

## 연속흐름 교반반응기에서의 액체흐름 특성

김태옥\* · 이민형 · 강웅기

고려대학교 공과대학 화공과

\*명지대학교 공과대학 화공과

(1984년 5월 14일 접수, 1984년 6월 11일 채택)

## Liquid Flow Characteristics in a Continuous Flow Stirred Tank Reactor

Tae Ok Kim\* · Min Hyung Lee · Woong Ki Kang

*Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Korea University, Seoul 132, Korea*

*\* Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Myong Ji University, Seoul 120, Korea*

(Received 14 May 1984; accepted 11 June 1984)

### 요 약

입구와 출구를 각각 반응기의 하부와 상부에 위치시키고 6-bladed turbine impeller를 사용한 연속흐름교반반응기에서의 액체 흐름특성을 연구하였다.

반응기내의 흐름지역을 입구지역, 임펠라지역과 재순환흐름지역으로 나누고 각 흐름지역의 흐름특성을 고려한 흐름모델을 세워 실험값과 비교하였다.

실험결과, 입류속도가 낮고 교반속도가 낮은 경우에는 입구지역이 플러그흐름특성을 가지며 제시된 모델이 적당하였다. 또한, 높은 입류속도이거나 교반속도가 큰 경우에는 입구지역이 재순환흐름의 영향으로 완전혼합흐름특성을 가지며 제시된 모델이 적당하였다. 임펠라지역은 완전혼합의 특성을 가지며 교반속도의 증가에 따라 그 크기가 증가하였다.

**Abstract**—The flow characteristics of liquid in a continuous flow stirred tank reactor (CFSTR) with a 6-bladed turbine impeller was investigated. The inlet and the outlet were located at the bottom center and the top edge of the reactor, respectively.

For the CFSTR, three flow zones (inlet zone, impeller zone and recirculation zone) were assumed and the theoretical residence time distributions based on the flow patterns were compared with the experimental ones.

For the case of the lower inlet flow rate and the lower agitation speed, the experimental results showed that the flow pattern of the inlet zone was considered to be plug flow nature. For the higher inlet flow rate as well as the higher agitation speed, however, the flow pattern of the inlet zone was considered to be perfect mixing zone due to the considerable recirculation flow.

The impeller zone has a perfect mixing nature and the magnitude of the perfect mixing zone increased with agitation speed.

## 1. 서 론

고점도 액체계, 중합반응, 생화학반응과 최근 관심분야로 대두되고 있는 미생물의 성장 등에 영향 미치는 액체혼합효과는 반응기내의 흐름현상과 혼합경로 등이 복잡다양하여 많은 연구가 진행되고 있다[1-5].

연속흐름반응기의 성능에 미치는 액체혼합효과를 알기 위해서 먼저 고려되어야 할 동특성에 관한 연구는 이상 흐름에서 벗어난 정도를 알기 위함이며 일반적으로 유체의 체재시간분포에 의한 총괄적 해석방법과 반응기내의 현상을 미시적 관찰 또는 측정에 의한 방법이 있다. 전자의 방법은 Danckwerts[6]가 이상흐름을 중심으로 정상흐름계의 흐름 특성을 해석하고자 시도된 후 Bischoff와 McCracken[7]는 실제반응기에서 추적자를 사용하여 흐름 현상을 해석하는 방법을 제시하였다. 후자의 방법에는 반응기내의 point농도편차의 변화, 혼합시간과 온도 및 농도의 변화를 정량적으로 측정하여 혼합 정도를 해석하는 방법이다[8-10].

