

전산유체역학을 이용한 이산화탄소 광물 탄산화 반응기 분석: 용액 내 고체 반응물 교반 향상을 위한 내부 구조 설계

박성언 · 나종걸 · 김민준 · 안진주 · 이재희* · 한중훈†

서울대학교 화학생물공학부
08826 서울시 관악구 관악로 1
*(주)아이시스텍
06660 서울특별시 서초구 서초동 1495-1
(2016년 4월 4일 접수, 2016년 7월 25일 수정본 접수, 2016년 8월 2일 채택)

CO₂ Mineral Carbonation Reactor Analysis using Computational Fluid Dynamics: Internal Reactor Design Study for the Efficient Mixing of Solid Reactants in the Solution

Seongeon Park, Jonggeol Na, Minjun Kim, Jinjoo An, Chaehee Lee* and Chonghun Han†

School of chemical and biological engineering, 1, Gwanak-ro., Gwanak-gu, Seoul, 08826, Korea
**ISYTECH, 1495-1, Seocho-dong, Seocho-gu, Seoul, 06660, Korea*
(Received 4 April 2016; Received in revised form 25 July 2016; accepted 2 August 2016)

요 약

산화 칼슘 수용액을 통해 이산화탄소를 포집하는 수성 광물 탄산화 공정은 안정적으로 이산화탄소를 고립시킬 뿐 아니라 생성물의 부가 가치를 기대할 수 있는 대표적인 CCU (Carbon Capture & Utilization) 기술이다. 이 공정의 핵심은 고체 반응물인 산화칼슘의 용해 속도를 최대한 높이는 것인데, 이를 위해 반응기 전체에 고체 반응물이 균일하게 분포되도록 혼합하는 적절한 반응기의 설계가 필요하다. 본 논문에서는 하루에 40ton의 이산화탄소 포집이 가능한 파 일릿 규모의 광물 탄산화 반응기를 대상으로, 반응기의 내부 구조 설계에 따라 고체 반응물의 분산도가 어떻게 변하는 지에 대해 전산 유체 역학적 모델링(Computational Fluid Dynamics (CFD) modeling)을 통해 연구하였다. 교반 탱크 반응기(stirred tank reactor) 형태를 기반으로 외부 구조는 고정된 상태에서 교반기의 종류/갯수/지름/유격/회전 속도, 칸 막이의 높이/너비를 변수로 선정하여 다양한 조합의 경우(case)들을 해석하였다. 각 설계 변수에 대한 민감도를 분석함으로써 각 변수의 영향을 파악하고, 중요한 변수를 판별할 수 있었다. 동시에 고체 부피 분율(solid volume fraction)의 높이 방향 표준 편차가 0.001에 가까운 균일한 분포를 만들 수 있는 내부 설계안을 제안하였다.

Abstract – Aqueous mineral carbonation process, in which CO₂ is captured through the reaction with aqueous calcium oxide (CaO) solution, is one of CCU technology enabling the stable sequestration of CO₂ as well as economic value creation from its products. In order to enhance the carbon capture efficiency, it is required to maximize the dissolution rate of solid reactants, CaO. For this purpose, the proper design of a reactor, which can achieve the uniform distribution of solid reactants throughout the whole reactor, is essential. In this paper, the effect of internal reactor designs on the solid dispersion quality is studied by using CFD (computational fluid dynamics) techniques for the pilot-scale reactor which can handle 40 ton of CO₂ per day. Various combination cases consisting of different internal design variables, such as types, numbers, diameters, clearances and speed of impellers and length and width of baffles are analyzed for the stirred tank reactor with a fixed tank geometry. By conducting sensitivity analysis, we could distinguish critical variables and their impacts on solid distribution. At the same time, the reactor design which can produce solid distribution profile with a standard deviation value of 0.001 is proposed.

Key words: CCU, Mineral Carbonation, Reactor Design, Impeller, CFD

†To whom correspondence should be addressed.

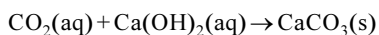
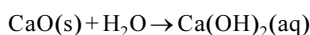
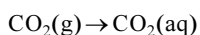
E-mail: chhan@snu.ac.kr

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.

1. 서 론

산업화 이래로 온실 가스의 환경적 위협이 점차 심각해짐에 따라 온실 가스 저감을 위한 기술 연구들이 많이 이루어지고 있다. 발전소 등에서 배출되는 이산화탄소를 포집하고 수송하여 해상 분지 등에 저장하는 CCS (Carbon Capture and Storage) 기술이 주된 연구 대상이었고, 최근에는 이산화탄소를 화학적 반응을 통해 유용한 생성물로 전환시키는 CCU (Carbon Capture and Utilization) 기술 또한 많은 관심을 받고 있다.

그 중, 광물 탄산화 기술은 이산화탄소를 산화 금속 성분을 포함한 광물계 물질과 반응시켜 포집하는 방법이다. 대표적으로, 산화 칼슘(CaO)을 포함한 석회와 반응시켜 침강성 탄산칼슘(Precipitated Calcium Carbonate, PCC)으로 전환하는 방법이 있다. 칼슘계 물질을 이용하는 광물 탄산화 기술의 경우, 포집된 이산화탄소를 다른 화합물로 바꿔 안정적으로 저장할 수 있을 뿐 아니라, 폐기물을 원료로 사용하거나 생성물인 PCC를 건설, 토목 소재로 활용해 부가적인 가치 창출이 가능하다는 장점이 있다[1,2]. 지금까지 다양한 공정을 이용하는 광물 탄산화 기술이 개발되었으나, 실용성이 있다고 판단되어 지속적으로 연구되어 온 것은 수성 광물 탄산화(aqueous mineral carbonation) 공정으로 물을 용매로 이산화탄소와 광물계 금속 물질들을 반응시키는 방법이다[3,4]. 이 공정의 특징으로는 기체(CO₂), 액체(물), 고체(CaO) 세 가지 상이 모두 반응에 관여하고, 고체 반응물의 녹는 속도가 매우 느리다는 점이 있다. 이 경우, 반응식을 다음과 같이 나타낼 수 있다[5,6].



이 때, 생성물을 만드는 마지막 반응은 매우 빠른 산염기 반응이기 때문에 이 시스템의 전체 반응의 속도는 기체와 고체 반응물의 용해 속도와 같은 물질 전달 속도에 지배받는다. 이 중 고체 반응물의 용해 과정이 속도 결정 단계라고 일반적으로 여겨진다[7]. 그 동안의 많은 연구들이 용해 속도를 높일 수 있는 첨가제, 온도, 압력, 농도 등의 반응 조건, 고체 반응물의 입자 크기 등등 화학적인 요인에 관해 이루어졌다. 그러나 물질 전달 속도에는 이러한 화학적 요인뿐 아니라 속도장, 난류 세기, 전단 응력(shear stress) 분포, 여러 상(phase)의 부피 분율과 같은 물리적인 요인들이 지대한 영향을 준다는 연구 결과가 존재한다[8]. 적절한 반응기 설계를 통해 물리적인 요인을 개선시켜 물질 전달 속도를 높일 수 있음에도 불구하고, 본 공정의 반응기에 관련된 연구는 거의 이루어지지 않았다.

적절한 반응기 설계를 통해 반응기 내부의 반응물 분포를 균등하게 하는 것은 매우 중요하다. 반응물이 불균일하게 분포한다는 것은 반응물과 반응기의 일부가 제대로 활용되지 못한다는 것이고, 이는 공정의 비용 증가로 이어질 수 있기 때문이다. 또한, 균일 분포가 달성되지 않을 경우 생성물의 조성이 제어되지 못하기 때문에 이후 대량 연속 공정으로의 전환이 어려울 수 있다.

