

n-Propyl Alcohol-Water-Salt 系의 液液平衡.

염효과에 의한 공비 혼합물의 분리에 관한 연구(I)

都 甲 守 · 朴 元 圭

嶺南工專

嶺南工大

(접수 73.12.3)

The Liquid-Liquid Equilibria for *n*-Propyl alcohol -Water-Salt-Systems

Kap-Soo Do

· Won-Kyu Park

Yeung-Nam Junior Technical College
Taegu, Korea

College of Eng., Yeung Nam Univ.
Taegu, Korea

Abstract

Effect of salts in liquid-liquid equilibrium for *n*-propyl alcohol-water system was studied at 30°C under atmospheric pressure.

The addition of salts such as K_2CO_3 , Na_2CO_3 , KCl, NaCl etc. separated *n*-propyl alcohol - water homogeneous mixture into two layers and moved the composition of the upper layer to above the azeotropic composition.

It was found that the effect of salts at saturated state gave better results in sequence of KCl, NaCl, Na_2CO_3 and K_2CO_3 . At the same time, mutual solubilities and tie line data were determined experimentally for the ternary systems of *n*-propyl alcohol - water - salt (K_2CO_3 , Na_2CO_3 , KCl, NaCl) at 30°C under atmospheric pressure. The tie line data were successfully correlated by each of five different methods-Hirata, Campbell, Hand, Treybal, and Iguchi and plait points of these ternary systems were located by the methods of Hand-Treybal and Iguchi.

1. 서 론

공비점을 가진 혼합물의 분리 방법으로 염을 첨가한 증류에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다^{1)~4)}. 그러나 *n*-propyl alcohol-water 계와 같이 상호비점의 차가 적고 공비점을 가진 혼합물의 분리에는 이 방법으로도 좋은 결과를 얻기가 곤란하므로 특수한 분리방법의 개발이 필요하다. 본 실험에서는 상온에서 *n*-propyl alcohol-water 혼합물에 염을 가할 경우 phase equilibrium과 salt effect를 측정하였다. 예비실험으로 1족 및 2족의 염화물과 탄산염을 각각 공비조성 이하에 있는

염의 조성의 *n*-propyl alcohol-water 혼합물에 포화시켜 상의 분리유무와 상이 분리될 경우 alcohol 상의 조성이 공비조성을 넘어서는지 여부를 조사하였다. 그 결과 상당한 수의 염에 대하여는 상의 분리가 일어나고 alcohol 상의 조성이 공비점을 넘어서는 것을 확인하였다. 이들 염중 K_2CO_3 , Na_2CO_3 , KCl 및 NaCl에 대하여 *n*-propyl alcohol-water-salt 3 성분계의 상호용해도와 액액평형치를 측정하였고, 이들 평형치의 상관성을 액상 3 성분계 혼합물에 적용된 Hirata⁵⁾, Campbell⁶⁾, Hand¹¹⁾, Treybal¹²⁾ 및 Iguchi^{7)~10)} plot에 의하여 고찰하고, Iguchi 및 Hand-Treybal plot로 plait point를 추정하였다. 또 염의 분배율과 water에 대한 selecti-

vity를 비교하므로써 염의 종류와 농도에 따른 salt effect를 고찰하였다.

2. 실험

2-1. 시 약

n-propyl alcohol은 E. P. 급시약(Ishizu Co.)을, water는 이온교환수지로 처리한 후 다시 증류시켜 이들의 물성이 Table 1과 같이 문헌치와 거의 일치함을 확인한 후 사용하였다. 염은 모두 일제 특급시약을 처리없이 사용하였다.

Table 1. Physical properties of reagents used

Reagent ^s	<i>n</i> -Propyl alcohol			Water		
	Properties			Properties		
	n_D^{25}	ρ^{25}	B. P. (°C)	n_D^{25}	ρ^{25}	B. P. (°C)
Experimental	1.3834	0.79960	97.16	1.3325	0.9972	99.98
Literature ¹³⁾	1.3835	0.79950	97.15	1.3325	0.9971	100.00

2-2. 예비실험

n-propyl alcohol-water 계에 salt를 가할때 일어나는 상변화를 조사하기 위하여 water에 용해성이 큰 1족 및 2족의 염화물과 탄산염을 공비조성이하의 염의 *n*-propyl alcohol-water 혼합물에 포화가 되어 약간의 염이 바닥에 남을 때까지 가하여 30분간 충분히 교반한 후 30°C의 항온조내에서 4시간 정지시켜 두액상의 생성유무를 조사하고 두 액상으로 분리되는 계에 대하여는 *n*-propyl alcohol이 많은 상층액을 micro pipet로 약 10 ml를 취하여 증발장치²⁾에 넣어 용액과 염을 완전히 분리시킨 후 그 용액을 Abbe Refractometer로 굴절율(n_D^{20})을 측정하여 Fig. 1의 calibration curve로 *n*-propyl alcohol의 조성을 구하였다. Table 2에 나타낸 이들 실험결과에 의하면 공비조성(70.9 wt% *n*-PrOH)을 넘어서는 염은 CaCO₃, (NH₄)₂CO₃, BaCl₂와 같이 두상으로 분리되지 않는 염을 제외한 전부였다. 이들 중 K₂CO₃와 Na₂CO₃는 약 90 wt% *n*-propyl alcohol까지 분리시켰다.

