



## 고분자 반응기의 내부 유동 특성에 관한 연구

Study on the flow characteristics of the polymer reactors

최 두성<sup>1)</sup>, \*임 예훈<sup>2)</sup>, 한상필<sup>3)</sup>

D. S. Choi, \*Y. H. Im, S. P. Han

This study is focused on investigating the characteristics of internal flow of the polymer reactor and its effect on the polymer quality. Four types of polymer reactor which have different kind of impeller, baffle and operation condition were calculated by CFD. Fluent 6 have been used to simulate mixing phenomena of reactor. According to the comparison of computational results and SEM photographs of polymer particle, distribution of turbulent dissipation rate greatly influences on the quality of polymer. So, distribution of turbulent dissipation rate to be important criterion to predict polymer quality.

### 1. 서 론

오늘날 수지 제품의 사용 용도와 소비는 날로 증가하고 있으며 특히 고품질 수지에 대한 요구는 급증하고 있다. 이에 따라 많은 국가에서는 수지 산업에 대한 투자를 늘리고 있으며 업계 간 경쟁은 치열해지고 있다. 수지 산업은 장치 산업이므로 생산량의 확대는 경쟁력의 제고로 연결되기 때문에 많은 기업에서는 경쟁력을 갖추기 위하여 대량 생산체제 확립에 주력하고 있으며, 아울러 고품질의 수지를 생산하는 기술 확보에 혼신의 힘을 쏟고 있다. 수지의 품질은 화학적 원료의 차이도 있겠지만 대부분은 생산시 반응기의 특성에 따라 정해진다. 따라서 반응기의 특성에 대한 완전한 이해는 고품질의 수지 생산을 위한 기본 연구 과제이다.

국내의 반응기 설계기술은 아직까지 체계적으로

연구되어 있지 않기 때문에 대부분을 외국업체의 노하우에 의존하는 경우가 많이 있다. 선진국에서는 오래전부터 많은 실험을 통해 임펠러(impeller), 배플(baffle), 운전 조건 등의 변화에 따른 수지제품 품질 변화에 대한 연구를 진행하고 있으나 국내 반응기의 해석 기술은 아직 체계적으로 연구되어 있지 않기 때문에 대부분을 외국 업체의 노하우에 의존하는 경우가 많다. 반응기의 특성은 반응기 내부 유동에 의해 좌우되므로 반응기 내부의 유동에 대한 연구는 필수적이다. 과거에는 실험만으로 반응기 내부 유동을 연구하여 왔으나 최근에는 컴퓨터의 획기적인 발달과 새로운 알고리즘의 개발에 힘입어 Navier-Stokes 방정식을 직접 풀어 내부 유동장을 시뮬레이션하는 전산유체역학을 이용하여 반응기 내부 유동장을 연구하고 있다. Dupont, Dow 등과 같은 외국의 유수 화학업체에서는 1990년대 중반부터 전산유체역학을 적극적으로 이용하여 기술 개발을 활발히 수행하고 있으며 [1], 국내에서도 1990년대 말부터 전산유체역학을 활용하여 연구를 하여왔으나 다소 한정된 영역에 국한되어 진행되어 온 실정이다. 그러나 전산유체역학과 실험을 병행함으로써 적은 수의 실험으로도 큰 효과를 낼 수 있고, 현실적으로

1), 2), 3) LG화학 기술연구원 공정기술센터 (대전광역시 유성구 문지동 104-1, 305-380 Tel : 042-866-2631)



