

기체-액체 흐름공정의 수력학적특성 연구동향

IP(다상흐름공정 및 유동공정)

1. 상체류량

기체-액체 흐름공정에서의 수력학적 특성들은 물질·열전달과 밀접한 관계를 가지므로 전달현상을 이해하기 위해서는 수력학적 특성에 미치는 인자들을 고려해야 한다. 이 중에서 가장 중요한 것은 기체와 액체의 접촉을 많게 하는 것으로, 기체의 기포크기가 작아질수록 비표면적이 증가하므로 기포를 작게 분쇄하는 것이 전달현상 효과를 증대시키는 것으로 보고되고 있다. 기체-액체 흐름공정에서 기포들이 차지하고 있는 부피비를 기체체류량 이라고 하며 이는 체류시간과 직결된다.

삼상 슬러리 흐름공정에서의 기체 체류량은 기체유속의 증가에 따라 증가하고 슬러리의 농도에 따라 감소하며, 특히 슬러리 농도의 증가에 따라 슬러리 점도가 증가하여 기포의 분쇄속도보다 합체속도가 우월하게 됨에 따라 기체 체류량은 감소한다고 보고하고 있다. Kojima 등은 기체-액체 흐름공정에서 압력이 기체 체류량에 미치는 영향을 연구하였는데, 기체 체류량은 압력의 증가에 따라 증가하였고 특히 낮은 기체유속에서 보다 높은 기체유속에서 압력이 기체 체류량에 미치는 영향이 지대하다고 하였으며 Weber 무차원수로 가압상태에서의 기체 체류량을 고찰하고자 하였다. Letzel 등은 기체-액체 흐름공정에서 기체 체류량은 기체유속과 압력의 증가에 따라 증가한다고 하였고 기체 체류량으로부터 기포의 swarm 속도를 구하여 기포탑의 안정성과 흐름영역의 전이속도(transition velocity)를 고찰하였다. Smith 등은 슬러리 가압흐름공정에서 조업변수들이 기체 체류량에 미치는 영향을 고찰하였는데, 기체 체류량은 기체유속, 계의 압력, 고체입자의 주입양과 반응기의 내경의 증가에 따라 증가하였으며 액상의 점도에 따라서는 감소한다고 보고하였다. Sarrafi 등은 기체-액체 흐름반응기에서 다음과 같은 기체유속과 기체 체류량과의 식 m 값으로부터 흐름영역을 규명하고자 하였다.

$$\varepsilon_G \propto U_G^m \quad (1)$$

bubbly flow regime ; $0.7 \leq m \leq 1.2$

churn turbulent flow regime ; $0.4 \leq m \leq 0.7$

Neme 등은 슬러리 흐름공정에서 조업변수에 따른 기체 체류량을 연구하였는데, 기체 체류량은 기체유속의 증가에 따라 증가하였고 액상의 점도에 따라 점성 에너지 소멸 속도의 증가와 난류강도의 감소로 인하여 기체 체류량은 감소한다고 하였으며, 액상에 부유된 고체입자 농도의 증가에 따라서는 감소한다고 하였다. Shollenberger 등은 현장규모의 기체-액체 흐름공정에서 gamma-densitometer를 사용하여 반경방향에 따른 기체 체류량을 측정하였는데, 기체 체류량은 벽면에서보다 중앙에서 더 큰 값을 보였으며 이 차이는 기포탑의 내경이 커질수록 감소된다고 하였다. Wilkinson 등은 기체-액체 흐름공정에서 기체의 밀도가 기체 체류량에 미치는 영향을 고찰하였는데, 기체의 밀도가 증가하면 기포탑에서 압력의 증가와 유사한 영향으로 기체 체류량은 증가한다고 하였다.

한편, Jiang 등은 기체 체류량은 기포의 상승속도(rising velocity)와 수 밀도(number density)에 직접적으로 관련되며, 압력의 기체 체류량에 대한 확연한 영향은 압력이 10MPa 이상이고 높은 기체유속에서 나타난다고 하였으며, 이는 작은 크기의 기포들이 높은 발생빈도를 나타내며 형성되기 때문이라고 하였다. Akita 등은 기체 체류량에 영향을 줄 수 있는 변수들로 탑직경(D), 분산판 오리피스의 직경(d_o), 기체유속(U_G), 점도(ν_L), 액체밀도(ρ_L), 표면장력(γ) 그리고 중력(g) 등이 있다고 가정하고 이들을 차원해석(dimensional analysis)을 이용하여 기체 체류량에 대한 식을 식 (2)처럼 나타내었다.