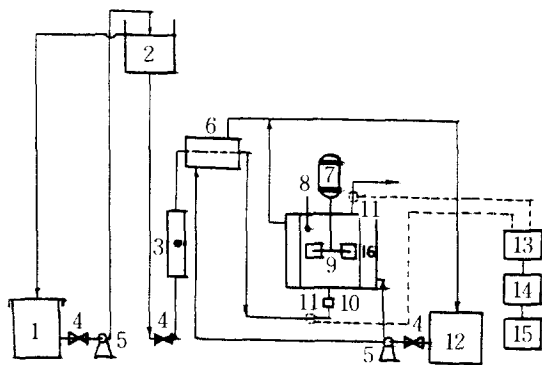
그러나 반응기의 성능에 미치는 액체 혼합특성은 단순한 동특성의 연구로는 해석될 수 없을 뿐만 아니라[11] 대부분의 연구는 반응기내의 정확한 물리적 표현결함과 사용된 매개변수의 측정이 어렵고 실험조건과의 관련이 불충분하여 보다 적절한 혼합 모델이 요구된다.

이를 해결하기 위하여 본 연구는 출구 및 입구와 반응기의 상, 하부에 위치한 연속흐름교반반응기내의 액체흐름현상을 관찰하고 이를 고려한 액체흐름 모델을 세움으로써 반응시의 혼합특성을 해석할 수 있는 자료를 제시하였다.

## 2. 실험

사용된 실험장치는 Fig. 1과 같다. 반응기는 내경이 10cm, 높이가 10.6cm이며 상, 하부를 베이클라이트로 막은 원통형 유리관을 사용하였다.

반응기내의 액체체류량을 일정하게 유지시키기 위하여 입구는 반응기바닥의 중앙에 설치하고 노즐 내경을 0.39, 0.625, 0.745, 1.05cm로 변화시켰다. 내경이 1cm인 출구는 임펠라축에서 1.0, 2.5, 4.0



- |                       |                               |
|-----------------------|-------------------------------|
| 1. Preparatory tank   | 9. Reactor                    |
| 2. Constant head tank | 10. Injection device          |
| 3. Rotameters         | 11. Conductivity cell         |
| 4. Needle valves      | 12. Constant temperature bath |
| 5. Circulation pumps  | 13. Wheatstone bridge         |
| 6. Preheater          | 14. Amplifier                 |
| 7. D. C. motor        | 15. Recorder                  |
| 8. Thermometer        | 16. Water jacket              |

Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus for RTD measurement.

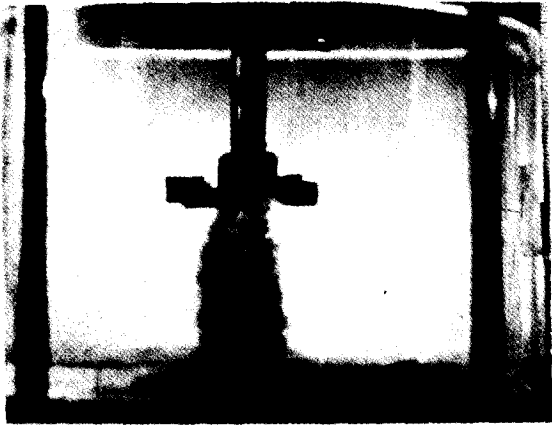
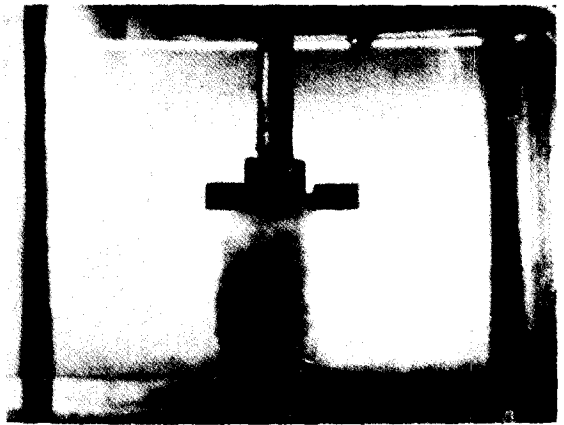
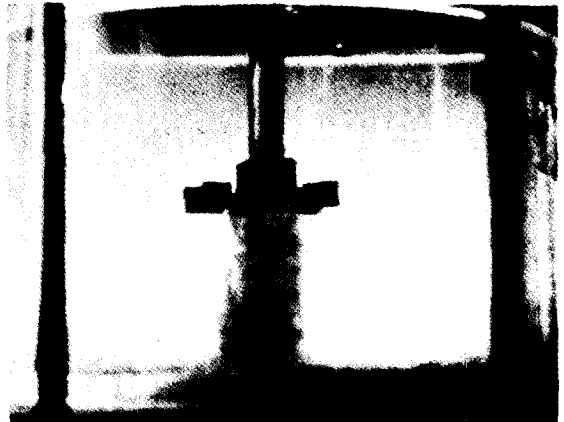
cm 거리에 설치하였고 임펠라 축부분은 공기의 흡입을 막기 위해 수은으로 sealing하였다.