보통 규모가 큰 반응기를 설계할 때에는 실험실 규모에서의 실험들을 바탕으로한 상관 관계식(empirical correlation)이나 경험 법칙들을 많이 이용한다[9]. 교반 반응기의 경우에도, 여러 가지 무차원

수를 이용해 용액 내 고체 분산도를 예측하는 상관 관계식들이 존재한다[10,11]. 하지만 반응기의 모양이 표준에서 벗어나거나 규모가 커질 수록 적용하기 어렵다는 제약이 있다.

이러한 필요성을 인지함에 따라 본 연구에서는 하루에 이산화탄소 40 ton의 광물 탄산화 반응을 수행할 수 있는 파일렛 규모의 교반 탱크 반응기(stirred tank reactor)를 대상으로 고체 반응물의 분산도와 내부 설계 인자들의 상관 관계를 분석하고, 이를 토대로 적절한 반응기 내부 구조를 제안하고자 하였다. 대상 공정 내에 기체-액체(CO₂-용액), 고체-액체(CaO-용액)의 다상 물질 전달이 모두 포함되지만 이번 논문에서는 고체-액체 혼합에 관해서만 다루었다. 이는 첫째로 고체의 용해 속도가 더 느리기 때문이고, 둘째로는 반응기로 유입되는 기체의 양이 매우 많아(15 vol%의 CO₂를 포함하는 배기 가스를 기준으로 하루에 40 ton의 CO₂를 처리하기 위해서는 7000 Nm³/hr의 기체가 유입되어야 한다.) 반응기 구조의 변화가 기체의 혼합에 거의 영향을 주지 못하는 flooding regime에 속하기 때문이다[12].

본 연구에서는 반응기 내부의 유동 분석을 위하여 전산 유체 역학(Computational fluid dynamics, CFD) 기법을 사용하였다. 예전부터 교반 반응기를 CFD로 분석하는 많은 연구가 있었으며 실험 결과와의 비교를 통해 신뢰성을 인정받았다[13-16]. 그러나 반응기의 모양과 특성에 따라 유동은 항상 달라지기 때문에 기존 연구 결과를 본 대상 공정에 적용할 수는 없다. 따라서 본 논문에서는 수성 광물 탄산화 반응기를 대상으로 내부 유동, 특히 고체 분산을 해석해보고자 하였다. 탱크의 모양과 크기는 고정시킨 상태로 교반기(impeller)의 구조, 크기, 갯수, 위치, Baffle의 모양 등 반응기 내부 구조를 변경시켜가며 고체 반응물의 분산이 얼마나 균일하게 이루어지는지를 분석하였다. 각 변수에 대하여 민감도 분석을 수행하함으로써 고체 분산도에 가장 큰 영향을 미치는 변수를 파악하고, 각 변수가 고체 분산도에 어떠한 영향을 주는 지 알 수 있었다. 또한 고체 반응물의 분산이 매우 균일하게 이루어지는 내부 구조의 조합을 찾아낼 수 있었다.

2. 반응기 모델링 및 분석 방법

2-1. 반응기 구조 및 설계 변수 선정

연구 대상인 반응기의 구조는 Fig. 1에 나타낸 것과 같다. 지름 4m, 높이 2.5m의 원통형 탱크 중앙에 impeller 3개가 수직으로 배치된 형태의 교반 탱크 반응기이다. 가장 아래 교반기와 중간 교반기 사이에는 기체 분산기(gas distributor)가 배치되어 있다. 본 연구에

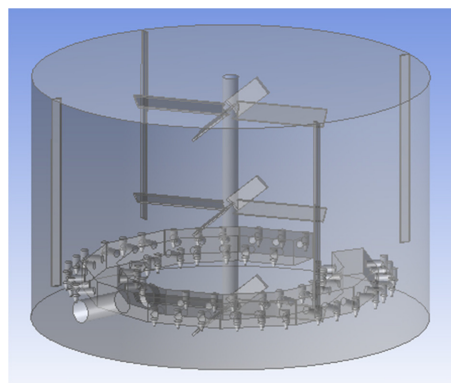


Fig. 1. Geometry of the reactor base model.

서는 기체의 분산에 대해서는 다루지 않기 때문에 기체 분산기에서 기체가 나오지는 않지만, 분산기 자체가 액체나 고체의 유동 방해물로 작용할 수 있기에 최대한 자세하게 구조를 묘사하였다. 실제 탱크는 위로 더 긴 모양이지만, 본 연구에서는 반응기 모델링 범위를 수두 높이까지로 한정하였기 때문에 반응기 높이를 수두 높이인 2.5 m로 간주하였다.

반응 물질로는 액체인 25 °C의 물과 고체인 산화칼슘 혼합물을 설정하였다. 이 때, 산화 칼슘 혼합물은 200 mesh의 입자 크기, 3,366 kg/m³의 밀도, 1.5 cP의 점성도를 가지는 물질로 가정하였다. 또한, 고체 반응물은 전체 용액에서 5 vol%의 부피 분율을 차지한다.

본 연구는 외부 탱크 모양과 가스 분산기의 모양은 고정된 채로, 내부 설계 변수 변경에 따라 고체 분산도가 어떻게 달라지는 지 분석하는 것을 목표로 하기 때문에 고체 분산도에 영향을 끼칠만한 적절한 내부 변수의 선정이 중요하다. 내부 변수는 크게 교반기와 baffle에 관한 항목들로 나누어 볼 수 있다.

교반기의 경우 갯수, 종류, 유격(clearance), 지름(diameter) 등의 설계 변수가 내부 유동에 커다란 영향을 줄 수 있다[17]. 분당 회전수를 나타내는 rpm은 반응기 설계 및 건설이 끝난 후에도 조정 가능하나, rpm 범위를 어떻게 선정하나에 따라 초기 설치하는 전력 장치의 규격이 정해지므로 미리 어느 정도의 운전 범위를 예상해두는 것이 중요하다. 교반기의 종류는 크게 축 방향 흐름을 만드는 axial 교반기, 수평 방향 흐름을 만드는 radial 교반기, 축과 수평 방향이 섞인 흐름을 만드는 Pitched Blade Turbine (PBT)로 나눌 수 있는데, 본 논문에서는 Pitched Blade Turbine (PBT)과 radial 교반기만 다루었다. 이는 axial 교반기가 기체에 매우 취약하므로, 3 상이 관여하는 본 공정에 적합하지 않기 때문이다. 기체의 분산은 본 논문의 영역 안에 들어오지 않지만, 현실성 있는 설계를 고려하여 제외시켰다.

Baffle은 고체 분산을 시켜야 하는 경우 가능한 4개를 같은 간격으로 설치하는 것이 유리하며[18], 길이와 두께도 길거나 두꺼울수록 좋다고 여겨진다. 하지만 baffle이 커지고 구조가 복잡해질수록 소모

전력이 함께 커지므로 적정선으로 설계하는 것이 바람직하다.

위에서 언급한 사항들을 고려하여 중요한 설계 변수들을 선정하고, Fig. 2에 나타내었다. 이 때 변수들의 값을 무한히 바꿔가며 분석할 수 없으므로 변수마다 평가 대상이 될 2-3가지의 특정 값을 선정하였다. 하지만 이 값들의 형태 및 범위가 제각각이므로 민감도 분석 및 비교에 어려움이 있다. 따라서 각 변수마다 선정된 값들에 0에서 1 사이의 값을 부여함으로써 가능한 범위 내에서 해당 변수값이 어느 정도 수준인지를 알 수 있도록 하였다. 이를 Table 1의 괄호 안에 나타내었다.