$$\varepsilon_G = f_1(N_{Bo}, N_{Go}, N_{Fr}, d_o/D) \quad (2)$$

여기서, $N_{Bo} = gD^2\rho_L/\gamma$, Bond number
 $N_{Go} = gD^3/\nu_L$, Galileo number
 $N_{Fr} = U_G/\sqrt{gD}$, Froude number
 d_o/D , diameter ratio

또한, 실험을 통하여 식 (3)과 같은 기체 체류량에 대한 상관식을 제안하였다.

$$\frac{\varepsilon_G}{(1-\varepsilon_G)} = 0.20(gD^2\rho_L/\gamma)^{1/8}(gD^3/v_L^2)^{1/12}(U_G/\sqrt{gD})^{1.0} \quad (3)$$

De Bruijn 등은 압력이 기포의 초기 크기에 미치는 영향은 무시되지만, 고압계에서는 기체유속의 증가에 따라서 작은기포의 높은 생성빈도수를 가지고 있는 기포가 형성이 되고 이러한 결과로 인해 상압상태에 비해서 가압상태의 계는 높은 기체 체류량을 가지게 된다고 하였다.

Wilkinson 등은 균일 기포흐름영역(homogeneous bubble flow regime)에서 불균일 난류흐름영역(churn turbulent flow regime)으로의 전이는 크고, 빠른 상승속도를 가지고 있는 기포의 생성에 의해서 발생하게 된다고 하고, 이러한 흐름영역의 전이가 발생하는 전이유속(transition velocity)은 기포의 생성과 발생(합체 및 분쇄)에 영향을 미치는 모든 인자들에 의해서 영향을 받는다고 하였다. 또한 Krishna 등의 연구결과를 이용하여 전이유속(U_{trans})을 기준으로 기체 체류량에 대한 다음과 같은 상관식을 제안하였다.

For $U_G < U_{trans}$;

$$\varepsilon_G = \frac{U_G}{U_{s.b.}} \text{ (homogeneous bubble flow regime)} \quad (4)$$

여기서 $U_{s.b.}$ 는 작은기포의 상승속도인데, 식 (5)를 이용하여 구한다.

$$\frac{W_{el}}{R_{el}} = \frac{U_{s.b.}n_l}{\sigma} = C \cdot \left[\frac{\sigma^3\rho_l}{gn_l^4} \right]^{n1} \left[\frac{\rho_l}{\rho_g} \right]^{n2} \quad (5)$$

For $U_G > U_{trans}$;

$$\varepsilon_G = \frac{U_{trans}}{U_{s.b.}} + \frac{U_G - U_{trans}}{U_{l.b.}} \quad (6)$$

(transition and heterogeneous regime)

최근에는 기체의 밀도, 즉 압력의 변화가 기체체류량에 미치는 영향에 대한 연구가 활발하게 이루어지고 있는데, Table 1에 기포탑에서 기체 체류량

에 대한 상관식을 정리하였다.

Table 1. Gas holdup correlation equations in gas-liquid flow process

| | |
|---|-----------------------|
| $\varepsilon_g = 0.672 \left[\frac{U_g n_l}{\sigma} \right]^{0.578} \left[\frac{n_l^4 g}{\rho \rho^3} \right]^{-0.131} \left[\frac{\rho_g}{\rho_l} \right]^{0.062} \left[\frac{n_g}{n_l} \right]^{0.107}$ $\varepsilon_g = 0.672 U_g^{0.576} \rho_l^{0.069} \rho_g^{0.062} \sigma^{-0.183} n_l^{-0.073} n_g^{0.107} g^{-0.151}$ | Hikita <i>et al.</i> |
| $\frac{\varepsilon_g}{1 - \varepsilon_g} = 0.4 \left[\frac{U_g n_l}{\sigma} \right]^{0.87} \left[\frac{n_l^4 g}{\rho \rho^3} \right]^{-0.27} \left[\frac{\rho_g}{\rho_l} \right]^{0.17}$ $\frac{\varepsilon_g}{1 - \varepsilon_g} = 0.4 U_g^{0.87} \rho_g^{0.17} \rho_l^{0.1} \sigma^{-0.06} n_l^{-0.21} g^{-0.27}$ | Hammer <i>et al.</i> |
| $\frac{\varepsilon_g}{\varepsilon_{g0}} = \exp \left[A (\rho Q^2 d_0^{-3} \gamma^{-1}) \left(\frac{P}{P_0} \right)^B \right]$ $\varepsilon_g = 1.18 U_g^{0.679} \left(\frac{\gamma}{\gamma_0} \right)^{0.546} \times \exp \left[A (\rho Q^2 d_0^{-3} \gamma^{-1}) \left(\frac{P}{P_0} \right)^B \right]$ | Kojima <i>et al.</i> |
| $\frac{\varepsilon_g}{(1 - \varepsilon_g)^4} = a \left(\frac{d_R^2 \rho_L g}{\sigma} \right)^{1/8} \left(\frac{g d_R^3 \rho_L^2}{\mu_L^2} \right)^{1/12} \frac{U_g}{\sqrt{g d_R}}$ | Akita <i>et al.</i> |
| $\frac{\varepsilon_g}{1 - \varepsilon_g} = 1.44 U_g^{0.58} \rho_g^{0.12} \sigma^{-0.16} \exp(-P)$ | Idogawa <i>et al.</i> |
| $\varepsilon_g = 296 U_g^{0.44} \rho_l^{-0.98} \sigma^{-0.16} \rho_g^{0.19} + 0.009$ | Reilly <i>et al.</i> |
| $\frac{\varepsilon_g}{1 - \varepsilon_g} = 0.059 U_g^{0.8} \rho_g^{0.17} \frac{\sigma}{72}^{-0.22 \exp(-P)}$ | Idogawa <i>et al.</i> |