임펠라는 표준형태의 6-bladed turbine impeller [12]로 직경이 3.3cm, blade의 높이와 폭은 각각 0.6cm와 0.8cm로 하였으며 반응기내의 상, 하부의 혼합을 증대시키고자 반응기 높이의 중앙에 위치시켰다. 교반속도는 D. C. 모터의 입력변화로  $\pm 3$ rpm 이내로 조절하고 tachometer로 측정하였다.

충격-응답법에 의한 체류농도의 변화를 측정하기 위해 사용된 추적자는 유체(증류수)의 밀도와 동일하도록 메탄올에 녹인 0.3% NaCl 용액을 사용하였다.

반응기내의 온도는 water jacket와 관형열교환기를 설치하여  $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ 로 조절하였다.

실험방법은 1차증류수를 저장조에서 펌프로 3m 상부에 있는 constant head tank로 보낸후 중력에 의해 유량계와 예열기를 통하여 반응기로 보낸다. 액체유량 ( $0.2 \sim 18.5 \text{ cm}^3/\text{sec}$ )과 교반속도 ( $50 \sim 500 \text{ rpm}$ )를 실험조건에서 일정하게 유지시키고 반응기내의 흐름이 정상상태에 도달되면 입구와 출구에 부착된 전도도셀을 wheatson bridge상에서 평형을 유지시킨 다음에 추적자를 주입점에 순간적으로 0.3 cc이하를 주입한다. 이때 출류의 전도도변화에 의

a)  $Re_i = 1641$ ,  $Re_t = 9042$ b)  $Re_i = 2054$ ,  $Re_t = 9042$ c)  $Re_i = 1208$ ,  $Re_t = 7233$ d)  $Re_i = 840$ ,  $Re_t = 7233$ **Fig. 2. Inlet zone phenomena at high pumping rate.**

한 전위차 발생을 증폭, 정류하여 기록계에 기록하였다.

### 3. 결과 및 고찰

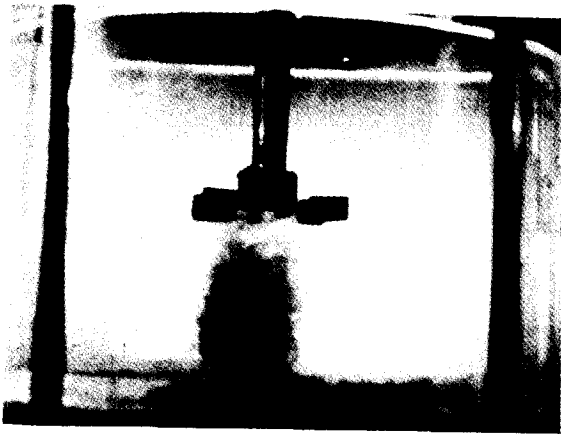
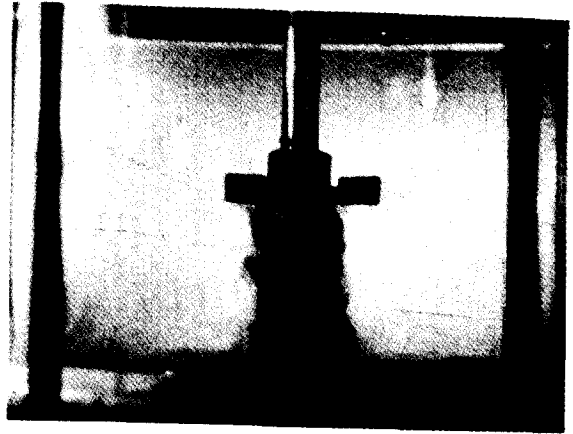
#### 3. 1 입구 및 출구지역의 흐름특성

입구지역의 흐름을 관찰하기 위하여 노즐입구에 소량의 염료를 주입하고 카메라를 사용하여 ( $f_s, 1/1/250$  sec, film sensitivity; ASA 400) 관찰한 입구지역의 형태는 Fig. 2 ~ 4 와 같다.

