

기포유동층 고분자 중합 반응기에서의 슬러그 특성

고은솔 · 강서영 · 서수빈 · 김형우 · 이시훈[†]

전북대학교 자원에너지공학과
54896 전라북도 전주시 덕진구 백제대로 567
(2020년 4월 16일 접수, 2020년 5월 18일 수정본 접수, 2020년 5월 30일 채택)

Slug Characteristics in a Bubbling Fluidized Bed Reactor for Polymerization Reaction

Eun Sol Go, Seo Yeong Kang, Su Been Seo, Hyung Woo Kim and See Hoon Lee[†]

Department of Mineral Resources Energy Engineering, Jeonbuk National University,
567, Baekje-daero, Jeonju-si, Jeollabuk-do, 54896, Korea

(Received 16 April 2020; Received in revised from 18 May 2020; Accepted 30 May 2020)

요 약

고체 입자들이 유체처럼 움직이는 유동층 공정은 에너지 전환 공정뿐만 아니라 범용 고분자 수지의 생산 공정에도 이용되고 있다. 범용 고분자 수지 중의 하나인 LLDPE(Linear low density polyethylene)도 기포 유동층 공정을 통해 전세계에서 생산되고 있다. 입자 크기에 비해 밀도가 낮은 LLDPE 입자들은 고분자 중합 반응을 위해 공급되는 수소에 의해서 유동화된다. 그러나 LLDPE 생산 공정은 기포유동층 공정임에도 불구하고 발생한 슬러그로 인하여 반응에 영향을 끼쳐 공정의 효율 저하를 불러올 수 있다. 이에 본 연구에서는 상용 고분자 반응기를 모사한 pilot 규모의 고분자 합성 반응기(0.38 m I.D., 4.4 m High)와 동일한 시뮬레이션 모델을 구축하여 LLDPE 입자의 유동화 상태를 고찰하였다. 특히 기체 유속(0.45-1.2 m/s), 고체 입자 밀도(900-1900 kg/m³), 입자 구형도(0.5-1.0), 입자 크기(120-1230 μm)의 변화에 따른 슬러그 특성을 세밀하게 고찰하기 위하여 전산입자유체해석(Computational particle-fluid dynamics, CPFDF)을 이용하였다. CPFDF를 통해서 일부 실험자들만 고찰할 수 있었던 flat slug의 발생을 시각적으로 구현하였으며 밀도, 구형도, 크기 등의 고체의 물리적 특성을 변화시킴에 따라 슬러그 발생을 저감시킬 수 있음을 확인하였다.

Abstract – Fluidization processes in which solid particles vividly move like gas or liquid have been widely used in various industrial sectors, such as thermochemical energy conversion and polymerization processes for general purpose polymer resins. One of the general purpose polymer resins, LLDPE(Linear low-density polyethylene) resins have been produced in bubbling fluidized bed processes in the world. In a bubbling fluidization polymerization reactors, LLDPE particles with relatively larger particle size and low density are fluidized by hydrogen gas for polymerization reaction. Though LLDPE polymerization reactors are one of bubbling fluidization processes, slugs that have negative impact for reaction exist or occur in these processes. Therefore, the fluidization state of LLDPE particles was investigated in a simulation model similar to a pilot-scale polymerization reactor (0.38 m I.D., 4.4 m High). In particular, the effect of gas velocity (0.45-1.2 m/s), solid density (900-199 kg/m³), solid sphericity (0.5-1.0), and average particle size (120-1230 μm), on bed height and fluidization state were measured by using a CPFDF(Computational particle-fluid dynamics) method. With CPFDF analysis, the occurrence of a flat slug was visualized. Also, the change in particle properties, such as particle density, sphericity, and size, could reduce the occurrence of slug and bed expansion.

Key words: LLDPE, Bubbling fluidized bed, Slug, Bubble, Simulation

1. 서 론

세계 경제가 지속적으로 발전하고 사회구조가 고도화됨에 따라 자원과 에너지의 생산과 소비는 끊임없이 증가하고 있다. 지구 온

난화, 미세먼지, 미세플라스틱 등과 같은 전 지구적 문제들에 대한 우려가 증가하여 지속 가능한 사회를 위한 재생 자원 및 재생 에너지에 대한 요구가 증가하고 있으나 석유, 석탄, 천연가스 등으로 대표되는 기존의 화석 자원들에 대한 전 지구적 의존도는 크게 변화하고 있지 않은 상황이다[1-3]. 유럽 연합과 같이 환경 보호를 최우선으로 하는 국가들도 있지만 중국, 인도로 대표되는 개발 도상국 가들의 빠른 성장은 화석 자원들에 대한 의존도를 낮출 수 없게 만든다. 특히 가격 경쟁력, 높은 에너지 밀도, 탄화수소 자원들로 이

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: donald@jbnu.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

루어진 산업체인, 고도화되어있는 생산과 소비 인프라 구조 등의 장점들은 우리나라를 포함한 선진국에서도 화석 자원들에 대한 이용을 지속하게 만드는 요인이 되고 있다[4-7].

환경에 대한 영향을 감소시키기 위하여 화석 자원들에 대한 이용은 기존의 공정보다 효율이 향상되거나 환경에 대한 오염물질들의 배출이 적은 공정들의 개발을 요구하고 있다. 일례로, 단순히 석탄 또는 석유만을 연소하여 열 또는 전기를 얻는 공정에서 태양열을 저장하여 이용함으로써 화석 자원들의 사용을 저감하는 새로운 공정이 제시되고 있다[8-11]. 또한 다양한 생활용품들의 생산에 이용되는 범용 고분자 수지인 LLDPE (Linear Low Density Polyethylene) 또는 PP(Poly propylene)를 생산하기 위하여 효율이 높고 독성 물질의 배출을 저감하는 기-고 중합 반응기의 이용도 진행되고 있다. 더불어 태양전지 제조의 핵심 원료인 폴리실리콘(Polysilicon, Poly-Si) 생산도 기-고 반응기를 이용함으로써 효율을 향상시키고 있다[12-14].

