

## 교반조내에서의 액적형성기구와 액경분포

박방삼\* · 이준웅\* · 유승곤 · 이보성

충남대학교 공업교육대학 화학공학과

\*대전기계창

(1984년 2월 24일 접수, 1984년 7월 19일 채택)

## Drop Formation and Size Distribution in a Stirred Vessel

B. S. Park\*, J. W. Lee\*, S. K. Ryu, B. S. Rhee

Department of Chem. Eng., Chungnam Nat. University

\*Daejeon Machine Depot

(Received 24 February 1984; accepted 19 July 1984)

### 요 약

Fiberscope와 고속촬영기를 사용하여 교반조 내에서의 액경분포를 측정하였다. 실험에는 크기가 다른 두 교반조와 두가지 형태의 서로 다른 크기의 네가지 교반날개를 사용하였고 물리적 특성치를 변화시키기 위하여 세가지 계를 사용하였다. 측정 액경분포로부터 bimodality analysis를 통하여 합체율을 추정하는 방법을 시도하였고 평균 액경을 계의 물리적 특성치와 조업조건의 함수관계로 나타내었다.

**Abstract**—A fiberscope and highspeed camera system was employed to measure drop size distribution in a stirred vessel. Two geometrically similar vessels, two types of impellers were used for the experiment. Three systems were chosen for a variation of physical properties. With the measured size spectra, bimodality analysis technique was introduced to predict the coalescence ratio. Sauter mean diameter was correlated with operating variables and physical properties.

### I. 서 론

상호 불용성 액체를 혼화시키는 공정은 액-액 추출, 다성분계 액-액반응, 분산 중합, 미생물 배양 등 화학공업에서 널리 사용되는 단위 조작으로써 각 장치의 합리적인 설계를 위하여서는 물질전달계면을 결정짓는 액경분포는 물론 액적간의 합체 및 분산속도를 추정하여야 한다.

두 불용성 액체를 교반시키면 분산상이 형성되는데, 분산은 난류 천이속도와 점성전단력에 의하여

합체는 액적간의 충돌 또는 분산상에 의한 난류강도의 억제에 의하여 일어나게 되며, 일정 상태의 교반조건하에서 연속적인 분산과 합체현상간에 동적 평형상태를 이루어 분산상은 특정 액경분포를 나타내게 된다. 액경분포의 조업조건에 따른 상관관계식에 대해서는 많은 연구가 이루어져 왔으며 (Table 1 참조) 이들 상관관계식의 이론적 배경을 간단히 설명하면 다음과 같다. 즉, 난류상태에 있는 연속상내에 분산되어 있는 아주 작은 체적을 갖는 액적상의 두 지점의 위치 벡터를 각각  $x_1, x_2$ 라

Table 1. Review on the average drop size correlations for stirred L-L vessels.

Ref.	Workers	$\phi$ (%)	N (rpm)	Correlation	Method
24	Vermeulen (1955)	10-40	110-400	$\frac{d_{32}}{D} = We^{-0.6} f_{\phi}$	Light Transmittance
7	Rodger et al. (1956)	50	—	$\frac{d_{32}}{D} = C We^{-0.36} (L/T)^{-k}$	—
4, 6	Shinnar (1960, 1961)	5	170-627	$We_{crit} = \text{const.}$	Photo w/ frozen sample
9, 10	Sprow (1967 <sup>a, b</sup> )	0.5-5	250-1000	$\frac{d_{32}}{D} = 0.0524 \left(\frac{\sigma}{\rho}\right)^{0.6} N^{-1.2} D^{-1.2}$	Coulter-counter
8	Chen & Middleman (1967)	0.1-0.5	80-1000	$\frac{d_{32}}{D} = 0.053 We^{-0.6}$	Photo
19	Henrickson (1971)	0.5-1	250-375	Graph representation only	Photo
17	Mlynek & Resnick (1972)	2.5-34	—	$\frac{d_{32}}{D} = 0.058 We^{-0.6} (1 + 5.4 \phi)$	—
16	Brown & Pitt (1970, 1974)	5-30	—	$(d_{32})^{5/3} \frac{\sigma}{\rho} \bar{\epsilon}^{2/3} \left(\frac{\bar{\epsilon}^{1/3} t_c}{T^{2/3}}\right) = \text{const.}$	Light Transmittance
25	Park & Blair (1975)	0.5-10	250-375	Population balance model	High speed photo w/fiber optic probe
18	Colaloglou & Tavlarides (1976)	2.5-15	190-310	$\frac{d_{32}}{D} = 0.081 (1 + 4.47 \phi) (We)^{-0.6}$	Photo & light Transmittance

하고 직경 벡터  $\overline{x_1 x_2}$ 를  $x$ 라 할때, Kolmogoroff의 국부등방성 난류이론에 의하면 충분히 높은 Reynolds 수를 갖는 난류에서는 난류천이속도의 각 성분은 난류형성기구나 주 흐름에 관계없이 통계적으로 같으며  $\epsilon$ ,  $\nu$ 에 의하여 결정되고 “inertial sub-range”에서는  $\nu$ 에 무관하게 다음과 같이 나타낼 수 있다. [1~4].

$$\overline{u^2(x)} = C_1 \epsilon^{2/3} x^{2/3} \quad (1)$$

두 상의 밀도와 점도가 크게 다르지 않다는 가정하에 교반에 의하여 형성된 작은 액적의 액적들이 “inertial sub-range”에 존재한다면 점성력에 의한 영향은 무시하고, 액적의 안정성은 변형을 유발시키려는 에너지와 변형을 억제시키려는 두 상이한 에너지의 비로 나타낼 수 있는데 직경 벡터  $x$ 를 액경  $d$ 라 하면 아래와 같은 관계식이 성립된다.

$$\begin{aligned} (\text{진동 액적의 운동에너지}) &\propto \rho \overline{u^2(d)} d^3 \\ (\text{계면에너지}) &\propto \sigma d^2 \\ We &= \frac{\rho \overline{u^2(d)} d}{\sigma} \quad (2) \end{aligned}$$

$\epsilon$ 를  $\bar{\epsilon}$ 로 나타낼 수 있다는 가정하에 [5, 6] (1)/(2) 식으로부터 다음 식을 얻을 수 있다.

$$We = C_1 \frac{\rho}{\sigma} \bar{\epsilon}^{2/3} d^{5/3} \quad (3)$$

Hinze [5], Shinnar와 Church [6] 등은 액적이 깨어지지 않고 견딜 수 있는 최대 액경을  $d_{max}$ 로 정의하고 이 경우의  $We = We_{crit}$ 로 만유정수라 하였다. 따라서 (3)식은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$d_{max} = C_2 \left(\frac{\sigma}{\rho}\right)^{3/5} \bar{\epsilon}^{-2/5} \quad (4)$$

상간의 상호 용해도가 낮고 계면장력이 크며 분산상의 체유량이 작은 조건하에서는 (4)식의 유용성이 입증되었다 [4, 6~10]. 한편 분산상의 체유량이 증가하게 되면 액적의 평균 액경은 (4)식으로 추정할 수 있는 값보다 커지는데 이와 같은 현상은 액적간의 합체에 기인한다.

