

## 수직 모세관내 공기-페놀수용액의 상향흐름 특성

김상용 · 김탁현<sup>†</sup> · Martin A. Abraham\*

한국생산기술연구원

\*University of Tulsa

(1998년 1월 26일 접수, 1998년 7월 23일 채택)

## Flow Characterization of Upward Air-Aqueous Phenol Flow in Vertical Capillaries

Sangyong Kim, Takhyun Kim<sup>†</sup> and Martin A. Abraham\*

Korea Institute of Industrial Technology

\*University of Tulsa

(Received 26 January 1998; accepted 23 July 1998)

### 요약

단일 모세관내 흐름에서 기액상의 혼합용액의 흐름은 흐름패턴의 전이현상에 영향을 미치는데, 특히 기체 및 액체유량, 표면장력, 모세관의 너비 등이 주로 영향을 끼치게 된다. 본 연구에서는 수직 상향류 기액상흐름의 동력학적 거동 및 흐름패턴에 대해 조사하였으며, 이중에서 기액상의 유량, 모세관의 너비, 페놀용액의 농도 등이 흐름패턴에 미치는 영향에 대하여 조사하였다. 흐름패턴의 전이양상은 액체유량의 변화보다 기체유량의 변화에 대해서 보다 더 명확하게 나타났다. 잘 발달된 slug의 영역을 나타내는 기체 Reynolds 수의 영역은 비교적 좁게 나타났으며, 액체유량에 대해서는 별 영향이 없는 것으로 나타났다. 마지막으로 무차원군수인 Froude수, Eötvos수를 이용하여 모세관의 너비, 표면장력, 그리고 유량의 영향을 종합적으로 살펴보았다.

**Abstract**—In this study, the hydrodynamic behavior and flow patterns of vertical upward gas-liquid flow have been studied. A bundle of square glass capillaries was used to observe and evaluate the hydrodynamic behavior of flow. The flow pattern was found by using the flow visualization technique. The effects of gas flow rate, size of capillaries and phenol concentration upon the flow regime were studied. The trends of the transitions were more evident with respect to the change of gas flow rate than that of liquid flow rate. The range of gas Reynolds numbers supporting a well-developed slug flow was relatively narrow and almost independent on the liquid flow rate. For three different concentrations, almost the same flow patterns were obtained. Finally, the effects of capillary size, surface tension, and flow rates were combined by using dimensionless groups such as Froude number and Eötvos number.

Key words : Flow Pattern, Slug Flow, Bubble, Transition, Flow Rate

### 1. 서 론

Froth는 용존유기물질을 포함하는 수용액상에서의 bubbling에 의해 생성된다. Bubble은 액체와 그 얇은 막에 의해 둘러싸인 기체 및 증기상의 작은 구형물질을 일컫는 것이며, foam은 얕은 막에 의해 구분되어지는 bubble들의 군집을 일컫는 것이다. 이 군집은 짧은 시간 동안 존재하며 액상에서 고농도 bubble의 분산을 froth로 간주한다.

Bubble은 액체내에 잠겨져 있는 orifice나 모세관내에서 형성되며, 탱크내의 액체에서 기체를 분산시키는 가장 간단한 방법은 구멍뚫린 판을 통해 기체를 주입시키는 것이다. 기체의 분산을 위해 정체영역에서는 공극판, 판, 디스크와 같은 것들로 septum을 만들고 이를

sparger로 사용하여 작은 bubble을 만들 수 있다. Septum을 통한 기체플러스는 septum 하부에서 효율이 좋게 하기 위하여 전체 sparger 표면이 균일하게 bubbling되어야 하고, septum 상부에서는 표면에서 상당한 합체현상이 일어나 결국은 분산이 불량하게 되므로 이들이 제약점으로 작용한다. 실질적인 플러스 범위에서 생성되는 bubble 크기는 septum의 공극크기 및 이를 가로지르 때 생기는 압력강하에 좌우되며, 이 두 변수의 결합이 직접적인 함수로 작용한다.

