

제한된 구조내의 오염된 기포의 계면변형에 관한 연구

윤도영[†] · 신승일 · 박창원^{*}

광운대학교 공과대학 화학공학과

^{*}미국 플로리다대학교 화학공학과

(1997년 4월 14일 접수, 1997년 8월 13일 채택)

A Study on the Interfacial Deformation of Contaminated Bubbles in a Confined Geometry

Do-Young Yoon[†], Seung-Il Shin and Chang-Won Park^{*}

Department of Chemical Engineering, Kwangwoon University, Seoul 139-701, Korea

^{*}Department of Chemical Engineering, University of Florida, Gainesville, FL 32611, USA

(Received 14 April 1997; accepted 13 August 1997)

요 약

본 연구에서는 수평 Hele-Shaw 셀내에서 주변 액체에 의하여 구동되는 오염된 기포의 운동과 변형을 해석하였다. 효과적인 계면변형을 해석하기 위하여 서로 섞이지 않는 물과 실리콘오일 계를 2상 흐름에 대한 기본계로 채택하였다. 셀 내에 물기포의 유동 및 계면변형에 대한 계면오염의 영향은 계면활성제의 농도를 변화시키면서 조사하였다. 실리콘 오일의 기본유동의 크기가 작을 경우에 기포의 모양은 전반적으로 원 또는 타원모양을 보여주었다. 기본유동의 크기가 커질수록 기포는 유동방향으로 신장되었으며, 이때의 기포속도는 기본유동보다 큰 것으로 관측되었다. 계면이 임계 micelle 농도이하로 오염되어 있고 기포의 유동이 기본유동보다 빠른 경우에는, 신장된 기포는 유동방향에 대하여 둥근 선단부와 날카로운 꼬리의 후미부를 갖는 기포의 모양으로 변형되었다. 그러나, 계면활성제의 농도가 더욱 증가하여 임계 micelle 농도에 이르게 되면 기포의 신장된 길이는 오히려 감소하는 경향을 보여주었다. 이와 같은 관측들은 계면오염에 기인하는 것으로 고려된다. 즉, 계면변형은 기포의 계면을 따라 오염물이 다르게 분포되어 계면장력에 의한 원형의 구조가 불안정해지는 Marangoni 효과에 의한 것으로 고려된다.

Abstract—The motion and deformation of contaminated bubbles driven by a surrounding liquid in a horizontal Hele-Shaw cell has been studied. For the effective analysis of interfacial deformation, immiscible water-silicone oil system was adopted as a two-phase flow environment. The effects of interfacial contamination on the motion and deformation of water bubble were investigated with the variation of the controlled quantity of surfactants. For the small basic flow of silicone oil, the shapes of bubble were formed as a circle or an ellipse. As the magnitude of basic flow was increased, the shape of deforming interface was elongated along the flow direction. And the elongated bubbles moved faster than the basic flow. If the bubble was contaminated under the critical micelle concentration and it moved faster than the basic flow, the elongated bubble transformed itself into sharp-tailed bubble with round-front cap. And the length of elongated bubble with sharp tail was shortened with increasing the concentration of surface-active contaminants up to the critical micelle concentration. It is considered that these observations may be due to the influence of surface-active contaminants. The present study suggests that the Marangoni effect due to the different interfacial tension along the interface makes the shape of water bubble in a silicone oil unstable.

Key words: Deformation, Contaminated Bubble, Interfacial Tension, Marangoni Effect, Hele-Shaw Cell

1. 서 론

계면유변학은 기포, 유탁액, 또는 기포성 유체와 같은 동적인 유체의 계면이 존재하는 수많은 자연현상 및 산업공정에 있어서 중요한 역할을 한다. 특히 원유회수기술, 폐수처리, 부유기술, 소방기술, 열전달 장치 등과 같은 분리공정 등에서 유체의 계면현상에 대한 이해가 요구되고 있다. 이와 같은 기술적인 중요성에 비추어, 계면 유

변학은 독립된 고유한 연구분야로 자리잡혀 왔으며, 지난 30여년 동안 이 분야의 다양한 주제에 대하여 수많은 연구가 수행되어 왔다 [1]. 그러나, 계면의 불안정한 요인들이 관련공정에서 핵심적인 역할을 하고 있다는 공통적인 인식에도 불구하고, 다양한 계면현상들이 아직까지 확실히 규명되어 있지 못하고 있는 실정이다.

계면불안정성을 비롯한 계면에서의 유변학적 특성들은 계면의 복잡한 3차원적 구조로 인하여 그 해석은 실로 복잡하다. 특히구조 및

관련 형태를 단순화하기 위하여, 포텐셜 유동계로 널리 알려져 있는 Hele-Shaw 셀을 기본계로 채택하여 많은 관련 연구들이 수행되어 왔다. 점성 유체로 채워져 있는 Hele-Shaw 셀에서 일정 크기의 기포의 운동은 Taylor와 Saffman[2]에 의하여 처음 해석되었다. 그들은 표면장력의 효과를 무시하고 기포의 면적과 속도를 2변수군으로 하는 엄밀해를 제시하였다. 그들의 예측에 의하면, 기포의 속도가 점성유체의 평균유속보다 큰 경우에만 기포 형태에 대한 해가 제시된다. 이는 기포의 속도는 항상 기포를 구동하는 벌크 유체의 그것보다는 크다는 것을 의미한다. 이때 기포의 형태는 원형 또는 타원형이다. 부력에 기인한 기포의 유동에 대한 Maxworthy[3]의 실험결과에 의하면, 항상 흐름방향으로 늘어난 타원형의 기포만이 관측되었다. 큰 기포는 Taylor와 Saffman[2]의 이론적인 예측보다는 빨리 움직였으나, 작은 기포는 기대치보다 느리게 움직였다. 반면에 Kopf-Sill과 Homsy[4]는 수평 Hele-Shaw 셀내의 벌크유체를 압력차로 구동시켜, 이로 인한 셀내의 기포의 속도 및 형상에 대한 실험적인 연구결과를 발표하였다. 놀랍게도 정상상태에 대하여 기포의 형상과 속도는 Taylor-Saffman의 이론적 예측 및 Maxworthy의 실험결과와는 큰 차이가 있었다. 관측된 기포의 형상은 매우 다양하며, 그중에서 기포의 후미부에 날카로운 꼬리를 갖는 기포는 처음으로 보고되어진 것이다. 꼬리형 기포는 원형 기포에 비하여 훨씬 빠르게 움직였으나, 원형의 작은 기포는 Taylor-Saffman의 이론적 예측치의 10% 정도로 느리게 움직였다. 이와같은 결과는 기포의 속도는 항상 점성유체의 유속보다 크다는 Taylor-Saffman의 이론적인 예측에 크게 위배되나, 이에 대한 적절한 설명은 제시되지 못하였다. 특이한 기포의 형태와 기포속도의 큰 차이는 압력구배에 의한 흐름에서만 관측되었다는 점이 매우 흥미롭다. Kopf-Sill-Homsy의 실험에서는, 계의 구동유체가 청결하여 전혀 오염되어 있지 않은 것으로 가정되어 있다. 그러나 Hele-Shaw 셀에서의 흥미로운 관측들은 계면활성 오염의 영향 원인일 수 있을 가능성은 충분하다.