본 연구에서는 fiber-scope와 고속촬영기를 사용하여 액심에서의 액경분포를 측정하여 구한 평균 액경을 계의 물리적 특성치 및 운전조건의 함수관계로 나타내었고 합체가 잘 일어나는 계의 측정액경분포로부터 bimodality 해석을 수행하여 합체율을 추정하는 방법을 시도하였다.

## II. 이 론

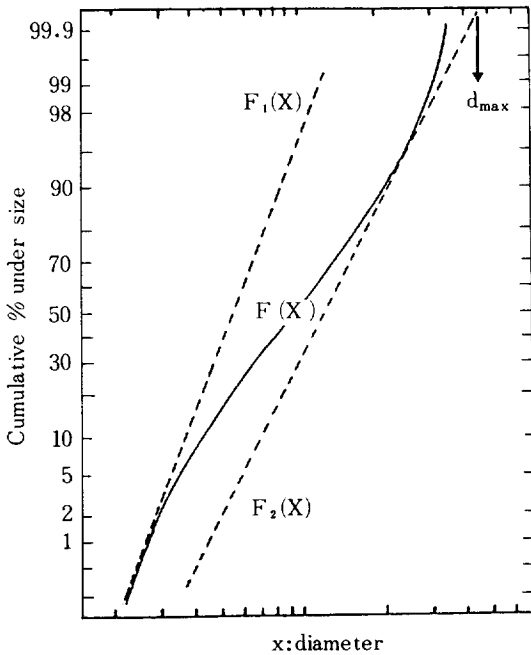


Fig. 1. Typical heterogeneous drop size distribution(schematic).

액경이  $x$ 인 액적이 다음과 같은 속도식에 의하여 분산 또는 합체를 한다고 가정하자.

$$\frac{dx}{dt} = \phi(x) \quad (5)$$

그리고 액적이 분산 또는 합체되는 시간  $t$ 는 임의의 시점을 기준으로 할 때 정규분포를 한다고 가정하면

$$f(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp(-t^2/2) \quad (6)$$

로 나타낼 수 있다.

$x_0, x_m$ 을 분산액경분포의 최소 및 최대액경이라 하고 (5)식의  $\phi(x)$ 를 다음 형태로 표시하자.

$$\phi(x) = C \frac{(x-x_0)(x_\infty-x)}{(x_\infty-x_0)} \quad (7)$$

(7)식에서  $C$ 는 액적생성속도상수가 되고  $x$ 의 크기가  $x_0$  또는  $x_\infty$ 과 같아지면  $x$ 는 시간에 독립적인 의미를 지닌다. 한편 (6)식의  $f(t)$ 는 임의의 시간  $t$  동안에 임의의 액경  $x$ 로 분산 또는 합체될 확률이 된다.

(7)식을 (5)식에 대입 적분하면 아래와 같은 관계식을 얻게 된다.

$$t = a + b \ln \frac{(x-x_0)(x_\infty-x_0)}{(x_\infty-x)} \quad (8)$$

(6), (8)식으로부터  $x$ 로 나타낸 다음의 분포식을 얻을 수 있다.

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_x} \exp \left\{ - \left( \frac{\ln \left\{ \frac{(x-x_0)(x_\infty-x_0)}{(x_\infty-x)} \right\} - \ln Mg}{\sqrt{2} \ln \sigma_x} \right)^2 \right\} \quad (9)$$

한편 누적분포를 대수-확률 그래프에 표시하면 일반적으로 Fig. 1의 실선과 같이 기울기의 변화를 나타내는데 이와 같은 형태는 bimodal 분포의 특징이며 [23] 이와같은 분포가 형성되는 이유는 교반날개로 부터 토출된 유체의 난류강도가 유체의 순환로를 따라 급격히 감소하기 때문에 액적형성 기간 동안에 존재하는 경계조건의 변화에 따른 (7)식의 속도상수의 차이에 기인한다고 볼 수 있다. 따라서 교반날개에 인접한 영역에서는 액적의 분산만이 일어나고 합체는 순환로를 따라 일어난다고 가정하자.

Fig. 1에 실선으로 나타낸 측정분포함수  $F(x)$ 는 점선으로 나타낸 두 직선의 각 상한치와 하한치에 점근적으로 접근한다. 이 경우 점선으로 나타낸 두 분포를 각각 모분포함수라고 하면  $F(x)$ 는  $F_i(x)$ 가 각각 일정비율로 합해진 분포라고 생각할 수 있으며 두 모분포함수에서 평균액경이 작은 분포함수를 분산에 의하여 형성된 분포로, 평균액경이 큰 것을 합체에 의하여 형성된 분포로 생각할 수 있다.

일단 (9)식의 대수정규분포함수에 의하여 두 모분포함수를 구하였다고 하면

$$f(x) = \sum \phi_i f_i(x) \quad (10)$$

를 만족하는 각 분포의 구성분률,  $\phi_i$ 를 구할 수 있다. 이제 주어진 문제 (Table 2)를 선형제약조건을 갖는 중선형 회귀모형으로 나타내어 그 해를 구하여 보자.