2-3. 삼성분계의 상호용해도와 액액평형치 측정

일반적으로 3 성분계의 상호용해도는 백탁법에 의하

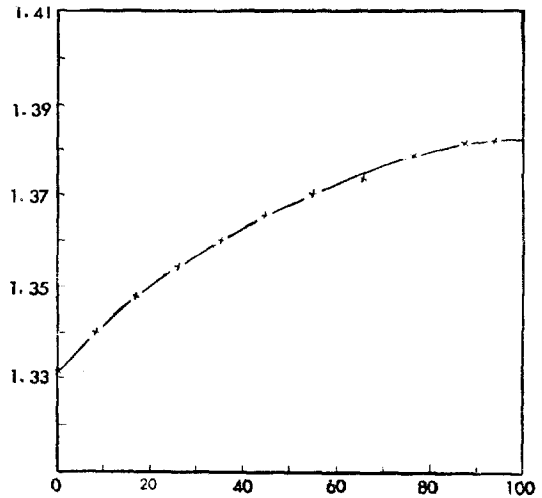


Fig. 1. Plots of refractive index against composition of *n*-propyl alcohol for *n*-propyl alcohol-water system.

Table 2. Results of primary experiment

Salt	Phase State**	wt% of <i>n</i> -PrOH in upper phase (salt free basis)
LiCl	○	75.50
NaCl	○	84.00
KCl	○	74.00
NH ₄ Cl	○	71.30
Na ₂ CO ₃	○	88.60
K ₂ CO ₃	○	93.86
CaCO ₃	×	—
(NH ₄) ₂ CO ₃	×	—
CaCl ₂	○	79.00
BaCl ₂	×	—

*Original composition of *n*-PrOH-H₂O system : 60.7 wt% *n*-PrOH

**○ : Heterogeneous phase

× : Homogeneous phase

여 많이 측정되나^{5)~12), 14)~16)} 이 방법은 end point를 정확하게 찾기 어려워 몇번 반복하여야 하는 불편한 점이 있다. 최근 Iino¹⁷⁾¹⁸⁾는 2 성분계 액상혼합물에 백탁점보다 약간 과량의 제 3 성분을 가하여 고의로 두 상으로 분리시킨 후 제 3 성분의 첨가량과 상층액상의 생성량을 plot하여 상층액량이 0일 때의 외삽치로 제 3 성분의 양을 구하는 외삽법을 제안하였다. 본 실험에서는 염을 포함한 3 성분계이므로 Fig. 2와 같은 titration 장치에 water와 salt 일정량을 정량하여 넣은 후 교반하면서 *n*-propyl alcohol을 천천히 적하하여 백

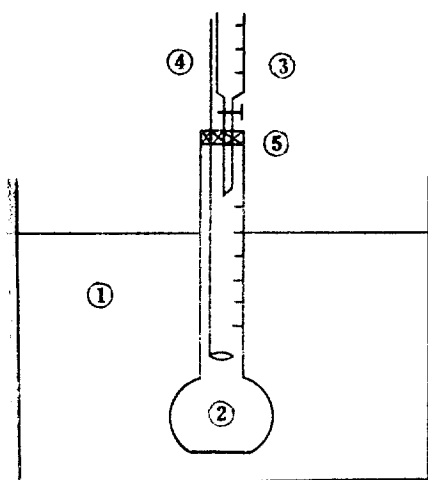


Fig. 2 Titration apparatus

- ① thermostat
- ② flat bottom vessel attached buret (50 ml)
- ③ buret
- ④ agitator
- ⑤ cork stopper

탁점보다 약간 과량을 가하여 두 상으로 분리시켜 대기압 30°C의 항온조내에서 약 30분간 정치시킨 후 상층액량을 읽고 다시 소량의 *n*-propyl alcohol을 가하여 30분간 교반정치 후 그 상층액량을 읽는다. 같은 방법을 4~5회 계속하여 *n*-propyl alcohol의 첨가량과 상층액상의 생성량을 정확하게 읽어 이들 두 양 사이를 plot 한 결과 직선을 얻었고, 이 직선으로 상층액상량

이 0일 때의 외삽치로 *n*-propyl alcohol의 용해량을 용량(ml)으로 구하고 동일온도에서의 밀도를 사용하여 3성분계의 각 성분에 대하여 중량%로 계산하여 상호 용해도로 하였다.

