

# 테일러 반응기의 유동특성과 입자 체류시간에 관한 수치적 연구

이현권 · 이상건 · 전동협<sup>\*,†</sup>

서울대학교 기계항공공학부, \*동국대학교 기계부품시스템공학과  
(2014년 10월 16일 접수, 2014년 11월 10일 심사, 2014년 11월 25일 채택)

## Numerical Studies of Flow Characteristics and Particle Residence Time in a Taylor Reactor

Hyeon Kwon Lee, Sang Gun Lee, and Dong Hyup Jeon<sup>\*,†</sup>

School of Mechanical and Aerospace Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742, Republic of Korea

\*Department of Mechanical System Engineering, Dongguk University, Gyeongju 780-714, Republic of Korea

(Received October 16, 2014; Revised November 10, 2014; Accepted November 25, 2014)

### 초 록

전산유체해석 기법을 이용하여, 테일러 반응기 내 유동특성과 입자의 체류시간에 대하여 연구하였다. 테일러 반응기는 반응기의 작동조건에 따라 내부 유동특성이 달라지므로, 입구주입속도와 반응기 회전속도 변화에 따른 테일러 반응기 내부의 유동특성 변화를 살펴보았다. 또한 테일러 와류(TVF)영역에서 리튬이온전지의 양극물질인 NMC입자의 반응기 내 체류시간을 측정하였다. 입구에서의 복잡한 화학반응은 고려하지 않았고 테일러 유동의 영향만 고찰하였다. 해석결과 반응기의 회전속도가 높고 반응물의 주입속도가 낮을수록 입자의 체류시간이 길어지는 것을 확인하였다.

### Abstract

Using a computational fluid dynamics technique, the flow characteristics and particle residence time in a Taylor reactor were studied. Since flow characteristics in a Taylor reactor are dependent on the operating conditions, effects of the inlet flow velocity and reactor rotational speed were investigated. In addition, the particle residence time of LiNiMnCoO<sub>2</sub> (NMC), which is a cathode material in lithium-ion battery, is estimated in the Taylor vortex flow (TVF) region. Without considering the complex chemical reaction at the inlet, the effect of Taylor flow was studied. The results show that the particle residence time increases as the rotating speed increased and the flow rate decreased.

**Keywords:** Taylor reactor, Computational Fluid Dynamics, Particle tracking, Taylor vortex flow, Wavy Vortex Flow

## 1. 서 론

외부 실린더와 내부 실린더로 구성된 동심환형관 형태의 혼합용기에서 외부 실린더는 고정되어 있고 내부 실린더만 회전할 경우, 혼합용기 내에는 테일러 유동(Taylor flow)이 발생하며 이러한 테일러 유동을 이용하여 반응물을 혼합, 생산하는 장치를 테일러 반응기(Taylor reactor)라고 한다[1]. 테일러 반응기는 반응물들을 테일러 와류의 특성을 이용하여 균일한 생성물을 얻는데 있어 뛰어난 성능을 가진다. 이러한 뛰어난 혼합성은 균일한 혼합 및 화학반응을 필요로 하는 다양한 산업분야에 폭넓게 적용될 수 있다[1].

생성된 테일러 유동의 형태는 무차원 수인 테일러 수(Taylor number,  $Ta$ ) 혹은 레이놀즈 수(Reynolds number,  $Re$ )에 따라 각기 다른 유동형태를 보인다[2,3]. 축 방향 속도가 없는 무한히 긴 테일러 반응기

에서 테일러 수가 1708 ( $Re = 92$ ) 보다 작은 경우, 유동은 circular couette flow (CCF)를 형성한다. 내부 실린더의 회전속도가 증가함에 따라 임계 테일러 수( $Ta_{cr}$ ), 혹은 이에 상응하는 임계 레이놀즈 수( $Re_{cr}$ )를 넘어서는 경우, 반응기 내의 유동은 Taylor vortex flow (TVF)를 형성하게 되고, 두 개의 와류가 한 쌍을 이루며 역방향으로 회전하는 와류들이 반응기의 축 방향으로 연속적으로 생성된다[4]. 이 후 테일러 수가 증가할수록 반응기의 둘레를 따라 물결 모양의 유동이 형성되는데 이를 wavy vortex flow (WVF)라 한다. 그리고 테일러 수( $Ta$ )가 임계 테일러 수의 1000배 이상  $Ta \geq 1000Ta_{cr}$  ( $Re \geq 2912$ )으로 증가하는 경우 turbulent Taylor vortex flow (TTVF)로 불리는 유동으로 변하게 되며 이는 부분적으로 불규칙한 와류가 형성된다. WVF에서 TTVF로 변하는 경계는 구분하기가 쉽지 않은 것으로 알려져 있다[3,5-7]. 그리고 임계 테일러 수( $Ta_{cr}$ )는 축 방향의 유속에 의해 영향을 받는데 축 방향의 유속이 빨라질수록 임계 테일러 수는 증가하는 경향을 보인다. 축 방향의 유동속도와 임계 테일러 수의 관계는 Chandrasekhar[8]가 기술한 식  $Ta_{cr} = 1708 + 26.5Re_z^2$ 과 같다. 축 방향의 유동이 없는 경우에 임계 테일러 수는 1708인데 반해, 축 방향의 유동이 있는 경우에는 축 방향의 유동이 임계 테일러 수에 영향을 준다. 이와 같은 영향은 축 방향의 속도( $V_z$ )를 포함한  $Re_z$ 에 의해 반영된다.