수행하기 어려운 실험도 대체 할 수 있다는 가능성은 확인하였었다. 본 연구에서는 이러한 전산 유체역학의 장점을 바탕으로 반응기의 특성을 분석하여 운전조건의 개선을 시도하였다. 실제 스케일의 반응기 4가지를 수치해석을 통해 유동을 분석하고 그 중 수지입자품질이 우수한 반응기 2가지의 공통되는 특성을 조사하였다. 수지 입자를 생성하는 중합 반응기에서 입자의 품질은 여러 가지 조건으로 판단되어지지만 그 중에서도 우선시되는 항목으로 입자의 크기와 입도분포를 들 수 있다. 반응을 거쳐 생성되는 액적은 외부력에 의해 작은 입자로 형성되고 유동의 순환을 통해 응집과정을 거쳐 최종적인 크기의 수지입자를 생성한다. 생성되는 입자의 크기와 고른 입도 분포는 수지의 가공성에 중요한 영향을 미친다. 이는 반응기의 형상적 특성뿐만 아니라 운전조건에 따라라도 입자의 품질이 달라진다. 다른 반응기들에 대해 동일한 형상으로 변경하는 방법이 상식적으론 쉬운 해결방법이지만 실제 현장에서 프로세스의 구축측면에서 혹은 다른 제반 조건-임펠러의 제작비, 냉각 설비 등-의 변경에 의한 새로운 설비를 추가하면서 이루어지는 형상의 변경의 문제가 충분히 발생한다. 이러한 부분적인 설비의 변화도 결국 반응기의 시스템적 조화와 연관되어 고려되어지기 때문에 전체의 형상의 변화가 불가피하다. 그러므로 반응기의 형상이 틀리더라도 그에 적합한 운전조건에 의해 원하는 품질의 입자크기와 입도 분포를 가질 수 있는 조건을 찾는 것이 중요하다. 운전조건은 임펠러의 회전속도 및 배플의 특성 그리고 임펠러의 형상적 특성 등의 복합적인 영향. 즉 이들이 결정하는 유동의 전반적인 특성이 같이 검토되어 질 수 있는 파라미터를 통해 이루어져야 한다.

## 2. 본 론

### 2.1 입자 생성 이론

중합반응으로 인해 생성되는 액적은 이의 직경이 커지면서 증가하는 표면적에 대한 표면력을 상쇄하기에 충분한 외력이 공급되면 쪼개어 질 수 있다 [2]. 액적의 쪼개짐은 주로 Inertial subrange에서 일어나기 때문에 외부 점성전단응력은 난류압력요동(turbulent pressure fluctuation)에 비해 상대적으로 무시되어 질 수 있다 [3, 4]. 난류압력요

동은 난류속도요동(turbulent velocity fluctuation)과 같은 오더이다. 액적을 가로지르는 순간속도차이는 식 (1)로부터 구할 수 있으며,

$$v(d) = v(r_1) - v(r_2) \quad (1)$$

난류압력요동은 Mean spatial 속도 요동과 식 (2)와 같은 관계가 성립한다.

$$\text{난류압력요동} \cong \overline{\rho v^2(d)} \quad (2)$$

그리고 반응기내의 난류는 Inertial subrange 영역에 해당하므로 국부적인 등방성(isotropy)을 가진다고 볼 때 식 (3)과 같은 관계를 통해,

$$\epsilon \propto v_{rms}^3 / L \propto (\overline{v^2(d)})^{3/2} / d \quad (3)$$

난류소산율(turbulent dissipation rate)에 비례되어짐을 알 수 있다 [5, 6].  $d$ 는 액적의 지름으로 어느 크기 이상의 난류소산율에서 쪼개어질 것이므로 이때의  $d$ 를  $d_{max}$ 로 볼 수 있다. 액적의 쪼개짐은 국부적 난류소산율 최대값에 의해 주요한 영향을 받는다. 이렇게 쪼개진 입자들은 반응기를 순환하면서 다른 입자와 응집을 하여 최종적인 크기의 입자를 생성하게 된다. 그러므로 난류소산율 뿐만 아니라 반응기의 형상에 따른 유동의 특성이 함께 고려되어야 한다고 한다. 그리고 입자크기 못지않게 중요한 품질결정요인 중 하나가 입도분포이다. 입도분포는 임펠러의 형상과 회전속도에 따라 분포특성이 달라진다 [7]. 이는 곧 단위체적당 파워와 유동의 특성에 연관되어 지므로 난류소산율의 분포특성의 검토는 이러한 고려가 동시에 이루어지는 것이라 판단된다. 본 연구는 이러한 방법을 통한 접근으로 반응기 형상에 관계없이 우수한 입자품질의 유동 조건을 검토하고자 한다.