한 예로 *n*-propyl alcohol-water-K₂CO₃계의 상호용해도를 구하기 위하여 water-K₂CO₃ 혼합물에 가한 *n*-propyl alcohol의 량과 생성한 상층액상의 량과를 Fig. 3에 plot 하였다. *n*-propyl alcohol이 너무 많이 용해하여 본 실험장치로 측정 불가능한 영역에서는 백탁법을 3회하여 그 평균값으로 *n*-propyl alcohol의 용해량을 구하였다. 외삽법과 평균하여 얻은 백탁법의 값이 일치선상에서 거의 일치함을 확인하였다. tie line data는 임의 조성의 *n*-propyl alcohol-water 혼합액 약 50ml를 두경이 있는 100 ml 용량의 시험관에 주입하고 여기에 salt를 가하여 약 30분간 교반하여 완전히 두 상으로 분리시켜 대기압, 30°C의 항온조내에서 완전히 평형상태가 되게 4시간 정치시킨 다음 상하 양층에서 micro pipet로 각각 약 10 ml를 취하여 곧 증발기에 넣어 전체 무게를 달고, 완전히 증발응축시킨 후 용액은 글질을(*n*₂₀)을 측정하여 Fig. 1에서 2성분계의 조성을 구하고, 견고된 염은 염화물일 경우 AgNO₃ 표준용액으로 탄산염일 경우 HCl 표준용액으로 적정하여 그 중량을 구하여 전체 3성분계의 조성을 중량%로 구하였다. 또 이렇게 별도로 구한 각각의 평형조성의 점들이 용해도 곡선상의 점과 일치함을 확인하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3-1. 상호용해도와 Tie Line

n-propyl alcohol-water계에 K₂CO₃, Na₂CO₃, KCl 및 NaCl를 첨가할 경우 3성분계의 상호용해도와 tie line을 Table 3~6과 Fig. 4~7에 표시하였다.

3-2. Tie line data의 상관관계

tie line data의 상관방법에는 Hirata⁵⁾, Campbell⁶⁾, Hand¹¹⁾, Treybal¹²⁾, Iguchi^{7)~10)} 등^{13)~21)}의 plot가 있다. 이들 모두 3성분계를 구성하는 각 성분이 모두 액상일 때 적용된 방법이다. 저자는 본 실험에서 취한 계와 같이 염을 포함한 3성분계에 이들 관계식을 적용시켰다. *n*-propyl alcohol-water-salt 3성분계에 있어서 salt를 용질, water를 용매로 취하고 alcohol phase의 조성을 *x*, water phase의 조성을 *y*로 하여 다음과 같이 plot 하였다.

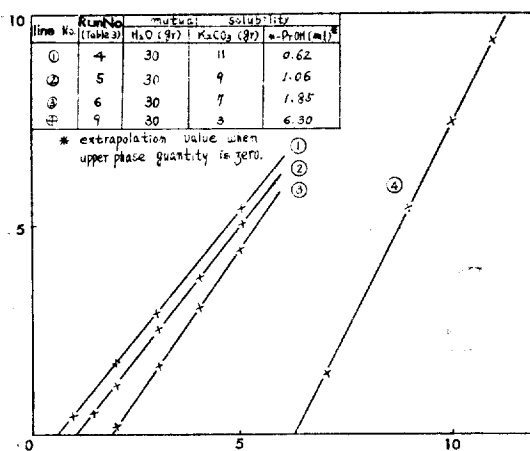


Fig. 3. Correlation between added *n*-propyl alcohol quantity and upper phase quantity for *n*-propyl alcohol-water-potassium carbonate system.

Table 3. Mutual solubility and tie-line data for *n*-propyl alcohol-water-potassium carbonate system at 30°C
Mutual solubility (wt %) at 30°C

Run No.	<i>n</i> -Propyl alcohol	Water	K ₂ CO ₃
1	0.00	40.45	59.55
2	0.34	63.61	36.05
3	0.83	69.19	29.98
4	1.20	72.30	26.50
5	2.13	75.30	22.59
6	3.85	77.96	18.19
7	6.82	79.87	13.31
8	8.99	80.30	10.71
9	13.25	78.86	7.89
10	16.84	77.96	5.20
11	39.73	57.86	2.41
12	46.74	51.55	1.71
13	56.56	42.16	1.28
14	84.60	14.91	0.49
15	100.00	0.00	0.00

Tie-line data (wt %) at 30°C

Phase Component Run No.	<i>n</i> -Propyl alcohol phase			Water phase		
	<i>n</i> -Pr OH	Water	K ₂ CO ₃	<i>n</i> -Pr OH	Water	K ₂ CO ₃
1	86.00	13.57	0.43	0.20	49.70	50.10
2	84.60	14.91	0.49	0.40	53.80	45.80
3	77.70	21.50	0.71	1.00	64.20	34.80
4	69.50	29.50	1.00	2.80	75.20	22.00