† Corresponding Author: Dongguk University,  
Department of Mechanical System Engineering, Gyeongju 780-714, Republic of Korea  
Tel: +82-54-770-2209 e-mail: jeondh@dongguk.ac.kr

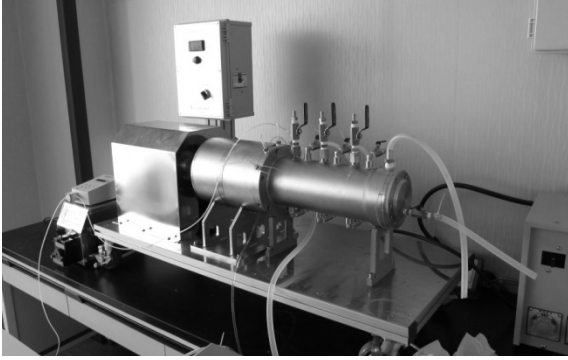


Figure 1. Lab-scale Taylor reactor.

테일러 반응기는 반응물질이 주입됨과 동시에 반응기가 작동하여 입구에서부터 혼합된 생성물이 출구에 도달하기까지 연속적으로 반응이 진행되며, 주입과 배출이 동시에 이루어지기 때문에 정체 영역이 생기지 않는 연속식 반응기이다. 반면에 기존에 사용하던 회분식 반응기는 반응물질을 한꺼번에 주입하고 충분한 혼합시간이 지난 후에 생성물을 얻는 비연속식 반응기의 특성을 가진다. 이러한 테일러 반응기의 연속성은 반응물의 반응기 내 체류시간을 줄여주어 시간적인 비용을 절감할 수 있으며, 또한 균일하고 양질의 생성물을 생성할 수 있고 공정에서의 편의성을 제공한다. 이러한 이유로 테일러 반응기는 기존의 회분식 반응기의 대안으로 떠오르며, 이차전지 산업 및 결정화 등의 화학반응이 생산의 주된 절차가 되는 화학산업에서 활발히 연구, 개발되고 있다[9-11]. 최근에는 반응기의 입구에서 출구에 갈수록 내부 실린더와 외부 실린더의 지름이 줄어드는 고깔 형태의 반응기나 기존에 사용되던 반응기의 크기보다 작은 마이크로 단위의 미세한 혼합과 화학반응의 속도에 대해 연구하는 등 다양한 크기와 형태를 가진 테일러 반응기에 대한 연구도 진행 중이다[12,13]. 특히 테일러 반응기가 리튬이온전지의 양극재 생산에 사용되면서 이에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다[14]. 양극재의 품질은 이차전지의 성능과 직접적인 연관이 있어 양극재의 품질을 보장하기 위해서는 반응물의 균일한 혼합이 필수적이다[15]. 이러한 이유로 회분식 반응기의 단점을 보완하고 생성물의 품질을 향상시킬 수 있는 테일러 반응기는 지속적인 연구가 필요한 분야이다.

리튬이온전지의 양극재로는  $\text{LiCoO}_2$  (LCO),  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  (LMO),  $\text{LiFePO}_4$  (LFP),  $\text{Li}(\text{Ni}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z)\text{O}_2(x+y+z=1)$  (NMC) 등이 있으나, 이 중 NMC는 성능이 높고 안정성이 뛰어나 하이브리드 자동차(HEV)나 전기자동차(EV)의 양극물질로 각광을 받고 있어 수요가 지속적으로 증가하고 있다. 이에 따라 소재업계에서는 NMC를 고품질, 저가에 생산하기 위한 연구가 진행되고 있다. NMC는 반응기 내에서 반응물질들의 화학, 침전반응을 통하여 생성된다. 반응기의 입구에 Ni, Mn, Co로 이루어진 황산 금속용액에  $\text{NH}_3$ 와  $\text{NaOH}$ 를 동시에 주입하면 착염 생성반응과 침전반응이 동시에 일어나며, 입자 성장과 함께  $(\text{Ni}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z)(\text{OH})_2$ 의 NMC 전구체가 생성된다. 생성된 전구체에 탄산 리튬이나 수산화 리튬과 같이 리튬을 포함하는 물질과 섞고 열을 가하게 되면 수분이 제거되고  $\text{Li}(\text{Ni}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z)\text{O}_2$ 의 형태의 NMC 전극이 제조된다.

본 연구에서는 테일러 유동을 이용한 NMC의 혼합과정을 연구하기 위하여, 전산유체역학(CFD)을 이용하여 테일러 반응기의 3차원 유동을 전산모사하였다. 화학반응 과정이 비교적 빠른 속도로 일어나므로 입구에서 복잡한 화학반응이 완료되었다고 가정하여, 화학반응은 고

려하지 않았고 유동의 영향만을 고려하였다. Figure 1에서 보는 바와 같이, lab-scale의 테일러 반응기를 대상으로 입구에서의 주입속도와 반응기 내벽의 회전속도가 테일러 유동 형성에 주는 영향을 알아보고, 무차원 수에 따른 테일러 유동의 변화를 관찰하였다. 또한 반응기의 적절한 운전시간을 알아보기 위하여 테일러 반응기로 주입되는 반응물질의 체류시간을 수치적 방법을 이용하여 측정하였다.

## 2. 수치해석

### 2.1. 지배방정식

본 연구에서는 CFD해석 프로그램인 Fluent를 사용하여 시뮬레이션을 수행하였고, 연속방정식과 운동량방정식이 계산에 사용되었다.