계면활성효과에 대한 이론적 검토는, 미량의 계면활성오염물질이 계면장력을 변화시켜 기포의 운동 반대방향으로 계면전단응력을 유발시킨다는 개념하에 제반현상들이 설명되었으나[5-7], 실제현상에서는 계면활성제의 영향이 거의 고려되지 못하였다. 계면의 오염은 기/액 또는 액/액과 같은 다상유동계에서는 종종 피할 수 없는 상황이며, 이에 의한 계면활성효과들은 기포의 속도 및 형태를 비롯한 계면 불안정성과 같은 유동 상황에 있어서 특이현상을 유발시킨다. 최근 관심이 집중되고 있는 계면오염이 수반되는 계에 대하여, Ratulowski와 Chang[8]은 반무한인 긴 기포에 대한 유동을 해석하였으며, Park[9]은 Ratulowski와 Chang의 해석을 확장하여 유한한 길이의 기포에 대한 유동을 해석하였다. 이와 관련하여 Kopf-Sill-Homsy의 특이한 실험결과들이 계면오염과 관련되어 있을 가능성이 Park, Marudava와 Yoon[10]에 의하여 보고되었다. 그들은 실험을 통하여 계면활성물질이 계면의 변형 및 기포 또는 액적의 유동에 중요한 영향을 미치고 있음을 보여주었다. 따라서 계면의 오염이 특이한 형태의 기포모양을 양산함을 짐작할 수 있다. 이와같은 연구배경 하에, 본 연구에서는 특이한 기포의 형태와 계면오염의 상관관계에 기인한 기포의 변형 및 불안정한 요인들을 규명할 수 있는 이론적인 모델과 이를 실험으로 보완하였다. 계면오염에 대한 본 연구는 학문적으로도 매우 가치가 있고, 계면이 수반되는 다상 장치계의 설계 및 제어에 대하여 매우 유용한 정보를 제공하여 줄 수 있을 것이다.

2. 계면유동 방정식

본 연구에서 채택된 Hele-Shaw 셀은 포텐셜유동과 관련된 2차원 유동형상을 관측하기 위하여 주로 사용되는 장치로서, 넓은 두 평판 사이의 매우 작은 균일한 틈새를 가진 장치이다. 일반적으로 이 틈

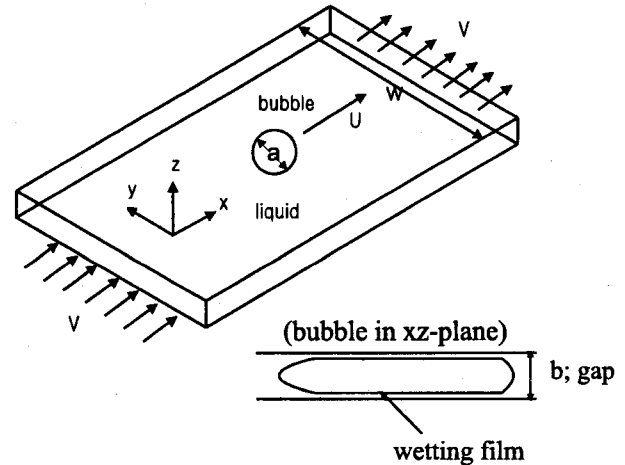


Fig. 1. Schematic of a bubble motion in a Hele-Shaw cell.

새 내부의 유체의 유동과 셀내의 기포를 각각 Hele-Shaw 유동과 Hele-Shaw 기포라고 부르기도 한다. Hele-Shaw 장치와 Hele-Shaw 기포의 개략도가 Fig. 1에 나타나 있다. 그림에서 z 방향인 셀의 틈새는 b, y 방향의 셀의 폭은 W, 그리고 정지된 기포의 직경은 a로 각각 나타나 있다. 셀내부의 유체의 운동은 압력구배에 의하여 x 방향으로 유발되어 진다. 이때 $a \gg b$ 인 Hele-Shaw 기포의 형상과 속도는 기포와 점성유체 계면에서의 효과적인 경계조건하에서 Hele-Shaw 식의 해로부터 결정된다. Fig. 1에 나타나 있듯이, 점성액체로 채워져 있는 Hele-Shaw 셀내를 일정속도 U로 움직이고 있는 유한한 길이의 기포를 고려하자. 이때 기포는 점성액체의 기본속도 V에 의하여 같은 방향으로 구동되어지며, 흐름방향에 대하여 대칭의 모습을 보인다. 기포는 유동의 크기가 비교적 작아 평균속도가 압력에 비례하는 Hele-Shaw 식을 만족한다고 가정하자. 유동하는 기포를 고정좌표계로 하기 위하여 좌표계를 적절히 설정하면, 기포주위의 기본액체는 V-U로 움직이고 있게 된다. 정상 상태에 대한 Hele-Shaw 유동방정식과 경계조건들은 다음과 같다[11].

$$\nabla \cdot \vec{U} = 0 \quad (1)$$

$$\nabla P = -\frac{12\mu}{b^2} \vec{U} + \rho \vec{g} \quad (2)$$

$$\text{B.C.'s: } \vec{U} \rightarrow V-U \quad \text{far away from the bubble} \quad (3a)$$

$$\vec{n} \cdot (\vec{U} - U) = 0 \quad \text{at the bubble surface} \quad (3b)$$

여기서 \vec{U} 와 P는 셀의 틈새로 평균화되어 있는 유체의 2차원 속도벡터와 압력을, 그리고 μ , ρ 와 g 는 기본유체의 점도, 밀도와 중력가속도를 각각 나타낸다. 한편 \vec{n} 은 기포 계면에서의 단위 수직벡터를 나타낸다. 위의 식에서 식 (1)은 일반적인 연속방정식이고, 식 (2)로 나타나 있는 Hele-Shaw 방정식은 다공성매질의 지배방정식인 Darcy 방정식과 매우 유사하다. 또한 식 (2)에서 중력항은 유체의 기본유동이 중력에 기인하지 않는 압력차에 의한 유동일 경우 생략된다. 위의 식은 계면에서 계면장력의 크기가 균일한 경우에 주로 사용된다. 그러나, 본 연구에서 고려할 계면에서 계면장력의 크기가 균일하지 않은 경우에는 계면에서 계면장력과 그 구배는 수직 및 접선응력의 수직식에 의하여 경계조건들이 다음과 같이 유도된다[9].

$$\begin{cases} \vec{n} \cdot \vec{T} \cdot \vec{n} = \sigma(\nabla_s \cdot \vec{n}) \\ \vec{t} \cdot \vec{T} \cdot \vec{n} = -(\vec{t} \cdot \nabla_s \sigma) \end{cases} \quad \text{at the bubble surface} \quad (4a,b)$$

여기서 \vec{T} 는 전 응력 텐서, ∇_s 는 표면구배 연산자, 그리고 \vec{t} 는 기포 계면에서의 단위 접선벡터를 각각 나타내고 있다. 경계면에서 계면활성제가 없는 경우, 계면장력 σ 는 상수이므로 식 (4)의 우변항은 0