Table 4. Mutual solubility and tie-line data for *n*-propyl alcohol-water-sodium carbonate system at 30°C
Mutual solubility (wt %) at 30°C

Run No.	<i>n</i> -Propyl alcohol	Water	Na ₂ CO ₃
1	0.00	68.62	31.38
2	1.00	75.00	24.00
3	2.49	79.08	18.43
4	4.80	81.68	13.52
5	6.70	82.33	10.97
6	9.64	82.15	8.21
7	16.67	78.13	5.20
8	20.17	75.63	4.20
9	24.46	71.94	3.60
10	32.80	64.80	2.40

11	39.40	58.64	1.96
12	48.69	50.30	1.01
13	72.71	26.60	0.69
14	100.00	0.00	0.00

Tie-line data (wt %) at 30°C

Phase Component Run No.	<i>n</i> -Propyl alcohol phase			Water phase		
	<i>n</i> -Pr OH	Water	Na ₂ CO ₃	<i>n</i> -Pr OH	Water	Na ₂ CO ₃
1	84.85	14.80	0.354	2.35	79.50	18.15
2	84.31	16.30	0.394	3.30	80.30	16.40
3	84.00	16.60	0.402	4.76	80.65	15.69
4	80.63	18.90	0.474	5.43	81.65	13.92
5	72.71	26.60	0.691	7.70	82.30	10.00

Table 5. Mutual solubility and tie-line data for *n*-propyl alcohol-water-potassium chloride system at 30°C
Mutual solubility (wt %) at 30°C

Run No.	<i>n</i> -Propyl alcohol	Water	KCl
1	0.00	74.14	25.86
2	2.80	74.10	23.10
3	6.50	74.20	19.30
4	9.54	73.35	17.11
5	11.24	73.96	14.79
6	15.13	72.74	12.12
7	23.70	67.32	8.98
8	42.56	51.44	6.00
9	47.01	48.17	4.82
10	60.00	37.00	3.00
11	74.15	24.20	1.65
12	77.27	21.31	1.42
13	100.00	0.00	0.00

Tie-line data (wt %) at 30°C

Phase Component Run No.	<i>n</i> -Propyl alcohol phase			Water phase		
	<i>n</i> -Pr OH	Water	KCl	<i>n</i> -Pr OH	Water	KCl
1	74.15	24.20	1.65	6.44	74.20	19.36
2	67.77	30.10	2.13	10.41	74.30	15.29
3	62.28	34.96	2.76	14.62	73.20	12.18
4	56.26	40.50	3.24	18.94	70.60	10.46

Table 6. Mutual solubility and tie-line data for *n*-propyl alcohol-water-sodium chloride system at 30°C
Mutual solubility (wt %) at 30°C

Run No.	<i>n</i> -Propyl alcohol	Water	NaCl
1	0.00	73.76	26.24
2	1.98	74.01	24.00
3	5.57	74.55	19.88
4	7.04	75.38	17.59
5	8.16	76.53	15.31
6	12.06	75.38	12.56
7	15.00	75.00	10.00
8	17.55	73.62	8.83
9	26.67	66.67	6.66
10	46.64	49.41	3.95
11	58.97	38.46	2.57
12	84.54	14.50	0.96
13	87.57	11.83	0.60
14	100.00	0.00	0.00

Tie-line data (wt%) at 30°C

Phase	<i>n</i> -Propyl alcohol phase			Water phase		
	<i>n</i> -Pr OH	Water	NaCl	<i>n</i> -Pr OH	Water	NaCl
Run No.						
1	84.54	14.50	0.96	3.90	74.00	22.10
2	83.26	15.70	1.04	5.01	74.40	20.59
3	81.99	16.85	1.16	5.98	75.60	18.42
4	79.15	19.50	1.35	8.23	76.10	15.67
5	72.33	25.80	1.87	13.31	75.45	11.24

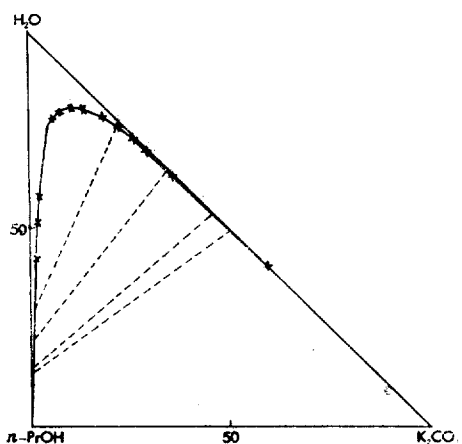


Fig. 4. Mutual solubility curve and tie lines for *n*-propyl alcohol-water-potassium carbonate system at 30°C.