### 2.2 수치해석 방법

임펠러에 의해 회전하는 반응기 내의 유동을 수치해석을 통해 해석하였다. 반응기 내의 유동은 상용 소프트웨어인 FLUENT를 사용하여 Reynolds Averaged Navier-Stokes 방정식을 계산하여 특성을 조사하였다. SIMPLE 알고리즘을 사용하여 압력을 계산하였고 내부의 임펠러의 회전에 의한 유동을 모사하기 위해 사용되어진 방법은 MRF(Multifl Reference Frame)로 회전 영역과 고정영역으로 나누어 정상 상태 해를 구하였다 [8]. 이의 장점은 정상 상태 해를 비교적 적은 계산시간으로도 구할 수 있고 어느 정도의 정확도를 만족시켜 주는 것으로 알려져 있다. 그러나 배플

의 영향이 커서 임펠러 영역에 대한 영향이 큰 경우 오차를 가지는 것으로 알려져 있다[9]. 따라서 이러한 경우 sliding mesh 기법을 적용해야겠지만 이 기법은 MRF에 비해 상당한 계산시간과 컴퓨터 파워를 요구하는 단점이 있다. 하지만 본 연구에서 사용된 반응기들은 배플의 영향이 임펠러 내부 유동에 영향을 줄 만큼 크지 않기 때문에 MRF기법의 사용으로도 충분한 결과를 얻을 수 있으리라 생각되어진다. 난류모델로  $k-\epsilon$  모델이 사용되었고 벽함수(wall-function)가 적용되었다. 격자는 비정렬격자(unstructured grids)를 사용하였고 형상에 따라 격자개수는 30~40만개이다. 반응기 내의 수지의 중합반응은 밀도가 틀린 2가지 액체가 존재하지만 균일액체로 가정하여 밀도  $\rho = 1120\text{kg/m}^3$  으로 하였고 점성은  $\mu = 10\text{cps}$  로 가정하였다. 반응은 고려하지 않았고 생성되는 입자는 유동에 영향을 미치지 않는다고 가정하였다. 반응기의 형상은 Fig. 1에 나타나 있다.

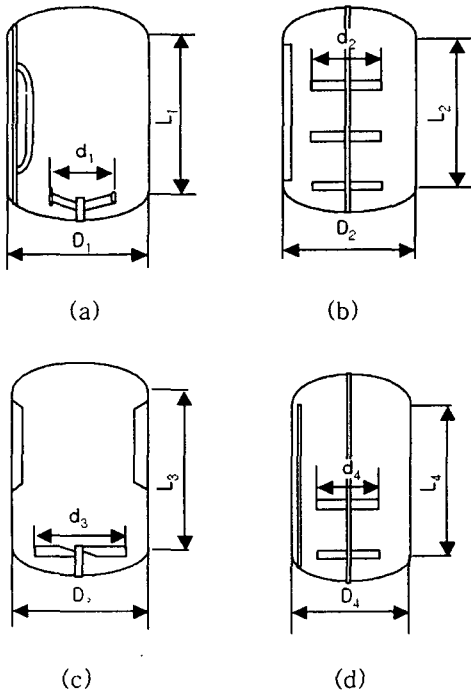


Fig. 1 Geometries of stirred mixing reactor. (a) Pfaudler 1 stage type; (b) Paddle 3 stage type; (c) Paddle 1 stage type; (d) Paddle 2 stage type

각각의 반응기는 용량 및 L/D가 틀릴 뿐만 아니라 임펠러, 배플의 타입 및 치수, 개수 그리고 그에 따른 운전조건도 상이하다. 이는 Table. 1에 정리되어 있다. 하지만 그러한 조건들이 실제 현장에서의 운전조건이므로 현재의 운전조건이 최적인지 아니면 우수한 입자 품질을 위한 운전조건과 얼마나 차이가 나는지를 판단할 수 있다.

Table. 1 Specifications of reactors

	L/D	배플 개수	임펠러 단수	RPM
Pfaudler 1단	1.12	2	1	96
Paddle 3단	2.15	2	3	81
Paddle 1단	1.39	2	1	70
Paddle 2단	1.48	6	2	110

### 2.3 경계조건

반응기의 회전하는 임펠러 영역을 Rotating Frame으로 설정하고 다른 고정되는 영역을 Stationary Frame으로 설정하였다. 유체면은 Symmetry 조건으로 지정하였다.

