이는 20cm 인데 층 전체의 압력강하가 최소유동화 속도 이상에서 다른 이유는 표 1에서 보는 바와 같이 각 입자들의 겉보기 밀도가 다르기 때문이다. 그리고 진밀도가 같을 때 입자의 크기가 작을수록 최소유동화 속도도 감소하는 경향을 보였다. 이는 단일 입자의 크기와 밀도가 작을수록 유동화가 잘되기 때문이다. 또한 고정층에서의 유속에 따른 층전체의 압력강하에 대한 기울기는 대략 1.0 정도 됨을 알 수 있다. 이러한 현상은 Ergun equation에서 입자의 크기가 작고 밀도가 낮은 즉, 입자에 대한 레이놀즈수($Re_{p,mf}$)가 20이하인 경우에는 기체유속의 1승에 비례한다는 연구결과와 잘 일치함을 알 수 있다. 표 1에 본 연구에서 측정된 각 입자들의 최소유동화속도의 측정값과 계산값을 비교하였다. 최소유동화 속도의 계산값은 Wen과 Yu[2]가 제시한 식을 사용하였다. 표 1과 그림 2에서 입자의 크기가 작을수록 최소 유동화 속도가 표 1에서 보는 바와 같이 각 입자들에 대한 실험값과 계산값이 오차범위에서 잘 일치함을 알 수 있다. 또한 각 입자들에 대한 종말속도의 계산값을 표 1에 함께 나타내었다.

그림 3은 excess gas velocity($U_g - U_{mf}$)에 따른 층높이의 변화를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 각 입자들의 정지층높이(static bed height)는 20cm이다. Excess gas velocity의 물리적 의미는 유동층에서 기포가 형성될 수 있는 유속을 의미한다. 즉 최소 유동화속도까지는 고정층의 층 공극사이로 기체가 흐를 수 있으므로 최소유동화 유속 이하에서는

기포가 형성되지 않는다. 기포가 형성될 수 있는 excess gas velocity가 증가함에 따라 층팽창이 증가하는 이유는 excess gas velocity가 증가하면 고체입자에 가해지는 기체의 momentum이 증가되고, 따라서 drag force 또한 증가하므로 층팽창이 증가함을 알 수 있다. 또한 같은 excess gas velocity에서 고체입자의 밀도와 입자의 크기가 작을수록 층팽창이 커지는 이유도 입자에 가해지는 drag force와 관련이 있다. 입자의 밀도가 작으면 같은 excess gas velocity에서 더 큰 drag force를 나타내므로 더 큰 층팽창이 일어남을 알 수 있다.

그림 4는 분립 유동층에서 시간에 따라 카본블랙(HI-900L)의 상대적 질량 변화를 나타낸 그래프이다. 층내 물질은 알루미늄(F-150)와 카본블랙을 50:50의 부피비로 섞은 혼합물을 사용하였다. 표 1을 보면 알루미늄과 카본블랙의 primary 입자 사이즈는 약 1000배 정도의 차이가 난다. 그러므로 유출실험을 할 경우에 특정 유속에서 카본블랙의 일부는 알루미늄 입자에 접촉되어 분리되지 않으나, 그 외에 입자 자체의 응집력 때문에 카본블랙끼리 agglomerate를 형성한 입자들은 기체에 의해 날려서 반응기 밖으로 빠져 나가게 된다. 그림 4를 보면 기체 유속이 증가할수록 기체의 상승 draft force와 입자의 속도가 증가하여 카본블랙 입자의 유출속도도 증가함을 알 수 있다. 이는 높은 기체 유속이 층내에 카본블랙 agglomerate를 분쇄시킴과 동시에 알루미늄 입자에 부착되어있는 카본블랙 입자를 탈리시키기 때문이다.

그림 5는 분립 유동층에서 기체 유속에 따라 층내 카본블랙의 양과 유출속도와의 상관관계를 나타낸 그래프이다. 그림 4에서와 같이 일정 카본블랙 함유량에서 기체 유속에 따라 유출속도는 증가하고 있으나, 카본블랙의 함유량과 유출속도 사이에는 뚜렷한 상관관계를 발견할 수 없다. Nakagawa 등[3]은 미세 입자의 함유량이 많을수록 유출속도는 증가한다고 밝힌 바 있다. 그러므로 차후 카본블랙의 함유량에 따른 유출속도의 경향성을 살펴보기 위한 추가 실험이 요구된다.

결론

기체 유속에 따른 층전체의 압력강하는 최소 유동화속도 이전까지는 기울기가 1 정도로 선형으로 증가하다가 그 이후부터는 일정한 경향을 보였다. 층전체 압력강하는 입자의 크기와 밀도에 따라 변한다. 그리고 진밀도가 동일할 때 입자의 크기가 작을수록 최소 유동화 속도도 감소하는 경향을 보였다. 이는 primary 입자의 질량이 작을수록 유동화가 잘 되기 때문이다. Excess gas velocity가 증가하면 모든 입자에서 층팽창도 증가하는 경향을 보였다. 이는 기체유속이 높아지면 기체의 momentum이 증가하고, 따라서 drag force 또한 커지기 때문이다.

분립 유동층에서 기체 유속이 증가할수록 기체의 상승 draft force와 입자의 속도가 증가하여 카본블랙 입자의 유출속도도 증가함을 알 수 있다. 이는 높은 기체 유속이 층내에 카본블랙 agglomerate를 분쇄시킴과 동시에 알루미늄 입자에 붙어있는 카본블랙 입자를 탈리시키기가 쉽기 때문이다. 그러나 카본블랙의 함유량에 따라 유출속도가 증가하는 경향성을 판단하기 위해서는 향후 추가 실험이 필요하다.