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla)\mathbf{u} = -\frac{1}{\rho}\nabla p + \nu\nabla^2\mathbf{u} \quad (2)$$

여기서  $\mathbf{u}$ 는 속도벡터,  $\rho$ 는 밀도,  $\nu$ 는 동점성계수를 나타낸다[16]. 회전하는 실린더 내의 테일러 수는 반응기의 형상과 내벽의 회전속도를 고려하여 다음과 같이 정의된다.

$$Ta = \frac{r_1\omega^2 d^3}{\nu^2} \quad (3)$$

여기서  $r_1$ 는 반응기의 내부 반지름,  $\omega$ 는 반응기 내벽의 회전 각속도,  $d$ 는 반응기의 내벽과 외벽 사이의 간격을 나타낸다. 반경방향 및 축방향 레이놀즈 수는 다음과 같다.

$$Re = \frac{r_1\omega d}{\nu} \quad (4)$$

$$Re_z = \frac{V_z d}{\nu} \quad (5)$$

식 (5)에서  $V_z$ 는 작동유체의 축 방향 평균 속도를 나타낸다.

### 2.2. 입자추적모델

NMC 입자들의 테일러 반응기 내에서의 체류시간을 알아보기 위하여 입자추적 모델을 이용하여 입자들의 체류시간을 측정하였다. 입자추적(particle tracking)은 이산적인 입자들의 힘 균형에 관한 식으로 수행된다. 이는 입자에 가해지는 힘의 균형에 관한 식으로 나타내며 다음과 같다.

$$\frac{d\mathbf{u}_p}{dt} = F_D(\bar{\mathbf{u}} - \bar{\mathbf{u}}_p) + \frac{\bar{g}(\rho_p - \rho)}{\rho_p} + \bar{F} \quad (6)$$

여기서  $F_D(\bar{\mathbf{u}} - \bar{\mathbf{u}}_p)$ 는 단위 입자의 질량당 마찰력을 의미하며,  $\bar{F}$ 는 추가적인 가속도 항으로 이는 가해지는 힘을 단위 입자의 질량으로 나눈 값이다.  $\bar{g}$ 는 중력으로  $y$ 축의 음의 방향으로 작용한다[16].

### 2.3. 해석모델 및 격자

본 연구에 사용된 테일러 반응기의 CFD 모델은 Figure 2와 같다. 테일러 반응기의 치수는 Table 1에 표시하였다. 테일러 유동은 중심을 공유하는 직경이 서로 다른 실린더 사이의 공간에서 발생한다. 우측

Table 1. Specific Size of Taylor Reactor

	Length (m)
$r_i$	0.04245
$r_o$	0.051
$D$	0.00855
$L$	0.417
$r_{inlet}$	0.003
$r_{outlet}$	0.00893

Table 2. Boundary Conditions

	B.C.	DPM B.C.
Inlet	Velocity inlet	Reflect
Outlet	Pressure outlet	Escape
Inner wall	Moving wall	Reflect
Outer wall	Stationary wall	Reflect

상단에 위치한 주입구를 통해서 작동유체가 주입되며, 주입된 작동유체는 혼합, 반응 과정을 거쳐 좌측 하단의 출구를 통해 빠져나가게 된다. 해석을 위하여 약 280만 개의 정규격자(mesh)를 사용하여 모델링하였다. 본 해석에 사용된 장비의 사양은 3.3 GHz Dual CPU 6개이며 병렬처리법을 적용하여 수행되었다.

2.4. 경계조건

입구 조건으로 속도 경계(velocity boundary)를 적용하였고, 출구 조건으로는 압력 경계(pressure boundary)를 적용하였다. 이외의 모든 경계는 접촉 조건을 적용하기 위해 벽 조건을 적용하였다. 반응기 내부 실린더의 회전 각속도는 moving wall condition을 통해 구현되었으며, z축을 중심으로 회전하게 된다.

입자추적을 통한 체류시간 측정을 위해 NMC 입자를 주입구를 통해 주입하였다. NMC 입자의 밀도는 4700 kg/m<sup>3</sup>로 하였으며[17], NMC 입자의 지름은 8 μm로 설정하였다. 작동유체로는 13.68% Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 수용액을 사용하였고, Azizov의 실험 논문 값을 인용하여 밀도와 동점성계수는 각각 1123.9 kg/m<sup>3</sup>과 0.001438 kg/m · s로 하였다[18].

입자추적을 위하여 DPM (discrete phase model) 경계조건을 설정하였으며, 출구에 escape, 출구를 제외한 모든 경계에 reflect를 설정하였다. 해석에 사용된 각 경계조건들은 Table 2에 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 모델의 타당성검증

수치해석 모델의 타당성 검증을 위하여 Wereley & Lueptow[2]의 실험결과와 비교, 분석하였다. Figure 3(a)는 축 방향의 좌표에 따라 해당좌표에서의 반경방향 속도성분을 비교한 것이고, Figure 3(b)는 반경방향의 좌표에 따라 해당좌표에서의 축 방향 속도성분을 비교한 것이다. 여기서 가로축은 무차원 수로 표시하였으며 각각 ζ와 ξ로 정의하였다. ζ는 축 방향의 좌표를 반응기의 내부 실린더와 외부 실린더의 간격으로 나누어 무차원화 한 것이고 ζ = z/a와 같이 나타낸다. 그리고 ξ는 반경 방향의 좌표에서 반응기 내부 실린더의 반지름의 길이를 빼고 그것을 내부 실린더와 외부실린더의 간격으로 나누어 무차원