Table 2. Data domain(X-space).

drop size index (i)	Each drop size distribution				measured distribution f(x)
	$f_1(x)$	$f_2(x)$	.....	$f_m(x)$	
1	$x_{11}$	$x_{12}$	.....	$x_{1m}$	$y_1$
2	$x_{21}$	$x_{22}$	.....	$x_{2m}$	$y_2$
3	$x_{31}$	$x_{32}$	.....	$x_{3m}$	$y_3$
$\vdots$	$\vdots$	$\vdots$		$\vdots$	
$\vdots$	$\vdots$	$\vdots$		$\vdots$	
n	$x_{n1}$	$x_{n2}$	.....	$x_{nm}$	$y_n$
totals	100%	100%		100%	100%

회귀모형 :

$$y_i^c = \phi_1^c x_{i1} + \phi_2^c x_{i2} + \dots + \phi_m^c x_{im}, \quad 1 \leq i \leq n \quad (11)'$$

제약조건 :

$$q_{k1} \phi_1^c + q_{k2} \phi_2^c + \dots + q_{km} \phi_m^c \geq e_k, \quad 1 \leq k \leq \ell_1 \quad (12)'$$

$$q_{k1} \phi_1^c + q_{k2} \phi_2^c + \dots + q_{km} \phi_m^c = e_k, \quad \ell_1 \leq k \leq \ell$$

(11)' 식을 행렬로 표시하면 아래와 같다

$$Y^c = X \Psi^c \quad (11)$$

(12)' 식의 제약조건의 계수들을  $\ell \times m$ 의 행렬,  $Q$ 로 나타내면  $Q$ 는 다시 부등호를 포함하는 제약조건을 나타내는  $\ell_1 \times m$ 의 행렬,  $\bar{Q}$ 와 등호의 제약조건  $\ell_2 \times m$ 의 행렬,  $\underline{Q}$ 로 나타낼 수 있다.

$$Q = \begin{pmatrix} \bar{Q} \\ \underline{Q} \end{pmatrix} \quad (12)$$

한편  $E$ 도 위와 같은 방법으로 나타내면 아래와 같다.

$$E = \begin{pmatrix} \bar{E} \\ \underline{E} \end{pmatrix} \quad (13)$$

따라서

$$\bar{Q} \Psi^c \geq \bar{E}$$

$$\underline{Q} \Psi^c = \underline{E} \quad (14)$$

와 같이 되면 (11)(14)식의 해는 다음 방법으로 구할 수 있다[11].

- 1) Gran-Schmidt적교화방법에 의하여 데이터 ( $x$  - 공간)를 Euclidian공간에서의 값으로 바꾼다.
- 2) Lagrange 미정계수 결정법에 의하여 제약조건을 포함시킨다.
- 3) 부등호를 포함한 제약조건을 적용시키고 최소

Table 3. Apparatus dimensions.

Unit:m/m

System Dimension	*FV10L/ FB-3	*FV10L/ DFB-2	*FV20L/ DFB-4	*FV20L/ FB-5
Vessel diameter (internal)	216	216	272	272
Impeller diameter	76.3	69.9	90.1	101.5
Disk diameter	—	47.8	60.1	—
Blade length	27.2	17.2	22.7	38.2
Blade height	9.3	14.4	18.2	12.6
Blade thickness	1.55	1.95	1.95	2.45
Disk thickness	—	1.95	1.95	—
Baffle width	21.5	21.5	27.3	27.3
Baffle thickness	1.95	1.95	1.95	1.95
Shaft diameter	12.7	12.7	12.7	12.7

\*FV10L, FV20L: two sizes of pyrex cylindrical vessel (nominal size 101, 201 respectively).

FB, DFB : flat turbine and disk flat turbine type impeller, respectively.

자승법에 의한 수렴방법으로 해를 구한다.

- 4) 구한 해를 다시  $x$ -공간의 해로 바꾼다.

### III. 실험

본 실험에서는 Chemineer-Kenics사의 model ELB 교반기를 사용하였고 교반조의 기하학적 구조는

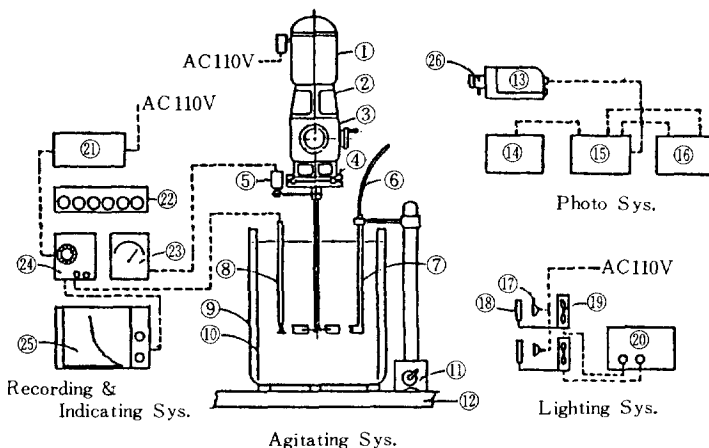


Fig. 2. Experimental apparatus(schematic).

- |     |                                |
|-----|--------------------------------|
| No. | Part                           |
| 1   | 1/4 HP ELEC. MOTOR             |
| 2   | MOTOR ADAPTER                  |
| 3   | TRANSMISSION W/DIAL CALIPER    |
| 4   | BASE & THRUST BEARING          |
| 5   | TACHOGENERATOR                 |
| 6   | FIBER-SCOPE                    |
| 7   | EXTENSION TUBE                 |
| 8   | ELECTRODE                      |
| 9   | PYREX VESSEL                   |
| 10  | 4-EQUALLY SPACED BAFFLES       |
| 11  | MAGNETIC BASE                  |
| 12  | MACHINED & LEVELED STEEL PLATE |
| 13  | 16 M/M HYSPEED CAMERA          |
| 14  | CAMERA POWER SOURCE            |
| 15  | CAMERA CONTROL UNIT            |
| 16  | TIMING & EVENT MARKER          |
| 17  | TUNGSTEN HALOGEN LAMP          |
| 18  | HEAT ABSORBING FILTER          |
| 19  | FAN                            |
| 20  | DC POWER SUPPLY                |
| 21  | TRANSFORMER                    |
| 22  | RESISTANCE DECADE BOX          |
| 23  | RPM INDICATOR                  |
| 24  | OHM METER                      |
| 25  | YT-RECORDER                    |
| 26  | C-MOUNT ADAPTER                |

Rushton [12] 형태를 따라 제작하였으며 flat disk turbine 및 flat turbine 두가지 형의 교반날개를 사용하였으며 교반용기 및 교반날개의 제원을 Table 3에 나타내었다.

액적촬영장치는 fiber-scope (Olympus model 11D3), 고속촬영기 (Photo-Sonic, mod. 16mm 1-PL) 및 조명장치로 구성되어 있으며 Fig. 2에 장치개요를 나타내었다.

계는 세가지를 선정 사용하였는데 연속상은 공히 일차증류수를 사용하였고 분산상으로는 63% kerosene+37% dichlorobenzene 혼합물 (S-1), 40% xylene+60% paraffin oil 혼합물 (S-2) 및 methylisobutyl ketone (S-3)을 사용하였으며 계의 물리적 특성치를 Table 4에 나타내었다. 물리적 특성치의 측정치는 다음과 같은 방법이나 기구를 이용하였다. 즉, 계면장력의 경우는 "drop weight method", 밀도는 비중병을 사용하였으며, 점도는 "Canon-Fensky viscometer"를 사용 동점도를 측정하였는데 점도 측정시 20°C의 증류수를 사용하여 점도계 정수를 구하였으며 유출시간은 No. 25 및 No. 50을 사용하여 500 sec. 이상으로 하여 속도보정을 피하였다. 한편 문헌상에 나타난 측정치와의 차이는 물질전달속도를 측정하기 위하여 사용한 용질인 heptanoic acid의 영향으로 보인다.