공정의 효율이 높고 환경 유해 물질의 배출을 저감시키는 다양한 기-고 반응기들은 고체 입자들이 기체, 액체와 같은 유체처럼 움직이는 기포 유동층을 기반으로 구현되고 있다. 기포 유동층은 유동층의 전형적인 형태들 중의 하나로서 산업 전반에 널리 이용되고 있다. 고체 입자가 충전되어 있는 반응기 하부에 기체를 서서히 주입하면 기체에 의해 고체에 가해지는 항력과 중력이 같아져 고체 입자들이 흔들리고 상호 움직임을 갖게 된다. 계속해서 기체를 주입하면 고체층이 팽창하고 분리되어 큰 공급의 형태로 통과하는 기체들이 출현하고 이를 기포라 부른다. 발생된 기포는 후류에 고체를 안고 상승하여 층 표면에서 파괴되어 기체와 고체가 분리하게 되고 이와 같은 거동은 고체층에서 입자들의 상승과 기포에 의해 비워진 공간을 채우는 입자들의 하향 거동을 층 내에 형성하게 되어 고체 혼합도를 향상시키게 된다[12,13].

기포 유동층 내에 발생하는 기포들은 상승하면서 서로의 충돌에 의하여 합체되어 성장하게 된다. 기포 합체 현상은 유속이 증가하거나 직경이 작은 유동층에서 보다 빈번하게 발생하며 반응기의 직경까지 성장하게 된다. 이와 같이 성장된 기포를 슬러그라고 부른다. 기포 또는 슬러그는 고체 입자들의 거동을 향상시켜 열전달 및 물질 전달을 좋게 하는 긍정적인 효과도 있지만 기포 또는 슬러그의 후류를 통해 상승하는 고체 입자들이 기체와 같이 비말 동반하여 반응기 밖으로 배출되어 손실을 발생시키거나 기포들이 기-고 반응에 참여하지 않고 반응기 밖으로 바로 배출되는 부정적인 효과들도 발생시킨다. 따라서 기포 유동층 반응기에서의 기포 또는 슬러그 해석은 매우 중요하다[12,15-16].

기포 유동층 공정의 효율 향상과 최적화를 위한 기포 및 슬러그 해석은 2D 반응기에서 진행된 연구를 바탕으로 카메라를 이용한 관찰, X-ray 기법, 전기 전도도 탐침법, 광성유 탐침법, 압력 유동 해석 등이 이용되어왔다[12,15-17]. 카메라 기법은 단순하고 사용하기 편리하나 내부의 기포 및 슬러그 거동 측정이 어렵다. 탐침법은 측정 방법에 따라 응답 속도도 매우 빠르고 신호의 노이즈가 없기에 보다 정확한 측정값을 구현할 수 있으나, 측정 영역에서의 거동에 한해서 측정할 수 있다. 따라서 반응기의 전체적인 거동을 카메라 기법과 같이 측정하면서도 내부의 거동까지 확인하기 위해서 최근 전산유체기법의 활용이 적극적으로 검토되고 있다. 특히 고체 입자의 해석에 MP-PIC (multiphase particle in cell) 모델을 기반으로 개발된 Barracuda[®]가 적극적으로 활용되고 있다. MP-PIC 모델은 기체 흐름에 대해서는 Eulerian 방식, 입자 흐름에 대해서는 Lagrangian

방식을 적용하여 두 흐름의 해석을 결합시키는 Eulerian-Lagrangian 방식을 채택하고 있다. 또한 입자분포함수(Particle distribution function)를 이용하여 입자군의 움직임을 추적함으로써 계산 시간을 단축시켰다. 이에 MP-PIC 모델을 이용한 유동층 공정 해석을 수행하는 연구가 확산되고 있으며 석탄가스화, 바이오매스 분해, 화학순환연소, 폴리실리콘 반응 등 유동층 공정이 활용되는 모든 공정에 적용되고 있다[13,18-20].

그러나, 슬러그 현상은 기포유동층에서 기포가 반응기 지름정도로 커지는 현상으로 슬러그의 발생은 반응기의 중단으로 이어져 이에 대해 발표된 기존 문헌들이 매우 적다. 이에 본 연구에서는 기포유동층 반응기에서 발생할 수 있는 슬러그의 거동에 대한 연구를 MP-PIC 모델을 통해 시뮬레이션 하였다. 상용 고분자 중합 반응기를 모사한 pilot-scale 기포유동층 반응기를 구현한 시뮬레이션 모델에서 Geldart D 특성을 보이는 고분자 입자를 기초로 하여 슬러그 특성들을 고찰하였다. 특히 실험적으로 구현하기 어려운 고체 입자의 구형도, 동일한 입자에서의 밀도 변화 등에 따른 슬러그 생성에 대한 영향을 시뮬레이션 해석을 통해 분석하였다.

2. 지배방정식 및 시뮬레이션 모델

2-1. 지배방정식

기포 유동층 반응기에서의 슬러그 거동을 분석하기 위하여 본 연구에서는 MP-PIC 모델 기반의 Barracuda[®]를 이용하였다. MP-PIC 모델에서 유체 및 고체의 거동을 해석하기 위해 사용하는 지배방정식과 운동량 방정식은 다음과 같다[13,18-20].

$$\frac{\partial(\alpha_g \rho_g)}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_g \rho_g \mathbf{u}_g) = \delta m_p \quad (1)$$

$$\frac{\partial(\alpha_g \rho_g \mathbf{u}_g)}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_g \rho_g \mathbf{u}_g \mathbf{u}_g) = -\nabla p + \mathbf{F} + \alpha_g \rho_g \mathbf{g} + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau}_g \quad (2)$$

$$\boldsymbol{\tau}_g = \mu_{eff} \left(\frac{\partial \mathbf{u}_{g,i}}{\partial \chi_j} + \frac{\partial \mathbf{u}_{g,j}}{\partial \chi_i} \right) - \frac{2}{3} \mu_{eff} \delta_{ij} \frac{\partial \mathbf{u}_k}{\partial \chi_k} \quad (3)$$

식 (1)의 우변인 δm_p 는 기-고 반응에 의해 생성되거나 소멸되는 질량을 나타내며 수력학적 모델에서는 반응을 무시하기에 '0'으로 설정한다[18]. 운동량 보존 식 (2)에서 $\boldsymbol{\tau}_g$ 는 고체 응력 텐서(Solid stress tensor)로서 Bird 와 Stewart [21]에서 제시한 식 (3)을 이용하여 계산한다.

