

교반조에서 비혼화성 액상(*n*-헥산/물)계의 액-액분산

김 태 옥 · 김 동 육* · 전 종 한**

명지대학교 공과대학 화학공학과

*Cox Lab. of Biomedical Eng., Rice University, USA

**대전산업대학교 공업화학과

(1993년 3월 26일 접수, 1993년 6월 14일 채택)

Liquid-Liquid Dispersion of an Immiscible Liquid Phase (*n*-Hexane/Water) System in a Stirred Tank

Tae-Ok Kim, Dong-Uk Kim,* and Jong-Han Chun**

Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Myong Ji Univ., Seoul 120-728, Korea

*Cox Lab. of Biomedical Eng., Rice Univ., Houston TX 77251, USA

**Dept. of Ind. Chem., Tae Jeon Nat'l Univ. of Ind., Tae Jeon 300-172, Korea

(Received March 26, 1993, Accepted June 14, 1993)

요약: *n*-헥산과 증류수로 이루어진 비혼화성 액상계에서 교반에 의한 액-액분산을 해석하였다. 교반기는 blade 형태가 flat, 60mesh와 40mesh의 금망, 그리고 60mesh금망의 외부에 금속띠를 두른 4가지의 6-bladed turbine 교반기를 사용하였다. 실험결과, 동일한 교반속도에서 유기상의 분산정도와 교반기의 소요동력은 blade형태가 flat>solid edged>60mesh>40mesh의 순서이었으며 유기상의 부피비가 증가할수록 완전분산에 필요한 최소교반속도가 증가되었다. 또한 분산상의 액적의 평균직경은 교반속도의 증가에 따라 감소하였으며 동일한 교반속도에서는 solid edged<flat<60mesh<40mesh의 순서이었다. 완전분산에서 최소소요동력은 blade형태에 무관하게 거의 동일하였으나 금속띠를 두른 금망의 교반기가 가장 작고 균일한 크기의 액적으로 분산되어 우수한 액-액분산의 성능을 나타내었다. 이때 난류영역에서 Power number는 Reynolds number에 무관하게 일정하였고 액적의 Sauter평균직경(d_{32})은 다음과 같이 유기상의 부피비(ϕ)와 Weber number(N_{We})의 함수로 나타낼 수 있었다.

$$d_{32}/D = a(1+b\phi)N_{We}^{-0.6}$$

Abstract: The effect of agitation on liquid-liquid dispersion was investigated in an immisicible liquid phase(*n*-hexane/water) system. Four different types of six-bladed turbine impellers were used: a flat blade, two screen blades and a solid edged 60 mesh screen blade. We found that the extent of dispersion of organic phase and power consumption of agitator were decreased in the order of flat, solid edged, 60 mesh, and 40 mesh blades at same agitation speed. And the minimum agitation speed for complete dispersion of organic phase was increased with increasing volume fraction of organic phase. Also, mean diameter of liquid droplets of dispersed phase was decreased with increasing agitation speed and it was increased in the order of solid edged, flat, 60 mesh, and 40 mesh screen blades at same agitation speed. At complete dispersion, the minimum power consumption was not vary significantly with impeller blade types, but the solid edged screen blade impeller gave the smallest and uniform sizes of liquid droplets, and it had a good performance for liquid-

liquid dispersion. In this condition, Power number was not affected by Reynolds number and it was constant in turbulent flow region, and Sauter mean diameter(d_{32}) of liquid droplets was expressed as a function of volume fraction of organic phase(ϕ) and Weber number(N_{We}) as follows:

$$d_{32}/D = a(1+b\phi)N_{We}^{-0.6}$$

1. 서 론

유기합성, 유화증합, 혼탁증합, 그리고 석유세정 등과 같은 비혼화성 액상계에서는 액-액간의 물질이동이 액상간의 계면(interface)을 통하여 일어나기 때문에 분산상의 액적(droplet)의 크기를 작고 균일하게 분산시킬수록 액적의 외부저항이 감소될 뿐만 아니라 액-액간의 계면적이 증가되어 화학반응속도가 증가된다[1, 2].

그러나 액상촉매상에서 액화석유가스의 선택적 분리공정과 같은 액상간의 물리적 성질, 특히 밀도의 차이가 큰 경우에는 충분히 현상이 증가하여 교반기의 배출유량은 감소되기 때문에 유기상을 균일하게 분산시키기가 매우 어렵게 된다.