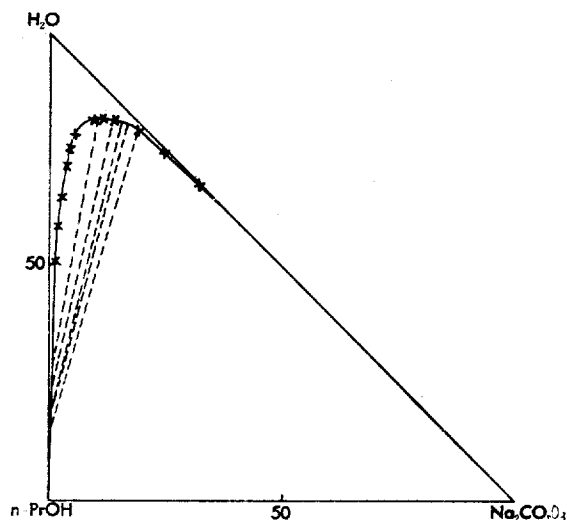


Fig. 5. Mutual solubility curve and tie lines for *n*-propyl alcohol-water-sodium carbonate system at 30°C.

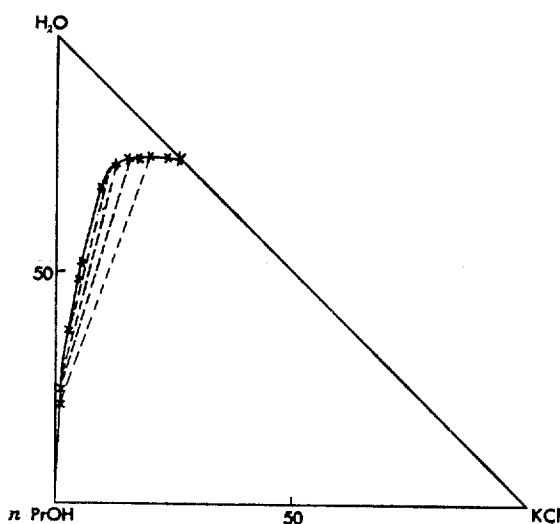


Fig. 6. Mutual solubility curve and tie lines for *n*-propyl alcohol-water-potassium chloride system at 30°C.

$$\text{Hirata, } \log \frac{x_i}{1-x_i} : \log \frac{y_i}{1-y_i} \sim (1)$$

$$\text{Campbell, } \log x_i : \log y_i \sim (2)$$

$$\text{Hand, } \log \frac{x_i}{x_p} : \log \frac{y_i}{y_w} \sim (3)$$

$$\text{Treybal, } \log \frac{x_i}{x_p} : \log \frac{y_i}{y_w} \sim (4)$$

$$\text{Iguchi, } \log x_i : \log \frac{y_i - x_i}{x_i} \sim (5)$$

Iguchi x_i : $\log \frac{y_i}{x_i}$ ($=\log K$) \sim (6)

Iguchi는 용질의 농도가 고농도일 경우는 식 (5)의 관계, 저농도일 경우는 식 (6)의 관계가 성립한다고 보고하였다^{7)~10)}. 본 실험결과에서는 용질의 농도 x_i 가 5% 이하의 저농도이므로 식 (6)의 관계만을 취하였다. 이들 결과를 Fig. 8~11에 표시하였다.

이들 Fig.에 표시된 바와 같이 전 상관관계가 적선

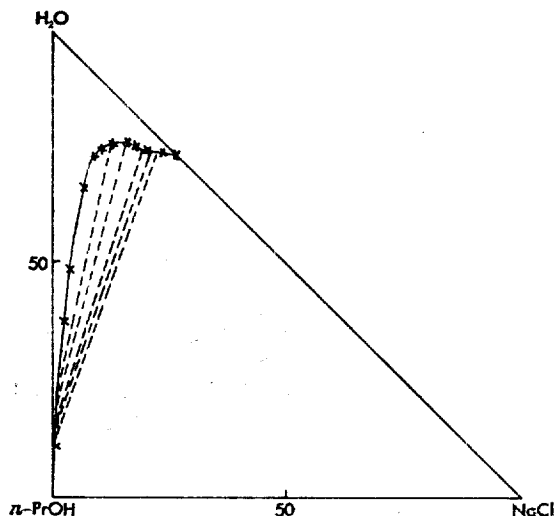


Fig. 7. Mutual solubility curve and tie lines for *n*-propyl alcohol-water-sodium chloride system at 30°C.