평균 bubble 크기는 기액간 막의 표면장력, orifice 직경, 액체 및 기체의 밀도에 의해 결정된다. 공기 유량이 낮은 경우, bubble의 크기는 단지 orifice 직경, 표면장력의 함수이다. Single bubble 영역에서, bubble 크기는 기체유량과 무관하고, Single bubble 영역에서 한 계이상으로 orifice를 통한 기체유량이 증가하면, bubble 형성의 빈도가 서서히 증가하여 bubble 크기가 증가한다. Hoelscher 등(1976)

\*E-mail : sykim@mail.kitech.re.kr

은 비교적 비점성인 액체에 공기를 분산시키는데 있어서 평균 bubble 크기와 Reynolds수와의 상관관계를 연구하였는데, bubble column을 관찰하여 정체단계 및 직접적인 면적 측정으로부터 얻어지는 데이터에 기초하여 평균 bubble 크기를 예측하기 위한 새로운 상관관계를 세웠고, 실제 유사한 결과 및 광학적 데이터를 얻었다[9].

액상 용액을 통과하는 공기를 bubbling하여 형성되는 froth의 특성은 다음과 같은 영향인자들, 즉; (1) 공극판의 orifice나 glass frit의 공극직경, (2) 공기유량, (3) 공극판위로 상승한 액체의 수위, 그리고 (4) 액상 용액의 농도 등에 의해 영향 받는다. 특히, 액체유량이 낮은 경우는 bubble의 크기는 단지 orifice의 직경과 표면장력에 의해서 결정된다.

Bubble은 액체내에 잠겨져 있는 orifice나 모세관내에서 형성되는 데 orifice 직경 0.0419-0.6 cm 범위내에서 bubble 직경과 Reynolds수 간의 관계를 나타내는 다음과 같은 식이 있다. 이 식으로부터 측정된 표면장력, 유량값을 대입하여 이론적인 bubble의 직경을 구할 수 있다.

$$Re = \frac{V d_N \rho}{\mu} \quad (1)$$

$$d_{vs} = 1.56 Re^{0.058} \left( \frac{\sigma d_N^2}{\Delta \rho g} \right)^{\frac{1}{4}} \quad 1 < Re < 10 \quad (2)$$

$$d_{vs} = 0.32 Re^{0.425} \left( \frac{\sigma d_N^2}{\Delta \rho g} \right)^{\frac{1}{4}} \quad 10 < Re < 2100 \quad (3)$$

여기서,  $V$ =속도, cm/s

$\mu$ =동점성계수, g/cm · s

$d_{vs}$ =Sauter-mean diameter

또는 bubble의 (부피/표면적) 비, cm

$d_N$ =distributor의 orifice 직경, cm

$\sigma$ =액체 표면장력, dyne/cm

$\Delta \rho = \rho_i - \rho_s$ , g/cm<sup>3</sup>

단일 모세관내에서 기액 혼합용액이 흐를 경우, 이 기액상은 흐름 패턴의 변화에 영향을 미치게 되는데, 주로 유량, 흐름특성, 모세관의 너비 등에 의해 영향을 받는다. Fig. 1은 기액상 상향 흐름에서 나

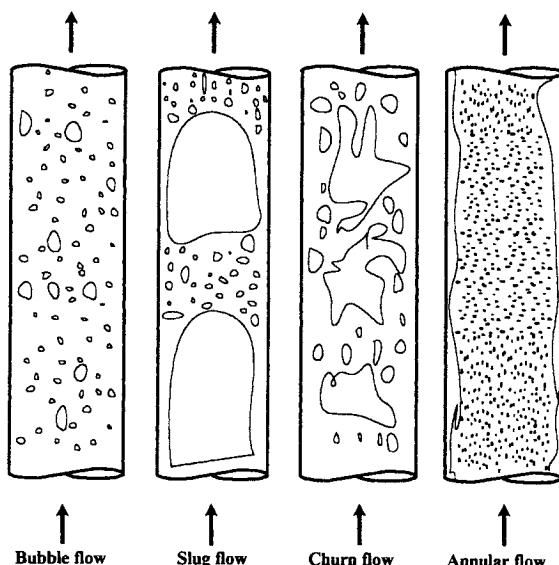


Fig. 1. Flow patterns in vertical flow.