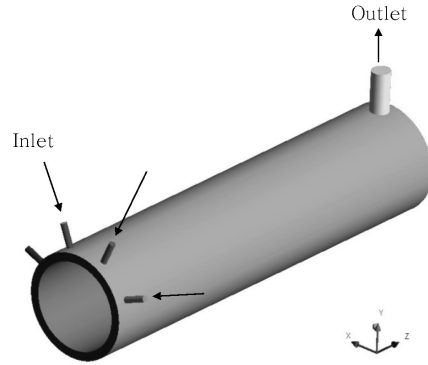
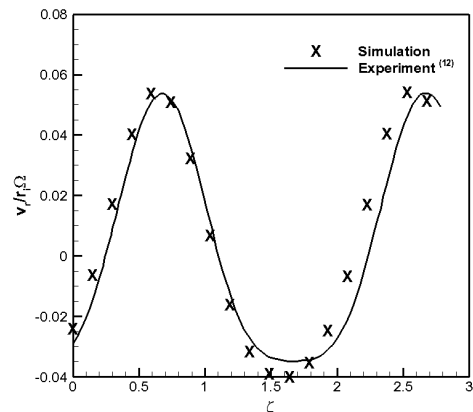
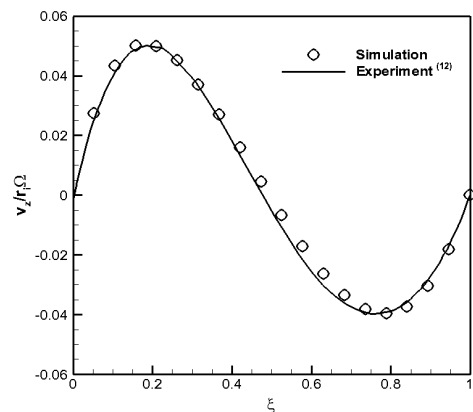


Figure 2. CFD model of Taylor reactor.



(a)



(b)

Figure 3. Validation of Taylor flow. (a) dimensionless radial velocity, (b) dimensionless axial velocity.

화 한 것이며 ξ = (r-r<sub>i</sub>)/a와 같이 나타낸다. 해석 조건은 실험 조건과 동일한 Re = 124가 적용되었으며, 내부 반지름과 외부 반지름의 비율인 반경비 η는 0.83으로 실험 조건과 동일한 반응기의 형상임을 나타낸다. Figure 3(a)에서 보는 바와 같이 반경 방향의 속도 성분의 최대값과 최소값에서 약간의 차이를 보이지만 대체적으로 실험결과와 일치함을 보였다. 또한 파동형상의 특징을 보이는데 이는 반응기 전반에 걸쳐 번갈아가면서 반대 방향으로 회전하는 와류가 생성되기 때문이다. 파동형상의 그래프에서 0의 값을 갖는 부분은 와류의 중심에서의

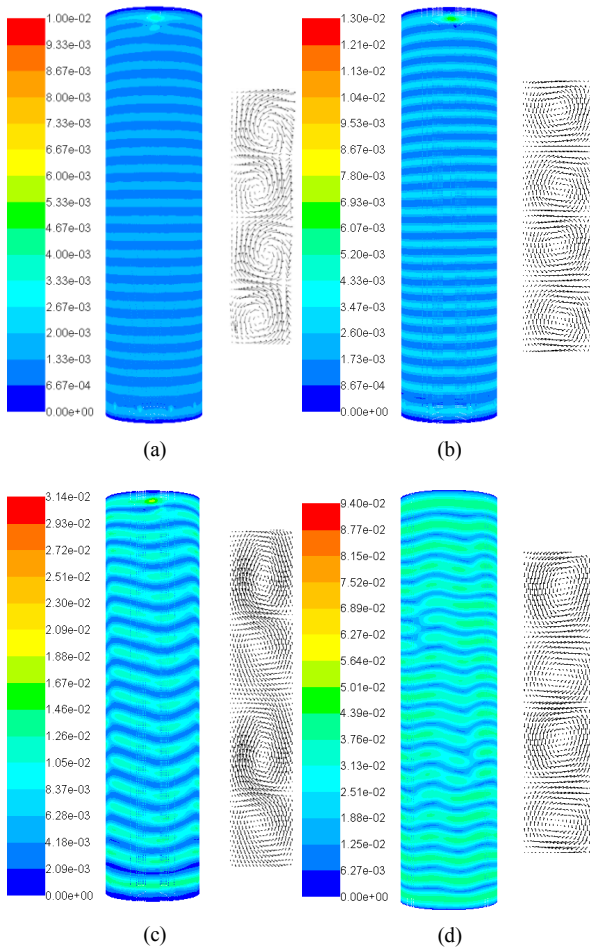


Figure 4. Velocity magnitude contour with velocity vector at  $V_{in} = 0.001$  m/s and (a)  $Re = 102$ , (b)  $Re = 120$ , (c)  $Re = 267$ , (d)  $Re = 800$ .

속도가 0이 되는 것을 나타낸다. Figure 3(b)는 반경방향의 좌표에 따른 축 방향의 속도성분을 비교한 것으로 실험값과 매우 근접한 경향을 보였으며, 와류의 중심 및 내벽과 외벽의 점착조건에 의해서 0의 속도값을 가지는 것이 확인되었다.