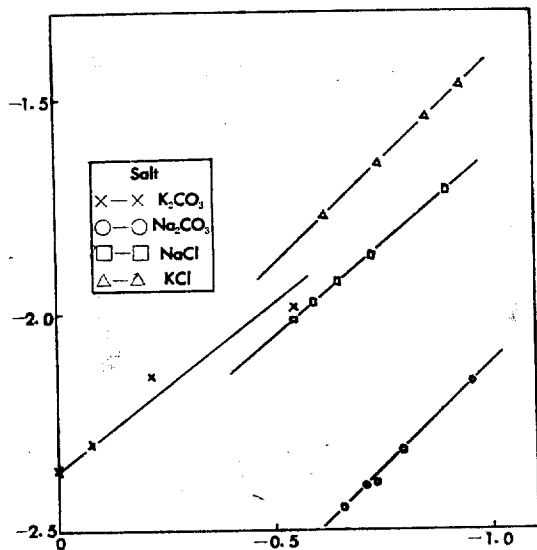


Fig. 8. Plots of $\log \frac{x_i}{1-x_i}$ v. $\log \frac{y_i}{1-y_i}$ for *n*-propyl alcohol-water-salt systems.

이 잘 성립하므로 염을 포함한 3성분계에도 일반적인 액액평형 data의 상관관계가 성립함을 알았고, 또한 본 실험결과와 정확성을 재확인 하였다.

3-3. Plait point의 추정

Plait point 부근에서는 실험이 거의 불가능하므로 앞

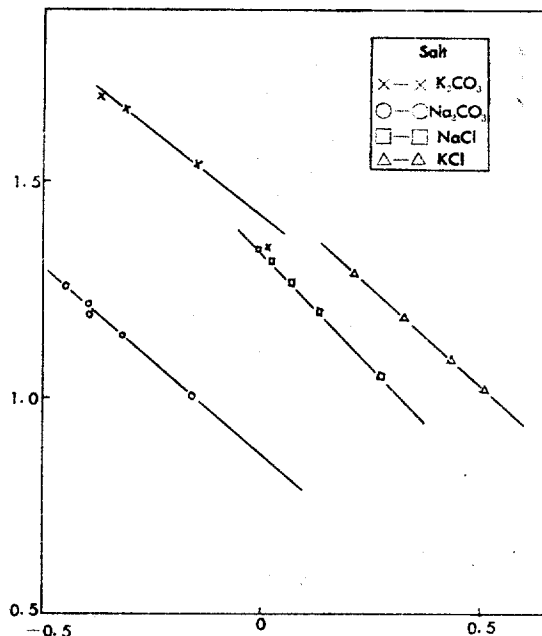


Fig. 9. Plots of $\log x_i$ v. $\log y_i$ for *n*-propyl alcohol-water-salt systems.

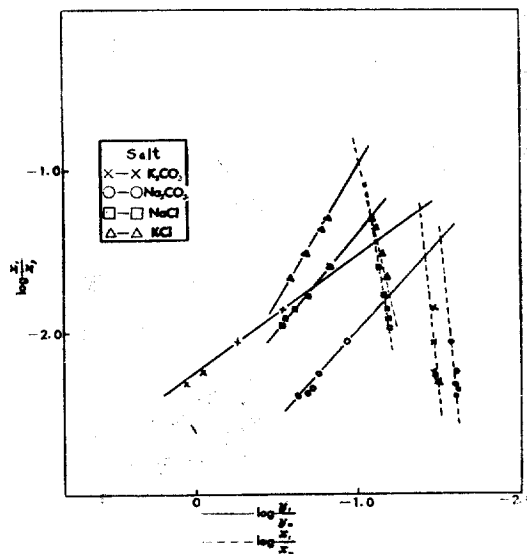


Fig. 10. Correlation lines for *n*-propyl alcohol-water-salt systems.

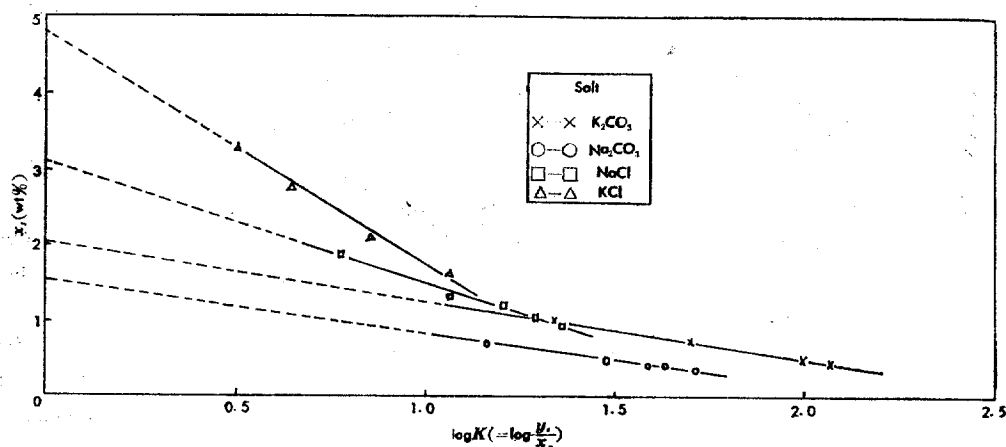


Fig. 11. Plots of $\log K$ vs. x_s for *n*-propyl alcohol-water-salt systems.