타날 수 있는 네 가지 기본유형 즉, bubble flow, slug flow, churn flow, annular flow를 나타내고 있다. 각각의 흐름패턴들에서는 열전달률, 물질전달률, 운동량손실, 역혼합속도, 체류시간 분포 등이 달라지게 된다[3, 8, 12, 13].

기액상 흐름에서 주된 양상은 사각셀의 각진 부분에서의 흐름에 기인하는 역혼합(backmixing)과 slug flow이다. Slug flow 영역에서는 액체 slug두에 기체 bubble이 따라 다니며, 이들 기체 bubble의 대부분은 관직경과 거의 같은 크기의 탄환모양을 하고 있다. 이들 bubble은 균일하게 상부로 이동하며, 이들 bubble과 관벽간에 존재하는 액체는 얇은 막의 형태로 하향류로 흐르게 된다.

기체 bubble과 관벽사이에는 아주 얇은 액체막만이 존재하므로 기체 bubble에서 관벽으로의 물질전달은 벽면의 얇은 막에 의해서만 방해를 받게 되고, 두 개의 연속된 slug간의 축방향 물질전달은 단지 이 얇은 막을 통해 극히 미량만이 분산되게 된다. 그러므로 slug가 존재하는 흐름에서 channel의 축방향 분산은 줄어들고, 방사상방향으로의 혼합은 증가시켜 준다. 즉, 이 slug flow 영역이 가장 효과적인 물질전달 특성을 나타내는 흐름영역이다. 기체 bubble의 운동은 channel 벽의 얇은 막을 압착시키면서 나아가며, 뒤따르는 액체 slug의 bubble 형태는 중력 및 압력에 의해 잘 혼합되는 흐름패턴을 가진다[2, 5, 6, 11].

수직상향 기액흐름의 동력학적 거동에 대해서 여러 학자들에 의해 연구되었다[1, 4, 7, 10, 13]. 실험에 기초하여 경험적인 상관관계식을 구하였으나, 이들을 다른 조건에 적용시키기에는 무리이다. 이들 제한점 때문에 특정조건에 대한 흐름특성 실험을 수행하여야 한다. 각 실험에서 상향의 기액흐름에서 흐름패턴을 모델링하고, 흐름 영향을 주는 인자들을 찾고자 하였다. Kestin은 세 가지의 모델을 보이고, 전이기준(transition criteria)을 결정하는데 사용하였다[1]. Rembrand는 기액상 수직 상향류에서 slug flow에서 공극률, 기액 유량 등 주요 영향인자들을 예측하기 위한 물리적인 모델을 개발하였다[10]. Bornea는 수직관에 정상상태로 기액흐름이 흐르는 동안 경험적인 transition map이나 흐름간 상호연관성의 제약을 줄이기 위한 흐름패턴전이의 예측모델을 만들었다[13].

## 2. 실험

### 2-1. 실험장치의 제작

본 실험은 visualization 실험을 통하여 수직 모세관내에서의 공기-페놀수용액의 상향흐름 특성을 알아보기 위한 실험으로서, 공기 및 액체의 유량, 페놀의 농도, 모세관의 너비 등에 따른 흐름패턴의 전이현상을 흐름패턴도를 그려 조사하고자 하는 실험이었다. 내부 channel에서의 동력학적 거동을 살펴보기 위하여 아크릴 재질의 사각형 판을 사용하였다. 폭 1-2 mm, 길이 15 cm의 긴 사각형 단면의 유리판을 다발로 묶어 이 다발을 원통형의 아크릴박스에 채워넣어 외부에서의 관찰이 용이하도록 하였다. 아크릴박스의 양끝에는 작은 원통형의 아크릴셀을 연결시키는데, 바닥부분의 셀은 실리콘고무와 고무캐스킷에 의해 맞물려 있는 distributor로 구성되어 있다. 바닥부분의 셀은 distributor의 결합 및 분리가 용이하도록 볼트, 너트로 고정시켰다. 주입구에는 Tygon tube를 단단히 고정시켜 이를 통하여 용액과 공기가 주입되도록 하였다. 실험장치는 Fig. 2와 같다.