국부적인 정체영역을 배제하고 균일한 분산상을 얻기 위하여서는 최소교반속도 [13, 14, 15] 이상에서 교반을 수행하여야 하는데 이러한 조건하에서는 분산상이 현탁상태로 존재하기 때문에 체유량이 증가함에 따라 액경을 측정하기가 대단히 힘들다. 따라서 본 실험에서는 Fiberscope (대물렌즈의 viewing angle: 20°, 초점거리: 13mm-∞)를 사용하여 국부위치에서의 액적을 촬영하였으며 초점거리

Table 4. Physical properties of the systems used at 20°C.

System	densities (g/cm <sup>3</sup> )		viscosities (cp)		Interfacial tension (dyne/cm)
	cont. phase	disp. phase	cont. phase	disp. phase	
S - 1	0.9978	0.9654	1.	1.22	34.2
S - 2	0.9918	0.8439	1.2	2.89	5.0
S - 3	0.9847	0.8155	0.93	0.59	9.8

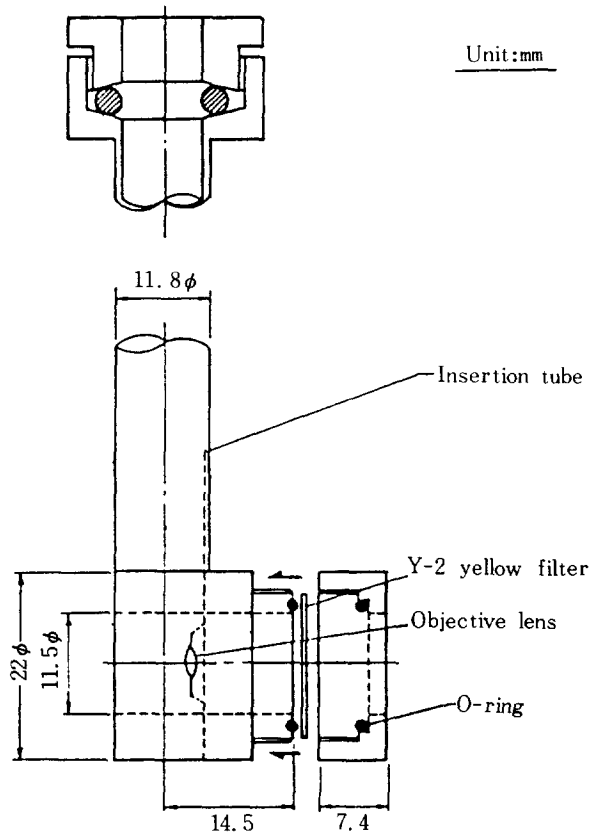


Fig. 3. Extension tube.

이내에 위치하는 액적의 간섭을 방지하고 작은 viewing angle에 의한 image blowing 현상을 방지하기 위하여 Fig. 3과 같은 extension tube를 고안하여 고속 촬영장치와 함께 사용하였다. (Fig. 2 - ⑦).

조명은 300W tungsten halogen lamp 두개를 사용하였고 film은 KODAK Linagraph Shellburst film 2476 (ASA 160)을 사용, 120ft film 1 roll당 정상 조건하에서 5-6 조건을 촬영할 수 있었다. 액적수는 통계적 신뢰도를 위하여 200-300개를 세었다. 촬영장치의 해상능력, 촬영시의 문제점 및 기타 자세한 사항은 전보 [11]에 수록되어 있다.

조업조건의 범위는 체유량의 경우 3~9%, 교반속도의 경우는 최소교반속도 [13~15] 이상인 300~490 RPM, 온도는 18~23°C 범위에서 실험을 수행하였다.

한편 측정 액경의 조업변수에 따른 상관 관계를 얻기 위하여 유체에 전달된 에너지를 측정하였다. 이는 torque를 force gauge에 연결된 정밀 스프링

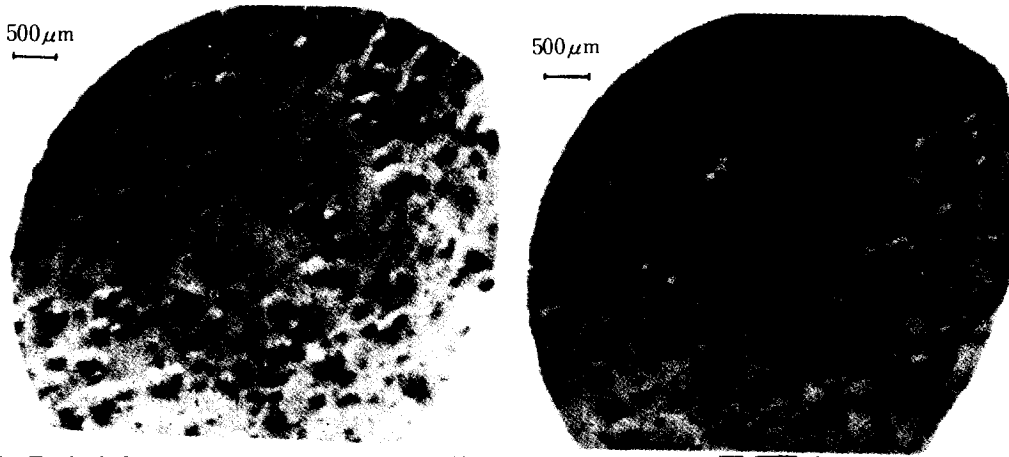


Fig. 4. Typical photograph of the dispersion.(S-3)

에 의하여 counter-balancing시켜 force gauge에 나타난 값과 그때의 RPM 값으로부터 계산하였다[11].