### 3.2. 테일러 유동

Figure 4는 주입속도(0.001 m/s)에서의 내부 실린더의 회전수 변화에 따른 반응기 내부의 속도분포로 반응기 단면의 속도벡터를 확대하여 함께 나타내었다. Figure 4(a)와 (b)는 레이놀즈 수가 102~120으로 임계 테일러 수( $Ta_{cr}$ ) 혹은 이에 상응하는 임계 레이놀즈 수( $Re_{cr}$ )보다 큰 영역이므로 테일러 와류(TVF)가 생성되는 영역을 나타낸다. 그림에서 볼 수 있듯이 테일러 와류는 반응기의 둘레를 따라 고리모양의 와류가 평행하게 적재되어 있는 형태를 띤다. Figure 4(c)와 (d)는 레이놀즈 수가 267~800으로 임계 레이놀즈 수의 2.87배 이상이 되는 웨이비 와류(WVF) 영역이다. 반응기 둘레를 따라 물결 형태의 와류가 적재되어 있는 특징을 보인다.

반응기 내부 실린더의 회전수가 증가함에 따라 반응기 전반에 걸쳐 적재되어 있는 고리 모양의 와류가 더 빠른 속도로 회전하는 것을 확인하였다. 이는 반응기에 주입된 반응물질을 더욱 균일하게 혼합하고 화학반응을 용이하게 하여 양질의 생성물을 생산하는데 기여할 수 있다는 것을 의미한다. 또한 반응기의 단면을 통해 살펴본 와류는 반응

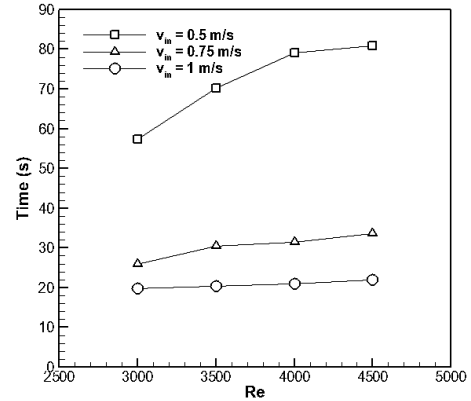


Figure 5. Particle residence time vs.  $Re$  at TVF region.

기의 회전속도가 높아질수록 작고 원형에 가까웠던 와류의 크기가 점점 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 반응기의 작동 중에 생성되는 와류는 두 개의 와류가 한 쌍을 이루며 반대방향으로 회전하는 거동을 보이는데 이때 한 쌍의 와류에 물결형태로 흐르는 유동을 관찰할 수 있다. 이를 bypass 유동이라 하는데 반응기의 회전속도가 증가하면서 와류의 크기가 커지고 bypass 유동은 감소하는 경향을 보이게 된다.

### 3.3. 입자추적(particle tracking)

반응기 내부 실린더의 회전속도가 증가함에 따라 반응기 내의 유동 형태는 CCF, TVF, WVF, TTTF 영역으로 구분되고 각 영역에서의 유동은 각각 다른 특징을 갖게 된다. 본 연구에서는 유동특성에 의한 영향을 배제하고 입자의 체류시간을 측정하기 위하여 반응기 내에 주입된 입자의 체류시간은 테일러 유동영역인 TVF 영역에 한정하여 측정하였다. 본 해석에서는 다양한 조건에서의 체류시간 측정을 위해, 비교적 높은 주입속도(0.5, 0.75, 1 m/s)를 부여하여 계산 비용을 절감하였다. 주입된 물질은 NMC로 앞에서 언급한 바와 같이 입자의 밀도는  $4700 \text{ kg/m}^3$ , 지름은  $8 \mu\text{m}$ 로 설정하였다. NMC의 생산 공정에서 반응기 내부에 주입된 반응물은 화학반응과 침전 과정을 거쳐 제품이 생산되지만 화학반응이 비교적 빠르고 입자의 성장 메커니즘이 명확하지 않아, 본 연구에서는 리튬이온전지의 양극재로 주로 쓰이는 지름  $8 \mu\text{m}$ 의 입자가 반응기에 주입되었다고 가정하였다. 또한 반응기에  $(\text{Ni}, \text{Mn}, \text{Co})\text{SO}_4$ 와  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NaOH}$ , 3개의 반응물이 주입구로 주입되기 때문에 4개의 주입구 중 세 개의 주입구만 사용되었다. 입자주입은 주입구의 표면에서 입자가 주입될 수 있도록 표면(surface)유형을 적용하였고, 주입되는 입자의 개수는 입구의 표면에 형성되어 있는 격자의 개수만큼 입자를 주입하는 scale flow rate by face area 옵션을 적용하였는데 이를 통하여 주입유량 또한 표면면적에 비례하여 계산된다. 결과적으로 주입구 하나당 405개의 입자(총 1215개)가 동시에 주입되었다. 이와 같은 방법으로 비교적 많은 숫자의 NMC 입자를 주입하여 출구까지 나오는데 걸리는 시간을 측정하였다.