Fritted glass, fritted stainless steel, perforated acrylic plate 등을 사용하여 각각의 경우에 대하여 bubble 생성 실험을 하였다. 공기는 air cylinder를 사용하여 하부셀로 주입하였다. 하부셀의 윗부분은 액체가 주입될 주입구가 연결되어 있으며 주입되는 액체는 piston metering pump(March 210-10R)를 사용하여 주입하였다. 셀의 상부에서는 액체가 모이지 않도록 해줌으로써 배출되는 bubble들이 쉽게 부

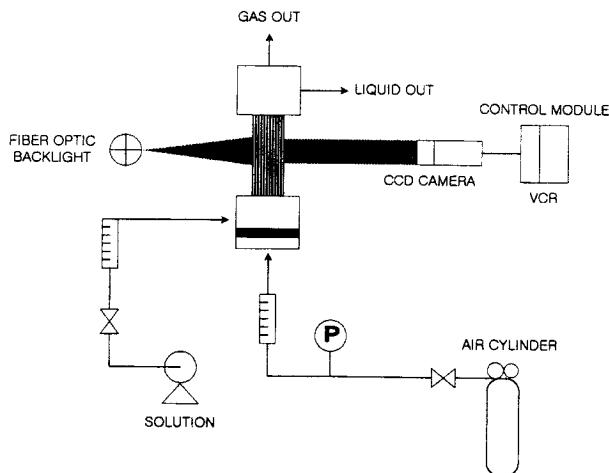


Fig. 2. Visualization setup.

Table 1. Experimental conditions

Temperature(°C)	25 °C
Outlet pressure	atmospheric
Gas flow rate(cm <sup>3</sup> /s)	0-118
Liquid flow rate(cm <sup>3</sup> /s)	0-2.1
Concentration of phenol(ppm by weight)	100-4,000

서지도록 해주었다.

공기 및 액체는 각각 최고 15CFH, 2GPH까지 측정 가능한 rotameter를 사용하여 공기 및 액체유량을 측정하면서 channel내로 주입시켰다. 액상의 용액은 폐놀용액을 사용하였고, 최고 8,000 ppm까지 농도를 달리하면서 실험을 수행하였다. 실험조건은 Table 1과 같다.

두 종류의 모세관에 대해 실험을 수행하였는데, 너비 1 mm, 두께 0.2 mm인 것과, 너비 2 mm, 두께 0.4 mm인 것이며, 이를 모두 길이 150 mm이고, borosilicate 재질의 사각형 유리관이다(Wilmad Glass WAT-810, 102). Distributor는 porosity B(최대공극직경 70-100 micron)의 소결유리로 되어 있으며, 이 distributor의 두께는 10 mm, 직경은 54 mm이다(Ace Glass fritted glass filter). 아크릴판은 폐놀용액에 대해 화학적 안정성을 갖고 있는 3 mm 두께의 것을 사용하여 제작하였다. 폐놀은 Cole-Parmer사의 1등급 분석시약을 사용하였다.

## 2-2. Visualization 장치설치 및 분석

줌렌즈를 착용한 고속 카메라를 이용한 visualization 기술로 평형 bubble을 관찰하였다. 사각의 유리관을 이용한 visualization 실험으로부터 얻어지는 흐름패턴을 관찰하였다. 고속 셔터(1/1,000 sec)를 장착한 고속 칼라 비디오 장치를 사용하여 모세관내 흐름 및 하부센내의 froth를 포착하였다. 주된 흐름 특성을 조사하기 위하여 1/30 sec 간격으로 각각의 사진을 분석하였다. 이 장치의 주요 구성요소로는; (1) lighting, (2) viewing cell, 그리고 (3) image sensing과 processing system이다. Fig. 2는 이 장치의 구성도이다.

흐름영역에서의 기체유량, 모세관의 너비, 폐놀용액농도가 각각의 조건에서 관찰되는 흐름패턴과 전이에 미치는 영향을 조사하였다.