교반기 종류(type)의 경우 변수가 숫자의 형태를 가지지는 않지만 radial, mix, PBT 순으로 고체 분산도를 향상시킬 수 있으므로 각각 0, 0.5, 1의 값을 부여하였다. 교반기 갯수의 경우 3개보다 2개일 때의 성능이 더 좋으므로 3단에 0, 2단에 1의 값을 부여하였다. 유격의 경우 base case로부터 상단 교반기와 중간 교반기의 유격을 280mm씩 낮춘 케이스를 “low”라고 칭하고, low에 0, base case에 1의 값을 부여하였다. 지름의 경우 D/T=0.33에 0, D/T=0.5에 1의 값을 부여하였다. 분당 회전수(rpm)의 경우 30에 0, 60에 0.5, 90에 1의 값을 부여하였다. Baffle의 경우, 가장 기본 형태에 0, 기본 형태에서 길이가 길어진 “long”에 0.5, “long”에서 너비까지 넓어진 “long & wide”에 1의 값을 부여하였다. 이렇게 함으로써 각 변수값이 가용 범위 내에서 어느 정도 수준에 해당하는 지 쉽게 알 수 있다.

이제 이 변수들을 조합하여 여러 경우의 케이스들을 만들고 각 케이스에 대해 CFD를 이용한 유동 분석을 실시해야 한다. Table 1에 나타낸 모든 변수값들을 조합하면 총 216가지 케이스가 나온다. 한 가지 케이스를 시뮬레이션 하는데에 최소 6시간 이상 걸리는 것을 감안할 때, 이 모든 케이스들을 분석하는 것은 비효율적이다. 따라서 20가지의 케이스를 선택하여 민감도 분석을 행하였다. 이 20가지의 케이스들은 다른 변수들이 통제된 상황에서 각 변수의 값에 따라 고체 분산도가 어떻게 변하는 지 관찰하기 위한 목적으로 선택되었다. Basecase를 기준으로 한 가지 혹은 두 가지의 변수들을 변화시켜가며 여러 상황에서의 민감도 분석이 가능하도록 선택되었다. 이 케이스들을 Table 2에 정리하였다.

본 논문의 주된 목적인 고체 분산 정도를 평가하기 위해서는 고체 분산도를 정량적으로 나타낼 수 있는 척도가 필요하다. 이러한 척도로서 just-suspension speed (N_{js}), 고체 분포(solid distribution), cloud height 정도가 많이 사용된다[19]. N_{js} 는 모든 고체가 1, 2초 이상 바닥에 머물러 있지 않도록 하는 impeller의 속도(rpm)를 의미한다. 하지만 가라 앉은 고체 입자가 없더라도, 반응기 전체에 걸친 분포가 불균일 할 수 있기 때문에 고체 분포의 추가적인 분석이 필요하다. 또한 일반적으로 고체가 최대로 뜰 수 있는 높이가 한정적이라는 점을 고려해서, 그 높이를 cloud height (H_c)로 나타낸다. Cloud height는 액체-고체 혼합물과 깨끗한 액체가 구분되는 지점으로 정의된다. 구체적인 수치로는, 평균 고체 분율(average solid fraction)이 달성되는

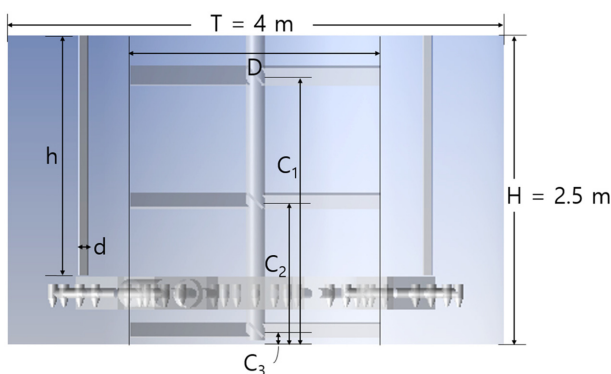


Fig. 2. Internal design variables of the reactor.

Table 1. Variable specifications

Type	#	Impeller			Baffle
		Clearance	Diameter	rpm	
Radial (0)	Triple* (0)	Low ^a (0)	Small ^c (0)	30* (0)	Base* ^e (0)
Mix (0.5)				60 (0.5)	Long ^f (0.5)
PBT* (1)	Dual (1)	Base* ^b (1)	Base* ^d (1)	90 (1)	Long & wide ^g (1)

*indicates the values constituting the base case, ^aC₁=0.46T, C₂=0.21T, ^bC₁=0.54T, C₂=0.29T, ^cD=0.33T, ^dD=0.5T, ^eh=1.95 m, d=100 mm, ^fh=2.5 m, d=100 mm, ^gh=2.5 m, d=250 mm, Numbers in parenthesis indicate the normalized values described in the article

Table 2. Case specifications

Case	Basecase	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Impeller	type	PBT	-	-	-	-	-	-	-	-	mix
	#	triple	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	clearance	base	-	-	-	-	-	low	-	-	-
	diameter	base	-	-	-	small	small	small	-	-	-
	rpm	30	-	60	90	-	60	90	-	-	-
Baffle	base	-	-	-	-	-	-	-	long	l & w ^a	-
Case	Basecase	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
Impeller	type	PBT	rdl ^b	rdl	rdl	rdl	rdl	-	mix	rdl	-
	#	triple	-	-	-	-	-	dual	dual	dual	dual
	clearance	base	-	-	-	-	-	-	-	low	-
	diameter	base	-	-	-	-	-	-	-	-	small
	rpm	30	-	60	90	-	-	-	-	-	60
Baffle	base	-	-	-	long	l & w	-	-	-	-	-

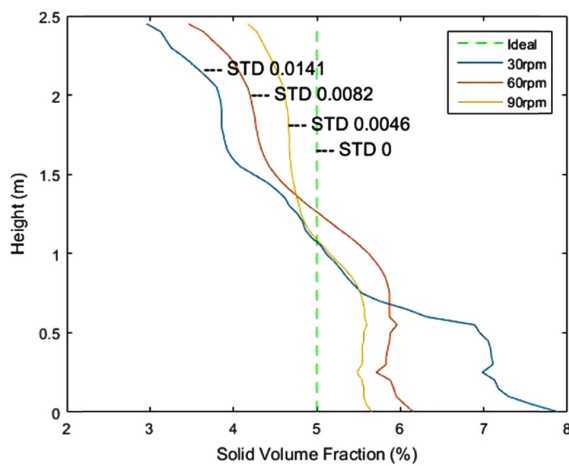
^along & wide, ^bradial

Fig. 3. Relationship between solid distribution profile and STD value.

등위면 중 최대 높이로 계산한다[14]. Cloud height가 명확히 존재할 경우, 그 위로는 반응이 일어나지 않는 공간(dead space)이 되기 때문에, cloud height를 최대한 높여 반응의 효율을 높일 수 있다.

본 연구에서는 정상-상태 CFD 계산을 이용해서는 직접적인 측정이 불가능한 N_{js} 는 따로 분석하지 않았지만, 고체 분포와 cloud height는 직접 수치를 구하여 분석하였다. 먼저, 2.5 m 높이의 반응기에 50개의 높이 지점(0.05 m 간격으로 0 m부터 2.45 m까지)을 설정하고, 각 높이 지점마다 평균 고체 분율을 구하고 이 값들의 표준 편차(STD)를 구하여 고체 분포(solid distribution)를 수치화하였다. 만약, 높이 방향을 따라 고체 분율의 편차가 심하다면 STD값이 커진다. Fig. 3에서 잘 보여지듯이 고체 분포 곡선이 일직선에서 멀어질수록 STD값이 커진다.