상관관계에서 몇가지 방법으로 추정할 수 있다. 즉 Fig. 10의 Hand와 Treybal plot의 교점으로 plait point에서의 각 성분의 조성(x_s , x_w , x_p)을 계산할 수 있으며, Fig. 11의 Iguchi plot에서 $\log \frac{y_s}{x_s}$ 의 값을 0로 외삽하여 얻은 x_s 가 plait point에서 salt의 조성이 된다. 이 두 방법으로 구한 plait point의 조성을 Table 7에 나타내었다. 두 방법이 잘 일치함을 알 수 있다.

3-4. 염효과

n-propyl alcohol-water계에 salt를 가하므로 두 상으로 분리되는 현상은 2성분계 혼합물에 salt를 가하므로 salt와 water 사이의 상당한 친화력 때문에 water와 alcohol 사이의 친화력이 감소된 결과라고 생각되므로 salt가 water에 용해되는 정도로 water와 *n*-propyl alcohol 사이의 분리효과를 고찰하였다. 즉 water상의 salt의 농도에 대하여 salt의 분배율(K)과 water에 의한 salt의 선택도(β)와를 Fig. 12와 13에 각각 plot하

였다. 이들 곡선에 의하면 *n*-propyl alcohol-water 혼합물에 염을 가하므로 염의 분배율과 water의 선택도가 점차 증가하였다. 이는 두 상으로 분리된 상중 alcohol 상에 salt의 양이 감소한다는 사실이며 곧 alcohol 상에 water가 감소하여 alcohol 농도가 큰 alcohol 층으로 분리시킬 수 있는 결과를 준다. 염의 농도변화에 대하여는 농도가 증가할수록 좋은 결과를 주나 염은 포화농도 이상으로 용해할 수 없으므로 포화농도가 이상적이다. 포화농도에서 염의 종류에 따른 분리효과는 KCl, NaCl, Na_2CO_3 , K_2CO_3 순으로 좋았다. 이는 상호용해도순(Table 3~6)과도 일치하고, 또 앞 예비실험 결과(Table 2)와도 동일하였다.

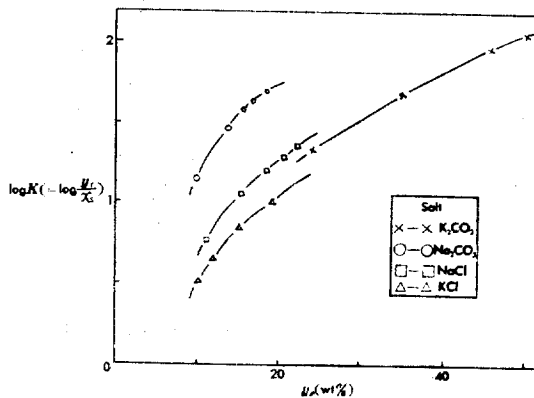


Fig. 12. Plots of y_s , v_s , $\log K$ for *n*-propyl alcohol-water-salt systems.

4. 결 론

n-propyl alcohol-water 공비혼합물에 대하여 상온에서 염석에 의한 분리를 시도하여 이들 혼합물을 두 액상으로 분리시키는 염을 탐색한 결과 사용한 10종의

Table 7. Plait point determined from correlation line

Method	Hand and Treybal			Iguchi		
	$x_{n\text{-PrOH}}$	$x_{\text{H}_2\text{O}}$	x_{salt}	$x_{n\text{-PrOH}}$	$x_{\text{H}_2\text{O}}$	x_{salt}
<i>n</i> -PrOH-H ₂ O-K ₂ CO ₃	42.50	55.23	2.27	43.45	54.50	2.05
<i>n</i> -PrOH-H ₂ O-Na ₂ CO ₃	43.10	55.26	1.64	42.05	56.40	1.55
<i>n</i> -PrOH-H ₂ O-KCl	43.80	51.02	4.90	45.12	50.08	4.80
<i>n</i> -PrOH-H ₂ O-NaCl	58.50	38.37	3.13	56.85	41.00	3.10

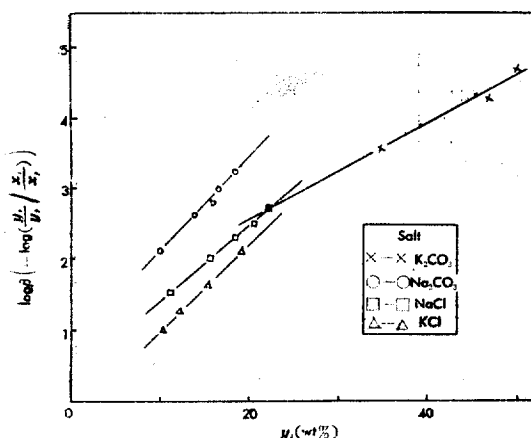


Fig. 13. Plots of y , v , $\log \beta$ for n -propyl alcohol-water-salt systems.