## 3. 결과 및 고찰

전이의 양상은 액체유량보다는 기체유량의 변화에 대해 더 명확하였다. 기체유량이 아주 낮은 경우, 작은 bubble들은 bubble을 따라 channel의 내부로 흘르면서 방해가 없어서 합체되지 않았다. 이에

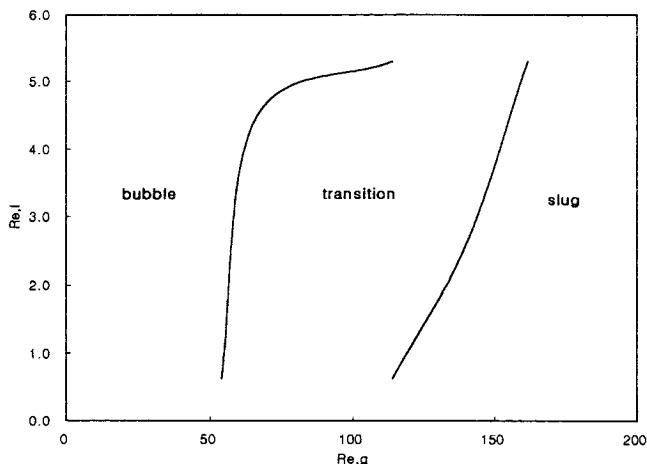


Fig. 3. Effects of air and liquid flow rate on the flow pattern for the upflow of air-aqueous phenol solution at phenol concentration 4,000 ppm and capillary diameter 2 mm.

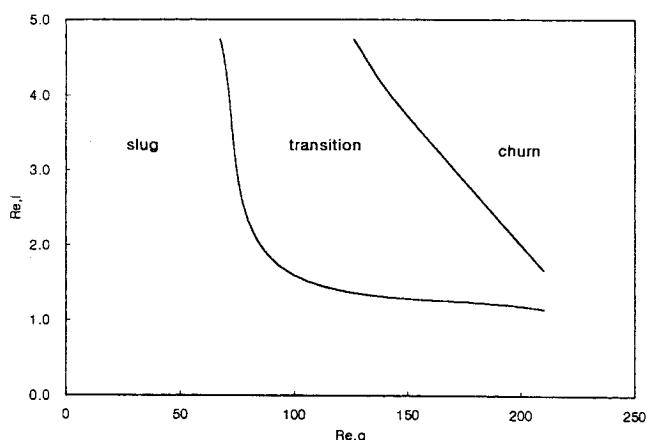


Fig. 4. Effect of capillary diameter on the flow pattern for the upflow of air-aqueous phenol solution at phenol concentration 4,000 ppm and capillary diameter 1 mm.

반해, 액체유량이 아주 낮은 경우, plateau border로 알려져 있는 것처럼 channel내에 4-5개의 sided foam이 관찰되었다. 기체유량이 증가하면서, Fig. 1에서와 같이 slug flow, churn flow, 최종적으로는 annular flow로의 전이가 일어났다.

어떤 흐름영역이 주된 흐름이며, 언제 전이가 일어나는지, 특히 어느 기체유량에서 churn flow와 annular flow로 전이되게 하는지를 확인하기 위하여 frame-by-frame analysis video technique를 사용하였다. Flow data들이 수집되어 분석한 결과 Fig. 3-8과 같은 흐름패턴도를 얻을 수 있었다.

먼저, 폐놀수용액의 농도를 4,000 ppm, 모세관의 너비를 2 mm로 고정시켜 놓고, 기체 및 액체유량의 변화에 따른 흐름패턴의 전이현상을 살펴보았다. 이때의 유량변화의 영향을 각 경우에서의 기체 및 액체유량에 따른 Reynolds수를 식 (1)에 따라 산출하여 plotting하여 살펴보았다. 결과적으로, bubble 직경값과 흐름패턴도로부터, distributor에서 생성되는 bubble의 직경은 기체유량이 증가할수록 증가함을 알 수 있었다. 기체유량이 낮은 경우(즉,  $Re_g < 100$ ), bubble의 직경은 관경보다 조금 작거나 거의 같은 크기였다. 결국 관내의 흐름영역은 distributor에서 형성되는 froth의 형태와 같았다. 이 지역은 bubble 영역과 transition 영역으로 나타났다.