이 된다. 반면에 계면활성제가 존재하는 경우 σ 는 위치에 따라 다른 값을 갖게 되고, 그 의존성은 계면에서 계면활성제의 분포에 의하여 결정된다. 식 (4)의 조건들은 3차원 조건들을 내포하고 있기 때문에 이 경우에는 다음과 같은 3차원 지배방정식이 식 (2)의 Hele-Shaw 방정식을 대체하게 된다.

$$\nabla p = -\mu \nabla^2 \vec{U} + \rho \vec{g} \quad (5)$$

이와같이 계면이 오염되어 있는 경우에는 식 (4)의 경계조건으로 인하여 계면의 농도분포가 다르게 나타나게 되며, 이로 인한 계면에서의 Marangoni 대류의 발생가능성이 내포되어진다. 본 연구에서의 액체기포의 경우 기포가 수용성 계면활성제로 오염되어 있을 때, 액체기포는 임계 micelle 농도(CMC)보다 작은 평형농도 C_0 를 유지하고 있다고 가정하자. 이때 기포가 유동하게 되면, 기포와 기본액체 사이의 계면에서는 계면활성제의 계면농도 Γ 가 기본유동에 의하여 경계면에 고루 분포하지 않게 된다. Γ 는 계면활성제의 대류, 확산, 흡탈착 등과 관련된 다양한 전달메카니즘의 지배를 받게 된다. 본 연구에서는 수확속도가 벌크 확산보다는 비교적 빠르다는 가정하에서, 벌크상에서 계면으로의(또는 역방향으로의) 확산이 무시되어진다[1]. 정상상태의 유동에 대하여 계면활성제의 분포는 기포내부와 기포의 액면에 대하여 다음의 3차원 식에 의하여 지배를 받는다.

$$\nabla \cdot (C\vec{u}) = D\nabla^2 C \quad (6)$$

$$\nabla_s \cdot (\Gamma \vec{u}_s) = D(\vec{n} \cdot \nabla C) \quad \text{at the bubble surface} \quad (7)$$

여기서 C 와 Γ 는 기포내부와 기포 계면에서 계면활성제의 농도를 각각 나타낸다. 또한 D 는 계면활성제의 확산도를, 하첨자 s 는 벌크유체와 기포간의 계면을 각각 의미한다. 한편 계면장력 σ 와 계면농도 Γ 는 일반적인 다음과 같은 선형의 관계를 갖고 있다.

$$\sigma = \sigma_r = \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Gamma} \right)_{\Gamma} (\Gamma - \Gamma_r) \quad (8)$$

여기서 하첨자 r 는 기준상태를 나타낸다. 본 연구에서는 Γ 와 σ 를 기포의 진행선단면에서의 계면농도와 이에 상응하는 계면장력으로 각각 설정한다.

지배방정식을 무차원화하기 위하여 다음과 같은 척도인자들을 도입하였다[9].

$$(x, y) \sim a, (u_x, u_y) \sim U, C \sim C_0, \Gamma \sim aC_0, \sigma \sim \sigma_r, p \sim \sigma_r / a$$

여기서 u_x 와 u_y 는 속도의 x 방향과 y 방향의 성분들을 각각 나타낸다. 앞의 척도인자들을 도입하고, 수평 기본유동에 대한 지배방정식과 경계조건들을 무차원화시키면 다음과 같다.

$$\frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} = 0 \quad (9)$$

$$\frac{\partial p}{\partial x} = -Ca \left(\frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial y^2} \right) \quad (10)$$

$$\frac{\partial p}{\partial y} = -Ca \left(\frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial y^2} \right) \quad (11)$$

$$\text{B.C.'s: } u_x = -1 + \frac{V}{U}, \quad u_y = 0 \quad \text{far from the bubble} \quad (12)$$

$$u_x - h' u_y = 0 \quad \text{at the bubble surface} \quad (13a, b, c)$$

$$Ca \left[(1-h^2) \left(\frac{\partial u_y}{\partial x} + \frac{\partial u_x}{\partial y} \right) + 2h' \left(\frac{\partial u_y}{\partial y} + \frac{\partial u_x}{\partial x} \right) \right] = Ma(1+h^2)^{1/2} \frac{\partial \Gamma}{\partial x}$$

$$p - \frac{2Ca}{(1+h^2)} \left[\frac{\partial u_y}{\partial y} - h' \left(\frac{\partial u_y}{\partial x} + \frac{\partial u_x}{\partial y} \right) + h^2 \frac{\partial u_x}{\partial x} \right] \\ = [1 - Ma(\Gamma - \Gamma_r)] \left[\frac{h''}{(1+h^2)^{3/2}} - \frac{1}{h(1+h^2)^{1/2}} \right]$$

여기서 $y=h(x)$ 로서 계면의 무차원 위치함수를 나타내며, $h'=dy/dx$ 와 $h''=d^2y/dx^2$ 을 각각 의미한다. 본 연구에서는 기본유동이 중력에 의하여 구동되지 않으므로, 위의 식 (10)과 (11)에서 중력항이 소거되어 있다. 또한 기포내부 및 계면에서 계면활성제의 전달방정식은 다음과 같이 무차원화된다.

$$u_x \frac{\partial C}{\partial x} + u_y \frac{\partial C}{\partial y} = \frac{1}{Pe} \left[\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right] \quad (14)$$

$$\frac{h'}{1+h^2} \frac{\partial (\Gamma u_y)}{\partial x} + \frac{1}{h} \Gamma u_y + \frac{h'}{1+h^2} \frac{\partial (\Gamma u_x)}{\partial x} \\ = \frac{1}{Pe(1+h^2)} \left(\frac{\partial C}{\partial y} - h' \frac{\partial C}{\partial x} \right) \quad (15)$$

여기서 상첨자 i 는 계면을 나타내며, 위의 식들에 나타나 있는 무차원수들은 다음과 같이 정의된다.

$$Ca = \frac{\mu U}{\sigma_r}, \quad Ma = -\frac{aC_0}{\sigma_r} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Gamma} \right)_{\Gamma_r}, \quad Pe = \frac{aU}{D}$$

여기서 모세관수(capillary number) Ca 는 계면장력과 점성력간의 상대적인 크기를, Marangoni 수 Ma 는 기포의 계면에서 계면활성제의 비균일성에 의한 계면탄성의 크기를, 그리고 Peclet 수 Pe 는 계면활성제의 확산에 대한 대류의 상대적인 크기를 각각 나타낸다. 본 연구에서는 계면오염물질의 확산속도가 비교적 빠른 계로 가정되어 있으므로, Peclet 수는 적용되지 않는다. 위에 유도된 지배방정식과 경계조건에 의한 해석적인 엄밀해를 구하기가 매우 어렵다. 그러나, 기포의 선단부와 후미부에서의 기포의 형태를 유추하기 위한 근사해가 효과적으로 적용되어 질 수 있다.