그림에서 액체의 흐름속도에 관계없이 임펠라의 레이놀즈수 ( $Re_t = \rho N d_i^2 / \mu$ ) 가 5000 이상의 범위 ( $rpm \geq 300$ )에서는 강한 난류를 일으키며 평균 직경이

2.22cm인 수직기둥형태를 보이고 있다. 교반속도가 낮아 질수록 노즐부근의 크기는 다소 작아지고 임펠라부근은 증가하지만  $Re_t$ 가 3000 이상에서는 거의 동일한 크기와 형태를 보이며 (Fig. 3의 c, d)  $Re_t$ 가 2000이하에서는 free jet 형태를 나타내고 있다 (Fig. 4의 a, b). 이것은  $Re_t$ 가 1000 이상의 낮은 범위에서도 임펠라에 의한 하부재순환흐름이 입류와 합쳐지기 때문인 것으로 보인다.

입류의 속도가 낮은 범위 ( $Re_t < 1000$ )에서는 입류의 속도에 따라 입구지역의 흐름형태가 변하여 (Fig. 4의 c, d) 입류의 레이놀즈수 ( $Re_i = \rho d_n u / \mu$ ) 가 3000 이상에서는 jet 형태를,  $Re_i < 2000$ 에서는 potential flow를 유지하고 있다. 따라서 낮은 교반속

a)  $Re_i=1208$ ,  $Re_t=5425$ b)  $Re_i=840$ ,  $Re_t=5425$ c)  $Re_i=840$ ,  $Re_t=3617$ d)  $Re_i=1208$ ,  $Re_t=3617$ 

**Fig. 3. Inlet zone phenomena at moderate pumping rate.**

도( $\text{rpm} \leq 50$ )와  $Re_i$ 가 3000이하에서 입구지역의 흐름은 플러그흐름으로 볼 수 있으며 이때 하부의 재순환흐름이 입류와 합쳐지지 않고 직접 임펠라지역으로 들어감을 알 수 있다. 또한 교반속도가 높거나( $\text{rpm} \geq 100$ ), 입류의 흐름속도가 큰 범위( $Re_i \geq 3000$ )에서는 입구지역의 흐름이 완전혼합에 가까우며 하부의 재순환흐름은 입류와 합쳐진다고 할 수 있다.

출구의 위치가 액체흐름에 미치는 영향은 탈색방법[13]에 의해 관찰하였는데 그결과, 낮은 교반속도와 짧은 공간시간에서 출구가 반응기의 기벽에 위치한 경우에만 channeling현상이 관찰되었다. 따라서 입구를 반응기의 하부에, 출구를 상부에 위치시

킨 경우의 반응기내 액체흐름특성은 channeling현상이 중요하지 않다.

### 3. 2 입류 및 교반속도의 영향

Free jet에 따른 시간지연은 무차원체재 시간의  $10^{-3}$ 이하이므로[14] 무시할 수 있으나 반응기내 유체의 시간지연은 플러그흐름특성 존재유무를 확인하는데 유용하다.