Figure 5는 레이놀즈 수 변화에 따른 입자의 체류시간을 나타낸다. 다양한 조건에서의 체류시간 측정을 위해 각 주입속도마다 네 가지 작동 영역( $Re = 3000, 3500, 4000, 4500$ )에 대한 계산을 수행하였다. 주입속도(0.5, 0.75, 1 m/s)에 따른 축방향 레이놀즈 수는 식 (5)에 의해 결정되며, 각각 113, 169, 226의 값을 가지게 된다. 이에 따른 임계 테일러 수는  $3.39 \times 10^5, 7.61 \times 10^5, 1.35 \times 10^6$ 이며, 각 조건의 테일러 수는  $Ta_{cr} \leq Ta \leq 1000 Ta_{cr}$ 의 범위에 속하므로 Taylor vortex flow (TVF)가 생성되는 영역이다. Figure 5의 세 그래프는 공통적으로 회전

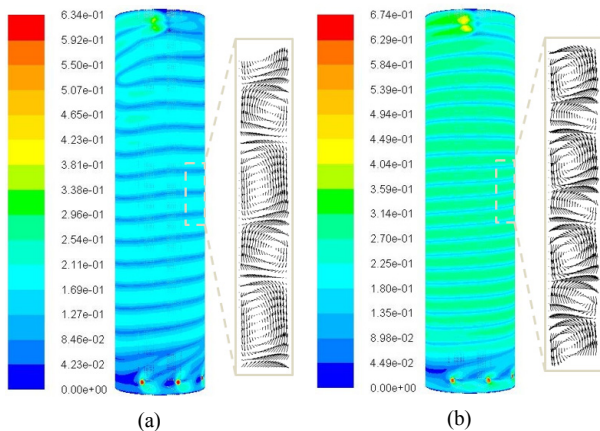


Figure 6. Velocity magnitude contour with velocity vector at  $V_{in} = 0.5$  m/s and (a)  $Re = 3000$ , (b)  $Re = 4500$ .

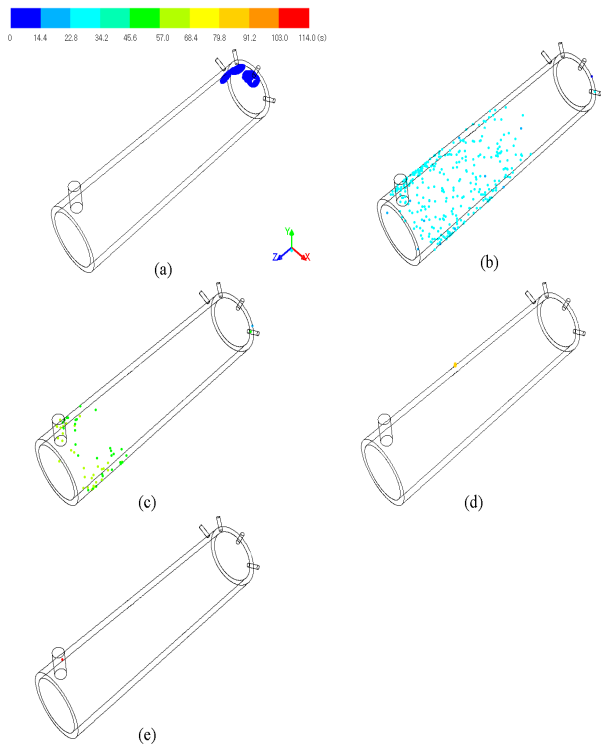


Figure 7. Simulated sequence of transient particle locations at  $Re = 4500$  and  $V_{in} = 1$  m/s. (a)  $t = 0.5$  s, (b)  $t = 28.6$  s, (c)  $t = 57.2$  s, (d)  $t = 85.3$  s, (e)  $t = 113.0$  s.

속도가 증가함에 따라 입자의 체류시간이 증가함을 보였다. 이는 반응기 내에 생성된 와류 사이로 흐르는 bypass 유동이 입자의 체류시간에 영향을 미치기 때문이다. 반응기의 회전속도가 낮을 때 반응기 내부에서 생성되는 테일러 와류는 원에 가까운 형태를 보이고 그 크기 또한 작다. 따라서 전체 유동에서 테일러 와류가 차지하는 비중은 작아지고 두 와류가 한 쌍을 이루며 반대 방향으로 회전하는 유동 사이에 생성되는 bypass 유동의 비율이 상대적으로 증가하게 된다. 이 경우에 bypass 유동을 타고 출구까지 이동하는 입자의 비율이 많아지기 때문에 반응기 내에 주입된 입자의 체류시간은 감소하게 된다. 하지만 반응기의 회전속도가 빨라지면서 반응기 내부에 생성되는 테일러

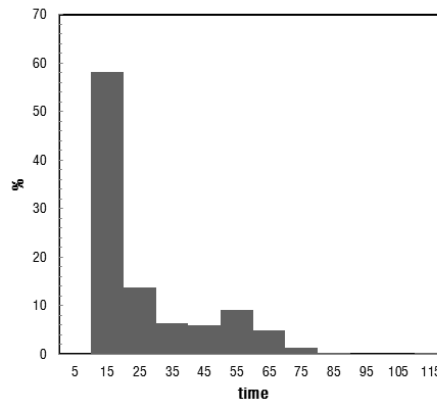


Figure 8. Histogram of particle residence time at  $Re = 4500$  and  $V_{in} = 1$  m/s.

러 와류는 그 크기가 증가하게 된다. 생성되는 와류의 크기가 커지면서 와류들 사이를 흐르는 유동인 bypass 유동은 감소하게 되고 낮은 회전속도에서는 bypass 유동을 타고 이동했던 입자들이 테일러 와류에 포함되어 출구까지 이동하는 비율이 증가하면서 입자의 체류시간은 길어지게 된다. 따라서 반응기 내부 실린더의 회전속도에 의해 그 크기가 변하는 테일러 와류와 bypass 유동은 테일러 반응기에 주입된 입자의 체류시간과 밀접한 관계가 있는 것을 확인할 수 있다. 입구에서의 주입속도 또한 입자의 체류시간에 영향을 미친다. Figure 5에서 볼 수 있듯이 동일한 레이놀즈 수의 경우에 입구에서의 유속이 감소할수록 입자의 체류시간은 증가하는 것을 확인할 수 있다. 이는 입구를 통해 주입되는 반응물의 유량이 많을 경우 반응기 내의 축방향 이동속도가 빨라져 입자 체류시간의 감소를 가져오기 때문이다.