### 3. 계산 결과

Fig. 2~5에 각각의 반응기에 대한 유동의 패턴을 볼수 있다. 임펠러 타입과 반응기의 형상의 특성에 따라 그리고 운전조건에 따라 반응기들의 유동패턴이 구별되는 것을 알 수 있다.

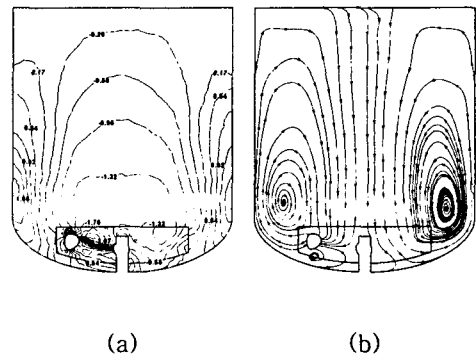
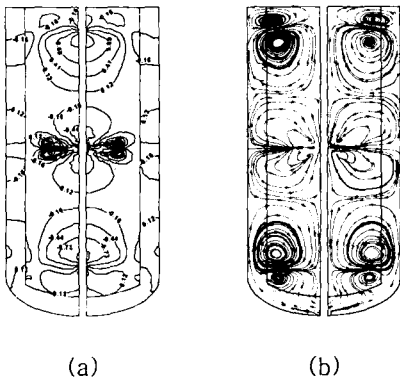
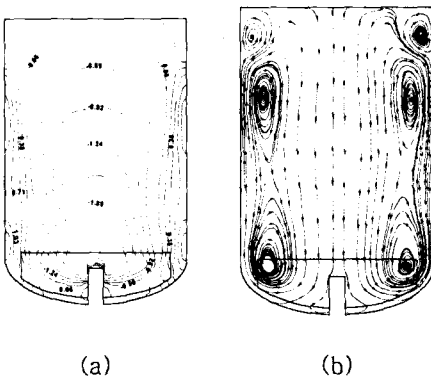


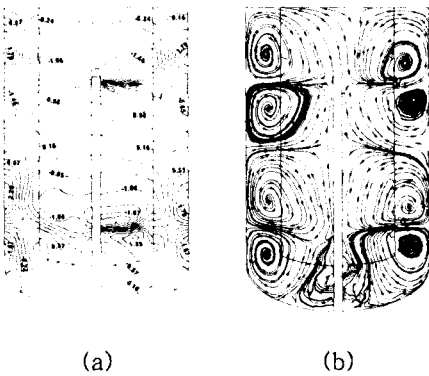
Fig. 2 Velocity field of Pfaudler 1 stage type. (a) Iso-axial velocity magnitude contours; (b) Streamline.



**Fig. 3** Velocity field of paddle 3 stage type.  
(a) Iso-axial velocity magnitude contours;  
(b) Streamline.



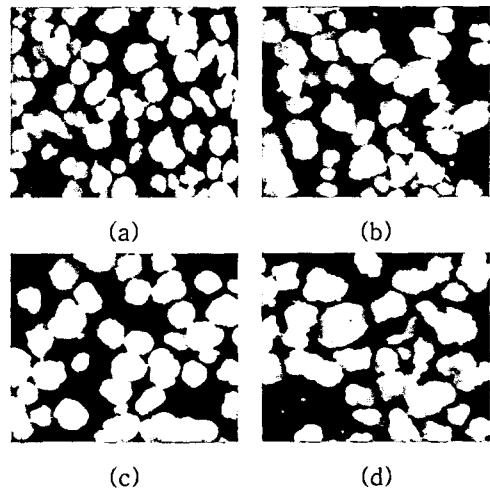
**Fig. 4** Velocity field of paddle 1 stage type.  
(a) Iso-axial velocity magnitude contours;  
(b) Streamline.