3. 실험

3-1. 계면활성제와 실리콘 오일

중류수 액체기포의 계면을 오염시키기 위해 사용된 계면활성제는 Sodium Dodecyl Sulfate(SDS, $C_{12}H_{25}OSO_3Na$, SIGMA사)로 설정하였다. SDS는 액상혼합물에 대하여 합리적인 용해도 수준을 갖고 있으며, 계면에서의 계면성질이 잘 알려져 있다. 25 °C에서 SDS의 물에 대한 임계 micelle 농도(CMC)는 8.2 mmol/l이며, $\Gamma_{max}=3.1 \times 10^{-10}$ mol/cm²인 것으로 알려져 있다[13]. SDS의 %CMC에 해당되는 용액을 제작하여, 각각의 표면장력과 실리콘 오일과의 계면장력을 측정하였다. 계면활성제의 영향은 낮은 농도에서 더욱 중요하므로, 계면활성제들의 농도는 CMC의 0%, 10%, 20%, 30%, 40%, 50%, 그리고 100%로 다양하게 조정되었다. 상온에서 환형고리를 사용한 Wilhelmy 법에 의해 측정된 표면장력의 값이 Table 1에 나타나 있다. 표에 보이듯이, 계면활성제들이 물에 용해되었을 때 낮은 %CMC 영역에서 표면장력의 변화비율이 크므로 이 영역에서 Marangoni 효과가 강하게 나타남을 유추할 수 있다. 반면에 100 %CMC 이상에서는 계면장력의 측정값들이 일정하게 유지되고 있음을 볼 수 있다. 기포를 구동하는데 사용된 기본점성액체는 점도가 다른 두 가지의 실리콘 오일로서, 원판형 점도계의 일종인 Rheology International 사의

Table 1. Variation of the interfacial tension with surfactant concentrations at 22 °C

SDS concentration in water (% CMC)	Interfacial tension(dyn/cm)	
	Air-water	Silicone oil-water
0	72.80	40.80
10	63.30	34.36
20	55.05	29.16
30	49.54	26.96
40	49.09	22.52
50	44.65	19.97
60	42.87	16.64
70	42.05	14.90
80	41.63	13.66
90	41.10	14.04
100	40.14	13.96
120	40.20	13.95
150	40.15	14.29
180	39.83	14.65
200	39.65	13.88

점도계(R1:1:M)로 측정된 점도는 각각 67cP와 125cP이었다. 또한 실리콘 오일과 공기와의 표면장력은 각각 18.3 dyn/cm과 18.4 dyn/cm으로 거의 비슷하였다.

3-2. 실험장치

Hele-Shaw 셀은 너비에 비해 깊이가 매우 작은 틈새로 구성되는 장치로서, 본 연구에서 사용된 Hele-Shaw 셀은 TecQuipment사의 Hele-Shaw 장치(TQ H9)를 개조하여 기본점성액체의 유입구와 기본액체에 섞이지 않는 기포의 유입구를 서로 다른 곳이 위치하도록 하였다. 본 연구에서 사용된 Hele-Shaw 셀은 기본액체의 주입시 완전전개될 수 있도록 설계되어 있다. Hele-Shaw 셀의 입구에서 일정거리 떨어진 곳에서의 액체의 평균유속은 양측의 벽면주위를 제외하곤 거의 일정하다. 실험에 사용된 실험장치에 대한 구성도를 Fig. 2에 나타내었다. 그림에 보이듯이 실험장치는 Hele-Shaw 셀, 정량펌프, CCD 카메라, 화상처리기(VCR) 그리고 PC 및 모니터로 구성된다. 두 넓은 평판으로 구성되는 Hele-Shaw 셀의 유효깊이는 고무가스킷을 판사이에 위치시키고 두 판을 압착시킴으로서 결정된다. 평판은 1 cm 두께의 유리로 제작하였으며, 유효 폭은 25 cm, 길이는 50 cm

의 제원을 갖고 있다. 사용한 고무가스킷의 두께는 0.2 cm이었다. 수평면상의 Hele-Shaw 셀에서는 폭면에서 유입되는 기본점성액체에 의하여 길이방향으로의 유동이 구동되며, 기본유동의 크기는 정량펌프(Cole-Parmer, Masterflex Model 7521-40)를 사용하여 조정하였다. 반면, 기포의 주입 및 제거를 위하여 도입부와 출구부 상부면의 유리판에 각각 구멍을 만들고, 도입부의 구멍을 통하여 주입되는 기포의 크기를 조정하였으며, 출구부에서는 오염된 기포를 제거할 수 있는 장치를 각각 부착하였다.

3-3. 실험방법 및 절차

기본액체인 실리콘 오일로 포화되어 있는 Hele-Shaw 셀내에 일정 크기의 기포를 주사기를 이용하여 주입하였다. 초기 기포의 모양은 원형을 유지하며, 실리콘 오일을 구동하여 일정한 기본 유동을 유지하면 기포의 모양이 변하여 일정한 형태의 모습으로 되어진다. 정량펌프를 통하여 기본유동의 크기를 조정하였으며, 기본액체의 유속은 셀을 통과해 나오는 부피유량으로부터 구하였다. 기포의 속도는 일정모양을 갖춘 기포의 정상상태 이동속도를 측정하여 결정하였다. Kopf-Sill-Homsy[4]와 Park 등[10]의 실험과 비교하기 위하여 기포의 크기는 주로 직경이 2.5 cm 정도로 하였다. 공기기포에 대한 실험의 경우, 실험은 비교적 간단하다. 앞서 설명한 실험절차에 대하여, 초기 공기 기포의 크기는 주사기를 이용하여 조정되었으며, 기본액체의 유속은 정량펌프에 의하여 변화되었다. 이와 같이 조정된 크기에 대한 기포에 대하여, 기포의 평면형태와 속도를 기본액체의 평균 유속을 변화시키면서 측정하였다. 액체기포의 경우, 실험절차는 공기의 경우와 유사하다. 증류수를 오염되지 않은 액체기포로 채택하였으며, 액체 기포의 오염도는 SDS의 농도를 변화시킴으로서 조정할 수 있었다. 액체 기포의 가시화를 위해 미소량의 보라색 색소(dye)를 액체기포에 첨가하였다. Hele-Shaw 셀의 도입부에서 오염된 액체기포를 주입하였으며, 순환되는 실리콘 오일의 오염을 방지하기 위하여 출구부의 상부 통로에서 착상된 기포를 제거하였다. 기포가 제거되면 새로운 액체기포를 도입부 다시 주입하고, 출구부에서 셀을 이동한 기포를 수집하였다. 색소는 계면장력의 변화에 거의 영향을 미치지 않았으며, 색소가 Hele-Shaw 셀의 유리판을 오염시키지 않는 것으로 보아, 벽면과 이동하는 액체기포간의 흡습경막의 존재 가능성은 거의 없는 것으로 보여진다. 한편, 기포의 형상은 CCD 카메라(Shimadzu CCD-S1)를 이용하여 VCR(Samsung SV-160P) 녹화한 뒤, PC로 화상처리를 수행하였다.