유동층을 구성하는 고체 입자들 및 고체상에 대한 거동은 입자들의 확률분포함수(f)를 비롯한 다양한 식에 의해서 계산된다[13,18-20]. 입자의 움직임은 식 (4)를 통해서 계산된다. 또한 이 식에 사용되는 가속도 및 접촉 응력 등은 Liu et al.[18]에서 제시한 식들을 이용하고 있다.

$$\frac{d\mathbf{u}_p}{dt} = \mathbf{D}_p(\mathbf{u}_g - \mathbf{u}_p) - \frac{\nabla p}{\rho_p} + \mathbf{X} + \mathbf{g} + \frac{\bar{\mathbf{u}}_p - \mathbf{u}_p}{2\tau_p} \quad (4)$$

$$\mathbf{X} = -\frac{1}{\rho_p \alpha_s} \frac{\partial \boldsymbol{\tau}_p}{\partial \chi_i} + \mathbf{g}_1(\alpha_s) \left[\bar{\mathbf{D}}(\mathbf{u}_g - \bar{\mathbf{u}}_p) - \mathbf{D}(\mathbf{u}_g - \bar{\mathbf{u}}_p) - \left(\frac{1}{\rho_p} - \frac{1}{\rho_p'} \right) \frac{\partial p}{\partial \chi_i} \right] \quad (5)$$

$$\tau_p = \frac{10P_s \alpha_p^{\beta}}{\max[(\alpha_{cp} - \alpha_p), \epsilon(1 - \alpha_p)]} \quad (6)$$

$$\mathbf{g}_1(\alpha_s) = \begin{cases} 0 & \text{if } \alpha_s = 0 \\ 1 & \text{if } \alpha_s = \alpha_{s,cp} \end{cases} \quad (7)$$

$$\bar{D} = \frac{\iiint f m D d m_p d u_p d T_p}{\bar{\rho}_p \alpha_s \bar{D}} \quad (8)$$

$$\tilde{u}_p = \frac{\iiint f m D u_p d m_p d u_p d T_p}{\bar{\rho}_p \alpha_s \bar{D}} \quad (9)$$

더불어 기체와 고체 간의 운동량 이전은 아래의 식을 통해서 정의되어 계산되고 있다[18].

$$F = \iiint f \left\{ m_p \left[D_p (u_g - u_p) - \frac{\nabla p}{\rho_p} \right] + u_p \frac{d m_p}{d t} \right\} d m_p d u_p d T_p \quad (10)$$

$$D_p = \frac{6}{8} C_d \frac{\rho_g |u_g - u_p|}{\rho_p d_p} \quad (11)$$

$$C_d = \begin{cases} \frac{24 \alpha_g^{-2.65}}{Re}, Re < 0.5 \\ \frac{24 \alpha_g^{-2.65}}{Re} (1 + 0.15 Re^{0.678}), 0.5 \leq Re \leq 1000 \\ 0.44 \alpha_g^{-2.65}, Re > 1000 \end{cases} \quad (12)$$

2-2. 시뮬레이션 모델

기포유동층 반응기에서의 슬러그 거동을 시뮬레이션하기 위하여 본 연구에서는 상용 기포유동층 고분자 중합 반응을 모사한 pilot-scale 기포유동층 반응기를 대상으로 하였다[12]. Fig. 1에서 보듯이, 기포유동층 반응기는 5 mm의 구멍이 76개 뚫려 있는 perforated 분산판이 설치되어 있으며 지름이 0.38 m이고 높이는 4.4 m이다. 따라서 전산해석을 위한 시뮬레이션 모델은 슬러그를

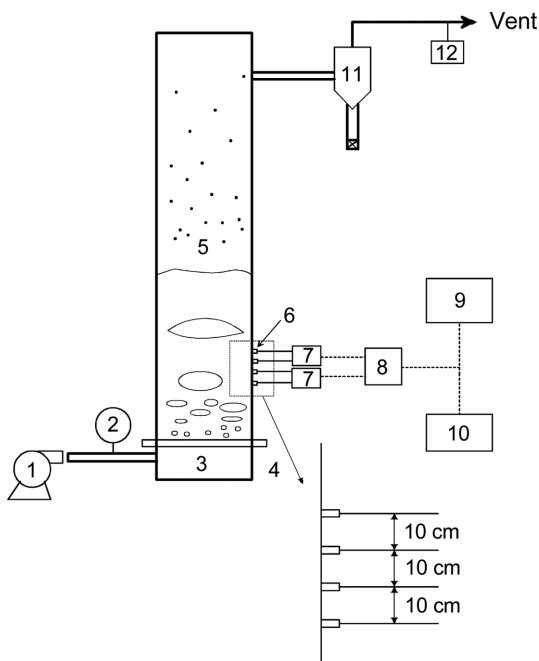


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus [12].
 1. Blower
 2. Pressure gauge
 3. Air chamber
 4. Distributor
 5. Bed
 6. Pressure tap
 7. Pressure transducer
 8. A/D converter
 9. PC
 10. Oscilloscope
 11. Cyclone
 12. Air flow meter

측정한 기존의 반응기와 동일하게 구성하였다. 슬러그 현상은 반응기의 직경이 큰 상용 LLDPE 반응기의 발생에 대한 보고는 매우 적으나 직경 0.38 m의 pilot 반응기에서는 슬러그의 발생에 대한 선행 연구들이 발표된 바 있다[12]. 기존 반응기에서는 슬러그 해석을 위하여 압력 신호를 측정하여 진행하였으나 시뮬레이션 모델에서는 압력 신호 및 반응기 수직 및 수평 평면에서의 기체의 void를 직접 관찰하는 방식으로 진행되었다.