2. 기포특성

기체-액체 흐름공정에서 기포특성에 대한 연구는 기포크기 및 크기분포, 기포상승속도, 기포빈도수 및 분율 등의 특성에 대한 연구가 행하여졌으며 최근에는 상압상태가 아닌 가압상태에서 이러한 기포 특성들에 대한 연구가 주로 이루어지고 있다. 가압상태에서는 이와 같은 기포들의 특성으로부터 기포탑의 흐름영역을 규명할 수 있는데, Fig. 1에서 보는 바와 같이 계의 압력

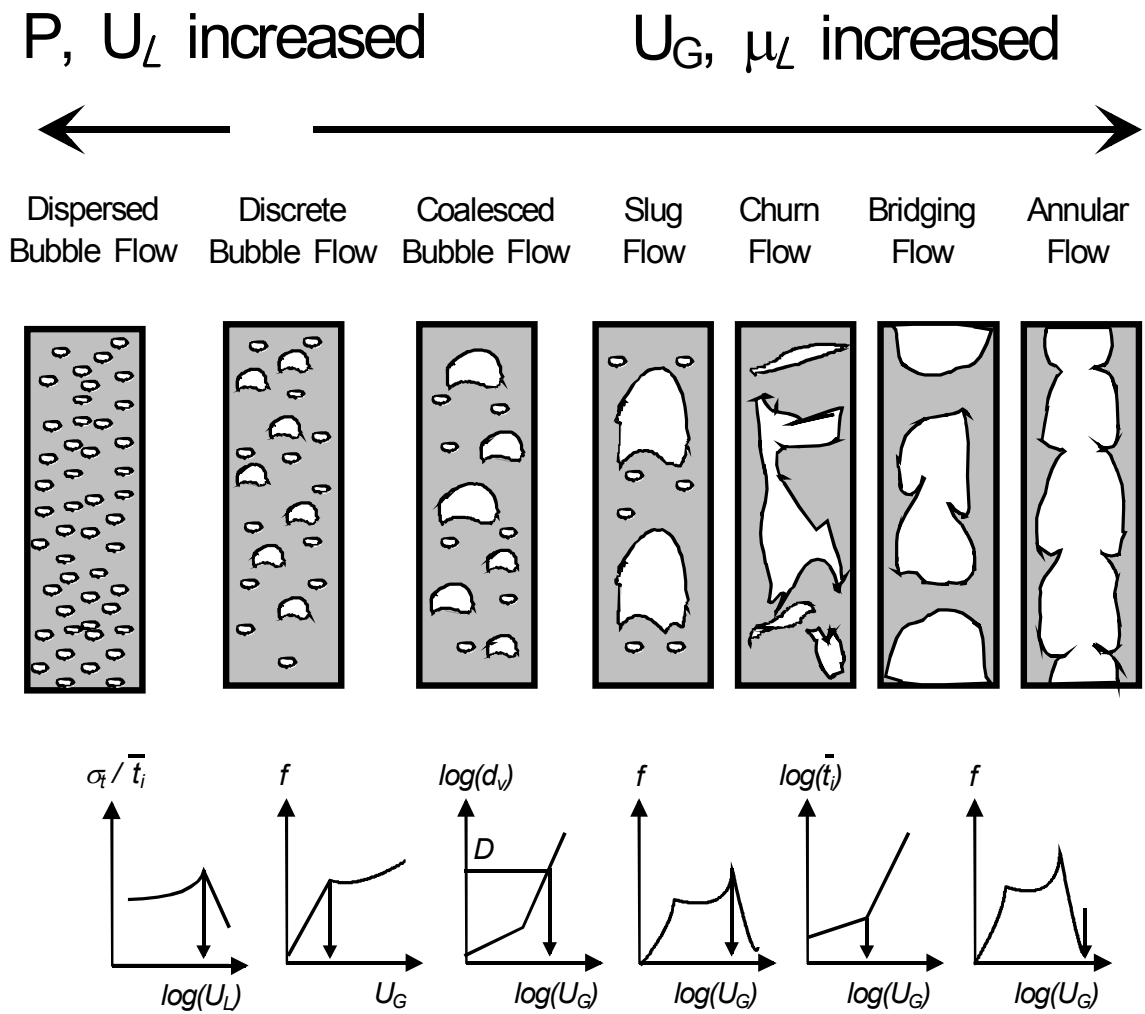


Fig. 1. Schematic diagram of flow regimes and their transition criteria in pressurized bubble columns.

과 액체유속이 증가하면 균일흐름영역(homogeneous flow regime)으로, 반대로 기체유속과 액체점도가 증가하면 불균일흐름영역(heterogeneous flow regime) 방향으로 흐름영역은 전이되어진다. 또한, 기포특성 즉 기포의 체류시간과 표준편차, 기포의 빈도수, 기포크기들로부터 각각의 흐름영역을 규명할 수 있다.

기포의 특성을 연구하는 방법으로는 다음의 것들이 최근 많이 사용되고 있다.

사진기술 방법에 의한 대부분의 기포특성 실험은 2차원 유동층에서 주로 이루어졌다. 이는 기포의 특성을 연구할 때 2차원 유동층에서 기포의 거동을 쉽게 구분할 수 있고 눈으로 식별이 가능하기 때문에 널리 사용되고 있다. 그러나, 2차원 유동층에서 slug현상이 발생하면 벽면효과(wall effect) 때문에 정확한 기포크기를 알 수 없다는 단점도 보고되고 있다. X-ray 방법에 의한 기포특성 실험은 X선이 좋은 투과성을 지니므로 3차원 유동층에서도 기포의 거동을 측정할 수 있으므로, 2차원 유동층보다는 정확한 기포크기 및 형태를 측정할 수 있다고 하였다. 