측정시간지연은 추적자가 반응기내에 주입된 시간부터 기록계에 나타난 시간으로 정의하고 높은 교반속도와 높은 입류속도에서 측정된 시간 지연을 조작과 측정장치의 지연으로 생각하여 이 값을 측정시간지연에서 뺀값을 반응기내 유체의 시간지연

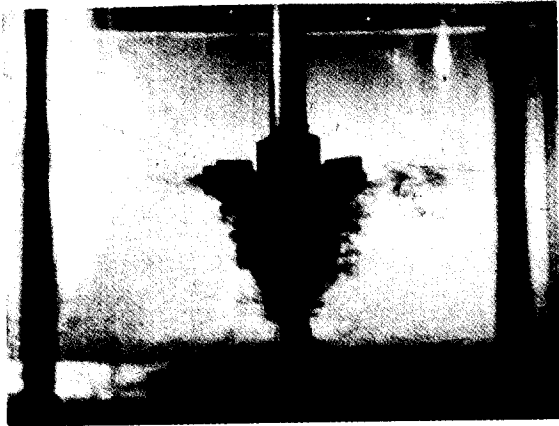
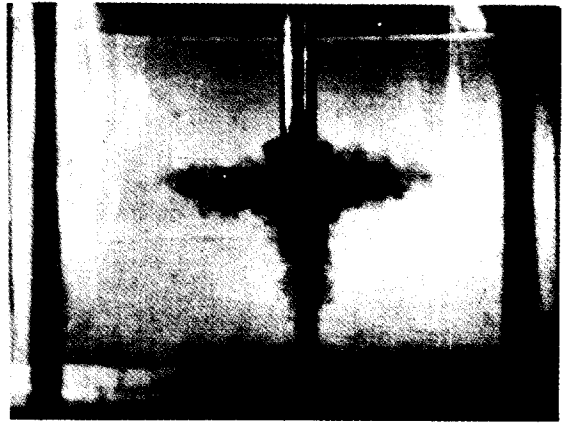
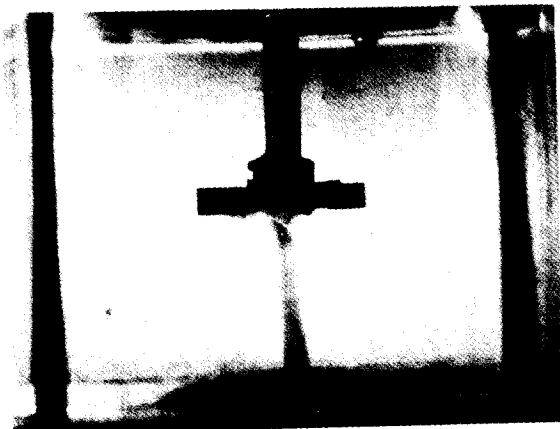
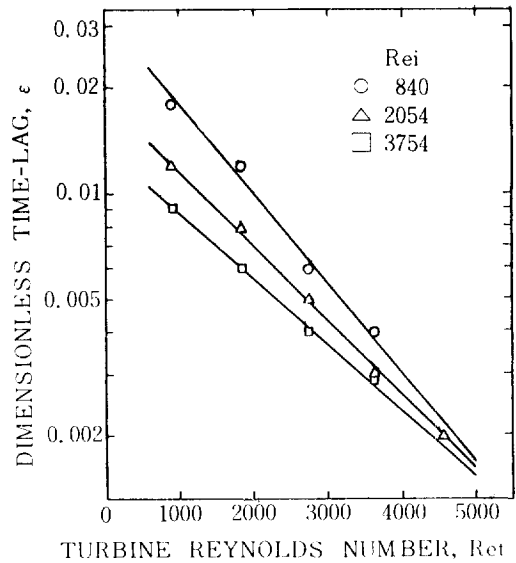
a)  $Re_i=840$ ,  $Re_t=1808$ d)  $Re_i=3041$ ,  $Re_t=904$ 

Fig. 4. Inlet zone phenomena at low pumping rate.

b)  $Re_i=3745$ ,  $Re_t=1808$ c)  $Re_i=1208$ ,  $Re_t=904$ Fig. 5. Dimensionless time-lag for a various agitation speed at a constant nozzle diameter( $d_n=0.39$  cm).

으로 계산하였는데  $\pm 2\%$ 의 오차를 나타내었다.