시뮬레이션을 위해 구성된 모델의 전체 격자 셀의 개수는 79,662 개이며 격자 형태는 정육면체이다. MP-PIC 모델을 사용하는 CFPD는 Eulerian-Eulerian 방식을 사용하는 CFD에 비해 높은 격자 해상도를 요구하지 않고 기존에 사용된 격자수에도 큰 문제가 없음을 확인하였다. 기존 문헌들의 정상상태에 대한 연구를 통해 20초 이상의 거동에서 정상상태에 도달함을 확인하여[13,18-20], 본 연구에서는 40초 동안의 시뮬레이션을 수행하고 20-40초 사이의 시뮬레이션 결과들을 통해 슬러그를 분석하였다. 실험에 사용된 입자에 대한 특성들은 Table 1에 나타내었다.

시뮬레이션에 사용한 유동층 입자들은 기포유동층 고분자 중합 반응기에서 이용한 LLDPE 로서 입자의 크기가 일반적인 유동층 물질인 모래보다 크나 밀도가 작아 Geldart D 입자의 거동을 보인다. Wen과 Yu의 식으로 계산한 최소 유동화 속도는 0.3 m/s이며 Stewart와 Davidson의 식으로 계산한 최소 슬러그 속도는 0.42 m/s이다[22]. 따라서 고분자 유동층 반응기에서는 최소 유동화 영역을 넘어가면 슬러그가 매우 빠르게 발생할 수 있음을 알 수 있다. 이에 본 연구에서는 최소 슬러그 속도보다 높은 0.45 m/s부터 일반적인

Table 1. Physical and fluidization properties of LLDPE

Experimental particles	LLDPE
Mean diameter [μm]	1230
Apparent density [kg/m^3]	900
Minimum fluidization velocity [m/s]	0.30
Minimum slugging velocity [m/s]	0.42
Gas velocity range [m/s]	0.30-1.50
Gas composition	Air
Drag model	Non-spherical Haider-Levenspiel
Sphericity	0.5
Initial bed height [m]	1.2

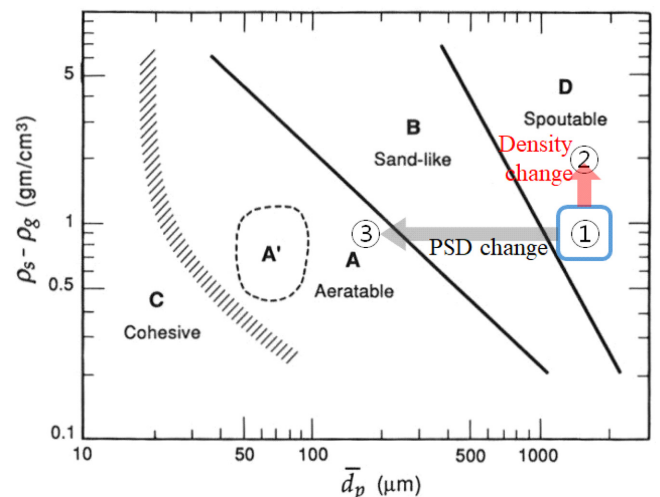


Fig. 2. Geldart classification of particles.

고분자 유동층 반응기 조업 유속인 1.2 m/s까지 유속을 변경해 가면서 슬러그의 변화를 고찰하였다. 또한 고분자 입자의 밀도, 구형도 등과 같은 특성들의 변화를 통해서 Geldart D 입자 특성을 변화시키는 경우에 기포유동층의 상태가 어떻게 변화하는가를 관찰하기 위하여 Fig. 2와 같이 입자의 밀도를 900에서 1900까지 변화시켰다. 더불어 입자의 구형도가 0.5에서 1까지 변화함에 따른 유동층의 상태 및 슬러그의 발생을 전산해석을 통해서 고찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 기체 유속의 영향

슬러그는 유동층 반응기에서 발생하는 기포들이 서로 합체하여 반응기의 지름 정도의 크기까지 커진 기포를 의미한다. 기-고 반응기에서 반응에 참여하는 기체들이 기포 또는 슬러그를 통해 유동층을 통과하게 되면 반응 효율을 저감시키기 때문에 이의 발생 빈도, 크기 등을 고찰한 연구들은 기포 연구들에 비하면 상대적으로 진행되지 않았다. 또한 슬러그 발생이 일어나는 Geldart D 영역의 입자들은 유동층에 널리 이용되지 않아 슬러그에 대한 관심이 상대적으로 적은 편이었다. 그러나 LLDPE 중합과 같이 기포유동층 반응기에서 Geldart D 영역의 입자들을 이용하는 빈도가 증가하고 이 반응기에서의 반응 효율 향상을 위해서 슬러그 및 이로 인한 유동층 상태의 변화에 대한 관심이 다시 증가하고 있다[12,17].

일반적으로 슬러그는 axial slug, wall slug, flat slug로 나뉘며 기포유동층 시뮬레이션 과정에서 관찰한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. Table 1의 운전 조건에서 보듯이 1230 μm 의 LLDPE 입자에서 1.2 m/s의 기체 유속으로 운전한 상태에서 관찰된 것이다. Axial 슬러그는 유동층 내부에 발생한 기포들이 반응기 내부에서 상승하고 반응기 벽으로 고체 입자들의 하강 흐름이 발생하는 형태로서 일반적인 반응기에서 많이 관찰된다. 높은 기체 유속 상태 또는 거친 반응기 벽을 가진 경우, 발생된 슬러그가 벽에 붙어 상승하는 형태를

wall slug라고 한다. 이에 비해 발생 빈도는 낮으나 슬러그가 발생하면서 반응기 내부에 전체적인 빈 공간이 발생하고 유동층이 상부와 하부로 나누어지는 경우가 있다(Fig. 3(a)). 이와 같이 유동층이 상, 하부로 나누어지는 경우를 flat slug라고 한다. 그러나 flat slug는 반응기에 기체가 주입되는 초기에 발생하고 발생된 flat slug가 깨져서 입자들이 격렬하게 혼합된 이후에는 axial slug 또는 wall slug 형태로만 존재하게 되어 실제 관찰이 매우 어렵다. 본 연구에서도 1.2 m/s의 기체 유속 조건에서 1-2초 이내에 발생하고 이후 관찰되지 않음을 통해서 시뮬레이션이 LLDPE 입자의 슬러그 거동을 잘 묘사함을 확인할 수 있었다. 또한 Lee는 슬러그의 형태가 작고 슬러그 내부에 고체 입자가 적은 round-nose slug와 슬러그 내부에 입자들이 흘러내리는 square-nose slug로 구분된다고 하였다[12]. Fig. 3을 보면 슬러그 내부에 입자들이 존재함을 확인할 수 있으며 이는 LLDPE 입자들의 슬러그를 측정된 Lee의 실험[12]과 본 연구의 시뮬레이션이 잘 일치함을 입증시켰다. 따라서 슬러그 및 이로 인한 유동층의 상태 변화에 CPDF를 이용한 시뮬레이션이 활용될 수 있음을 보여준다.