그러나, X선의 흡수현상 때문에 층두께가 50cm 이상인 유동층에서는 사용하기 어렵다는 단점을 가지고 있다. 정전용량 탐침(capacitance probe) 방법에 의한 연구는 유동입자가 비전도성인 경우에 사용 가능한 방법으로 두 탐침에서 정전용량 차이를 감지하여 기포특성을 알아내는 방법으로 정전용량 탐침에 연결된 도관의 길이는 노이즈를 방지하기 위해서 짧아야 하며, 보정하기 어렵다는 단점을 가지고 있다.

광섬유탐침(Optical fiber probe)방법은 광섬유로 만든 탐침끝이 유동입자와 접촉하면 빛(X선 및 γ 선)이 반사해 돌아오고, 기포와 접촉하면 분산되는 원리를 적용한 것으로, 이때 반사되는 빛은 비교기(comparator)를 거쳐 전기신호로 바뀌어 해석되며 유동층에서 움직이는 유동입자 및 기포의 특성에 대한 관찰이 가능하다.

압력요동(Pressure fluctuations) 방법에 의한 기포의 특성연구는 유동층에서 기포에 의한 압력변동을 측정하여 기포의 거동을 해석하는 방법이다. 이 방법은 상체류량을 구하기 위해 측정해야 하는 층내부의 압력신호를 통계적으로 해석하여 기포특성을 관찰 할 수 있다. 따라서, 기존의 방법들보다 짧은 시간에 육안으로 확인하지 않고도 기포의 특성을 예측할 수 있다는 장점

을 지니고 있다.

전기저항탐침(Electrical-Resistivity probe) 방법은 연속상이 액상인 경우에 사용할 수 있는 방법이다. 즉, probe tip이 연속상과 접촉하면 전기를 통하고, 분산상(기포)와 접촉하면 전기를 통하지 않는 원리를 이용하여 기포의 특성을 알아내는 방법으로, 이 방법은 기포의 상부에 탐침이 닿는 위치 및 단일 기포의 크기와 형태를 정확히 알 수 없지만, 많은 기포를 측정하여 평균기포 길이를 구하여 통계적인 기포형태를 예측할 수 있다고 보고되고 있다.