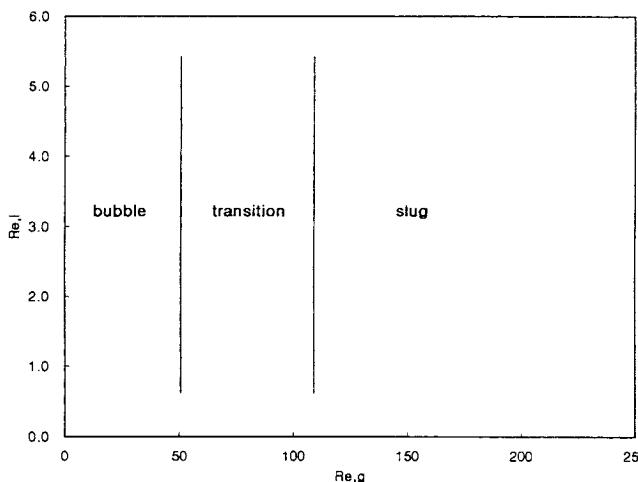


Fig. 5. Effect of aqueous phenol concentration on the flow pattern for the upflow of air-aqueous phenol solution at phenol concentration 3,000 ppm, capillary diameter 2 mm and surface tension 68.86 dyne/s.

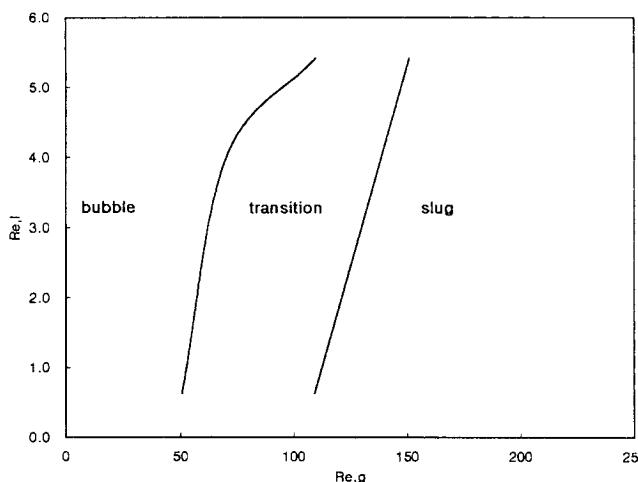


Fig. 6. Effect of aqueous phenol concentration on the flow pattern for the upflow of air-aqueous phenol solution at phenol concentration 4,000 ppm, capillary diameter 2 mm and surface tension 67.59 dyne/s.

기체유량이 증가하면, bubble 직경은 증가하였고, bubble 직경이 관경보다 더 커지면 관내 흐름은 slug flow로 발전하였다. 잘 발달된 slug flow의 기체 Reynolds 수의 범위는 상대적으로 좁으며, 액체유량에 대해서는 독립적이었다.  $Re_g$  500일 때, 관내 흐름은 churn flow와 transition으로 알려진, 보다 더 혼란스런 패턴으로 바뀌거나 더 유량이 증가하면 기체상은 연속적이 되어 액체의 얇은 막으로 둘러싸인다. 이 흐름패턴을 annular flow라고 한다.

또한 페놀수용액의 농도는 4,000 ppm으로 일정하고 모세관 너비가 1 mm인 관을 사용하여 모세관의 너비가 흐름패턴의 전이에 미치는 영향을 알아보았다. 이때에 알려진 흐름패턴도가 Fig. 4이다. Fig. 3과 4의 두 흐름패턴도를 비교해 보면, 관경이 좁아질수록  $Re_g$ ,  $g$ 의 범위가 좁아지고, 흐름패턴이 더 낮은  $Re_g$ ,  $g$  범위로 이동함을 알 수 있었다. Bubble flow에서 형성된 bubble의 직경은 관경에 근사하기는 어렵다.