이와 같은 비혼화성 액상의 분산에 영향을 미치는 물리적 성질로는 계면간의 밀도, 접도, 표면장력의 차이와 분산상의 부피비 등이 있으며 기계적인 인자로는 교반기의 소요동력과 혼합효과 등이 있다[3, 4].

따라서 대부분의 연구는 최소소요동력에서 유기상을 완전분산시킬 수 있는 조업조건의 결정과 교반기의 성능을 검토하기 위하여 물리적 성질의 변화와 교반기의 형태에 따른 소요동력, 교반효과, 액적의 크기 등을 측정하고 해석하였다[5-7]. 그러나 비혼화성 액상계의 액-액분산에 관한 연구는 아직도 미흡한 실정이며 더욱이 다양한 형태의 교반기에서 유기상의 분산효과, 소요동력, 액적의 크기 등을 동시에 비교하여 교반기의 성능을 검토한 연구결과는 거의 보고된 바 없다.

본 연구는 비혼화성 액상반응계의 효과적이고 경제적인 분산장치를 해결하기 위하여 n-헥산과 p-TSA 수용액계에서 6-bladed turbine 교반기의 성능을 비교, 해석한 전보[8]에 이어 여러 가지 교반기에 대한 액-액분산효과를 해석하였다. 실험은 유기상으로 액상촉매와 물리적 성질의 차이가 큰 n-헥산을, 그리고 수용액으로 중류수를 사용하여 유기상의 분산효과, 소요동력, 그리고 분산상의 액적의 크기를 측정한 다음 유기상의 완전분산에서 최소소요동력과 액적의 평

균직경을 비교하여 교반기의 성능을 비교하였다.

2. 실험

2. 1. 교반기

교반기는 직경이 4.4cm이고 blade의 길이와 폭이 각각 1.0, 0.9cm인 4가지 종류의 6-bladed turbine 교반기를 사용하였다. 즉, blade의 형태에 따라 flat 교반기, 60mesh와 40mesh의 금망으로 된 교반기, 그리고 금망의 기계적 강도를 높이기 위하여 Fig. 1의 상세도와 같이 60mesh금망의 외부에 폭이 1mm인 금속띠를 두른 교반기(solid edged screen blade impeller)이었다.

2. 2. 실험장치

교반조는 폭이 1.1cm인 4개의 방해판이 부착된 내

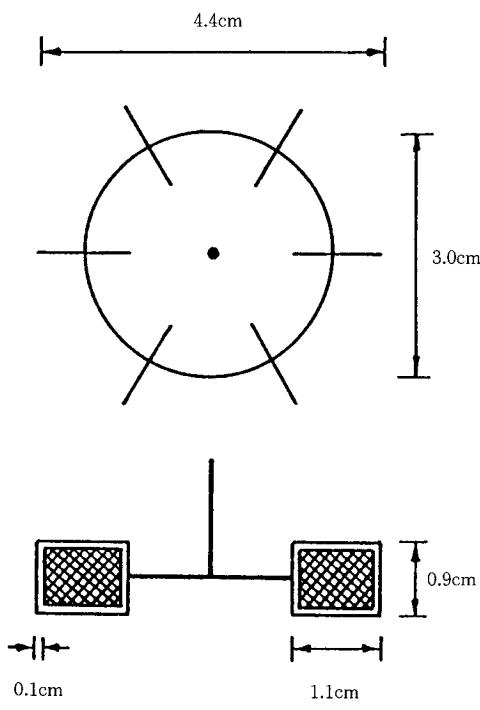


Fig. 1. Details of the solid edged screen blade impeller.

경 13.1cm의 원통형 유리관을 사용하였다. 교반기는 액상의 상부에서 형성되는 와류(vortex)현상을 감소시키기 위하여 액상높이의 1/3 위치에 고정시키고 직류모터를 사용하여 rpm control box로 회전 속도를 조절하였다. 교반조의 외부에는 water jacket를 부착하고 항온조로부터 원심펌프에 의해 증류수를 순환시켜 교반조 내의 온도를 1°C 범위 내에서 일정하게 유지시켰다. 사용된 실험장치는 전보 [8]와 동일하였다.