한편, 최근들어서 가압기포탑에서 압력의 변화에 따른 기포의 특성연구가 진행되고 있는데, Idogawa 등은 5cm I.D.의 가압기포탑에서 기상으로는 H₂, He, air를 액상으로는 물, 메탄올, 에탄올, 아세톤 등을 사용하여 저항탐침법을 이용하여 압력을 5MPa까지 증가시키면서 기포특성을 연구하였는데, 기체 체류량과 기포발생 빈도수는 기체밀도와 유속이 증가함에 따라서 증가하였고 압력의 증가에 따라서는 기포크기는 감소하였으며 0.5~5cm/s 범위에서는 기체유속의 영향을 받지 않는다고 하였다. 또한 평균기포크기에 대한 상관식을 식 (7)로 나타내었다.

$$\bar{d}_b = 3.91\rho^{-0.07}(\sigma/72)^{0.22}\exp(-P) \quad (7)$$

Krishna 등은 가압기포탑에서 사진기술을 사용하여 압력과 기체 밀도가 기포크기와 기체체류량에 미치는 영향을 고찰하였는데, 압력의 증가는 기체밀도의 증가와 같은 영향을 발휘하며 기체밀도의 증가에 따라서 기포의 안정도(stability)가 감소하기 때문에 기체체류량은 증가하였고, 기포크기는 작아진다고 하였으며, Kelvin-Helmholz stability analysis를 이용하여 기체밀도가 기포 분쇄에 미치는 영향을 고찰하였다. Jiang 등은 직경 5.08cm × 높이 80cm의 기-액 가압기포탑에서 21MPa까지 압력을 증가시켜 가면서 기포탑 내의 거동을 연구하였는데, 탑내의 흐름거동은 사진기술과 투명창(transparent windows)을 이용하여 관찰하였다. Jiang 등은 실험을 통하여 기포탑의 수력학적인 거동에 미치는 압력의 영향은 기포크기와 크기분포의 변화때문이며 압력의 증가에 따라서 기포크기는 작아지고, 크기분포는 좁아지며, 기체체류량은 증가한다고 하였으며, 부피-면적 평균기포크기(volume

to surface mean bubble diameter, d_{vs})에 미치는 압력의 영향은 1.5MPa 이상이 되면 소멸된다고 하였다. 또한, Jiang 등은 특별히 제작된 직사각형 칼럼에서 1MPa 까지 압력을 증가시켜가면서 실험을 수행하였는데 다른 연구자들과 마찬가지로 압력의 증가는 기포크기와 크기분포를 좁게만들고 기체 체류량을 증가시킨다고 하였으며, 분산관의 종류는 탑의거동 즉, 유체회전, 기포합체, 기체 체류량 등에 큰 영향을 준다고 보고하였다. Idogawa 등은 직경 5cm의 가압기포탑에서 기체의 유속을 0.5~5cm/s, 압력을 15MPa까지 증가시키면서, 전기저항탐침법(electric resistivity probe method)를 이용하여 기포의 특성을 연구한 결과 5MPa 이상이 되면 기포크기 분포는 좁아졌으며 거의 균일한 크기를 가지게 된다고 하였고, 상압상태에서 기포의 거동은 분산관에 크게 의존하지만, 압력의 증가에 따라서 이러한 영향은 점차 소멸되며 10MPa 이상에서는 기포에 미치는 분산관의 영향은 완전히 사라진다고 보고하였다. Sarrafi 등은 기포탑계에서 사진기술을 사용하여 기포의 크기를 측정하였는데, 기포의 크기는 기체유속의 증가에 따라 서서히 커지는 균일 흐름영역(homogeneous flow regime)과 기포의 합체가 활발히 일어나 기포의 크기가 큰 폭으로 증가하는 불균일 흐름영역(heterogeneous flow regime)으로 나뉘어 보여졌다. Smith 등은 슬러리 기포탑에서 X-선 기술을 이용하여 기포의 크기를 측정하였는데, 기체유속의 증가에 따른 기포의 크기는 상압에서는 계속 증가하였으나 계의 압력이 8 bar에서는 최대값을 보였고 압력의 증가에 따른 기포크기는 감소하였으며 액상의 점도와 고체입자의 주입양에 따라서는 감소하는 경향을 나타내었다.