슬러그의 크기는 주입되는 기체량이 증가함에 따라서 커지고 있다. 기존 연구자들은 과잉공기량(U-Umf)이 증가하면 기포 발생 빈도가 잦아지고 기체 합체가 동반 증가하기 때문에 슬러그의 발생 빈도 및 크기가 증가한다고 하였다. 대부분의 연구자들은 슬러그 영역에서 기체 유속의 증가는 슬러그의 길이 증가를 야기하고 고체층의 높이가 증가하면 슬러그의 크기가 동반 증가한다고 발표하였다[12,15,23-24]. 이와 같은 슬러그의 크기 증가는 유동층의 높이를 증가시키고 유동층을 출렁이게 만들며 층 내의 압력 신호를 매우 격렬하게 움직이게 만든다. Fig. 4는 기체 유속을 최소슬러그 속도 이상인 0.45 m/s에서 1.2 m/s까지 증가시킴에 따른 유동층 높이의 변화를 시뮬레이션을 통해 고찰한 결과이다. 그림에서 보면 기체 유속이 증가함에 따라서 초기 주입 시의 층높이인 1.2 m에서 최대 1.62 m까지 상승함을 확인할 수 있다. 또한 동일 유속에서 층높이

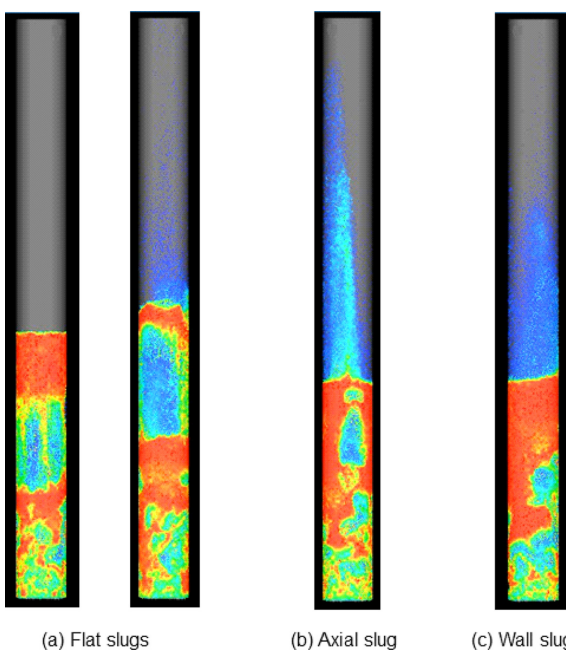


Fig. 3. Visualization of slugs (a) flat slug, (b) axial slug, (c) wall slug.

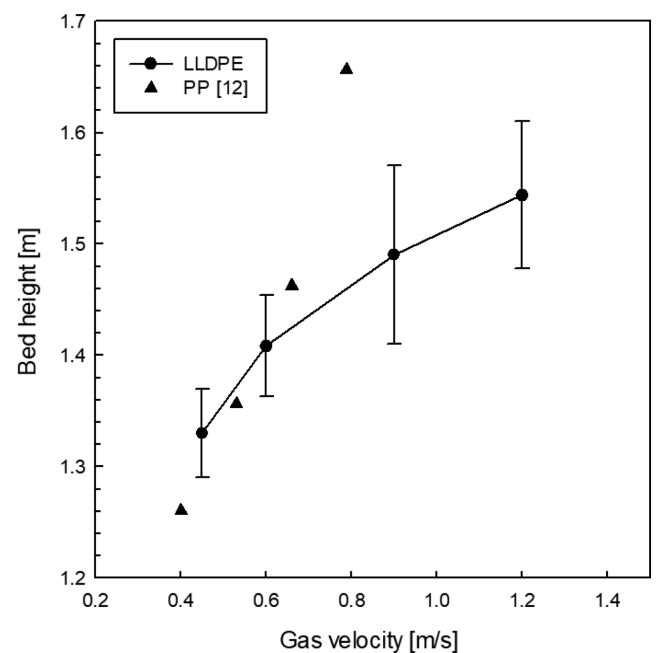


Fig. 4. Effect of gas velocity on bed height.

의 최저 및 최대의 차도 기체 유속이 증가함에 따라서 커지는 것을 확인할 수 있다. 이는 슬러그의 발생 및 크기가 기존의 연구 결과들과 같이 기체 유속 증가에 비례하기 때문으로 보인다[12,15,23-24]. Lee et al.[12]의 결과에서 폴리프로필렌(PP) 입자의 경우 기체 유속 증가에 따라 초기 층높이가 1 m일 때 Bed의 최대 층높이는 1.26 m에서 1.76 m까지 증가하였다. 시뮬레이션 실험 결과 또한 Fig. 4에서 보는 것처럼 Lee의 실험 결과[12]와 같이 기체 유속 증가에 따라 최대 층높이도 증가하였다. 따라서 기체 유속 증가에 따른 슬러그 층높이의 증가는 실제 실험 결과와 시뮬레이션 결과가 동일함을 알 수 있다.