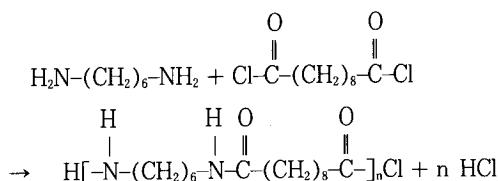
2.3. 실험방법

비혼화성 액상간의 물리적 성질의 차이를 크게 하기 위하여 유기상은 n-헥산을, 그리고 수용액상은 증류수를 사용하고 유기상의 부피비를, 1/2, 1/3, 1/4, 1/5로 변화시켰다. 실험은 액상의 높이(H)를 교반조의 직경과 동일하게 유지시키고 20°C에서 4가지 형태의 교반기에 대한 혼합효과, 소요동력, 그리고 액적의 크기를 측정하였다.

비혼화성 액상계에서 교반기의 혼합효과를 나타내는 분산상의 높이(H_b)는 실험조건에서 정상상태에 도달되면 교반조의 하부에서부터 분산상과 액적으로 깨지지 않은 유기상과의 경계면의 평균높이를 측정하였다.

교반기의 소요동력은 회전속도 조절기와 한 조로 이루어진 standard servodyne dynamometer(Cole-Parmer사)에 의해 나타난 전위차를 연속기록계에 기록하고 보정하여 산출하였다.

액적의 크기는 캡슐화법[6]에 의하여 측정하였다. 즉, 정상상태의 실험조건에서 70% hexamethylene diamine수용액 3ml를 교반조에 넣고 약 1분 동안 유기상을 분산시킨 다음 sebacoyl chloride 2ml를 첨가하고 교반을 정지시켰다. 이때 hexamethylene diamine은 물에 용해되고 sebacoyl chloride는 n-헥산에 용해되므로 물속에 분산된 n-헥산의 표면에서 이들이 순간적으로 반응하여 다음과 같이 nylon 6-10의 막이 형성된다.



Nylon막이 입혀진 액적을 정체시킨 다음 현미경을 사용하여 평균직경을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 유기상의 분산

Fig. 2는 유기상의 부피비(ϕ)가 1/4인 경우에 4가지 형태의 교반기에서 교반속도의 변화에 따른 유기상의 무차원 분산높이 변화를 나타낸 대표적인 그림이다. 그림에서 H_b/H 는 교반속도에 대하여 직선관계를 나타내며 동일한 교반속도에서는 blade의 형태가 flat > solid edged > 60mesh > 40mesh의 순으로 분산이 잘 이루어지고 있다. 이것은 turbine형태의 교반기에서 난류를 형성시키는 교반기의 배출유량이 교반속도에 정비례할 뿐만 아니라[9] blade의 형태에 의존하기 때문이며 n-헥산과 p-TSA수용액계에서 flat 형태와 금망의 교반기에 대하여 얻은 전보[8]의 결과와 동일하다. 따라서 60mesh금망의 외부에 금속띠를 두른 교반기의 분산효과는 flat형태보다는 작고 60mesh금망의 교반기보다는 증가하게 된다.

유기상의 분산에 미치는 유기상의 부피비 영향은

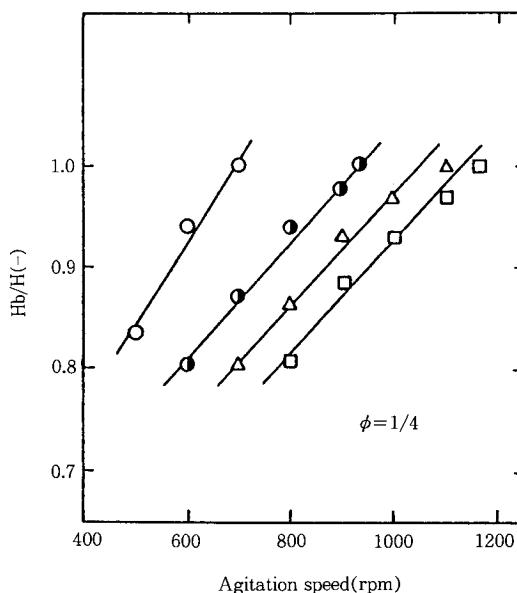


Fig. 2. Effect of agitation speed on H_b/H for various impeller blade types : flat(○), solid edged(●), 60mesh(△), and 40mesh(□).