4. 결과 및 고찰

4-1. 기포의 형상 및 속도

실험을 통해 관측된 평면기포의 모양을 Fig. 3의 사진을 통해 나타내었다. 그림들은 컴퓨터를 통해 화상처리가 된 것이다. 그림에서 (a)와 (b)는 공기기포를, (b)-(f)는 SDS가 물에 용해된 액체기포를 각각 나타낸다. 그림에서 기포와 기본점성유체는 좌에서 우로 이동하고 있다. 따라서 기포의 좌측은 선단부, 우측은 후미부를 각각 나타낸다. 기포의 모습은 정상상태를 유지하고 있으며, 유동방향에 대하여 대칭의 모습을 보여주고 있다. 또한 그림에 나타난 모든 기포들은 실리콘 오일보다 빠르게 유동하고 있다($U/V > 1$). 기본점성액체인 실리콘 오일에 의하여 구동된 공기기포들은 실리콘 오일의 속도에 비례하여 이동하였다. 그 결과 실리콘 오일의 속도가 상대적으로 작은 경우에는 (a)에 나타난 모양인 거의 원형이었으며, 속도가 상대적으로 큰 경우 (b)에는 유동방향으로 신장된 타원의 모양을 보여주었다. 특히, 속도가 빠른 경우에는 선단부의 곡률반경이 후미부의 곡률반경에 비하여 작은 형태를 보여주는 것이 특이하다. 이와같은 현

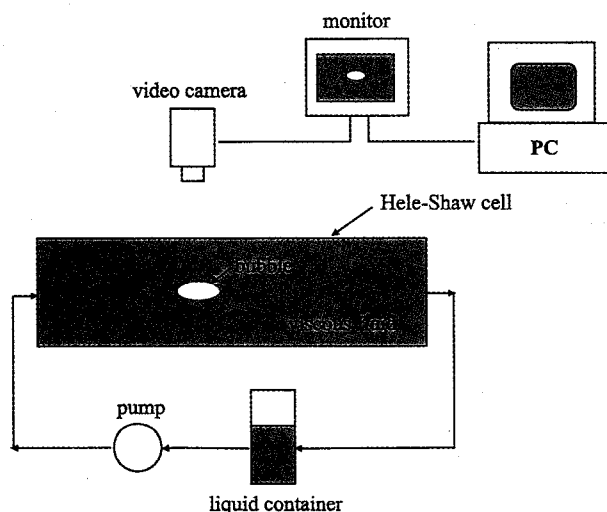


Fig. 2. Schematic diagram of the experimental setup.

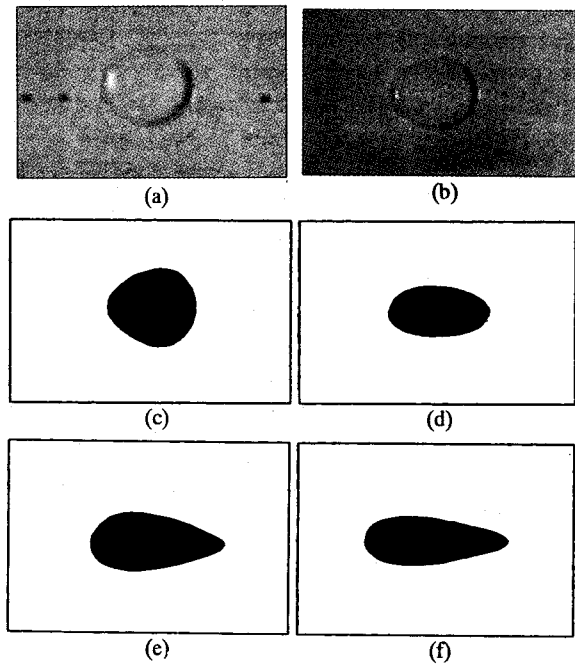


Fig. 3. Photographs of various bubble shapes.
(a, b: air; c-f: water)

상은 실리콘 오일-공기거품계인 Maxworthy[3]의 실험적 관측과 유사하다. Taylor와 Saffman[2]의 이론적 결과 및 기존의 여러 실험의 결과들을 비교하기 위하여, 모세관수 Ca 와 거품의 상대속도 U/V 의 관계를 Fig. 4에 도시하였다. 그림에 보이듯이 본 실험의 $0 < Ca < 0.015$ 영역에서 기존의 Kopf-Sill-Homsy[4] 그리고 Park 등[10]의 실험 결과와 본 실험의 결과를 비교하였다. Kopf-Sill-Homsy의 실험결과에서는 Ca 의 값이 매우 작을 때만 원형일 뿐, Ca 의 크기가 증가함에 따라 원형의 거품이 꼬리형 거품으로 전환되며, 이때에는 거품의 속도가 급격히 빨라지게 된다. 이와같은 전이는 $Ca=0.01$ 부근에서 일어나는 것으로 보고되었다. 한편 꼬리형거품 이외의 원형을 비롯한 모든 거품이 실리콘 오일보다 느리게 유동하는 것($U/V < 1$)이 매우 특이하다. 반면에 본 실험결과에 의하면, Kopf-Sill-Homsy의 결과와는 다르게 거품의 속도는 실리콘 오일보다 1.5배이상 정도가 빠른 것으

로 나타났다. 또한 거품의 모양은 거의 원형(Fig. 3a)이거나 $Ca > 0.08$ 에서는 신장된 타원형(Fig. 3b)으로 관측되었다. 이와 같은 결과는 Kopf-Sill-Homsy의 결과와는 상이하며, Park 등의 결과에는 어느정도 부합된다. Park 등의 실험에서는 본 연구와 마찬가지로 실리콘 오일을 기본점성유체로 사용하였다. Park 등 그리고 본 실험에서 공기 거품과 관련된 실험결과에서는 기본 유속에 상관없이 Kopf-Sill-Homsy의 실험적 결과에서 나타났던 꼬리형거품은 관측되지 않았으며, 거품은 항상 기본점성액체보다 빠르게 유동하였다. 실리콘계에서의 경막은 실리콘 오일로서 형성됨에 반해 Kopf-Sill-Homsy의 결과는 글리세린수용액-공기간의 흡습경막의 오염에 기인하여 거품의 변형 및 속도변화가 수반된 것으로 추측된다.

수용액 거품들은 공기거품과는 상이한 모습을 보여주고 있다. SDS로 오염된 액체거품들은 20-40 % CMC에서 속도에 따른 변형형태가 심하게 나타났다. Fig. 3의 그림에 나타나 있는 30%CMC인 SDS의 경우, 속도가 빨라질수록 거품의 모양은 계란형(c: ovoid), 타원형(d: ellipse), 꼬리형(e, f: tailed)으로 변하면서 거품의 길이가 신장되고 있다. 따라서 SDS에 의하여 오염된 거품의 형태는 속도가 매우 작을 때의 원형(circle)을 포함하여 4가지로 구분되어진다. 거품의 형상 변화에 대한 전반적인 경향으로부터, 100 %CMC 이내로 오염되어 있는 거품들은 빠르게 유동할수록 원형거품에서 꼬리형거품으로 전환됨을 유추할 수 있다. 이와같은 거품의 운동과 변형의 관계를 살펴보기 위하여, 오염된 액체거품에 대하여 거품의 상대속도와 Ca 를 그림으로 나타내면, Fig. 5와 같다. 실험에서의 Ca 의 범위는 $0 < Ca < 0.08$ 이고, Ca 의 계산시 실리콘 오일의 유속 및 실리콘 오일-SDS수용액간의 계면장력이 고려되어 있다. 그림에서 보이듯이 전반적으로 거품의 상대속도는 1보다 큰, 즉 실리콘 오일보다는 빠르게 유동하고 있음을 알 수 있었다. 거품의 모양은 %CMC에 따라서 다양하게 나타났다는데, 거품의 모양을 구별하기 위하여 SDS에 의하여 오염된 액체거품에 %CMC에 대하여 실험군을 구분하였다. 그 결과 %CMC가 커짐에 따라 상대속도와 Ca 의 값들은 점차 증가하는 경향을 보인다. 50%CMC 이하의 실험결과에 대하여, 거품의 변형이 제일로 심한 20%CMC에서의 경우만을 제외하고는 모두 비슷한 경향을 보여준다. 이는 거품의 변형으로 인하여 계면에서의 항력효과의 변화가 초래되고 거품주위에서의 실리콘 오일의 순환으로 인한 결과일 것으로 예상된다. 그림에서 보이듯이 30-50%CMC 영역에서의 U/V 가 거의 최대였으며, 50%CMC 이상에서는 U/V 가 다시 감소되어