#### IV. 결과 및 고찰

##### IV - 1. 액경분포의 형성기구

Fig. 4에 위의 방법으로 촬영한 액적군의 대표적인 사진을 나타내었다. 측정된 액경분포의 결과로부터 다음식을 사용하여 Sauter-평균액경( $d_{32}$ )을 구하였다.

$$d_{32} = \frac{\sum d_i^3 / \sum d_i^2}{\text{magnification ratio}} \quad (15)$$

분산기구에 의하여 형성된 액적군에 적용할 수 있는 (4)식을 사용하여 측정된  $d_{32}$ 값으로부터 액적의 형성기구를 검토하였다. 한편 Sprow[10], Brown과 Pitt[16]에 의하면  $d_{32}$ 와  $d_{max}$ 은 다음의 선형관계를 갖는다. ( $k=0.38-0.7$ )

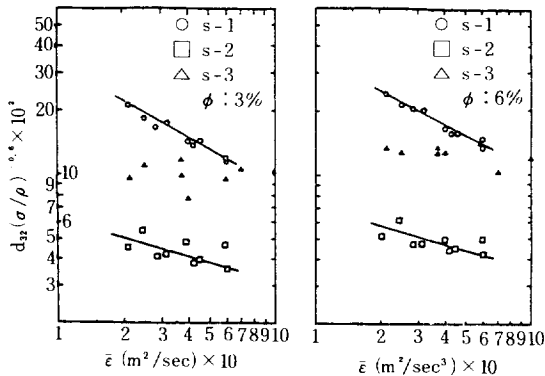
$$d_{32} = k \cdot d_{max} \quad (16)$$

Fig. 5에 의하면 S-1, 2계는  $\bar{\epsilon}^{-0.33} \sim \bar{\epsilon}^{-0.55}$ 의 상관관계를 나타내어 (4), (16)식을 적용시킬 수 있는 경우로 판단되며 합체의 영향은 무시되고 분산기구만으로 액적의 형성기구를 설명할 수 있다고 생각된다.

이와같은 결과는 Mlyněk[17]등이 언급한 상호용해도가 낮고 계면장력이 큰 계에서는 위치에 따른 액경분포의 차이를 무시할 수 있다는 점과, Coulaloglou와 Tavlarides[18]의 합체속도에 비하여 순환속도가 빠른 경우 분산기구에만 존재하여 평균액경을 예측할 수 있다는 제안에 부합된다. 그러나 S-3계의 경우는 합체가 잘 일어나는 계로써  $\bar{\epsilon}$  값의 증가에 따른 평균액경의 감소 경향을 관찰할 수 없으며, 데이타의 무작위성은 분산기구만으로는 설명될 수 없다고 판단된다.

이에 따라 S-3계 (MIBK-H<sub>2</sub>O)의 측정결과를 갖고 액적의 합체현상을 규명하고자 시도하였다.

Fig. 5는 Table 3에 나타난 제원의 장치를 사용하여 체유량 3%, 6% 및 RPM에 따른 인입동력에 대한 (54 실험조건) 평균액경을 나타내는 것으로써 측정오차 범위내에서 두 교반날개의 형태에 따른 평균액경의 차이는 없다고 판단되는데 이는 Nagata[14], Brauer[20]등이 언급한 바와같이 교반날개가 차지하는 체적내의 유체는 고체와 같은 형태를 한다는 사실로써 설명할 수 있다.

Fig. 5.  $\bar{\epsilon}$  vs.  $d_{32}(\sigma/\rho)^{-0.6}$ 

##### IV - 2. 합체율의 해석

Fig. 6에서와 같이 30 $\mu$ m의 등간격으로 액경의

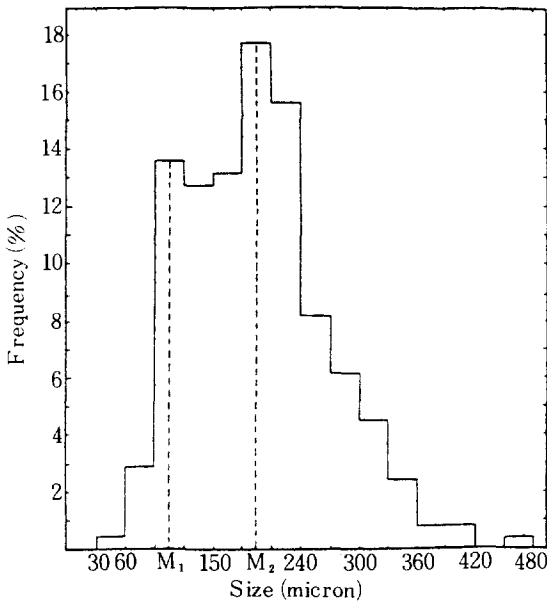


Fig. 6. Number frequency histogram for run no. 62.

(S-3, FV20L/DFB-4,  $\phi = 3\%$ , RPM = 350)

빈도수를 나타내면 bimodal 형태를 나타낸다. 두 최빈도수에 해당하는 대표액경을 각각  $M_1$  및  $M_2$ 라고 하고 같은 측정분포를 Fig. 7에서와 같이 누적분포로 나타내면 완전한 sigmoid 형태를 얻을 수 있는데 이와같은 형태는 S-3의 모든 실험결과를 대표한다. Fig. 1의 설명에서와 같이 두 모분포함수를 각각  $F_1$ ,  $F_2$ 라고 할 때 대수-정규분포로 나타낼 수 있는 두 모분포함수는 두개의 매개변수,  $M_g$ ,  $\sigma_g$ 에 의하여 결정된다. 이를 위해서 먼저 Fig. 6의  $M_1$ ,  $M_2$ 값을 각각  $M_{g1}$ ,  $M_{g2}$ 로 한다. (대수-정규분포의 경우 중앙치가 곧 대수 평균치가 된다) 다음 누적분포곡선이 점근적으로 최대 및 최소액경으로 접근한다는 사실에 착안하여  $F_1$ ,  $F_2$ 가 각각 위의 최소 및 최대액경에 점근적으로 접근하도록 직선을 긋고 그 기울기로 부터  $\sigma_g$ 값을 일차적으로 구한다.

$$\sigma_g = \frac{d @ 84.13\% - d @ 50\%}{d @ 50\% - d @ 15.87\%}$$

물론 두 매개변수  $M_g$ ,  $\sigma_g$ 로 모분포함수를 나타낼 수 있으나 (9)식으로 측정분포를 curve fitting 시키기 위하여서는  $d_0$ 와  $d_\infty$ 값을 구하여야 한다. 이에 따라 먼저  $d_0$ 는 Kolmogoroff의 eddy scale에 해당하는 크기를 갖는다고 가정 [22]하여  $d_0 = 40 \mu m$ ,  $d_\infty$ 는 (16)식에 의하여  $k=0.5$ 로 하고 측정된  $d_{50}$  값으로부터  $d_{\infty 2} = 540 \mu m$ , Fig. 7로부터  $d_\infty = 140 \mu m$ 로