Figure 6은 주입속도 0.5 m/s에서의 내부 실린더의 회전수 변화에 따른 반응기 내부의 속도분포와 속도벡터이다. Figure 6(a)와 (b)는 각각 레이놀즈 수 3000, 4500이고 테일러 수는 각각  $1.81 \times 10^6$ ,  $4.08 \times 10^6$ 이다. 앞서 설명하였듯이 높은 레이놀즈일수록 고리 모양의 와류가 더 빠른 속도로 회전하는 것이 확인되었다. 반면 bypass 유동의 경우 가시화된 차이를 보이지는 않았는데 이는 비교적 높은 축방향 속도로 인해 전반적인 유동의 속도분포가 올라갔기 때문으로 보인다.

Figure 7은 입자 주입 후 시간에 따른 입자의 위치 변화를 나타낸 것이다.  $V_{in} = 1$  m/s와  $Re = 4500$ 의 조건에서 최초 1215개의 입자가 주입되었고 28.6 s 마다 입자의 위치 변화를 나타내었다. 이때의 테일러 수가  $4.08 \times 10^6$ 이므로 Taylor vortex flow (TVF)가 생성되는 영역이다. 그림에서 보는 바와 같이 반응기로 주입된 입자들은 입구에서 출구까지 각각 다른 유선을 따라 이동하게 된다. 각 유선들은 서로 다른 속도를 가지고 있다. Figure 7(a)와 같이 0.5 s에는 주입된 입자들이 대부분 입구 주위에 모여있는 것을 볼 수 있지만 입자들이 각각 다른 유선을 따라 이동하면서 점점 위치가 달라지게 되고, Figure 7(b)에서와 같이 28.6 s에는 주입된 입자들이 반응기의 가운데 부근에서 출구에 걸쳐 고르게 분포되어 있는 모습을 확인할 수 있다. Figure 7(c)는 반응기 작동 후 57.2 s에서 입자의 위치를 나타낸 그림이다. 작동 초기에는 반응기 내로 주입된 입자들이 서로 다른 유선을 타고 반응기의 출구까지 이동하였기 때문에 각 입자는 반응기 내에 서로 다른 위치에 존재하게 되며 해당 시간에 이미 반응기 밖으로 빠져나간 입자도 있지만 반응기 내에 체류하는 입자도 있음을 확인할 수 있었다. Figure 7(d)와 (e)는 반응기 작동 후 각각 85.3 s와 113 s 일 때 입자의 위치를 나타내었다. 입자의 수가 현격히 줄어든 것을 알 수 있으며 체



류하고 있는 입자들은 다른 입자들에 비해 상당히 오랜 시간 동안 반응기 내에 체류하고 있음을 나타낸다. 입자추적을 통하여 시간에 따른 입자의 위치 변화를 알아본 결과, 반응기 내 입자의 평균 체류시간은 22 s이지만 오랜 시간 입자들이 반응기에 체류하고 있는 것을 확인할 수 있다.

Figure 8은  $V_m = 1$  m/s와  $Re = 4500$ 의 조건에서 체류시간별 입자의 도수분포를 나타낸 히스토그램이다. 도수분포를 서로 비교해 보면 30 s까지 약 72% (874개)의 입자가 반응기를 빠져나온 것을 확인할 수 있다. 이로부터 주입된 충분한 수의 입자들은 반응기 내에 생성된 테일러 유동을 따라 출구까지 이동하면서 각기 다른 체류시간을 보이고 있으며, 또한 다양한 이동경로를 보임이 확인되었다. 결과적으로 주입된 입자들은 다양한 이동경로를 통해 출구로 빠져나감을 보였으며, 최대 113.5 s의 체류시간을 보였다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 테일러 반응기 내벽의 회전속도 변화에 따른 반응기 내 유동특성과 그에 따라 주입된 NMC 입자의 체류시간 변화에 대한 연구를 수행하였다. 먼저 수치해석 모델의 검증을 위해 Wereley와 Lueptow의 실험 결과와 비교하였고 본 연구의 결과와 일치함을 확인하였다. 이와 같은 결과를 바탕으로 본 연구에 사용된 모델의 타당성을 확인하였고, 레이놀즈 수의 증가에 따른 반응기 내에서 생성되는 테일러 유동의 변화(TVF와 WVF)를 확인하였다.

반응기 내에 생성된 NMC 입자의 반응기 회전속도와 주입속도에 따른 입자 체류시간과 입자 분포를 알아보기 위하여 입자추적을 수행하였다. 화학반응이 빠른 속도로 이루어졌다는 가정 하에 계산을 수행하였으며, 반응기의 회전속도가 증가함에 따라 입자의 체류시간이 증가하는 경향을 나타내었고, 주입속도가 증가함에 따라 체류시간은 감소하였다. 본 결과로부터 입자의 체류시간이 bypass 유동에 상당히 의존함을 알 수 있었다. 하지만 보다 정확한 입자의 체류시간 측정을 위하여 복잡한 화학반응과 입자의 성장과정을 포함한 공침반응 시뮬레이션은 앞으로 추진해야 할 과제로 남는다. 본 연구결과는 산업현장에서 효율적인 테일러 반응기의 운영을 위한 자료로 사용될 것으로 기대된다.