**Fig. 5** Velocity field of paddle 2 stage type.  
(a) Iso-axial velocity magnitude contours;  
(b) Streamline.

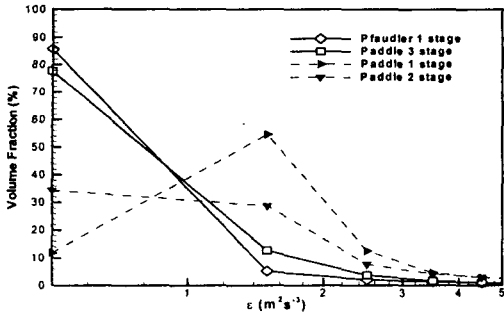
Fig. 2에 Pfaudler 1단 반응기의 축방향 등속도선도(iso-axial velocity magnitude contour)와 유선(streamline)이 나타나 있다. 반응기 하부에 있는 임펠러의 끝에서 유체가 가속되어 반응기 벽면을 따라 올라가서 반응기 중앙을 통해 임펠러로 다시 순환하는 패턴을 확인할 수 있다. Fig. 3에는 Paddle 3단 반응기의 유동 특성이 보여진다. 3단의 임펠러 구조로서 전체 체적을 고루 회전시켜주는 특성을 가지므로 각각의 임펠러에 대해 대칭적인 유동패턴이 위치에 따라 반복되며 Pfaudler 1단 반응기에 비해 축방향 속도크기는 다소 낮은 경향을 보인다. 1단형 특수 Paddle 형상의 임펠러 타입은 축방향 속도가 윗면으로 갈수록 현격히 감소하는 특성을 보인다. 그래서 Fig. 4에서 또다른 순환 형태가 관찰된다. Fig. 5의 Paddle 2단 반응기의 경우 임펠러가 2단이므로 대칭적인 유동의 형태가 2부분으로 나타난다.

입자의 품질 사진은 Fig 6에 나타난다. Pfaudler 1단, Paddle 3단 반응기에서의 입자 품질이 우수하게 나타났다.

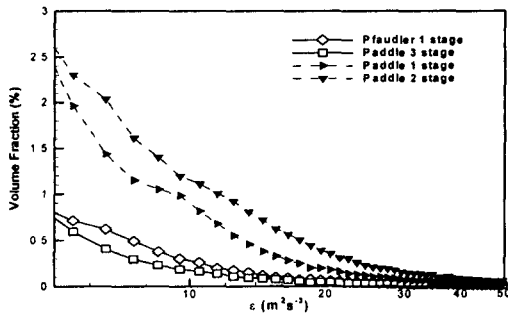


**Fig. 6** SEM photographs of produced particles. (a) Pfaudler 1 stage type; (b) Paddle 3 stage type; (c) Paddle 1 stage type; (d) Paddle 2 stage type.

반응기 전체 체적에 대한 난류소산율 분포는 Fig. 7에 나타난다.



(a)



(b)

Fig. 7 Volume fraction of turbulent dissipation rate.

Fig. 7을 살펴보면 Pfaudler 1단, Paddle 3단 반응기는 난류소산율 분포가 서로 유사한 반면 Paddle 1단, Paddle 2단 반응기는 앞선 2반응기보다 그 분포가 상이함을 알 수 있다. 2가지 반응기의 형상 및 임펠러, 배플, 운전조건이 서로 상이하지만 난류소산율 분포가 유사한 특성을 보인다는 것은 입자품질의 특성으로 타당성을 보인다고 판단되어진다. 이러한 차이는 곧 반응기내의 유동의 특성의 차이가 반영된 것이므로 형상 및 운전 조건 등에 의한 유동의 특성이 모두 반영되었다고 할 수 있다. Table. 2에서는 평균난류소산율과 표준편차가 나타나 있다. Pfaudler 1단, Paddle 3단 반응기가 평균이 유사하며 Paddle 1단, Paddle 2단 반응기는 이보다 높고 Pfaudler 1단, Paddle 3단 반응기에 비해 표준편차도 높은 편임을 알 수 있다. 난류운동에너지의 분포를 Fig. 8에 나타내었다.