Fig. 5는 교반속도의 영향을 나타낸 것인데 100 rpm ( $Re_t=1808$ ) 이하에서만 평균체재시간에 대한 무차원시간지연이 0.01 이상이고 교반속도가 증가함에 따라 감소하고 있다. 이것은 교반속도 증가에 따라 입구지역의 jet-mixing과 반응기내의 플러그흐름특성이 감소하기 때문이다. 즉, 낮은 교반속도에서는 입류속도가 낮을수록 입구지역의 흐름이 플러그흐름특성을 가지기 때문에 무차원시간지연이 길

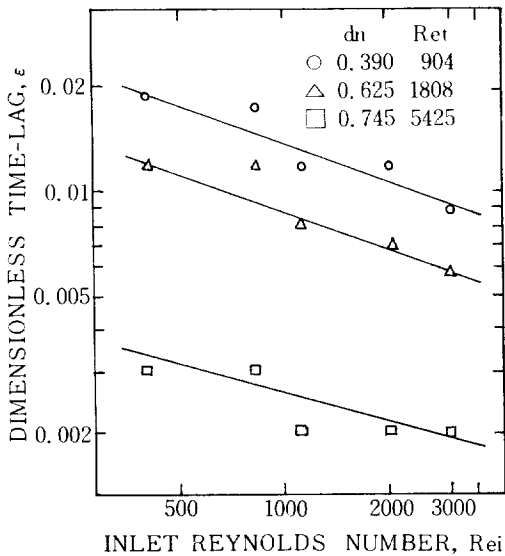


Fig. 6. Dimensionless time-lag for a various liquid flow rate.

여기나 교반속도가 증가할 수록 하부의 재순환흐름에 의한 입구지역의 jet-mixing과 임펠라에 의한 강한 난류형상으로 완전혼합흐름으로 생각할 수 있는 임펠라지역의 크기가 증가되어 입류에 무관하게 시간지연이 감소하게 된다.

Fig. 6에서 300rpm ( $Re_t=5425$ ) 이상에서는 앞의 결과와 같이 입류속도에 무관하게 시간지연이 매우 적으나 낮은 교반속도에서는 입류속도가 커서 jet-mixing이 일어남에도 상당한 시간지연을 나타내고 있다. 이것은 완전혼합특성을 갖는 임펠라 지역의 크기감소와 임펠라에 의한 재순환흐름의 속도가 작아서 반응기내의 흐름이 플러그특성을 갖기 때문으

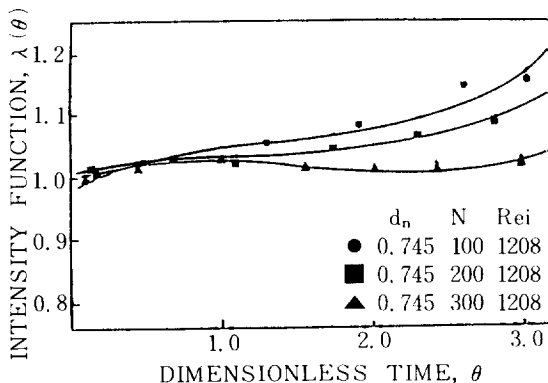


Fig. 7. Intensity function for a various agitation speed.

로 보인다.

### 3. 3 세기함수

C-curve나 F-curve로부터 쉽게 발견할 수 없는 사역 (dead zone)이나 우회 (by-pass) 등의 비이상흐름의 존재유무와 흐름특성을 설명하는데 유용하게 사용되는 세기함수,  $\lambda(\theta)$ ,는 (1)식과 같이 정의되며 정규화된 C-curve를 적분하여 F-curve를 얻고 식 (2)와 같이 계산하여 얻었다.

$$\lambda(\theta) = \frac{C(\theta)}{I(\theta)} \quad (1)$$

$$\lambda(\theta) = \frac{C(\theta)}{1-F(\theta)} \quad (2)$$

Fig. 7은 교반속도의 변화에 따른 세기함수의 형태이다. 교반속도가 300rpm에서는 완전혼합에 가까우나 낮은 교반속도에서는 입류의 jet-mixing현상에도 불구하고 재순환흐름의 플러그흐름특성으로 그 값이 1보다 증가하고 있다.