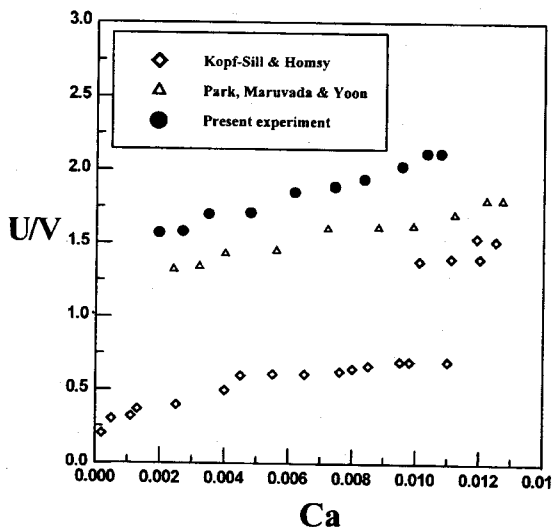


Fig. 4. Plots of U/V vs. Ca for air bubbles.

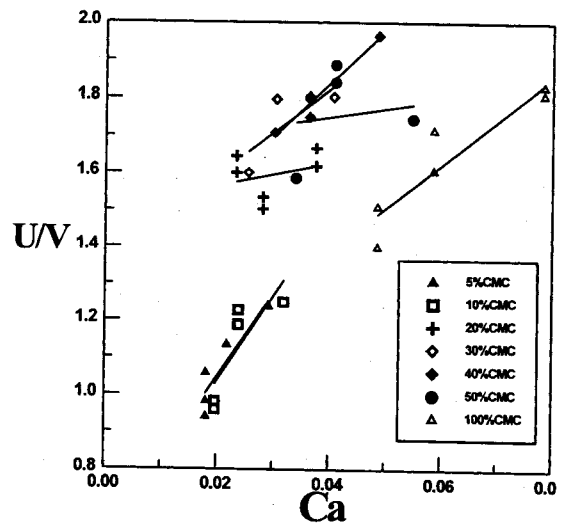


Fig. 5. Plots of U/V vs. Ca for contaminated water bubbles.

지는 경향을 보인다. 이는 100 %CMC 액체기포는 전술한 바와 같이 계면에서의 농도구배가 거의 없어진다. 따라서, 기포의 구조는 원형을 유지하게 된다. 이와 같은 현상은 그림에서 살펴볼 수가 있다. 그러나, 계면이 전혀 오염되지 않은 경우에 비하여 계면장력이 매우 낮아지므로 전혀 예측하지 못할 특이한 형태로 나타날 가능성을 전혀 배제할 수는 없다. 그러나 본 실험의 결과에 의하면, 100 %CMC에서의 기포의 형태는 거의 원형의 형태로 나타나며, 이와 같은 형태는 꼬리형의 기포에 비하여 유동하는 속도가 상대적으로 작아지게 된다. 이는 기포의 형태가 서로 섞이지 않는 주변의 액체사이로 유동할 때 항체의 구조가 속도에 중요한 역할을 하고 있기 때문이다. 100 %CMC 이하로 오염되어 있는 계면에서 계면의 점선방향으로 유동이 존재하고 계면에서의 점성효과가 고려되어지면, 계면에 위치하고 있는 계면활성제들은 유동방향으로 계면을 따라 이동하게 될 것이다[8,9]. 이와 같은 가정을 통해, 계면오염물질의 농도를 계면에 따라 추적하여 보면, 계면의 오염물질이 기포의 후미부로 이동하게 될 것이다. 물론 이때에는 기포가 주변의 점성액체보다 빠르게 이동하고 있을 경우이다. 만약, 기포가 주변의 액체보다 느리게 움직인다면 기포의 선단부에 계면오염물질이 집결하게 될 것이다. 두 경우 모두, 기포의 형태는 유동축에 대하여 대칭이므로, 선단과 후미부의 극한적인 농도차와 함께 이로 인한 계면장력의 변화를 초래하게 된다. 계면장력의 변화가 있으면, Marangoni 대류에 의하여 계면에서의 응력이 변화하게 되고, 이로 인해 특이한 구조의 기포가 가지화되어 진다. 즉, 계면오염물질이 집중되어 계면장력이 주변보다 낮아지게 되는 경우에는 곡률반경이 커지게 되며, 반대로 계면장력이 커지면 곡률반경이 작아지게 된다.

앞의 그림에서 나타난 Ca에서는 %CMC에 대한 계면장력을 고려하고 있기 때문에 기포의 변형을 효과적으로 살펴볼 수가 힘들다. 따라서 기포의 변형도와 %CMC의 관계를 실리콘 오일의 유동속도의 변화에 대한 그림을 Fig. 6에 나타내었다. 즉, Fig. 4에 나타나 있는 기포의 길이와 폭을 %CMC 별로 측정하여 실리콘 오일의 속도와와의 관계를 Fig. 6에 나타내었다. SDS로 오염되어 있는 기포에 대하여, 실험의 영역 0-100 %CMC이므로, 계면오염의 정도에 대한 기포의 변형을 거의 전반적으로 살펴볼 수 있다. 그림에서 t 는 기포의 폭을, 그리고 L 은 기포의 길이를 각각 나타낸다. 따라서 L/t 의 값이 1인 경우는 기포의 모양이 거의 원형이며, 이 값이 증가될수록 기포