Table. 2 Comparison of turbulent dissipation rate

	평균	표준편차
Pfaudler 1단	1.52	7.33
Paddle 3단	1.36	4.76
Paddle 1단	3.86	9.67
Paddle 2단	6.96	27.0

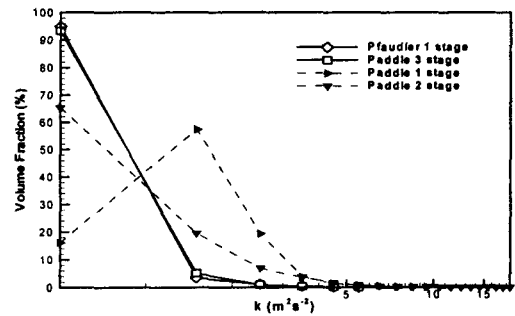


Fig. 8 Volume fraction of turbulent kinetic energy

Table. 3 Comparison of turbulent kinetic energy

	평균	표준편차
Pfaudler 1	0.57	0.37
Paddle 3	0.59	0.41
Paddle 1	1.74	1.05
Paddle 2	1.23	1.59

난류운동에너지 분포도 Fig. 8에서 Pfaudler 1단, Paddle 3단 반응기가 Paddle 1단, Paddle 2단 반응기와 구별되는 유사성을 보인다. Table. 3에는 난류운동에너지의 평균과 표준편차가 나타나 있다. Pfaudler 1단, Paddle 3단 반응기의 평균이 거의 같고 Paddle 1단, Paddle 2단 반응기는 이의 2배 이상으로 나타나며 표준편차도 큰 것을 알 수 있다. Paddle 1단, Paddle 2단 반응기가 Pfaudler 1단, Paddle 3단 반응기에 비해 전반적으로 유체에 에너지가 과도하게 투입되는 것이라고 판단할 수 있다.

#### 4. 결 론

고분자 화합물 생성반응기 내부 유동을 살펴 보기 위하여 임펠러, 배플, L/D, 등이 각각 다른 4가지 반응기에 대해 계산하였다. 임펠러와 배플의 형상, 운전조건 등에 따른 각 반응기들의 독특한 유동패턴을 볼 수 있었다. 각각 형상이 틀리고 운전조건이 틀리지만 우수한 입자 품질을 얻을 수 있는 반응기가 있는가 하면 그렇지 않은 경우가 있다는 것은 적절한 운전조건의 조정으로 인해라도 형상의 차이를 보완할 수 있다는 것을 의미한다. 본 연구를 통해 실제 현장에서 우수한 입자품질의 반응기를 그렇지 못한 반응기와 비교하여 우수한 입자품질의 조건으로 공통되는 난류소산율 분포를 얻을 수 있었다. 이의 결과로부터 반응기들에 대해 내부 유동을 해석함으로써 고분자 물성을 어느 정도 예측 가능하리라 예상되고 나아가 반응기들의 운전 조건 등을 난류소산율 분포를 기준으로 조정함으로써 우수한 물성으로 조정할 수 있을 것이라 판단된다.

#### 참고문헌

- [1] "Technology roadmap for computational fluid dynamics," vision 2020 : The US Chemical Industry, (1998)
- [2] Hinze, J. O., "Fundamentals of the hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion process," A.I.Ch.E. J., 1 (1955), p.289-295
- [3] Zhou, G., Kresta. S. M., "Correlation of mean drop size and minimum drop size with the turbulence energy dissipation and the flow in an agitated tank," Chem. Eng. Sci., Vol.53 No. 11 (1998), p.2063-2079
- [4] Wernersson, E. S., Trägårdh, C., "Scale-up of Rushton turbine-agitated tanks," Chem. Eng. Sci., Vol.54 (1999), p.4245-4256
- [5] Francis, M. K., "the development of a novel probe for the in situ measurement of particle size distributions, and application to the measurement of drop size in rotor-stator mixers," Ph.D thesis, University of Maryland, (1999)
- [6] Zhou, G., Kresta. S. M., "Impact of Tank Geometry on the Maximum Turbulence Energy Dissipation Rate for Impellers," AIChE J., Vol.42 No. 9 (1996), p.2476-2490
- [7] Zhou, G., Kresta. S. M., "Evolution of drop size distribution in liquid-liquid dispersions for various impellers," Chem. Eng. Sci., Vol.53 No. 11 (1998), p.2099-2113
- [8] Fluent 5 User's Guide, Vol.3, Fluent .Inc
- [9] Tabor, G., Gosman, A. D., Issa, R. I., "Numerical Simulation Of The Flow In A Mixing Vessel Stirred By A Rushton Turbine," I. Chem. E Fluid Mixing V : UK conference on Mixing, Bradford (1996)