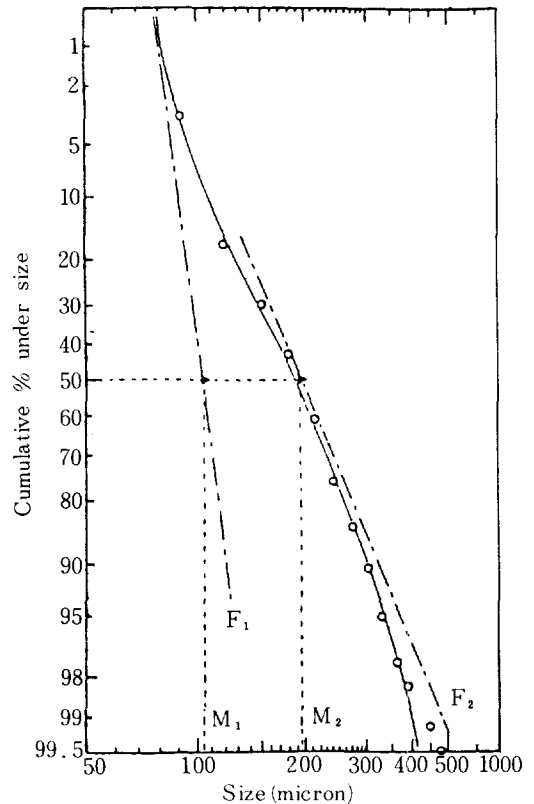


Fig. 7. Cumulative drop size distribution (run no. 62) and bimodality analysis method.

(S-3, FV20L/DFB-4,  $\phi = 3\%$ , RPM = 350)

하여 bimodality 분석을 수행하였으나 결과는 만족하지 못하였다.

이와같은 결과는 액적촬영의 필연적인 오차라고 볼 수 있는 극한치의 측정에 기인한다고 볼 수 있다. 즉 측정분포 가운데 최소 및 최대액경은 200-300개의 측정 갯수 가운데 1-2개의 빈도수를 가질 뿐이다. 또한 최소액경 부근의 액적은 촬영시 coincidence 영향에 의한 오차가 크게 되고 최대액경 부근의 액적은 촬영면적에 들어올 수 있는 기회가 무작위적이라고 할 수 없기 때문에 [11] 역시 분포 측정에 필연적인 편차를 초래한다.

한편 Kottler [21]는 통계측에서의 편차는 이 편차가 어느 화물수준에서 발생하느냐에 따라 다른 가중치를 갖는다는 사실을 지적하였다. 즉 log-probability chart 상에서 종축은 실제로는 정규편량 (normal deviate) 이므로 (정규편량  $z$ 가  $0-\infty$ 까지 변할 때 화물  $P$ 는 50-100%까지 변화도록 유한화시킨 것) 99.5%수준에서의 편차는 50% 수준에서의

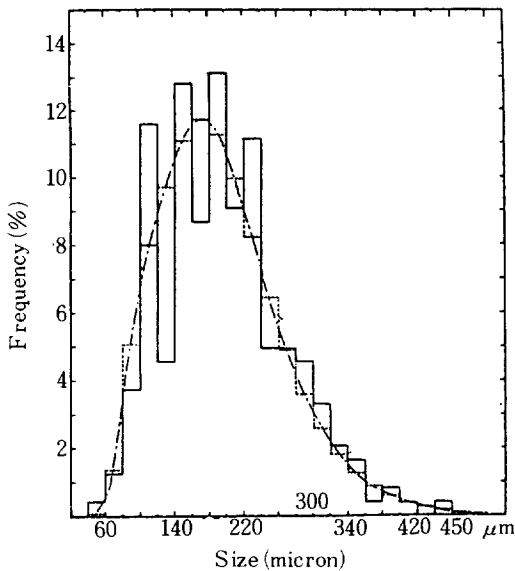


Fig. 8. Approximation by bimodality analysis.

편차와 비교하여 실제로는 1/28만큼 줄여서 고려하여야 한다. (표준정규분포표에 의한 산술) 따라서 극한치를 log-probability graph를 이용한 액경분포 해석에서 결정적인 역할을 한다고 볼 수 없다. 이와같은 근거로부터 0,  $\infty$ 로 놓고 Fig. 7에서 결정된 매개변수들을 갖고 최종적인 bimodality해석을

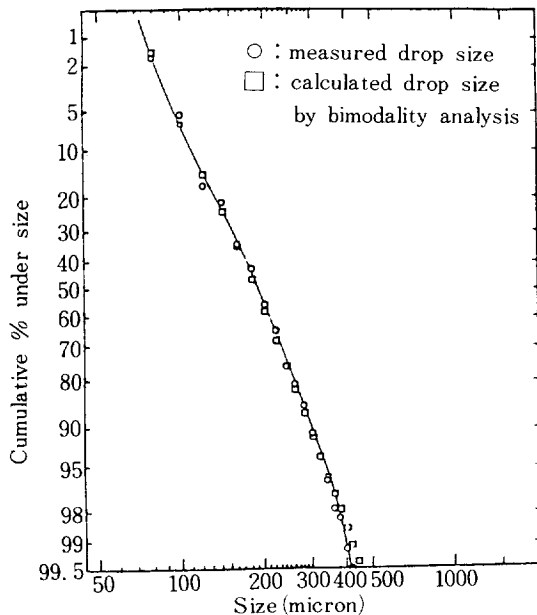


Fig. 9. Calculated drop size distribution by bimodality analysis(run no. 62).  
(S-3, FV20L/DFB-4,  $\phi = 3\%$ , RPM = 350)

수행하였다.

Bimodality 해석의 입력자료는 측정분포 Y, Fig. 6, 7로부터 구한 각 분포의  $M_g$ ,  $\sigma_g$  및 제약조건 Q, E가 되며, 이로부터 각 분포함수의 액경구간별 빈도수를 구하여 Y와 가장 접근한 분포  $Y^c$  및 이때의 두 분포 구성율  $\phi_i$ 를 계산하게 된다. Fig. 8에 20  $\mu m$ 의 간격으로 측정 결과를 다시 나타내었고 bimodality 해석에 의한 계산 결과를 점선 히스토그램으로 표시하였다. 한편 곡선은 불연속적인 측정분포를 bimodality 해석에 의하여 연속적인 분포 함수로 나타낸 것이 된다.

Fig. 8의 결과를 누적분포로 Fig. 9에 다시 나타내었다. 이 그림으로 부터 bimodality 해석 방법으로 측정분포를 훌륭하게 나타낼 수 있음을 알 수 있다.