따라서 임펠라는 강한 난류를 형성시키며 반응물을 분쇄시키는 작용을 하므로 [15] 임펠라주위의 흐름은 완전혼합흐름으로 볼 수 있으며 3·2의 결과와 같이 교반속도의 증가에 따라 완전혼합지역의 크기가 증가한다고 할 수 있다. 또 임펠라의 pumping작용에 의하여 생기는 상, 하부의 재순환흐름은 낮은 교반속도에서는 다소 플러그흐름특성을 가지나 교반속도가 증가할수록 완전혼합흐름을 나타낸다고 볼 수 있다.

## 4. 액체의 흐름모델

반응기내 액체흐름지역을 입구지역, 임펠라지역과 재순환흐름지역으로 나눌 때 앞절의 결과와 같이 입구지역의 흐름특성에 따라 크게 두가지의 흐름모델을 생각할 수 있다.

### 4. 1 Divided-zone model with inlet jet-mixing

입류의 속도가 크거나 ( $Re_i \geq 3000$ ) 교반속도가 높은 경우 ( $rpm \geq 100$ )에는 하부의 재순환흐름이 입류와 합쳐져서 입구지역에서 jet-mixing이 일어남으로 입구지역과 임펠라지역의 흐름은 완전혼합으로 볼 수 있다. 입류에 의한 suction효과를 무시하고 임펠라에 의한 재순환흐름이 상, 하대칭으로 가정하

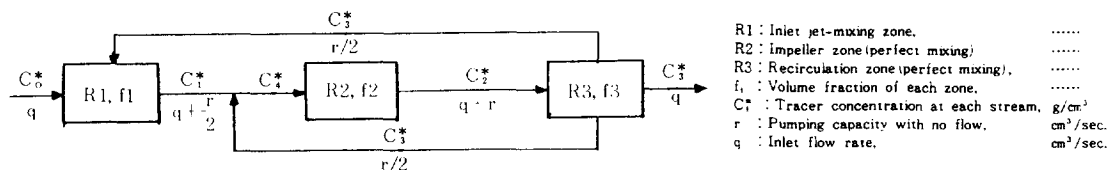


Fig. 8. Divided-zone model with inlet jet-mixing.

흐름모델은 Fig. 8 과 같다.

각 흐름에 대한 물질수지식은

$$f_1 V \frac{dC_1^*}{dt} = q C_0^* + \frac{r}{2} C_3^* - (q + \frac{r}{2}) C_1^* \quad (3)$$

$$f_2 V \frac{dC_2^*}{dt} = (q + r) C_1^* - (q + r) C_2^* \quad (4)$$

$$f_3 V \frac{dC_3^*}{dt} = (q + r) C_2^* - (q + r) C_3^* \quad (5)$$

$$(q + \frac{r}{2}) C_1^* + \frac{r}{2} C_3^* = (q + r) C_2^* \quad (6)$$

이들 식은  $C_0^* = Q \delta(t)$ ,  $p = r/2q$ ,  $C_1 = Q C_1^*$ ,  $\theta = tq/V$ 를 이용하여 무차원식으로 나타내고 Analog computer simulation 방법에 의하여 이론식,  $C_s(\theta)$ 를 구하였다.

여기서 입구지역의 크기( $f_1$ )는 3·1절에서 설명한 방법과 같이 염료를 사용하여 카메라로 촬영한 것을 측정계산하였고 임펠라지역의 크기( $f_2$ )는 교반속도만의 함수로 생각하여 Serner의 방법[16]으로 계산하였다. Pumping capacity( $r$ )는 동일한 형

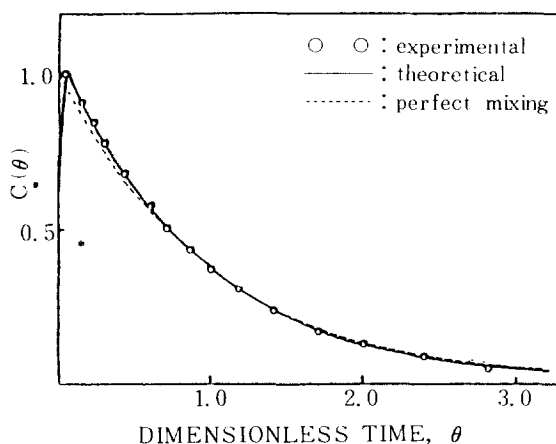


Fig. 9. Comparison of theoretical curve and experimental data for divided-zone model with inlet jet-mixing:  $f_1 = 0.025$ ,  $f_2 = 0.975$ ,  $p = 8.50$ .