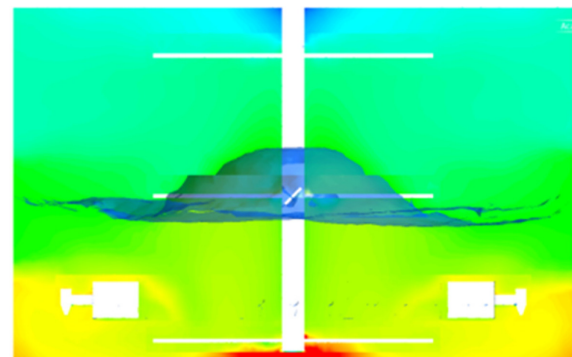


Fig. 4. Volume fraction profile of solid particles and iso-volume fraction surface.

또한, Cloud height는 반응기 전체 평균 고체 부피 분율인 5%를 달성하는 등위면(Fig. 4)중 가장 높은 높이를 측정하여 결정하였다.

2-2. CFD 모델링

본 연구의 CFD 모델링을 위하여 ANSYS® fluent 16.0 프로그램을 사용하였다. CFD 모델링 시 사용된 지배 방정식들과 여러 모델식들은 Table 3에 요약하였다.

액체와 고체가 포함된 다상(multiphase) 유동을 해석하기 위해, Euler-Granular multiphase model을 사용하였다. 이 모델은 공존하며 서로 침투할 수 있는(interpenetrating) 연속체 상(phase)들에 대하여 Navier-Stokes 방정식을 각각 풀 되, 상 간의 운동량 전달(interphase momentum transfer)이나 상 간의 물질 전달(interphase mass transfer)을 지배 방정식에 포함시켜 함께 고려될 수 있게 한 방법이다. 액체와 고체 사이에는 상호 작용하는 여러 종류의 힘들이 존재하며, 이를

Table 3. Governing equations of the reactor model

	Governing equations/models	Remarks
Continuity	$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_k \rho_k) + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \bar{u}_k) = 0$	K=phases (l, g)
Momentum	$\frac{\partial}{\partial t}(\alpha_k \rho_k \bar{u}_k) + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \bar{u}_k \bar{u}_k) = -\alpha_k \nabla P + \nabla \cdot \bar{\tau}_k + \sum_{k=1}^2 (R_{ls} + \dot{m}_{ls} + \bar{u}_{ls}) + \bar{F}_k$	
Interphase momentum exchange	$R_{ls} = K_{ls}(\bar{u}_l - \bar{u}_s)$	K_{ls} : Gidaspaw law [23]
Turbulence Model	Realizable k - ε model	

통해 interphase momentum transfer이 가능하다. 그 중에 가장 주된 힘은 마찰력(drag force)이고, 여러 가지 연구들에 의해 lift force, virtual mass force, turbulent dispersion term들 같은 나머지 상호 작용 힘들은 교반 반응기의 전체적인 유동에 크게 영향 주지 않음이 밝혀졌다[14,20,21]. 따라서 본 논문에서는 interphase momentum transfer에 관여하는 힘으로, drag force만을 고려하였다.

난류 모델로는 realizable k - ϵ turbulence 모델이 액체 상을 대상으로

사용되었다. 이는 본 논문과 비슷하게 교반 반응기 내에서의 고체 분산에 대해 연구한 선행 사례[22]를 참고하여 결정하였다. Impeller의 회전을 모델링하기 위해서는 multiple reference frame (MRF) 방법을 사용하였다. 탱크 벽면과 impeller 날, 회전축, 가스 분사기 표면 등 반응기 내 모든 벽면에 대해 no-slip condition의 경계 조건을 주었으며, 회전축의 표면은 impeller와 같은 속도로 회전한다고 설정하였다.