3-2. LLDPE 특성 변화에 따른 슬러그

슬러그의 크기 및 속도에 미치는 영향으로 대부분의 연구자들은 기체 유속, 입자 크기, 입자 밀도, 반응기 크기, 유동층 높이 등을 변수로 고찰하였다[12,15,16,22-24]. 이는 동일 입자의 구형도에 따른 영향을 실제로 실험하기 어렵기 때문이다. 이에 본 연구에서는 시뮬레이션을 통해 입자의 구형도를 변화시켜가며 LLDPE의 유동층 거동을 고찰하였다. 기체 유속은 1.2 m/s로 동일하게 하였으며 동일한 밀도(900 kg/m³)를 가진 1230 μm의 LLDPE 입자로 가정하였고 입자의 구형도만 0.5에서 1로 변화시켰다. Fig. 5의 그림에서 보면 동일한 유속에서 입자의 구형도가 증가하면 평균 층높이가 1.6 m에서 1.37 m로 감소함을 확인할 수 있다. 특히 격렬하게 슬러그가 발생하여 유동층이 움직이는 구형도 0.5에 비해 구형도가 1.0이 되면 슬러그보다는 매우 격렬하게 거동하는 기포유동층 영역 또는 turbulent 영역에 유동층이 존재하고 있음을 확인하였다. 또한 층높이의 최대 및 최저 차가 매우 감소함을 확인함으로써 슬러그가 발생하지 않고 매우 많은 기포들이 유동층 내부를 통과하게 됨을 확인할 수 있다. 따라서 고분자 중합 반응기와 같은 기-고 반응기에서 전환 효율을 향상시키기 위해서는 사용하는 입자의 구형도를 1에 근접하게 함으로써 Geldart D 입자가 모래와 같은 Geldart B 입자 또는 Geldart A 입자와 유사한 거동을 가질 수 있음을 보여주고 있다[21].

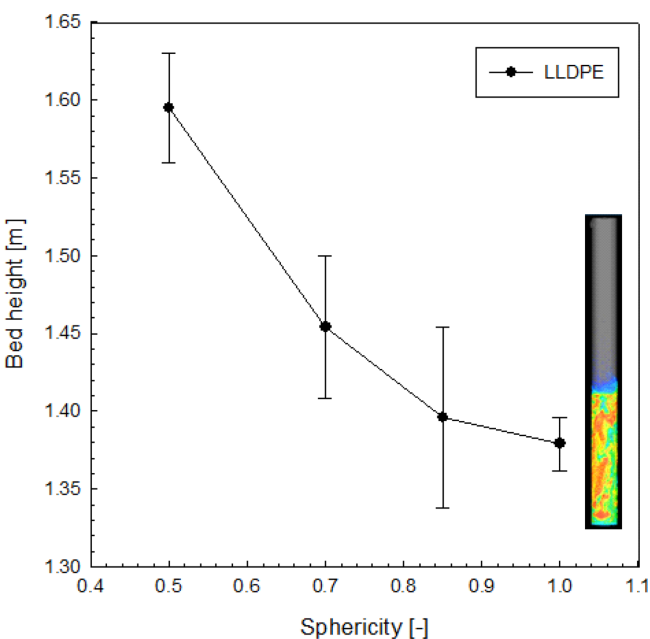


Fig. 5. Effect of solid sphericity on bed height.

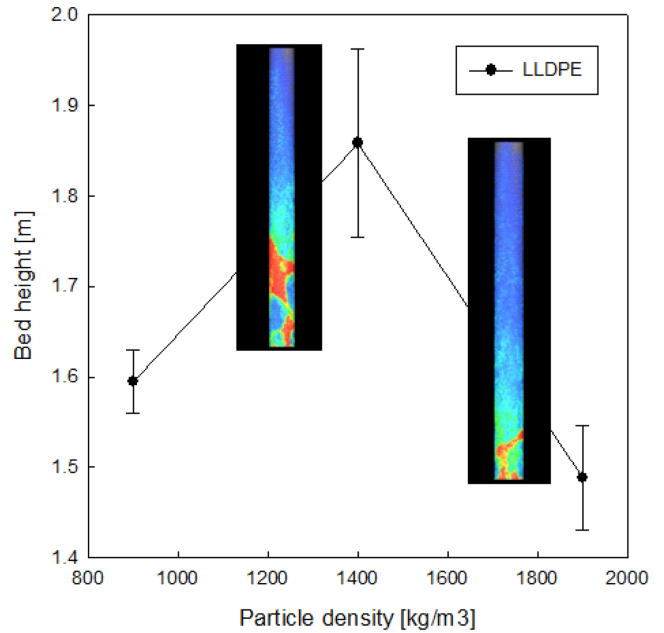


Fig. 6. Effect of particle density on bed height.

Fig. 2에 나타낸 입자의 밀도 변화에 따른 변화를 고찰하여 Fig. 6에 나타내었다. 고체의 입도가 900 kg/m³에서 1400 kg/m³, 1900 kg/m³로 증가함과 최소 유동화 속도가 변함에 따라서 동일한 기체 유속비 (U/U_{mf})를 유지하기 위하여 기체 유속을 1.2 m/s에서 각각 2.216 m/s, 2.728 m/s로 상승시켜 시뮬레이션을 수행하였다. Fig. 2를 보면 고체 밀도가 상승해도 Geldart D의 특성을 보이는 입자를 사용하였기에 슬러그가 존재해야 한다[21]. 그러나 Fig. 6의 그림을 보면 슬러그 영역에 있는 900 kg/m³와 다르게 유동층 상태가 turbulent 상태에 존재하고 있음을 확인할 수 있다. 특히 고체 입자가 반응기 영역 전체에 고르게 분포하고 있어 밀도의 증가 및 이로 인한 기체 유속의 증가는 동일한 기체 유속이라도 기체 유속을 종말 속도에 근접시켜 슬러그의 발생을 확인할 수 없는 turbulent 영역으로 진입시킴을 확인할 수 있다[12]. 이와 같은 영역의 변경은 기체의 반응기 체류 시간을 감소시키거나 기-고 입자의 접촉은 향상시킬 수 있어 반응 효율 향상 측면에서는 고려할 수 있는 방법이 될 수 있을 것으로 예상된다.