염 가운데 7종의 염이 30°C에서 두 액상으로 분리되었으며 그 상층액상의 조성이 모두 공비점을 넘어가는 것을 확인하였다.

이들 염중 K_2CO_3 , Na_2CO_3 , KCl 및 NaCl를 포함한 3성분계에 대하여 상호용해도와 tie line을 대기압, 30°C에서 측정하였고, tie line data의 상관성을 액상 3성분계에 적용된 Hirata, Campbell, Hand, Treybal 및 Iguchi plot를 통하여 고찰한 결과 이들 관계가 염을 포함한 3성분계에서도 잘 적용됨을 알았고 또 측정된 data의 정확성을 확인하였다. 동시에 Hand-Treybal plot와 Iguchi plot로 plait point도 추정할 수 있었다. 염의 분배율과 water에 대한 선택도를 통하여 염 효과를 비교하면 포화농도에서 가장 좋은 결과를 주고 포화농도에서 염의 종류에 따라서는 KCl, NaCl, Na_2CO_3 , K_2CO_3 순으로 분리효과가 좋았고 이는 water에 대한 각 염의 용해도의 크기 순과 일치하였다.

Nomenclatures

β : selectivity of water for salt to n -propyl alcohol

$$(\equiv (y_i/y_p)/(x_i/x_p))$$

K : distribution ratio of salt $(\equiv \frac{y_i}{x_i})$

x_i : weight percent of i component in the n -propyl alcohol layer

y_i : weight percent of i component in the water layer

n -PrOH: n -propyl alcohol

Subscripts $(\equiv i)$

P : n -propyl alcohol

S : salt such as K_2CO_3 , Na_2CO_3 , KCl, NaCl

W : Water

References

- 1) Johnson, A. I., W. F. Furter, *Can. J. Chem. Eng.*, **38**, 78 (1960).
- 2) Park, W. K., Do, K. S. and et al., *Report of Institute of Ind. tech.* Yeung Nam University I, 33 (1973).
- 3) Yoshida, F., A. Yasunishi and Y. Hamada, *Chemical Engineering, Japan*, **28**, 133 (1964).
- 4) Ohe, S., K. Yokoyama and S. Nakamura, *ibid.*, **34**, 325 (1970).
- 5) Hirata, M., S. Fujita, *Chemical Engineering, Japan*, **21**, 201 (1957).
- 6) Campbell, J. A., *Ind. Eng. Chem.*, **36**, 1158 (1944).
- 7) Iguchi, A., *Chemical Engineering, Japan*, **34**, 41 (1970).
- 8) Iguchi, A., K. Fuse, *ibid.*, **35**, 1035 (1971).
- 9) Iguchi, A., K. Fuse, *ibid.*, **36**, 321 (1972).
- 10) Iguchi, A., *ibid.*, **37**, 47 (1973).
- 11) Hand, D. B., *J. Phys. Chem.*, **34**, 1961 (1930).
- 12) Treybal, R. E., L. D. Weber and J. F. Daley, *Ind. Eng. Chem.*, **38**, 817 (1946).
- 13) 東京化學同人 "化學實驗法" p. 29 (1960).
- 14) Rao, M. R., C. V. Rao, *J. Appl. Chem.*, **6**, 269 (1956).
- 15) Nakamura, A., *Chemical Engineering, Japan*, **33**, 349 (1969).
- 16) Pai, M. U., K. M. Rao, *J. Chem. Eng. Data*, **11**, 353 (1966).
- 17) Iino, M., J. Sudoh and Y. Hirose, *Kogyo Kakaku Zasshi*, **73**, 2063 (1970).
- 18) Iino, H., J. Sudoh and Y. Hirose, *Ibid.*, **74**, 1034 (1971).
- 19) Brancker, A. V., T. G. Hunter and A. W. Nash, *Ind. Eng. Chem.*, **33**, 880 (1941).
- 20) Major, C. J., O. J. Swenden, *Ind. Eng. Chem.*, **38**, 834 (1946).
- 21) Bachman, I., *Ind. Eng. Chem. Anal. Ed.*, **12**, 38 (1940).
- 22) Othmer, D. F., D. E. Tobias, *Ind. Eng. Chem.*, **34**, 693 (1942).