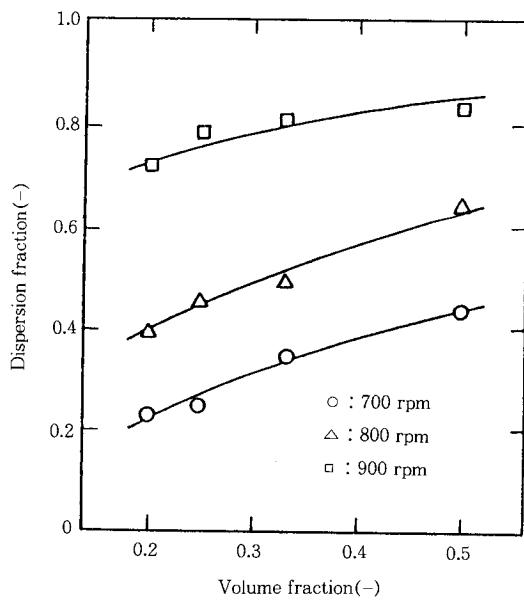


Fig. 3. Effect of volume fraction of organic phase on dispersion fraction for solid edged 60mesh screen blade impeller.

Fig. 3에서와 같이 유기상이 교반기에 균질할수록 교반에 의한 상부의 재순환흐름 속에 유기상이 많이 포함되기 때문에 동일한 교반속도에서 분산된 유기상의 부피분율은 ϕ 의 증가에 따라 증가되고 있다. 그러나 유기상이 많을수록 상대적으로 유기상의 높이와 액상의 균일성(homogeneity)이 감소되어 완전분산에 필요한 교반속도는 증가하였다.

따라서 유기상이 완전분산에 도달되는 교반속도, 즉 최소교반속도는 Fig. 2에서와 같이 유기상의 분산 높이와 교반속도와의 그림에서 H_b/H 가 1이 되는 교반속도를 최소자승법(least square method)으로 외삽하여 산출하였으며 그 결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Minimum Agitation Speed(rpm) Required for Complete Dispersion of Organic Phase

ϕ	Blade type			
	flat	60mesh	40mesh	solid edged
1/5	660	970	1040	830
1/4	700	1050	1160	940
1/3	720	1080	1170	1030
1/2	740	1120	1250	1100

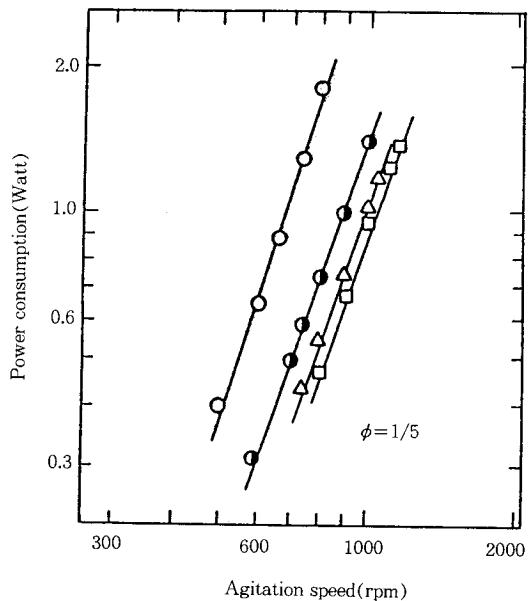


Fig. 4. Effect of agitation speed on power consumption for various impeller blade types : flat(○), solid edged(●), 60mesh(△), and 40mesh(□).

3.2. 소요동력

Fig. 4는 여러 가지 교반기 형태에서 교반속도와 소요동력과의 관계를 나타낸 대표적인 그림이다. 그림에서와 같이 교반기의 소요동력은 유기상의 부피비와 교반기의 종류에 따라 다소 차이가 있었으나 교반속도의 2.7~3.3승에 비례하였다. 이것은 난류영역에서 혼화성 액상계의 결과인 3.0승과 거의 일치한다 [9]. 또한 동일한 교반속도에서 교반기의 소요동력은 blade의 형태가 flat > solid edged > 60mesh > 40mesh의 순서로 감소하였는데 이것은 Fig. 2의 결과와 같이 교반기의 배출유량이 작을수록 소요동력이 작기 때문이다[3].