구성율  $\phi_i$ 의 계산결과에 의하면 실험번호 62의 경우  $\phi_1 = 11.3\%$ ,  $\phi_2 = 88.7\%$ 였다. 이는 교반날개에 의한 분산에 의하여 형성된 최초의 액적군 가운데 88.7%는 impeller의 유로가 바뀌기 이전에 (교반날개 끝단에서 기벽으로 2/3 거리 위치) 이미 합체가 되어 새로운 합체분포를 갖는다는 것을 의미한다.

S-3의 13실험조건의 bimodality 해석결과에 의하면  $\phi_2 = 65-90\%$ 의 값을 갖는바 이와같은 사실은 합체가 잘 일어나는 계의 경우 교반강도가 강한 impeller stream에서 대부분의 합체가 이루어진다는 사실을 밝혀준다.

#### IV-3. 평균액경의 상관관계

Fig. 5에서는 분산기구만에 의하여 평균액경을 예측할 수 있는 (4)식의 적용 가능성을 검토하였다. 상기 그림에서 보는바와 같이 S-1, 2의 평균액경은 분산기구만으로 나타낼 수 있다고 판단되는 반면 ( $\phi$ 에 따라 액경의 증가현상을 나타내고, S-2의 경우는 비교적 편차가 크지만) S-3의 경우는 분산기구만으로 설명할 수 없다는 사실은 이미 지적하였다. 이에따라 우선 S-1, 2에 체유량과 계의 물리적 특성치를 첨가한 형태의 관계식을 적용시켜 평균액경의 측정치를 나타내고자 시도하였고, 다음은 위와 유사한 형태의 관계식을 갖고 합체상향이 강한 S-3를 포함한 S-1, 2, 3계의 평균액경을 예측할 수 있는지의 여부를 여러 형태의 상관관계 모형 [11]을 사용하여 검토하였다.



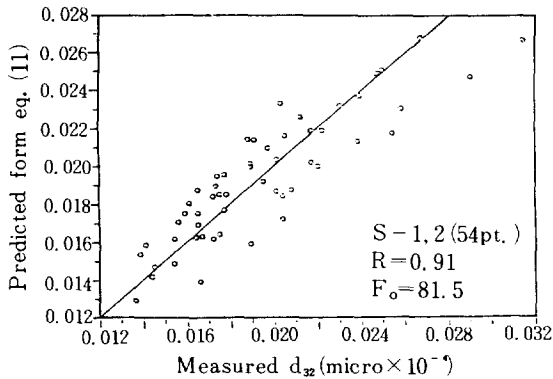


Fig. 10.  $d_{32}$  correlation result for s-1, 2.

상관관계의 모형은 지수형태로 하였기 때문에 먼저 양변에 대수값을 취하여 선형화시킨 다음 중회귀분석을 통하여 최적의 상관관계를 구하는 방식을 채택하였다.

실험치와 모형에 의한 추정치의 적합결여도를 판정하기 위하여 다음의 값을 계산 비교하였다.

1)  $R$ : 상관계수

2)  $F_0$ :  $MSR/MSE$ =검정통계량(각주 참조)

한편 주어진 상관관계에서 중요하지 않은 변수를 제거시키기 위하여 부분 F-검정(partial F-test)를 수행하여  $R$ ,  $F_0$ 값을 비교하였고 이와같은 방법으로 구한 상관관계들[11]중 변수들의 지수의 방향 및 크기가 앞절에서 설명한 이론과 부합되고 물리적 의미를 지니는 것으로 최종형태의 상관관계를 선정하였다.

회귀분석결과를 검토하여 최종의 상관관계를 선정하는 과정에서 Table 1의 기준결과와 비교 다음의 사실들을 알 수 있었다.

S-1, 2계의 경우

1)  $We$ 수의 지수방향 및 크기는 기존 상관관계와 [8, 17, 18] 일치하나  $We$ ,  $\phi$ 만의 간단한 상관관계식으로는 측정결과를 나타낼 수 없다.

2) 분산상의 체유량의 영향을 고려함에 있어,  $\phi^n$ 의 지수형태나  $(1+c\phi)^n$ 형태의 계산결과와는 같은 차

수의 적합결여도를 나타낸다. ( $F_0$ 값은 오히려  $\phi^n$ 의 형태가 더 높다)

3) 부분 F-검정결과( $\frac{d_{32}}{D}$ )는 ( $\frac{D}{T}$ )에 약 함수관계를 갖는다. ( $\frac{D}{T}$ )를 제외시킨 결과 같은 차수의 상관계수와 더 큰  $F_0$ 값을 얻을 수 있으므로 분산기구에 의한 계에서는 장치인자( $\frac{D}{T}$ )의 영향은 무시할 수 있음을 알 수 있다.

4) 물리적 특성치의 영향에 있어( $\frac{d_{32}}{D}$ )는( $\frac{\Delta\rho}{\rho}$ )에 약 함수관계를 나타내나( $\frac{\mu_a}{\mu_c}$ )에는 강한 함수관계를 갖는다.

최종으로 선정한 S-1, 2계의 상관관계는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{d_{32}}{D} = 0.116 \phi^{0.18} We^{-0.58} \left( \frac{\mu_a}{\mu_c} \right)^{1.31} \quad (17)$$

(17)식에 의한 계산결과와 측정치를 선형척도를 사용하여 Fig. 10에 나타내었다.

그림에서 보는 바와같이 상관계수  $R=0.91$ 로 분산기구에 의하여 액경분포를 예측할 수 있는 계의 경우는 (17)식으로 평균액경을 잘 나타낼 수 있음을 알 수 있다.

S-1, 2, 3계의 경우

Fig. 5에서 보는 바와같이 S-3 계를 포함시켜 같은 상관관계식으로 평균액경을 나타내고자 하는 점에서는 약간의 무리가 있다고 생각되나 회귀분석결과는 다음과 같다.

1) S-1, 2계와 달리 선정한 무차원군에 따라서는( $\frac{D}{T}$ )의 강한 함수관계를 나타낸다.

2) 물리적 특성치에 큰 영향을 받는다.

검정한 회귀분석모형의 대부분이 S-1, 2계에 적용한 (17)식에 비하여 낮은 상관계수와 검정 통계량,  $F_0$ 값을 나타내었다 (17)식과 유사한 무차원군을 또

(각주)

MSR: mean of squares due to regression

MSE: mean of squares due to residual errors

회귀방정식이 유의수준  $\alpha$ 에서 실험데이터의 성질을 설명하는데 유의한가를 검정하기 위한 검정통계량  $F_0 > F(\nu_1, \nu_2, 1-\alpha)$  이면 회귀방정식은 유의하다.