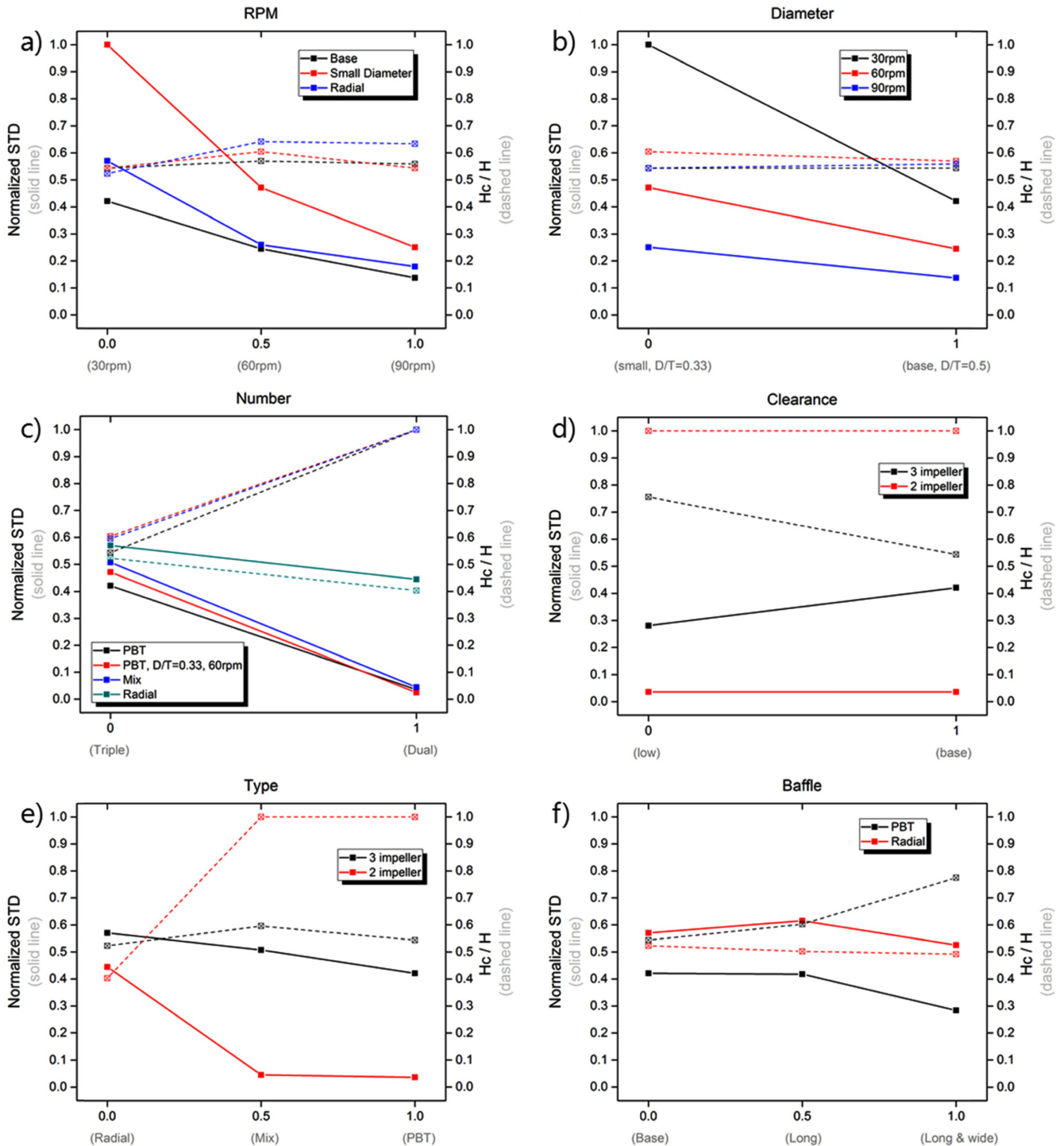


Fig. 5. Sensitivity analysis on solid distribution quality, represented by normalized STD and H_c/H values, for 6 different design variables. a) Base: case 1,2,3 (for 0, 0.5, 1 respectively), Small Diameter: case 4,5,6, Radial: case 11,12, 13, b) 30rpm: case 1,4 (for 0,1 respectively), 60 rpm: case 2,5, 90 rpm: case 3,6, c) PBT: case 1, 16, PBT, $D/T=0.33$, 60rpm: case 5, 20, Mix: case 10, 17, Radial: case 11, 18, d) 3-impeller: case 7, 1, 2-impeller: case 16, 19, e) 3-impeller: case 11, 10, 1, 2-impeller: case 18, 17, 16, f) PBT: case 1, 8, 9, Radial: case 11, 14, 15.

3. 결과 및 고찰

Table 2의 20가지 case들을 가지고 교반기 회전 속도, 지름, 갯수, 유격, 종류 및 baffle까지 총 6가지 내부 설계 변수들의 고체 분산도에 대한 민감도 분석을 할 수 있었다. 6가지 변수가 취하는 값의 범위 및 형태가 모두 다르기 때문에 앞서 설명한 것 처럼 변수값들을 0에서 1사이의 값으로 치환하였다. 고체 분산도를 평가하는 지표인 STD와 H_c/H 역시 최대 STD값과 H로 각각 나눠 0에서 1사이의 값을 가질 수 있도록 정규화하였다. Fig. 5의 결과 그래프들을 보면 x축은 설계 변수값, 왼쪽 y축은 정규화된 STD값, 오른쪽 y축은 정규화된 H_c/H 값들로 설정되어 있다. 같은 색상은 같은 케이스를 의미하며, 각 케이스마다 실선으로 정규화된 STD 값을, 점선으로 H_c/H 값을 표시하였다. 그래프의 기울기가 크다는 것은 해당 변수가 고체 분산도에 민감하게 영향을 끼친다는 것이다. 또한, 정규화된 STD값은 0에 H_c/H 값은 1에 가까울 수록 절대적인 고체 분산도가 좋아짐을 의미한다.

3-1. 교반기 속도의 영향

기본 설정(rpm을 제외한 나머지 변수들이 base case와 동일한 설정), $D/T=0.33$ 인 설정, radial impeller 설정 하에서 교반기 속도의 영향을 살펴보았다. 모든 경우에서 교반기 속도가 증가함에 따라 정규화된 STD 값은 작아진다. 즉, 고체 분산도가 좋아진다. 이 중 교반기 지름이 작을 때, rpm에 대한 민감도가 가장 크다. 교반기 지름이 작고 30 rpm인 경우 시뮬레이션을 수행한 20가지 케이스 중 가장 STD값이 컸다. 하지만 rpm을 늘리게 되면 급속히 STD값이 감소한다. 실제로 높은 rpm에서는 다른 설계 변수의 영향이 줄어드는 것을 볼 수 있다. 이는 내부 설계가 효율적이지 못해도 교반기 속도를 높여 극복할 수 있다는 것을 암시한다. 그러나 전력이 교반기 회전수의 세 제공에 비해해 증가하는 것을 고려할 때 최대한 회전 속도를 낮게 유지하는 것이 중요하다.

교반기 속도에 따라 급격히 변하는 STD에 비해 H_c/H 는 거의 변화가 없다. RPM 뿐만 아니라 다른 변수들의 경우를 같이 분석해보면, H_c/H 는 정규화된 STD가 0에 근접할 때 급격히 상승해서 1에 가까워지고, 그 외에 적당히 낮은 수준의 STD 값에서는 크게 좋아지지 않는다.

3-2. 교반기 지름의 영향

Fig. 5(b)에 해당된다. 또한 여기 분석에서 사용된 케이스들은 rpm 분석에서 사용된 것들과 동일하다. 교반기 지름의 경우 모든 rpm에서 $D/T=0.33$ 일 때보다 $D/T=0.5$ 일 때가 고체 분산도가 더 좋다. 이 효과는 낮은 rpm일 때 가장 극적으로 드러난다. 또한 흥미로운 것은 D/T 값이 0.5에서 0.33으로 줄어드는 것을 rpm을 30정도 증가시키는 것으로 상쇄할 수 있다는 점이다. 예를 들어, $D/T=0.33$ 인 impeller를 60 rpm으로 돌릴 때나, $D/T=0.5$ 인 impeller를 30 rpm으로 돌릴 때의 고체 분산도가 비슷하다. 하지만 교반기 소모 전력이 회전수의 세 제공, 지름의 다섯배에 비해하는 것을 고려하면, impeller 지름이 1.5배, 회전수가 0.5배인 후자의 경우가 더 이득이다. 기체 분산을 고려할 때도 지름이 큰 편이 더 낫다.

3-3. 교반기 갯수의 영향

고체의 분산을 위해서는 가라 앉은 고체를 부유시키기 위한 바닥 근처에서 축 방향으로의 유동과 반응기 전체로의 분산을 위한 전체 순환 유동이 중요하다. 본 반응기의 경우, 가스 분산기가 하단에 위치하고 있어 바닥 부근의 유동에 큰 장애물이 된다. 이 때문에 가스 분산기 밑에 한 대의 교반기를 배치하였으나, 이 교반기가 만들어내는 유동은 또 다시 가스 분산기에 가로막혀 상부로 이어지지 않는다. 따라서 가스 분산기 위에 추가적인 교반기 한 대 혹은 두 대를 더 설치해 총 두 대에서 세 대의 교반기가 필요하다.