교반기의 소요동력에 미치는 유기상의 부피비의 영향은 매우 작았으나 유기상이 많을수록 액상의 밀도와 점도의 감소로 소요동력은 다소 감소하는 경향을 나타내었다.

따라서 비혼화성 액상계의 물리적 성질변화와 교반기의 형태에 따른 소요동력의 상관식을 얻기 위하여 Power number(N_p)와 Reynolds number(N_{Re})와의 관계를 나타낸 그림은 Fig. 5와 같다. 여기서 N_p

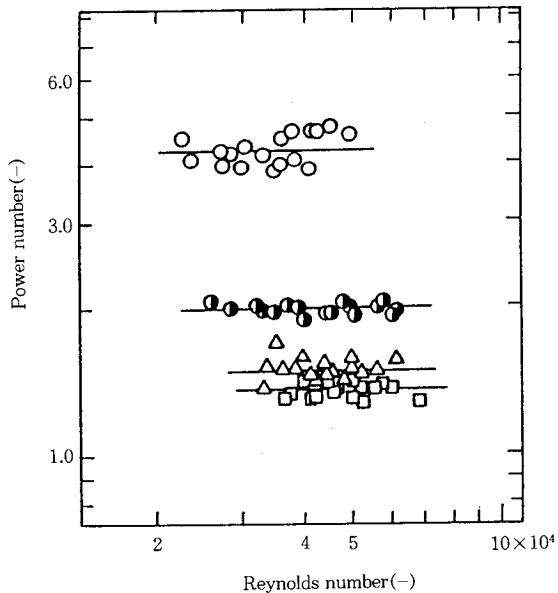


Fig. 5. Power number vs. Reynolds number for various impeller blade types : flat(○), solid edged(●), 60mesh(△), and 40mesh(□).

와 N_{Re} 는 각각 $P/\rho_m N^3 D^5$, $\rho_m ND^2 / \mu_m$ 로 정의하였고 P 는 소요동력(Watt), N 은 교반속도(sec^{-1}), D 는 교반기 직경(m)이며 액상의 평균밀도와 점도는 문헌값 [10]을 사용하여 각각 $\rho_m = (1-\phi)\rho_c + \phi\rho_d$, $\mu_m = \mu_c^{1-\phi} \cdot \mu_d^\phi$ 와 같이 계산하였다.

그림에서와 같이 N_p 는 N_{Re} 에 무관하게 일정한 값을 나타내고 있는데 이것은 본 실험조건이 Reynolds number가 23,000~70,000인 난류영역이기 때문이며 이 결과는 혼화성 액상계에서와 동일하다[11]. 이때 산출된 N_p 의 평균값은 blade의 형태에 따라 flat, 60mesh, 40mesh, solid edged에서 각각 4.22, 1.46, 1.36, 1.97이었다.

이상의 결과로부터 유기상의 완전분산에 필요한 최소교반속력은 Table 1의 최소교반속도와 N_p 의 값을 사용하여 산출하였으며 그 결과는 Table 2와 같다.

Table 1에서와 같이 유기상이 많을수록 최소교반속도가 증가되기 때문에 최소교반속력이 다소 증가하며 blade형태에 따른 최소교반속력의 크기는 크게 차이가 나지 않으나 최소교반속도의 크기순서와 동일하였다.

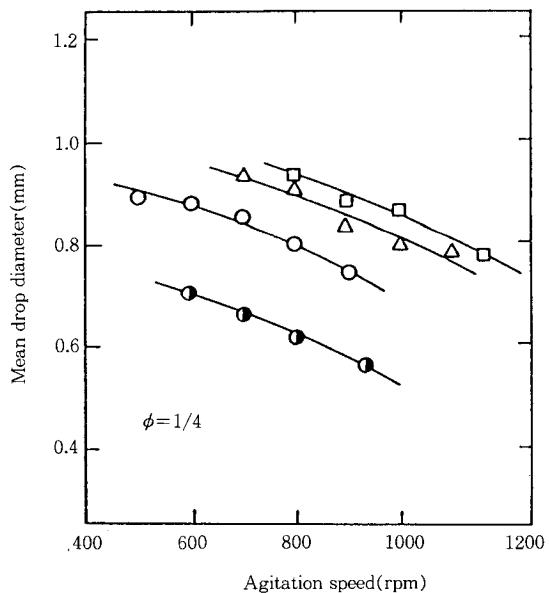


Fig. 6. Effect of agitation speed on mean drop diameter for various impeller blade types : flat(○), solid edged(●), 60mesh(△), and 40mesh(□).