는 신장되어 있음을 알 수 있다. 이때에는 실리콘 오일의 속도가 어느정도 커서 기포의 상대속도가 1보다 커지게 되는 경우이고, 반면에 실리콘 오일의 속도가 상대적으로 작은 경우에는 L/t 의 값이 1이하로 주어질 수 있다. 본 실험에서는 기본 유동이 매우 작은 경우에만하여 L/t 의 값이 1 이하인 결과가 일부 관측되었을 뿐, 유속이 어느정도 증가하면 L/t 는 거의 1을 넘는 값을 보여주었다. 그림에서 보듯이, 실리콘 오일이 정지상태일 때에는 L/t 가 1인 원형기포를 보이게 되며, 실리콘 오일의 유속이 빠를수록 신장률은 더욱 커짐을 볼 수 있다. 한편, 기포의 오염도인 SDS의 %CMC가 증가하면 이에 비례하여 전반적으로 기포의 길이는 흐름방향으로 신장되었다. 그러나, 100 %CMC에 이르면 기포는 다시 거의 원형의 평형형태하에서 유동하게 됨을 알 수 있다. 따라서 이들의 관계는 그림에 나타나 있는 곡선의 형태로 근사되어 진다. 그림에서 보면, SDS의 경우 40-60 % CMC에서 기포가 제일 많이 신장되는 것으로 보여진다. 즉, 100 %CMC 이하에서 계면장력의 값은 Table 1에 나타나 있듯이 %CMC에 따라 달라지게 된다. 반면에 100 %CMC 이상으로 오염되어 있는 액체기포의 경우는 계면이 오히려 계면활성제로 충분히 포화되어 있으므로, 이때에는 계면의 마찰만 증가하게 되고 계면에서의 농도구배는 존재하지 않게 될 것이다. 반면에 농도구배가 매우 큰 영역인 비교적 낮은 %CMC 영역에서는 농도구배가 매우 커지게 된다. 이와 같은 경향에 의하면 0 %CMC 근처에서 최대의 농도구배를 보이게 되나 이때에는 계면활성물질의 양이 극히 작으므로 계면변형을 도모하지는 못한다. 따라서 %CMC의 값이 어느정도 큰 영역에서 기포의 변형은 이채롭게 나타날 가능성이 있다. 다양한 기포의 모양을 관측하기 위하여는 %CMC의 값이 100 %CMC 보다 훨씬 작을 때일 것이다. 0 %CMC 또는 100 %이상의 CMC인 액체기포들은 두 경우 완전히 오염되어 있지 않은 경우로 간주할 수 있으므로, 이때 기포의 다양한 형태로의 변형은 기대하기 힘들다. 따라서 본 연구의 결과에서는 20-40 %CMC 영역에서 기포의 변형이 제일 심한 것으로 나타났다. 이와 같은 추론은 기포의 상대속도에 기인한 계면에서 계면오염물질의 편재현상이 기포의 유동과 변형에 있어서 특이한 현상을 유발할 수 있다는 사실을 뒷받침해 주고 있다.

4-2. 기포의 계면변형

앞의 식 (9)-(15)에 나타나 있는 본 연구의 대상제에 대한 지배방정식 및 경계조건에 대한 해를 구하기 위한 해법은 매우 복잡하다. 특히, 경계조건에서 기포의 오염도가 100 %CMC 보다 낮은 농도에 대한 계면에서의 농도분포는 유도된 식에서 보이듯이 주변유동의 변화에 의존하게 된다. 제시된 지배방정식의 엄밀한 해의 유도는 거의 불가능하며, 계면의 오염이 없는 간단한 경우에 대하여만 수치해에 의한 해가 제한적으로 제시되어지기도 하였다[14, 15]. 그러나 본 연구에서는 기포의 유동속도가 작은 모세관수가 매우 작은 유동을 고려하므로, 근사해를 통하여 유동현상이 효과적으로 해석될 수 있을 것이다. 계면에서 오염물질의 농도에 기포의 형태가 크게 영향을 끼치는 것은 계면활성제의 전달현상에 있어서 대류, 확산 그리고 흡탈착에 대한 시간척도가 각각 상이하기 때문이다. 이에 대한 정량적인 구분을 위하여, 본 연구에서는 축방향의 확산이 율속전달메카니즘이라는 대류평형(convective equilibrium)의 개념을 도입할 수 있다[8]. 모세관 수가 매우 작은 영역에서는 기포의 선단부에서의 유동이 유체정역학을 만족하므로, 기포의 모양은 유체정압과 계면장력간의 수지에 의하여 거의 원형으로 결정될 것이다. 반면에 100 %CMC 이내로 오염된 기포가 기본액체의 속도보다 빠르게 유동하면 계면을 따라 계면활성제가 기포의 후미부로 이동하여 이 부분에 계면활성제가 축적된다. 후미부에서 계면활성제의 탈착 또는 확산이 빠르지 않다면, 이 지역에서의 계면활성제의 농도는 최대가 가능한 값인 Γ_{max}

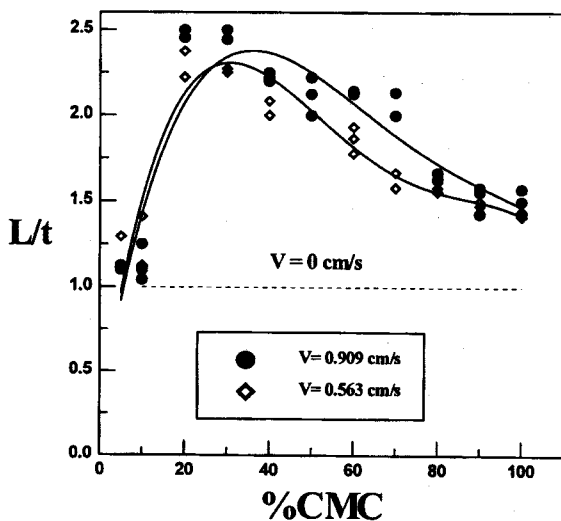


Fig. 6. Variations of contaminated bubble length with respect to %CMC.

에 도달하게 될 것이다. 이 최대값은 계면활성제로 인한 최대 계면 압력 또는 최소의 계면장력의 상태로 계를 유지하게 한다. 본 연구에서는 기포의 평균농도 C_0 가 100% CMC 보다 훨씬 작은 경우이므로, 후미부의 Γ_{max} 는 Γ_r 보다 훨씬 커질 수 있다. 이와같이 기포의 선단과 후미부는 기포의 형상의 결정에 있어서 매우 중요한 역할을 한다.

기포의 선단부에서는 식 (9)-(11)에서 나타난 지배방정식에서 압력이 유체정압으로 설정되어지므로, 경계조건인 식 (13b)는 Γ 가 다음과 같이 상수로 가정될 수 있다[9].

$$\frac{\partial \Gamma}{\partial x} = 0 \rightarrow \Gamma = \Gamma_r$$

이로부터 기포선단부의 모양은 식 (13c)에 기초한 다음의 식에 의하여 결정되어진다.

$$p = \frac{h''}{(1+h'^2)^{3/2}} - \frac{1}{h(1+h'^2)^{1/2}} \quad (16)$$

위의 식을 적분하면, 기포의 형상식이 다음과 같이 구해지게 된다 [9, 16].

$$y = h(x) = -\frac{2}{p}[1 - (x+1)^2]^{1/2} \quad (17)$$

기본액체에 대한 기포의 상대속도가 큰 경우에, 계면을 따라 기포의 후미지역으로 이동해 온 계면활성제에 의하여 계면장력의 변화로 인해 계면에서의 압력과 계면장력간의 수지에 의해 기포의 모양은 변화된다. 기포의 계면활성제의 농도가 매우 낮거나 CMC를 넘게 되면, 계면활성제의 이동이 거의 없거나 벌크 유체에 완전히 포화되어 있는 경우이므로, 기포의 모양은 앞서 구한 기포의 선단부와 매우 유사해진다. 이때에는 기포의 후미부는 원형을 유지하게 되며, 전반적인 기포의 모양은 원형 또는 축방향으로 늘어선 타원의 형태가 된다. 반면에 기포의 농도가 CMC보다는 비교적 작은 기포에 대하여는, 기포의 후미에서는 계면활성제의 단일층(monolayer)이 붕괴될 정도의 다음과 같은 최대가능한 값의 농도를 갖게 된다.