Fig. 5(c)에서 볼 수있듯이 교반기 갯수는 여섯 가지 설계 변수 중 가장 큰 영향을 끼친다. 기울기에만 한정하여 민감도를 판단하면

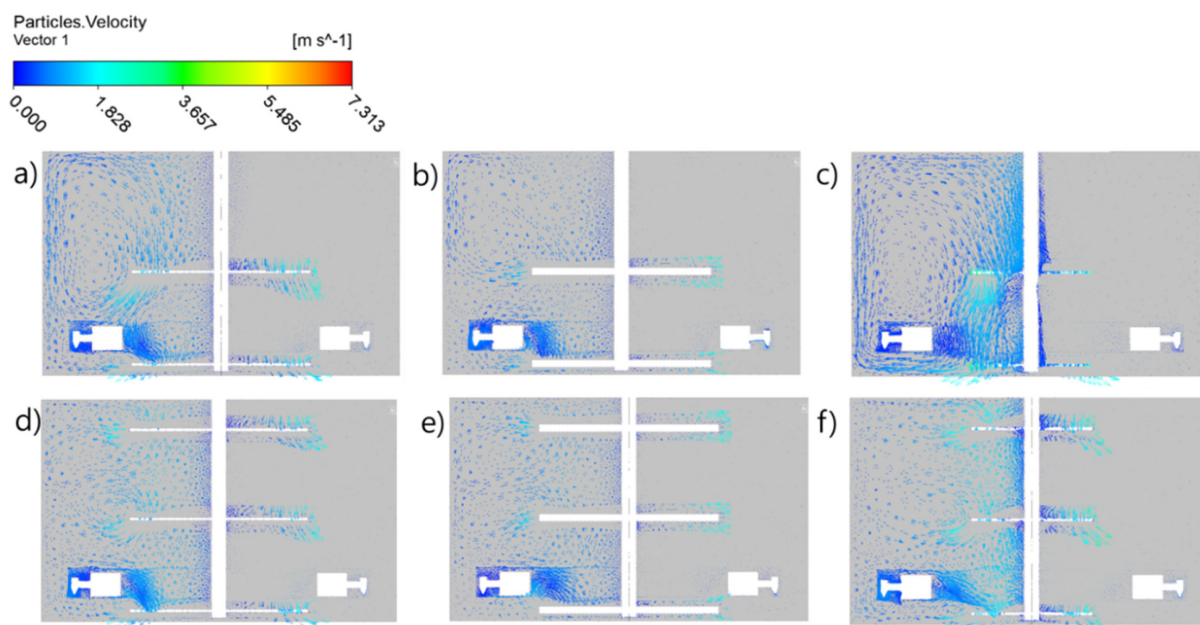


Fig. 6. Velocity vector profile of solid particles for a) dual PBT, b) dual Radial, c) dual PBT with $D/T=0.33$ and 60 rpm, d) triple PBT, e) triple Radial, f) triple PBT with $D/T=0.33$ and 60 rpm.

rpm에 의한 민감도보다는 적지만, 고체 분산도를 거의 완벽하게 균 일한 지점까지 끌어 올리는 역할을 할 수 있다. 여기서는 네 가지 상 황에 대해서 교반기 갯수의 영향을 판단하였다. 이 중 Radial impeller를 사용한 경우를 제외하고 PBT 및 mix 종류의 교반기를 사용한 경우 교반기 갯수가 3개에서 2개로 줄어들어 따라 고체 분산도의 엄청난 개선을 보여주었다. 또한, rpm과 달리 교반기 갯수는 STD 뿐만아니라 cloud height에도 큰 영향을 끼칠 수 있다. 이 중 $D/T=0.33$, 60 rpm 조합에서는 STD 0.0008, cloud height 2.5 m 등 20가지 케이스 중 가장 뛰어난 정량적 수치를 보여주었다.

다음의 Fig. 6를 보면 왜 2단 교반기 시스템이 3단보다 나은 지 알 수 있다. Fig. 6는 반응기 횡단면에서 고체 입자의 속도장을 나타낸 것이다. 고체가 잘 뜨기 위해서는 반응기 전체에 걸친 순환 유동이 일어나야하는데 3단 교반기가 설치된 d), e), f)의 경우 교반기 근처 에서 지엽적인 순환만 일어나고 있다. 특히 a)와 d)를 비교해볼 때 제일 위에 위치한 교반기가 중간에 위치한 교반기가 만들어내는 순 환 유동을 오히려 방해한다는 사실을 알 수 있다.

또한 rpm이 다르기는 하지만, $D/T=0.5$ 인 a)와 $D/T=0.33$ 인 c)를 비교해보면 c)가 가장 좋은 고체 분산도를 보이는 사실을 설명할 수 있다. 교반기 끝에서 축방향으로 밀어내는 강한 유동이 a)는 가스 분 산기로 향하고 c)는 바닥으로 향한다. 따라서 c)는 바닥부터 맨 상단 까지 이어지는 커다란 순환 흐름이 생기는 반면, a)의 경우 이러한 순환이 가스 분산기 위에서 머물다 보니 바닥 근처의 고체의 속도장 이 약해지고 고체 분산도가 c)에 비해 감소하게 된다. 이는 가스 분 산기의 배치도 추후 중요한 연구 대상이 될 수 있음을 암시한다.

3-4. 교반기 유격의 영향

교반기 갯수와 유격의 무수히 많은 조합이 가능하나 교반기 갯수 의 영향을 분석할 때 최적의 고체 분산도를 달성하는 조합이 이미 발견되었기 때문에 최소한의 경우에 대해서만 분석을 하였다. 또한, Fig. 5(d)의 그래프에서 기울기가 그리 크지 않음에서 나타났듯이 교 반기 유격의 영향은 다른 변수들에 비해 크지 않은 편이다. 2단 교반 기의 경우 유격이 낮을 때와 기준 상태일 때 모두 최상의 결과를 보 여주었으며, 3단 교반기의 경우 유격이 낮아질 때 고체 분산도가 조 금 개선되었다. 이는 Fig. 7에서 나타났듯이 기준 유격을 가진 b)의 경우 맨 위의 교반기가 상부 경계면(액체 표면)에 너무 가까이 있어 순환을 만들만한 공간이 없기 때문이다.

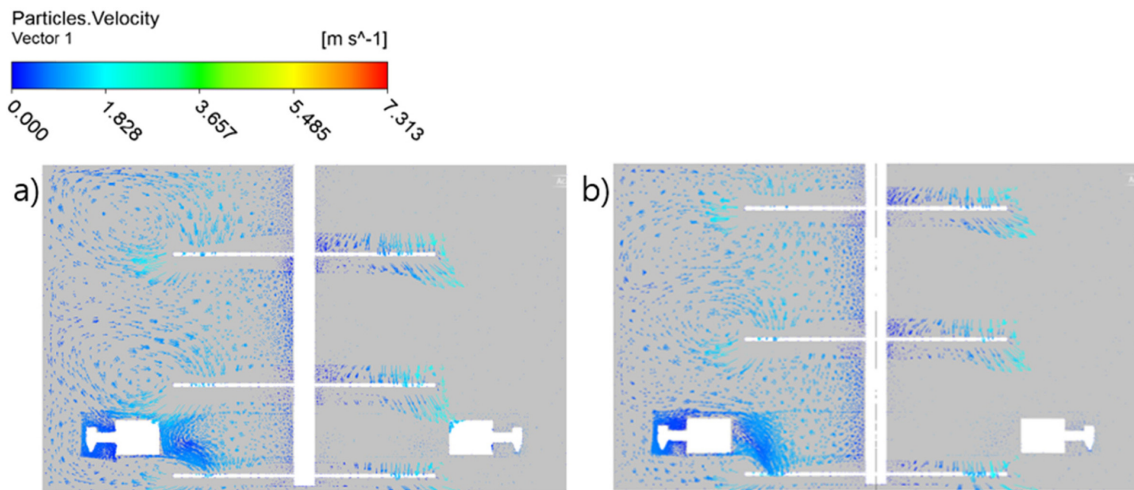


Fig. 7. Velocity vector profile of solid particles for (a) low clearance and (b) base clearance.

3-5. 교반기 종류의 영향

Fig. 5(e)에서 보면 PBT, mix, radial 순으로 STD값이 증가한다. 3 단 교반기 시스템의 경우 교반기 종류의 영향이 그다지 크지 않지만, 2단 교반기 시스템의 경우 radial에서 PBT로 종류가 변하면서 STD 및 H_c 값에 아주 큰 변화가 생긴다.

Fig. 6(b), (e)가 radial 종류의 교반기를 사용한 경우인데, 고체의 흐름이 현저히 약한 것이 시각적으로 잘 나타난다. Radial 교반기는 기체의 분산에는 유리하지만, 축 방향보다는 수평 방향의 유동을 만 들기 때문에 고체를 띄우는 능력이 떨어질 수 밖에 없다.