Table 2. Minimum Power Consumption(Watt) Required for Complete Dispersion of Organic Phase

ϕ	Blade type			
	flat	60mesh	40mesh	solid edged
1/5	0.88	0.97	1.06	0.92
1/4	1.00	1.21	1.46	1.14
1/3	0.99	1.26	1.48	1.17
1/2	"	1.36	1.55	1.21

3. 3. 액적의 크기

Fig. 6은 유기상의 부피비가 1/4인 경우에 여러가지 교반기의 형태에서 교반속도의 변화에 따른 액적의 평균직경의 변화를 나타낸 그림이다. 액적의 크기는 교반속도가 증가함에 따라 감소하며 동일한 교반속도에서는 blade형태에 따라 40mesh>60mesh>flat>solid edged의 순으로 감소하고 있다. Flat blade의 경우에는 유기상이 blade의 모서리에서 부딪힘과 펌핑(pumping)에 의한 난류형성으로 인하여 액적으로 분산되기 때문에 금망의 사이로 빠져 나가면서 형성되는 액적보다 크기가 작아지는 것으로 보

인다. 따라서 금속띠를 두른 교반기는 flat 형태와 금망의 교반기가 갖는 액적형성의 효과를 동시에 나타내어 상당히 작은 크기의 액적을 형성하게 된다.

액적의 평균직경은 유기상의 부피비가 증가할수록 다소 증가하였으며 액체의 물리적 성질과 유기상의 부피비, 그리고 교반기의 형태에 따라 다음과 같이 액-액분산계에서의 일반 형태식[12]으로 상관식을 얻을 수 있었다.

$$d_{32}/D = a(1+b\phi)N_{We}^{-0.6}$$

여기서 d_{32} 는 Sauter 평균직경(m), N_{We} 는 수용액상의 밀도와 표면장력(σ_c)를 사용한 Weber number로 $\rho_c N^2 D^3 / \sigma_c$ 와 같이 정의하였다. 이때 blade의 형태에 따른 상수 a 와 b 의 값은 각각 flat 형태에서는 0.34, 1.36, 60mesh의 금망에서는 0.53, 1.12, 40mesh 금망에서는 0.64, 0.89이었고 solid edged 교반기에서는 0.20, 3.08이었다.

이상의 결과로부터 액적의 Sauter 직경에 대한 상관식을 사용하여 유기상이 완전분산되는 최소교반속도에서 산출한 Sauter 평균직경은 Table 3과 같다.

Table 3에서와 같이 완전분산에서 액적의 크기는 유기상의 부피비에 거의 영향을 받지 않으며 flat 형태와 60mesh 및 40mesh 금망의 교반기에서는 거의 비슷한 값을 나타내고 있다. 그러나 solid edged 교반기에서는 상당히 작은 크기의 액적이 형성됨을 알 수 있다.

3. 4. 교반기의 성능

교반기의 형태에 따른 최소소요동력과 완전분산에서의 액적의 크기를 비교하여 교반기의 성능을 해석하였다.

Table 2와 Table 3을 비교하면 최소소요동력은 blade의 형태에 따라 크게 차이가 나지 않지만 액적의 크기는 solid edged 교반기가 가장 작음을 알 수 있다. 또한 완전분산에서 액적의 평균직경에 대한 누적분포(cumulative distribution)를 나타낸 Fig. 7에서와 같이 교반기의 펌핑작용과 blade의 모서리에서 부딪힘에 의하여 액적이 형성되는 flat 형태에서는 평균직경이 0.58~0.85mm 범위이나 금망에 의해 액적이 형성되는 60mesh 금망의 교반기에서는 평균직경의 변화가 다소 감소하여 0.70~0.91mm 범위이다. 그러나 이들 교반기가 갖는 액적형성의 특성을 동시에 갖는 solid edged 교반기에서는 액적의 평균직경이 0.50~0.65mm 범위로 가장 균일한 액적이 형성됨을 알