입자의 크기 변화에 따른 슬러그 및 유동층 상태 변화를 비교하기 위하여 평균 입자 크기를 120 μm로 변경하여 시뮬레이션한 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 입자의 크기 변화는 Fig. 2에서 보듯이 Geldart D 영역에 있는 상태를 Geldart A 영역으로 변경시키게 된다. Geldart A 영역의 거동은 FCC 촉매 입자의 거동이 대표적으로 알려져 있으며 유동층이 잘되거나 슬러그가 발생하지 않는 것으로 알려져 있다. Fig. 7 그림에서 보면 평균 입자 크기가 감소한 경우, 평균 층높이가 1.51 m로 감소하고 있어 1.6 m 정도의 평균 층높이에서 0.1 m가 감소하였음을 확인할 수 있다. 이는 유동층 내의 기체가 차지하는 비율이 감소함을 나타내고 있으며 실제 슬러그의 발생보다는 많은 기포 발생과 이로 인한 고체 입자의 비산으로 층높이의 차이가 커졌음을 알 수 있다[12,23]. 더불어 이와 같은 고체 입자의 분포는 기포 유동층 영역보다는 turbulent 영역으로의 전환을 보여주고 있다. 이를 통해 유동층을 이루는 입자의 평균 크기를 감소시킴으로써 슬러그의 발생을 저감시키고 기-고 반응을 향상시켜 전환율의 향상도 도모할 수 있을 것으로 예상된다.

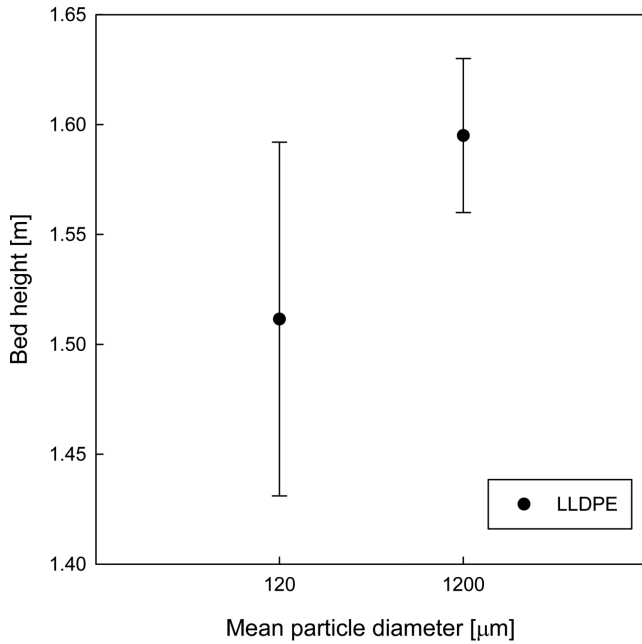


Fig. 7. Effect of mean particle size on bed height.

4. 결 론

기-고 유동층 반응기에서 발생하는 슬러그의 특성을 고찰하기 위하여 본 연구에서는 기포유동층 고분자 중합 반응기를 MP-PIC 모델을 적용한 CPF D 시뮬레이션을 통해서 고찰하였다. Geldart D 영역에 해당하는 LLDPE 입자들의 유동층 시뮬레이션을 통해 반응기의 초기 기동에서 관찰되는 flat 슬러그를 고찰하였으며 기체 유속, 입자 크기, 입자 구형도, 입자 밀도 등의 변화를 통해 슬러그 및 유동층 상태가 변화됨을 확인할 수 있었다. 입자 크기에 비해 밀도가 낮은 LLDPE 입자들은 기체 유속 증가에 따라 매우 빠르게 슬러그가 발생하고 커지고 있어 반응기의 효율이 상대적으로 낮을 것으로 예상되었다. 그러나 입자의 구형도가 0.5에서 1로 증가함에 따라서 슬러그 발생이 현저하게 감소함을 확인하였다. 또한 입자의 밀도 증가, 입자 크기의 감소는 슬러그의 발생을 저감시킴을 확인하였다. 따라서 입자들의 구형도, 밀도, 크기 등의 변화를 통해 슬러그 및 유동층 상태를 기포유동층 영역에 머무르게 만들어 반응기의 효율 향상을 가져올 것으로 예상된다. 특히 유동층의 층높이를 1.6 m에서 1.34 m까지 감소시킴으로써 압력 변동도 감소시켜 보다 안정적인 조업을 달성할 수 있을 것이다.

감 사

이 논문은 한국전력공사의 2018년 사외공모 기초연구(개별)에 의해 지원(과제번호: R18XA06-49)을 받아 수행된 연구입니다.

사용기호

A : particle acceleration rate [m/s^2]
 C_d : drag model coefficient
 D : drag force [N]

d_0 : initial bubble size separated from jet [m]
 d_{bm} : maximum bubble size [m]
 d_p : mean particle diameter [m]
 d_{or} : orifice diameter [m]
 F : momentum transfer between the fluid and solid phases
 g : gravity acceleration [m/s^2]
 h : axial height [m]
 m : mass [kg]
 L_j : jet penetration length [m]
 ΔP_{bed} : total bed pressure drop [Pa]
 P_s : positive constant for particle normal stress [Pa]
 Re : Reynolds number
 t : time [s]
 u : velocity vector [m/s]
 U_b : bubble rising velocity in the bed [m/s]
 U_{br} : single bubble rising velocity [m/s]
 U_o : superficial velocity [m/s]
 U_j : gas velocity in jet [m/s]
 z : axial distance of the internal from distributor [m]

Greek letters

τ : particle normal stress [Pa]
 ϕ : particle probability distribution function [-]
 ε : constant [-]
 θ : volume fraction [-]
 ρ : density [kg/m^3]
 β : constant [-]
 δ : strain rate tensor [-]
 μ : viscosity [m^2/s]

Subscriptions

cp : close pack
 eff : effective viscosity
 f : fluid
 i, j, k : coordinate index
 p : particle
 s : solid