##### 기호설명

- $d$  : 내부 회전축과 반응기 사이의 간격(m)
- $L$  : 반응기의 길이(m)
- $r_i$  : 반응기 내부 회전축의 반지름(m)
- $r_o$  : 반응기의 반지름(m)
- $Re$  : 반경방향 레이놀즈 수
- $Re_z$  : 축방향 레이놀즈 수
- $Re_{cr}$  : 임계 레이놀즈 수
- $Ta$  : 테일러 수
- $Ta_{cr}$  : 임계 테일러 수
- $r_{inlet}$  : 반응기 입구의 반지름(m)
- $r_{outlet}$  : 반응기 출구의 반지름(m)
- $V_{in}$  : 반응기 입구 주입속도(m/s)
- $V_z$  : 반응기 축 방향의 유동속도(m/s)

##### 그리스 문자

- $\eta$  : 반응기 회전축의 반지름과 반응기 반지름의 비

- $\mu$  : 점성계수(kg/m · s)
- $\nu$  : 동점성계수(Pa · s)
- $\rho$  : 밀도(kg/m<sup>3</sup>)
- $\omega$  : 반응기 회전축의 회전속도(rad/s)

#### 감 사

본 연구는 2013년 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원의 지원(20132020101750)과 2013년 동국대학교 논문게재장려금 지원으로 이루어졌음.

#### References

1. M. Davis and E. Weber, Liquid-liquid extraction between rotating concentric cylinders, *J. Ind. Eng. Chem.*, **52**, 929-934 (1960).
2. S. T. Wereley and R. M. Lueptow, Spatio-temporal character of non-wavy and wavy Taylor-Couette flow, *J. Fluid Mech.*, **364**, 59-80 (1998).
3. D. Coles, Transition in circular Couette flow, *J. Fluid Mech.*, **21**, 385-425 (1965).
4. E. L. Koschmieder, *Bénard cells and Taylor vortices*, Cambridge University Press, 219-225 (1993).
5. C. D. Andereck, S. Liu, and H. L. Swinney, Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders, *J. Fluid Mech.*, **164**, 155-183 (1986).
6. K. Bühler and N. Polifke, *Dynamical behaviour of Taylor vortices with superimposed axial flow*. Nonlinear Evolution of Spatio-Temporal Structures in Dissipative Continuous Systems, Springer, 21-29 (1990).
7. R. M. Lueptow, A. Docter, and K. Min, Stability of axial flow in an annulus with a rotating inner cylinder, *Phys. Fluids A.*, **4**, 2446-2455 (1992).
8. S. Chandrasekhar, The stability of spiral flow between rotating cylinders, *Proc. R. Soc. Lond. A.*, **265**, 188-197 (1962).
9. J. Wang, W. B. White, and J. H. Adair, Synthesis of Calcium Carbonate Particles in Octylamine/Water Bilayer Systems, *J. KONA Powder and Particle*, Doi:10.14356/kona.2014005.
10. W. M. Jung, S. H. Kang, W. S. Kim, and C. K. Choi, Particle morphology of calcium carbonate precipitated by gas - liquid reaction in a Couette - Taylor reactor, *Chem. Eng. Sci.*, **55**, 733-747 (2000).
11. W. S. Kim, Application of Taylor Vortex to Crystallization, *J. Chem. Eng. Jpn.*, **47**, 115-123 (2014).
12. A. Rochex, J. J. Godon, N. Bernet, and R. Escudé, Role of shear stress on composition, diversity and dynamics of biofilm bacterial communities, *Water Res.*, **42**, 4915-4922 (2008).
13. M. C. Jung and S. G. Weber, Influence of Chemical Kinetics on Postcolumn Reaction in a Capillary Taylor Reactor with Catechol Analytes and Photoluminescence Following Electron Transfer, *Anal. Chem.*, **77**, 974-982 (2005).
14. M. Choi, G. Ham, B. S. Jin, S. M. Lee, Y. M. Lee, G. Wang, and H. S. Kim, Ultra-thin Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> coating on the acid-treated 0.3Li<sub>2</sub>MnO<sub>3</sub> · 0.7 LiMn<sub>0.60</sub>Ni<sub>0.25</sub>Co<sub>0.15</sub>O<sub>2</sub> electrode for Li-ion batteries, *J. Alloy. Compd.*, **608**, 110-117 (2014).
15. Z. Lu, D. MacNeil, and J. Dahn, Layered Li [Ni<sub>x</sub> Co<sub>1-2x</sub> Mn<sub>x</sub>] O<sub>2</sub> Cathode Materials for Lithium-Ion Batteries, *Electrochem. Solid*

- St.*, **4**, A200-A203 (2001).
16. Fluent Inc., *FLUENT 14.5 user's guide* (2012).
17. M. Ebner, F. Geldmacher, F. Marone, M. Stampanoni, and V. Wood, X-Ray Tomography of Porous, Transition Metal Oxide Based Lithium Ion Battery Electrodes, *Adv. Energy Mater.*, **3**, 845-850 (2013).
18. N. D. Azizov and T. S. Akhundov, The bulk properties of the  $\text{Na}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$  system in a wide range of the parameters of state, *High Temp+*, **38**, 203-209 (2000).