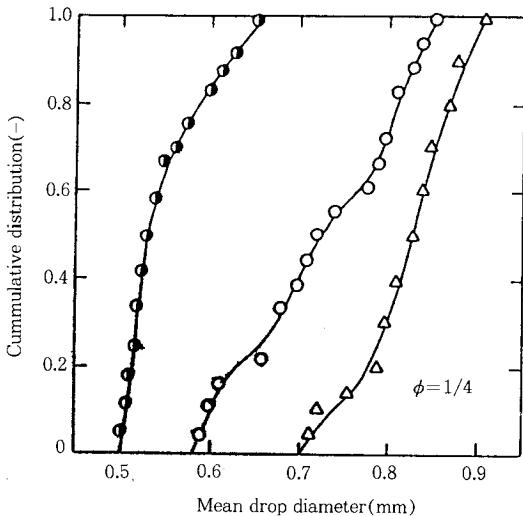


Fig. 7. Typical cummulative distribution function of mean drop diameter in complete dispersion of organic phase for various impeller blade types : flat(○), solid edged(●) and 60mesh (△).

Table 3. Sauter Mean Diameter(mm) of Liquid Droplets in Complete Dispersion of Organic Phase

ϕ	Blade type			
	flat	60mesh	40mesh	solid edged
1/5	0.81	0.81	0.82	0.54
1/4	0.84	0.82	0.80	0.57
1/3	0.83	0.81	0.78	0.61
1/2	0.84	0.80	0.80	0.63

수 있다.

따라서 금망의 blade에 강도를 증가시키기 위하여 금속띠를 두른 solid edged 교반기가 가장 작고 균일한 액적으로 분산시킬 수 있기 때문에 효과적인 액-액계의 분산장치로 볼 수 있었다.

4. 결 론

유기상으로 n-헥산을, 그리고 수용액상으로 중류수를 사용한 비혼화성 액상계에서 교반기의 액-액분산 효과를 해석한 결과는 다음과 같다.

- 동일한 교반속도에서 유기상의 분산정도는 blade의 형태가 flat > solid edged > 60mesh > 40mesh의

순서이었으며 유기상의 부피비가 증가할수록 최소교반속도는 증가하였다.

2. 동일한 교반속도에서 교반기의 소요동력은 flat > solid edged > 60mesh > 40mesh의 순서이었으며 Power number는 Reynolds number가 23,000~70,000 범위에서 일정하였다.

3. 액적의 크기는 교반속도가 증가할수록 감소하였고 동일한 교반속도에서는 solid edged < flat < 60mesh < 40mesh의 순서이었다. 이때 액적의 Sauter 평균직경은 유기상의 부피비와 Weber number에 대하여 다음과 같은 상관식으로 나타낼 수 있었다.

$$d_{32}/D = a(1+b\phi)N_{We}^{-0.6}$$

4. 완전분산에 필요한 최소소요동력은 blade의 형태에 따라 크게 차이가 나지 않으나 금망의 외부에 금속띠를 두른 교반기가 가장 작은 크기와 균일한 액적으로 분산시킬 수 있어서 우수한 액-액분산성능을 나타내었다.

참고문헌

1. R. W. Macdonald and E. L. Priet, *Chem. Eng. Progr.*, **47**, 363(1951).
2. A. H. P. Skelland and J. M. Lee, *AIChE J.*, **27**, 99 (1981).
3. S. Nagata, "Mixing - Principles and Applications", John Wiley & Sons, New York(1975).
4. D. E. Brown and K. Pitt, *Chem. Eng. Sci.*, **29**, 345 (1974).
5. G. Narsiham and J. P. Gupta, *Chem. Eng. Sci.*, **34**, 257(1979).
6. Y. Mlynek and W. Resnick, *AIChE J.*, **18**, 122 (1972).
7. R. R. Rounseley, *AIChE J.*, **29**, 597(1983).
8. 김태옥, 전종한, 공업화학, **2**, 209(1991).
9. W. L. McCabe, J. M. Smith, and P. Harriott, "Unit Operations of Chemical Engineering", 4th ed., McGraw-Hill, New York(1985).
10. J. A. Dean, "Lange's Handbook of Chemistry", 12th ed., McGraw-Hill, New York(1979).
11. G. B. Tatterson, "Fluid Mixing and Gas Dispersion in Agitated Tanks", McGraw-Hill, New York(1991).
12. E. G. Chatzi, A. B. Gavrielides, and C. Kiparissides, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **28**, 1704 (1989).