다음은 기체 및 액체의 유량, 모세관의 너비는 일정하게 고정시켜놓고, 페놀수용액의 농도를 3,000-8,000 ppm까지 변화시키면서 페

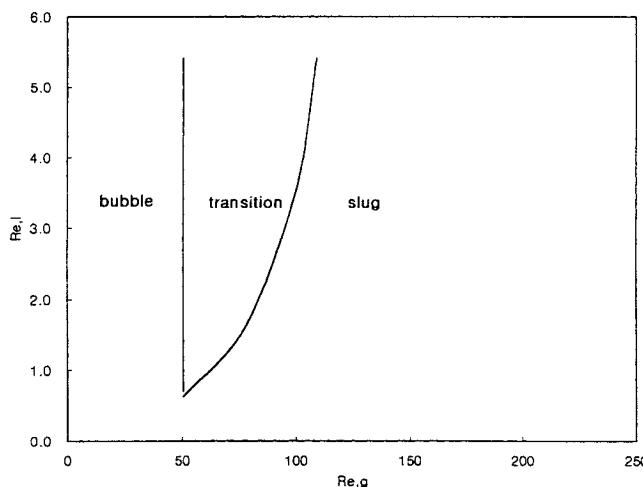


Fig. 7. Effect of aqueous phenol concentration on the flow pattern for the upflow of air-aqueous phenol solution at phenol concentration 8,000 ppm, capillary diameter 2 mm and surface tension 62.53 dyne/s.

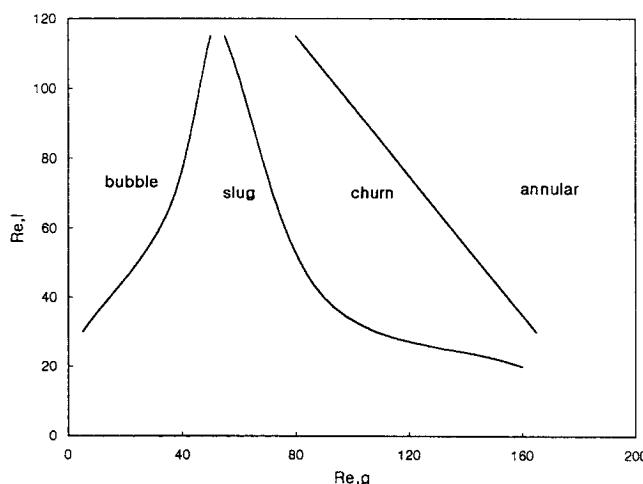


Fig. 8. Flow pattern transition for the upflow of air-soap water at volume ratio 0.3 ml/(air/soap water) and capillary diameter 2 mm.

놀수용액의 농도가 흐름패턴의 전이에 미치는 영향을 관찰하였다. 앞에서와 마찬가지로 이때의 기체 및 액체의 Reynolds수를 식 (1)로부터 산출하여 plotting함으로써 페놀수용액 농도의 영향을 알아 보았으며, 그 결과는 Fig. 5-7과 같다. 이때의 표면장력들은 Wilhelmy Slide Method를 이용하여 측정하였다.

서로 다른 세 가지 농도 즉, 3,000, 4,000, 8,000 ppm에 대한 각 경우에서의 흐름패턴의 전이현상은 8,000 ppm에서 액체유량이 적을 때의 Taylor flow인 경우를 제외하고는 거의 동일한 흐름패턴을 나타냈다.

액상 페놀에 대한 실험을 수행하기 전에 장치와 visualization system을 보정하기 위해 희석시킨 세제를 이용하여 foam을 만들어냈다. 이렇게 형성된 foam은 너무 정적이어서 관을 통해서 2개의 상(phase)이 분리되기는 어려웠다. 모든 흐름패턴의 전이현상은 Fig. 8과 같이 기체유량이 낮은 범위에서(100 cm/s 이내) 일어났다. 기체유량이 증가할수록, bubble flow, slug flow, churn flow, annular flow로 순차적으로 진행됨을 알 수 있었다.