References

- Lee, S. H., Lee, T. H., Jung, S. M. and Lee, J. M., "Economic Analysis of a 600 mwe Ultra Supercritical Circulating Fluidized Power Plant Based on Coal Tax and Biomass co-combustion Plants," *Renew. Energy*, **138**, 121-127(2019).
- Gwak, Y. R., Kim, Y. B., Gwak, I. S. and Lee, S. H., "Economic Evaluation of Synthetic Ethanol Production by Using Domestic Biowastes and Coal Mixture," *Fuel*, **213**, 115-122(2018).
- Kim, Y. B., Gwak, Y. R., Keel, S. I., Yun, J. H., Lee, S. H., "Direct Desulfurization of Limestones Under Oxy-circulating Fluidized Bed Combustion Conditions," *Che. Eng. J.*, **377**, 119650 (2019).
- Pham, H. H., Lim, Y. I., Han, S. G., Lim, B. S., Ko, H. S., "Hydrodynamics and Design of Gas Distributor in Large-scale Amine

- Absorbers Using Computational Fluid Dynamics,” *Korean J. Chem. Eng.*, **35**, 1073-1082(2018).
5. Lee, D. Y., Ryu, H. J., Shun D. W., Bae, D. H. and Baek, J. I., “Effect of Solid Residence Time on CO₂ Selectivity in a Semi-continuous Chemical Looping Combustor,” *Korean J. Chem. Eng.*, **35**, 1257-1262(2018).
 6. Mendoza, J. A. and Hwang, S. W., “Tubular Reactor Design for the Oxidative Dehydrogenation of Butene Using Computational Fluid Dynamics (CFD) Modeling,” *Korean J. Chem. Eng.*, **35**, 2157-2163(2018).
 7. Lee, S. H., Kim, D. W., Lee, J. M. and Bae, Y. C., “Evaluation of Limestone for in-situ Desulfurization in CFB boilers,” *Korean Chem. Eng. Res.*, **57**, 853-860(2019).
 8. Lee, S. H., “Development of a Hybrid process for Energy Production via Solar Thermo-chemical Conversion,” *New & Information for Chemical Engineers*, **37**, 200-206 (2019).
 9. Almendros-Ibanez, J. A., Fernandez-Torrijos, M., Diaz-Heras, M., Belmonte, J. F. and Sobrino, C., “A Review of Solar Thermal Energy Storage in Beds of Particles: Packed and Fluidized Beds,” *Solar Energy*, <https://doi.org/10.1016/j.solener.2018.05.047>
 10. Liu, T., Liu, Q., Lei, J. and Sui, J., “A New Solar Hybrid Clean Fuel-fired Distributed Energy System with Solar Thermochemical Conversion,” *J. Clean. Prod.*, **213**, 1011-1023(2019).
 11. Kim, Y. B., Kang, S. Y., Seo, S. B., Keel, S. I., Yun, J. H. and Lee, S. H., “The Attrition and Calcination Characteristics of Domestic Limestones for in-situ Desulfurization in Circulating Fluidized Bed Boilers,” *Korean Chem. Eng. Res.*, **57**, 687-694(2019).
 12. Lee, S. H., Lee, D. H. and Kim, S. D., “Slug Characteristics of Polymer Particles in a Fluidized Bed with Different Distributors,” *Korean J. Chem. Eng.*, **18**, 387-391(2001).
 13. Lim, J. H., Bae, K., Shin, J. H., Lee, D. H., Han, J. H. and Lee, D. H., “CPFD Simulation of Bubble Flow in a Bubbling Fluidized Bed with Shroud Nozzle Distributor and Vertical Internal,” *Korean Chem. Eng. Res.*, **54**, 678-686(2016).
 14. Wei, L., Lu, Y., Zhu, J., Jiang, G., Hu, J. and Teng, H., “Effect of Cohesive Powders on Pressure Fluctuation Characteristics of Binary Gas-solid Fluidized Bed,” *Korean J. Chem. Eng.*, **35**, 2117-2126(2018).
 15. Ramirez, E., Finney, C., Pannala, S., Daw, C. S., Halow, J. and Xiong, Q., “Computational Study of the Bubbling-to-slugging Transition in a Laboratory-scale Fluidized Bed,” *Chem. Eng. J.*, **308**, 544-556(2017).
 16. Amornsirirat, C., Chalermisinsuwan, B., Mekasut, L., Kuchonthara, P. and Piumsomboon, P., “Experiment and 3D Simulation of Slugging Regime in a Circulating Fluidized Bed,” *Korean J. Chem. Eng.*, **28**, 686-696(2011).
 17. Salehi-Asl, M., Azhgan, S. and Movahedirad, S., “Some General Aspects of a Gas-solid Fluidized Bed Using Digital Image Analysis,” *Korean J. Chem. Eng.*, **35**, 613-620(2018).
 18. Liu, H., Cattolica, R. J. and Seiser, R., “Operating Parameter Effects on the Solids Circulation Rate in the CFD Simulation of a Dual Fluidized-bed Gasification System,” *Chem. Eng. Sci.*, **169**, 235-245(2017).
 19. Lim, J. H. and Lee, D. H., “Two- and Three-dimensional Analysis on the Bubble Flow Characteristics Using CPFD Simulation,” *Korean Chem. Eng. Res.*, **55**, 698-703(2017).
 20. Lim, J. H., Bae, K., Shin, J. H., Kim, J. H., Lee, D. H., Han, J. H. and Lee, D. H., “Effect of Particle-particle Interaction on the Bed Pressure Drop and Bubble Flow by Computational Particle-fluid Dynamics Simulation of Bubbling Fluidized Beds with Shroud Nozzle,” *Powder Technol.*, **288**, 315-323(2016).
 21. Kunii D. and Levenspiel, O., “Fluidization Engineering,” Butterworth-Heinemann, Soneham, USA(1991).
 22. Brid, R. B. and Stewart, W. E., *Transport Phenomena*, Wiley & Sons, Inc. Newyork, USA(2002).
 23. Ryu, H. J., Choi, J. H., Kim, S. D. and Son, J. E., “Slug Characteristics in Gas Fluidized Beds 1. Minimum Slugging Velocity and Slug Frequency,” *Korean Chem. Eng. Res.*, **39**, 579-589 (2001).
 24. Ryu, H. J., Choi, J. H., Kim, S. D. and Son, J. E., “Slug Characteristics in Gas Fluidized Beds 2. Slug Length and Slug Rising Velocity,” *Korean Chem. Eng. Res.*, **39**, 590-599(2001).