Radial과 PBT를 섞어 설계한 Mixed 구조는, 맨 밑의 교반기가 바 닥과 가까이 있어 제대로 된 축 방향 유동을 못 만들어 내므로 radial impeller를 대신 달아서 수평 방향 유동을 강화시키고 벽을 이용해 수직 방향 유동으로 전환시키려는 의도로 설계하였지만, 고체 분산 향상에 큰 도움이 되지 않았다. 30 rpm 수준의 회전수로는 벽면에 닿을만큼 강력한 수평 유동이 만들어지지 않았고, 오히려 PBT가 바 닥을 쳐서 상승시키는 유동이 더 강력하기 때문인 것으로 보인다.

3-6. Baffle의 영향

Fig. 5(f)에서 보여지는 Baffle의 영향은 상대적으로 크지 않다. Baffle이 강화되면, 다시 말해 길이와 너비의 증가하면 impeller 종류와 상관 없이 고체 분산도가 조금씩 향상된다. STD보다는 cloud height 를 증가시키는 효과가 더 큰 것으로 보여진다. 또한 길이보다는 너 비가 증가할 때의 효과가 훨씬 크다. Baffle의 구조는 교반기 축을 중심으로 회전하는 유동을 수직 방향으로 전환시켜주는 효과가 있 는데, 너비가 넓은 baffle의 경우 이러한 효과가 잘 나타나 Fig. 8(b) 에서처럼 중앙부분에서의 흐름이 강화된다.

3-7. 종합

지금까지의 분석에 사용된 모든 케이스의 STD와 cloud height 값 및 이들의 정규화 값들을 전부 Table 4에 정리하였다. 또한 20가지 case의 STD와 H_c/H 값의 분포를 Fig. 9의 그래프처럼 나타내었다. 이 그래프를 통해 알 수 있는 것은 STD와 H_c/H 값 사이의 선형적인 상관관계가 존재하지 않는다는 것이다. 비교적 넓은 범위에 걸쳐 분 포하는 STD 값과 달리 H_c/H 값은 대부분의 경우 0.5~0.7사이에 분 포하였다. Case 9와 18은 비슷한 STD값을 가지는 다른 케이스들에 비해 유난히 cloud height가 각각 높고 낮다. Case 18 (dual radial

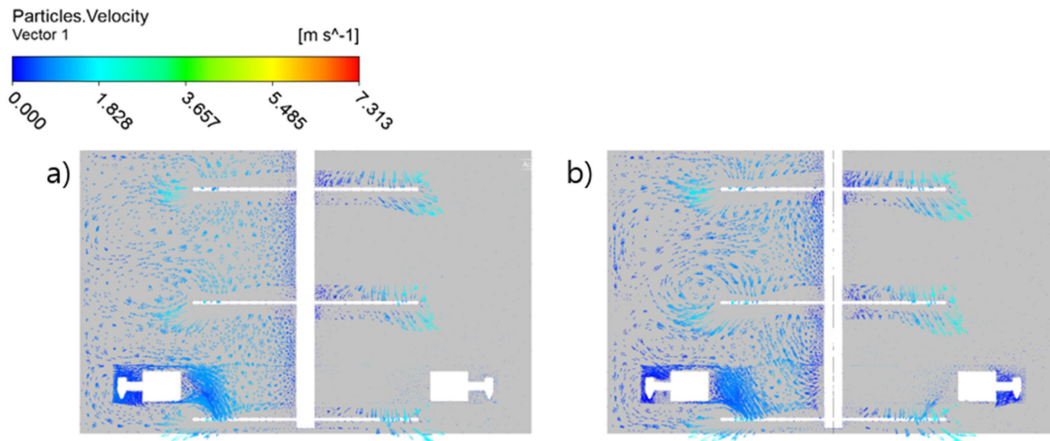


Fig. 8. Velocity vector profile of solid particles for a) long baffle and b) long & wide baffle.

Table 4. Solid distribution quantities for all cases

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
STD	0.0141	0.0082	0.0046	0.0335	0.0158	0.0084	0.0094	0.0140	0.0095	0.0170
Norm. STD	0.4217	0.2448	0.1364	1.0000	0.4722	0.2518	0.2808	0.4171	0.2849	0.5073
H _c [m]	1.36	1.42	1.40	1.36	1.51	1.36	1.48	1.51	1.94	1.49
H _c /H	0.40	0.80	1.20	1.60	2.00	2.40	2.80	3.20	3.60	4.00
	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
STD	0.0191	0.0087	0.0060	0.0206	0.0176	0.0012	0.0015	0.0149	0.0012	0.0008
Norm. STD	0.5689	0.2601	0.1791	0.6143	0.5251	0.0355	0.0440	0.4452	0.0358	0.0239
H _c [m]	1.31	1.61	1.59	1.26	1.23	2.50	1.20	1.01	2.50	2.50
H _c /H	4.40	4.80	5.20	5.60	6.00	6.40	6.80	7.20	7.60	8.00

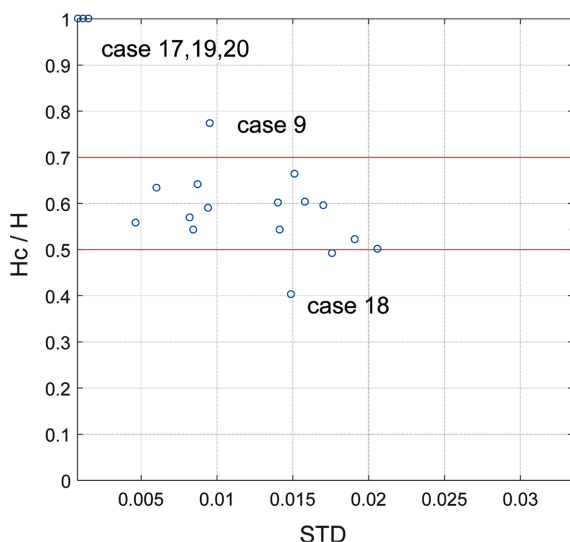


Fig. 9. STD vs. H_c/H distribution graph for all cases.

impeller)의 경우 고체 분율이 0에 가까워 반응이 일어나지 않을 dead space가 다른 케이스들보다 크고, case 9 (PBT with long & wide baffles)의 경우 반응기 중앙에 강한 유동이 발달되어 농도의 등위면이 가운데가 볼록 솟아 있는 형태로 생성된다.

Case 17, 19, 20의 경우 STD값이 0에 가깝고, cloud height가 반응기 내 용액 높이에 다다를만큼 이상적인 고체 분산을 보여준다. 이 세 case의 특징으로는 모두 교반기가 2단이라는 것이다. 2단 교반기 시스템은 앞서 기술하였듯이 제일 상단의 교반기를 제거함으로 표

면까지 연결되는 커다란 순환 흐름을 만들어지는 이익을 얻을 수 있다. 특히 교반기 지름이 작은 Case 20의 경우, 교반기 끝에서 만들어지는 유동이 가스 분산기에 막히지 않고 바닥을 타격하기 때문에 제일 바닥에서부터 표면까지 전체적인 순환을 가능케한다. Mix type 교반기를 사용하는 case 17은 이 세 가지 경우 중 성능이 가장 모자라는 설계이다. 또한, 아래와 위의 교반기 종류가 다를 경우 동일한 힘을 받지 못하기 때문에 기계적인 문제가 생길 수 있다는 점에서 실제 설계 반영에 위험성이 있다.

결국 Case 19와 20이 가장 이상적인 설계이며, 이를 적용할 경우 반응기 전체에 걸쳐 균일한 고체 반응물의 분포를 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

4. 결 론

산화칼슘과 이산화탄소 간의 반응이 일어나는 탱크 교반 반응기를 대상으로 Impeller 갯수, 종류, 유격, 지름, 회전 수, Baffle의 6 가지 내부 설계 변수가 고체 반응물의 분산도에 어떤 영향을 미치는 지 CFD를 이용하여 분석하였다.