$$\Gamma = \Gamma_{max}$$

정상상태인 정지상의 기포의 형상을 예측하기 위하여, 식 (13c)를 정리하면 다음과 같다.

$$p = [1 - Ma(\Gamma_{max} - \Gamma_r)] \left[\frac{h''}{(1+h'^2)^{3/2}} - \frac{1}{h(1+h'^2)^{1/2}} \right] \quad (18)$$

위의 식은 후미부의 계면유지 압력이 변화되고 있음을 보여주고 있다. 이 식의 해를 구하면 선단부의 구조와는 다른 다음과 같은 해가 도출되어진다.

$$y = h(x) = -\frac{2[1 - Ma(\Gamma_{max} - \Gamma_r)]}{p}[1 - (x+L')^2]^{1/2} \quad (19)$$

여기서 L' 는 기포의 신장길이를 보정된 위치를 의미한다. 위의 해에서 보면, 후미부에서 기포의 형태는 기포의 선단부와 곡률반경이 서로 다른 타원의 형태로서 결정됨을 볼 수 있다. 이 경우에는 날카롭지 못한 꼬리의 형태가 나타난다. 이와 같은 형태는 본 연구의 실험결과에서도 관측되었으며, Park, Maruvada와 Yoon[10]의 실험결과에서도 이 식의 적용가능성이 타진되어질 수 있다. 위에서 보여지듯이 계면이 오염되어 있는 경우에는 국지적인 계면장력의 차이로 인하여 곡률반경의 변화가 초래될 수 있음을 짐작할 수 있다. 후미부의 곡률반경이 극도로 작아지면, 날카로운 꼬리를 갖는 꼬리형 기

포(tailed)가 관측되어질 수 있다. 즉, 기포의 후미부에서는 계면의 오염정도가 기포의 형태를 결정하는데 있어서 매우 중요한 역할을 하고 있음을 알 수 있다. 이와 관련하여 기본유동의 크기에 따른 실제적인 Γ_{max} 의 설정 및 최대 신장길이에 대한 조건을 산출하기 위한 연구가 과제로 남게 된다.

5. 결 론

본 연구에서는 Hele-Shaw 셀내에서 계면오염에 기인한 기포의 계면변형과 유동을 효과적으로 해석하였다. 실리콘 오일로 포화되어 있는 셀내에서 공기기포의 유동은 기본 유속에 비하여 항상 빠르게 유동하였으며, 그 형상은 흐름방향으로 신장된 계란형의 구조를 보여주었다. 반면에, 액체기포의 유동에서는 계란형과 꼬리형의 기포들이 관측되었다. 계란형의 경우 기포의 유속은 기본유속보다 작게 나타났으며, 꼬리형의 기포는 기본유속보다 빠르게 유동하였다. 특히, 꼬리형의 특이한 기포에 대하여 이론적으로 해석한 결과 계면의 오염이 기포의 형상의 결정에 있어서 중요한 역할을 하고 있음을 알 수 있었다. 즉, 기포의 후미부근의 곡률반경은 그 지역에서의 계면의 농도 즉 계면의 오염도에 의하여 결정됨을 유추할 수 있었다. 특히 같은 기본유속에 대하여 오염농도에 따른 기포의 신장길이는 다르게 나타났으며, 신장길이가 최대인 SDS의 %CMC는 100%CMC보다 훨씬 작은 곳에서 나타났다. 이는 계면오염의 정도가 계면의 변형에 있어서 결정적인 역할을 하고 있음을 보여주는 중요한 자료라고 말할 수 있다. 이와 관련된 연구들이 계속 진행되어야 할 것이다. 이와 같이 본 연구에서는 계면오염에 대한 정성적 및 정량적 해석에 있어서 필요한 자료들을 축적할 수 있었다. 본 연구의 결과들은 학문적인 면뿐만 아니라, 고순도제품의 프로세싱, 각종분리공정, 열 및 물질전달 장치의 설계 및 제어 등의 실용적인 공정의 설계에 많은 도움이 될 것이다.

감 사

본 연구는 한국과학재단 1995년 핵심전문과제(951-1107-009-1) 지원에 의하여 이루어졌습니다. 한국과학재단의 연구지원에 감사를 드립니다.

사용기호

a	: bubble diameter [m]
b	: gap of Hele-Shaw cell [m]
C	: concentration [mol/m ³]
Ca	: capillary number, $\mu U/\sigma$,
D	: mass diffusivity [m ² /s]
g	: gravitational acceleration [m/s ²]
h	: dimensionless y-component of bubble shape
L	: length of bubble [m]
L'	: modified x-component of bubble shape [m]
Ma	: Marangoni number, $-(aC_0/\sigma_r)(\partial\sigma/\partial\Gamma)_r$,
\vec{n}	: unit normal vector
P	: pressure [N/m ²]
Pe	: Peclet number, aU/D
t	: width of bubble [m]
\vec{t}	: unit tangential vector
\vec{T}	: total stress tensor [N/m ²]
\vec{U}	: velocity vector [m/s]

u : dimensionless velocity
 W : width of Hele-Shaw cell [m]
 x, y, z: dimensionless Cartesian coordinate

그리스 문자

Γ : interfacial concentration [mol/m³]
 μ : viscosity [N/m²]
 ρ : density [kg/m³]
 σ : surface tension [N/m]

상첨자

i : interface

하첨자

0 : bulk phase
 max : maximum value
 r : reference state
 s : surface

참고문헌

1. Edwards, D. A., Brenner, H. and Wasan, D. T.: "Interfacial Transport Processes and Rheology", Butterworth, Boston(1991).
2. Taylor, G. I. and Saffman, P. G.: *J. Mech. Appl. Maths*, **12**, 265 (1959).
3. Maxworthy, T.: *J. Fluid Mech.*, **173**, 95(1986).
4. Kopf-Sill, A. R. and Homsy, G. M.: *Phys. Fluids*, **31**, 18(1988).
5. Levich, B.: "Physicochemical Hydrodynamics", Prentice Hall, New Jersey(1962).
6. Davis, R. E. and Acrivos, A.: *Chem. Engng Sci.*, **21**, 681(1966).
7. Sadhal, S. S. and Johnson, R. E.: *J. Fluid Mech.*, **126**, 237(1983).
8. Ratulowski, J. and Chang, H.-C.: *J. Fluid Mech.*, **210**, 303(1990).
9. Park, C.-W.: *Phys. Fluids A*, **3**, 3(1992).
10. Park, C.-W., Maruvada, S. R. K. and Yoon, D. Y.: *Phys. Fluids*, **6**, 3267(1994).
11. Park, C.-W. and Homsy, G. M.: *J. Fluid Mech.*, **139**, 291(1984).
12. Ginley, G. M. and Radke, C. J.: ACS Symposium Series 369, 480 (1989).
13. Rosen, M. J.: "Surfactant and Interfacial Phenomena", Wiley Interscience, New York(1978).
14. Tanveer, S.: *Phys. Fluids*, **29**, 3537(1986).
15. Tanveer, S.: *Phys. Fluids*, **30**, 651(1987).
16. Bretherton, F. P.: *J. Fluid Mech.*, **10**, 166(1961).

1. Edwards, D. A., Brenner, H. and Wasan, D. T.: "Interfacial Trans-