마지막으로, 모세관의 너비, 표면장력, 유량의 영향을 종합적으로

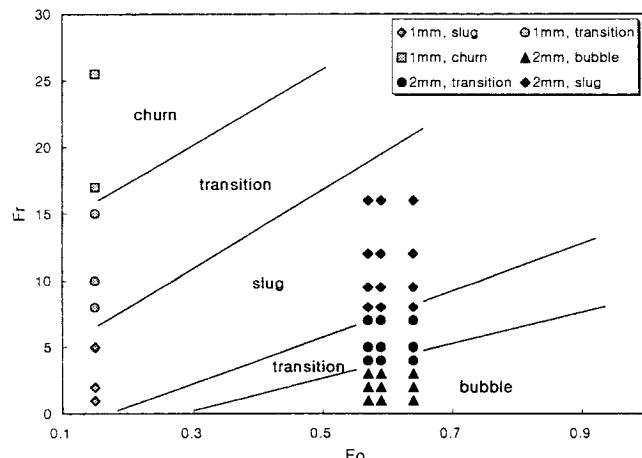


Fig. 9. Flow regime plot showing regions of bubble, slug, and churn flow at various phenol concentrations and capillary diameters.

결합하여 나타내기 위한 해석을 수행하였다. 차원해석(dimensional analysis)에서 이들 영향인자들을 모두 내재한 무차원군수 Froude 수

$\left( Fr = \frac{U^2}{gd} \right)$  와 Eötvos 수  $\left( Eo = \frac{\rho gd^2}{\sigma} \right)$  를 사용하여 하나의 그림에 표현해 보았다. Fig. 9는 다양한 페놀농도와 관직경에서의 일련의 흐름영역들을 보여주고 있다. 세가지 경우의 서로 다른 페놀농도에서 표면장력의 변화는 작고, 데이터가 불충분한 면도 있지만, 이 그림으로부터 세 가지 영향인자들이 흐름패턴의 전이현상에 어떻게 영향을 미치는지를 종합적으로 해석할 수 있었다.

#### 4. 결 론

본 연구를 통하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 액상페놀용액 및 공기가 사각 모세관 channel로 유입되면 서로 다른 세 가지의 전이 현상(즉, bubble-to-slug, slug-to-churn, churn-to-annular)<sup>o</sup> 일어남을 확인하였다.

(2) 흐름의 전이에 있어서는 액체유량보다는 기체유량의 영향이 더 지배적이다.

(3) 잘 발달된 slug의 영역을 나타내는 기체 Reynolds 수의 영역은 비교적 좁게 나타났으며, 액체유량에 대해서는 별 영향이 없는 것으로 나타났다.

(4) 다양한 운전조건하에서 네 가지 흐름영역을 나타내는 흐름패턴도를 그렸다.

(5) 수직 모세관내 공기-페놀수용액의 상향류에서 모세관의 너비, 표면장력, 그리고 기체 및 액체유량이 흐름패턴 전이에 미치는 영향을 이들 영향인자들을 모두 내재하고 있는 Froude수, Eötvos수의 무차원군수를 이용하여 종합적인 하나의 그래프로서 표현할 수 있었다.

#### 참고문헌

1. Bilicki, Z. and Kestin, J.: *Water Res.*, **1**, 367(1967).
2. Bousman, W. S., McQuillen, J. B. and Witte, L. C.: *International Journal of Multiphase Flow*, **22**(6), 1035(1996).
3. Brauner, N. and Barner, D.: *Chem. Eng. Sci.*, **41**(1), 159(1986).
4. Chung, W.-C.: *HWAHAK KONGHAK*, **12**, 242(1973).
5. Irandoust, S. and Andersson, B.: *Computers & Chem. Eng.*, **13**(4/5), 519(1989).
6. Irandoust, S. and Andersson, B.: *Ind. Eng. Chem. Res.*, **28**, 1684 (1989).
7. Kim, H.-I. and Park, J.-Y.: *HWAHAK KONGHAK*, **18**, 133(1980).
8. Kim, S. and Abraham, M. A.: *Theories and Applications of Chem. Eng.*, **1**, 577(1995).
9. Kumar, A., Degaleesan, T. E., Laddha, G. S. and Hoelscher, H. E.: *J. Chem. Eng.*, **54**, 503(1976).
10. Orell, A. and Rembrand, R.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **25**, 196 (1986).
11. Pedersen, H. and Horvath, C.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **20**, 181 (1981).
12. Pinto, A. M. F. R. and Campos, J. B. L. M.: *Chem. Eng. Sci.*, **51**(1), 45(1996).
13. Taitel, Y., Bornea, D. and Dukler, A. E.: *AICHE J.*, **26**(3), 345(1980).