Impeller 갯수가 고체 분산도에 가장 큰 영향을 준다. 3단일 때보다 2단일 때 훨씬 성능이 좋아지는데, 이는 3단의 경우 제일 윗 교반기가 유동의 장애물 역할을 하기 때문이다. Impeller 종류도 커다란 영향을 끼치는 데, radial보다 PBT가 훨씬 더 적합하다. Radial impeller의 경우 기체의 분산에 유리한 장점이 있기는 하지만, 회전 수와 baffle을 강화하더라도 고체의 균일한 분포를 만들지는 못한다.

교반기 유격의 경우 본 연구의 범위 내에서 고체 분산도에 큰 영

향을 끼치지는 않지만, 기준 설정보다 유격을 조금 더 낮췄을 때 고체 분산도가 조금 더 개선됨을 확인하였다. 교반기 지름과 회전 수는 각각 크고 많을 수록 고체 분산도향상에 도움이 된다. 특히 교반기 회전 수가 커지면 다른 설계 변수의 영향이 적어지며 전체적인 고체 분산도가 개선되기 때문에, 비효율적인 설계 하에서도 회전 수를 늘림으로 고체 분산을 균일하게 만들 수 있다. 교반기의 회전수와 지름은 교반기 소모 전력과 밀접한 관계가 있으므로 이를 고려해 불필요하게 과도한 설계를 지양해야 한다.

Baffle의 경우 그 모양이 길고 넓을 수록 고체 분산도를 높이는 데에 도움이 되지만 다른 변수들에 비해 그 영향이 크지는 않다. 길이와 너비 중에서는 너비가 넓어질 때 개선 효과가 더 크다.

본 연구에서 얻은 해석 결과들을 통해 반응기의 내부 설계 변수들이 고체 반응물의 분산에 어떠한 영향을 주는 지 알 수 있었다. 동시에 고체 반응물을 균등하게 분포시키는 내부 설계 조합을 도출하였다. 고체 반응물을 균등하게 분포시키는 것은 광물 탄산화 반응기에서 속도 결정 단계인 산화 칼슘의 용해 속도를 높이는 데 아주 중요하며, 물질 전달 속도 및 그에 따른 반응 속도를 개선위한 필수 조건이다. 추후 추가적으로 실험을 통한 시뮬레이션 결과의 검증과 기체가 유입될 경우 달라지는 고체 분산 양상에 대해 연구할 예정이다.

감 사

본 연구는 2015년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다(No. 20152010201850).

Reference

- Chae, S.-C., Jang, Y.-N. and Ryu, K.-W., "Mineral Carbonation as a Sequestration Method of CO₂," *Journal of the Geological Society of Korea*, **45**(5), 527-555(2009).
- Han, K., Rhee, C. H. and Chun, H. D., "Feasibility of Mineral Carbonation Technology as a CO₂ Storage Measure Considering Domestic Industrial Environment," *Korean Chemical Engineering Research*, **49**(2), 137-150(2011).
- Chen, Z. Y., O'Connor, W. K. and Gerdemann, S., "Chemistry of Aqueous Mineral Carbonation for Carbon Sequestration and Explanation of Experimental Results," *Environ. Prog.*, **25**(2), 161-166(2006).
- Lackner, K. S., et al., "Carbon Dioxide Disposal in Carbonate Minerals," *Energy*, **20**(11), 1153-1170(1995).
- Montes-Hernandez, G., et al., "Mineral Sequestration of CO₂ by Aqueous Carbonation of Coal Combustion Fly-ash," *J. Hazard. Mater.*, **161**(2), 1347-1354(2009).
- Jana, S. K. and Bhaskarwar, A. N., "Modeling Gas Absorption Accompanied by Chemical Reaction in Bubble Column and Foam-bed Slurry Reactors," *Chem. Eng. Sci.*, **65**(11), 3649-3659(2010).
- Olajire, A. A., "A Review of Mineral Carbonation Technology in Sequestration of CO₂," *Journal of Petroleum Science and Engineering*, **109**, 364-392(2013).
- Jin, B. and Lant, P., "Flow Regime, Hydrodynamics, Floc Size Distribution and Sludge Properties in Activated Sludge Bubble Column, Air-lift and Aerated Stirred Reactors," *Chem. Eng. Sci.*, **59**(12), 2379-2388(2004).
- Pangarkar, V. G., *Design of Multiphase Reactors*, Wiley, 30-46(2014).
- Zwietering, T. N., "Suspending of Solid Particles in Liquid by Agitators," *Chem. Eng. Sci.*, **8**(3-4), 244-253(1958).
- Grenville, R. K., Mak, A. T. and Brown, D. A., "An Improved Correlation to Predict "just suspension" Speed for Solid-liquid Mixtures with Axial Flow Impellers in Stirred Tanks," North American Mixing Forum, June, Victoria, BC, Canada (2010).
- Smith, J., Warmoeskerken, M. and Zeef, E., in C. S. Ho, and J. Y. Oldshue (Ed.), *Flow conditions in vessels dispersing gases in liquids with multiple impellers*, AIChE, New York, 107-115(1987).
- Harris, C., et al., "Computational fluid dynamics for chemical reactor engineering," *Chem. Eng. Sci.*, **51**(10), 1569-1594(1996).
- Kasat, G., et al., "CFD Simulation of Liquid-phase Mixing in Solid-liquid Stirred Reactor," *Chem. Eng. Sci.*, **63**(15), 3877-3885(2008).
- Murthy, B., Ghadge, R. and Joshi, J., "CFD Simulations of Gas-liquid-solid Stirred Reactor: Prediction of Critical Impeller Speed for Solid Suspension," *Chem. Eng. Sci.*, **62**(24), 7184-7195(2007).
- Micale, G., et al., "CFD Simulation of Particle Distribution in Stirred Vessels," *Chem. Eng. Res. Des.*, **78**(3), 435-444(2000).
- Jafari, R., Chaouki, J. and Tanguy, P. A., "A Comprehensive Review of Just Suspended Speed in Liquid-solid and Gas-liquid-solid Stirred Tank Reactors," *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, **10**(1)(2012).
- Bittorf, K. J. and Kresta, S. M., "Three-dimensional Wall Jets: Axial Flow in a Stirred Tank," *AIChE J.*, **47**(6), 1277-1284(2001).
- Sharma, R. N. and Shaikh, A. A., "Solids Suspension in Stirred Tanks with Pitched Blade Turbines," *Chem. Eng. Sci.*, **58**(10), 2123-2140(2003).
- Khopkar, A., et al., "Gas-liquid Flow Generated by a Rushton Turbine in Stirred Vessel: CARPT/CT Measurements and CFD Simulations," *Chem. Eng. Sci.*, **60**(8), 2215-2229(2005).
- Ljungqvist, M. and Rasmuson, A., "Numerical Simulation of the Two-phase Flow in An Axially Stirred Vessel," *Chem. Eng. Res. Des.*, **79**(5), 533-546(2001).
- Gohel, S., et al., "CFD Modeling of Solid Suspension in a Stirred Tank: Effect of Drag Models and Turbulent Dispersion on Cloud Height," *International Journal of Chemical Engineering*, **2012**(2012).
- Ding, J. and Gidaspow, D., "A Bubbling Fluidization Model Using Kinetic Theory of Granular Flow," *AIChE J.*, **36**(4), 523-538(1990).