$\nu_1$ : degree of freedom for the regression

$\nu_2$ : degree of freedom for the residual

합하고 비교적 높은 상관계수,  $R=0.80$ ,  $F_0=29.5$ 을 갖는 다음식을 최종 상관관계식으로 선정하였다.

$$\frac{d_{32}}{D} = 4.62 \times 10^{-2} \phi^{0.28} \left( \frac{\Delta\rho}{\rho_c} \right)^{0.19} \left( \frac{\mu_d}{\mu_c} \right)^{-0.17} \quad (18)$$

(17) (18)식을 비교하면 점도에 관한 역함수 관계를 나타내고 있으며 Shinnar [4]의 결과와도 다른 형태를 취하고 있으나 합체성향이 강한 계를 포함하고 있다는 점에서 의미를 찾을 수 있으며 추후 계의 선정에 따르는 어려움을 극복할 수 있다면 차이점을 규명할 가치가 있다고 판단된다.

## V. 결 론

1) Fiber-scope와 새로이 고안한 extension tube를 사용하여 impeller stream을 포함한 교반조내 국부 위치에서 직접 촬영할 수 있었다.

2) Bimodality 해석에 의한 두 모분포함수의 구성비 해석에 의하면 수행한 실험조건하에서 액적이 impeller stream을 떠날 때에는 이미 액적군의 65~90%는 합체에 의하여 형성된 액적군의 분포로 구성된다. 이에 더하여 단일분포함수를 사용하여 측정분포를 나타내는 방법보다는 bimodality 해석방법의 신뢰성이 높다고 판단된다.

3) 계의 특성치 및 실험조건에 따른 평균액경의 상관관계는 분산기구에 의하여 설명될 수 있는 계의 경우는 (17)식으로 합체가 현저히 일어나는 계를 포함시킨 경우는 (18)식으로 나타낼 수 있다.

## NOMENCLATURE

$C, C_i(i=1,2, \dots)$  : Constant defined in each equation

$d$  : Drop diameter, L

$d_{32}$  : Sauter mean diameter, L

$D$  : Impeller diameter, L

$e$  : Constraint value

$E$  : Constraint value ( $\ell \times 1$  matrix)

$f(x)$  : Probability distribution (or density) function

$f_\phi$  : Hold up related function

$F(x)$  : Cumulative distribution function

$M_g$  : Geometric mean diameter, L

$Q$  : Constraint coefficients on  $\psi(\ell \times m$  matrix)

$T$  : Vessel diameter, L

$t_c$  : Circulation time, T

$u^2(x) = u(x_1) - u(x_2)^2$ , mean square of the difference of the velocities at distance  $x$

$W_e$  : Weber no. defined by eq.(2)

$x$  : Radius vector or drop diameter  $d$ , used to avoid notational confusion

$X$  : Random variable

$Y$  : Measured drop size distribution, ( $n \times \ell$  matrix)

$Y^c$  : Predicted drop size distribution by the regression where constraints are applied, ( $n \times \ell$  matrix)

## Greek Letters

$\epsilon$  : Energy dissipation rate per unit mass,  $L^2/T^3$

$\bar{\epsilon}$  : Average energy dissipation rate per unit mass,  $L^2/T^3$

$\mu$  : Dynamic viscosity, M/LT

$\rho$  : Density, M/L<sup>3</sup>

$\Delta\rho$  : Density difference between cont. phase and dispersed phase, M/L<sup>3</sup>

$\sigma$  : Interfacial tension, M/LT<sup>2</sup>

$\sigma_g$  : Geometric standard deviation

$\phi$  : Fractional volumetric hold up

$\psi_i$  : Compositional ratio for each mother distribution (regression coefficient)

## Superscript

$c$  : Calculated

## Subscripts

$c$  : Continuous phase

$d$  : Dispersed phase

## REFERENCES

1. Davies, J.T.: "Turbulence Phenomena",

- Academic Press, Inc. (1972).
2. Hinze, J.O.: "Turbulence", 2nd. ed, McGraw-Hill p.223, 339 (1975).
3. Keey, R.B.: Brit. Ch. Eng., 12, 1081 (1967).
4. Shinnar, R.: J. Fl. Mech., 10, 259 (1961).
5. Hinze, J.O.: J. AIChE., 1, 289 (1955).
6. Shinnar, R. and Church, J.M.: I & EC., 52, 253 (1960).
7. Rodger, W.A., Trice V.G., Jr. and Rushton, J.H.: C.E.P., 52, 515 (1956).
8. Chen, H.T. and Middleman, S.: J. AIChE., 13, 989 (1967).
9. Sprow, F.B.: J. AIChE., 13, 995 (1967).
10. Sprow, F.B.: C.E.S., 22, 435 (1967).
11. Park, B.S.: "Liquid-Liquid Dispersion and Mass Transfer in Stirred Vessels", Ph.D. Thesis, Chungnam Nat. Univ., July (1983).
12. Rushton, J.H. and Oldshue, J.Y.: C.E.P., Part II, 49, 267 (1953).
13. Skelland, A.H.P. and Lee, J.M.: J. AIChE., 27, 99 (1981).
14. Nagata, S.: "Mixing, Principles and Applications", (1975), a)pp.138-164, b)pp.299-314, c) 299-300 Kodansha.
15. Skelland, A.H.P. and Sekaria, S.: I.E.C. Proc. Des. Dev., 17, 56 (1978).
16. Brown, D.E. and Pitt, K.: a) C.E.S., 27, 577 (1972). b) C.E.S., 29, 345 (1974).
17. Mlynek, Y. and Resnick, W.: J. AIChE., 18, 122 (1972).
18. Coulaloglou, C.A. and Tavlarides, L.L.: a) J. AIChE., 22, 289 (1976). b) C.E.S., 32, 1289 (1977).
19. Henrickson, P.H.: "Drop Size Distribution Studies in a Stirred Tank", M.S. Thesis. Univ. of Idaho (1971).
20. Brauer, H.: "Stirred Vessel Reactors," Manuscripts of Special Lectures held at Chung Nam Nat. Univ., Mar. (1983).
21. Kottler, F.: J.F.I., 251, 617 (1951).
22. Cutter, L.A.: J. AIChE., 12, 35 (1966).
23. Allen, T.: "Particle Size Measurement", 3rd ed., Chap. 4, Chapman and Hall (1981).
24. Vermeulen, T. et al.: C.E.P., 51, 85-F (1955).
25. Park, J.Y. and L.M. Blair: C.E.S., 30, 1057 (1975).