참고문헌

- [1] Lee, D. H., Shin, M. K., Kim, E. M., Son, S. Y., Park, B. S., Han, G. Y., Yoon, K. J., "Hydrodynamic Characteristics of Fine Powders in the Conical Powder-Particle Fluidized Beds", Korean Society for New and renewable Energy, 310-313(2005)
- [2] Wen, C. Y. and Yu, Y. H., AIChE J., **12**, 610(1966).
- [3] Mahmoud, E. A., Nakazato, T., Nakagawa, N., Kato, K., "Evaluation of the turnover times of the bed particles and of the fine powders in a circulating powder-particle fluidized

표 1. 사용된 입자들의 물리적 특성값과 각 입자의 최소유동화 속도의 측정값과 계산값.

Item	Unit	Alumina		PVC	HI-900L
		F-220	F-150		
Mean diameter	μm	52.94	89.59	171.1	15nm
True density	kg/m ³	3,980	3,980	1,400	2100
Bulk density	kg/m ³	1,529	1,834	582.1	217.0
Ar	-	21.43	103.85	-	-
$U_{mf,exp}$	cm/s	0.855	1.436	1.282	0.41
$U_{mf,cal}$	cm/s	0.867	1.052	-	-
$U_{v,cal}$	cm/s	19.0	47.3	-	-

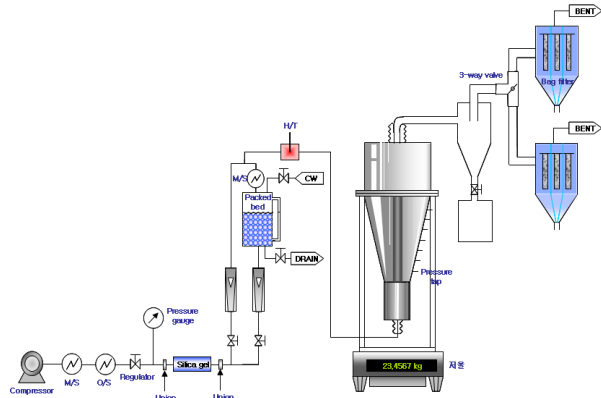


그림 1. 원주형 유동층에 관한 개략도

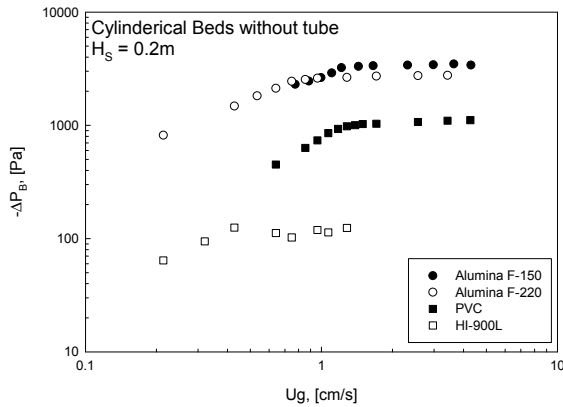


그림 2. 기체유속에 따른 층전체의 압력강하(-ΔP_B)의 변화.

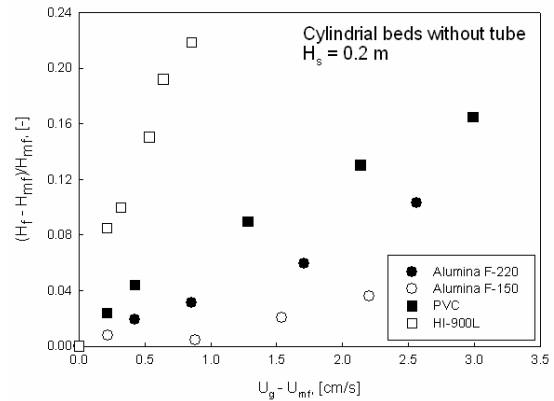


그림 3. Excess gas velocity($U_g - U_{mf}$)에 따른 층높이의 변화.

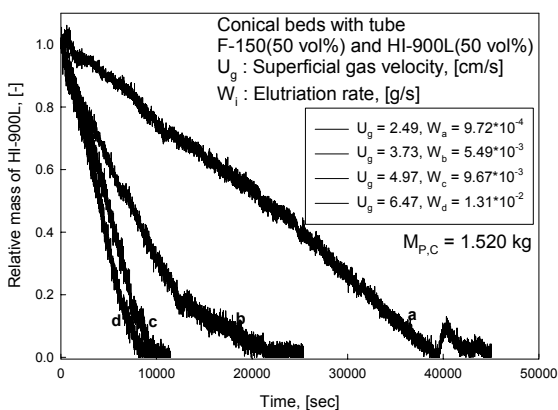


그림 4. 분립 유동층에서 시간에 따른 HI-900L의 상대적 질량 변화.

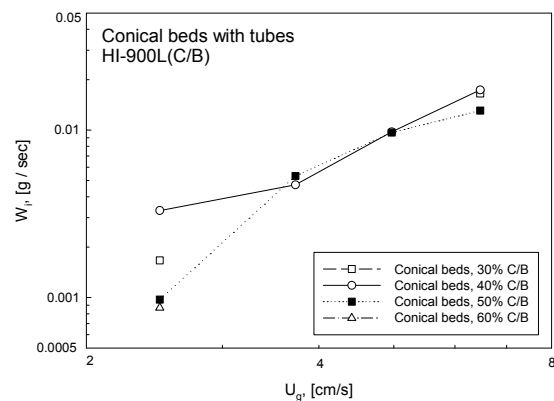


그림 5. 분립 유동층의 각각의 혼합비에서 유속에 따른 유출속도 차이.

bed", Powder Technology **153**, 81-89(2005).