태의 임펠라를 사용하여 유사한 실험조건에서 얻은 Holmes 등[17]의 결과를 이용하였다.

Fig. 9의 이론과 실험값의 비교에서 곡선의 후미부분은 모두 완전혼합과 일치하나 초기부분에서 완전혼합과 벗어나고 있다. 이것은 반응기내의 흐름지역이 분리됨을 의미하며 시간지연이 나타나지 않으므로 각 흐름지역은 완전혼합특성으로 볼 수 있다.

#### 4. 2 Divided-zone model with inlet potential flow

임펠라에 의한 하부의 재순환흐름이 입류와 혼합되지 않고 출류에서 시간지연( $\alpha$ )을 나타내는 경우는 교반속도가 낮고( $\text{rpm} \leq 50$ ) 낮은 입류속도( $\text{Re} < 3000$ )의 경우이다. 이때 임펠라지역의 크기와 입류에 의한 suction 효과는 무시가능하며 재순환흐름은 다소 완전혼합흐름에서 벗어 남으로 상, 하부의 흐름지역으로 분리할때의 흐름모델은 Fig. 10과 같다.

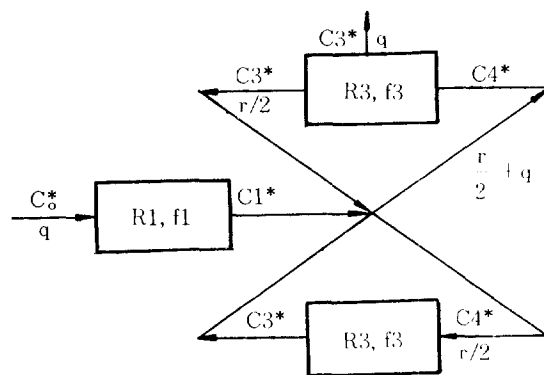


Fig. 10. Divided-zone model with inlet potential flow.

각 흐름에 대한 물질수지식은

$$C_1^* = C_0^*(t - \alpha) \quad (7)$$

$$f_3 V \frac{dC_3^*}{dt} = \frac{r}{2} C_1^* - \frac{r}{2} C_3^* \quad (8)$$

$$f_3 V \frac{dC_3}{dt} = (q + \frac{r}{2}) C_1^* - (q + \frac{r}{2}) C_3^* \quad (9)$$

$$(q + r) C_1^* = q C_1^* + \frac{r}{2} C_3^* + \frac{r}{2} C_3^* \quad (10)$$

윗식을 4·1과 같은 방법으로 무차원식으로 정리하고 체제시간분포함수,  $C_3(\theta)$ , 를 구하면 다음과 같다.

$$C_3(\theta) = A_1 \exp[a_1(\theta - \epsilon)] - A_2 \exp[a_2(\theta - \epsilon)] \quad (11)$$

여기서

$$A_1 = \frac{(1+p)(a_1 + p/f_3)}{f_3(1+2p)(a_1 - a_2)}$$

$$A_2 = \frac{(1+p)(a_2 + p/f_3)}{f_3(1+2p)(a_1 - a_2)}$$

이며  $\epsilon = \alpha q/V$ ,  $a_1$ 과  $a_2$ 는 다음식의 두 근이다.

$$s^2 + \left[ \frac{p(1+p)}{f_3(1+2p)} + \frac{(1+p)^2}{f_3(1+2p)} \right] s + \frac{p(1+p)}{f_3 f_3^* (1+2p)} = 0 \quad (12)$$

식(11)에 의하여 실험치와 비교한 Fig. 11에서 교

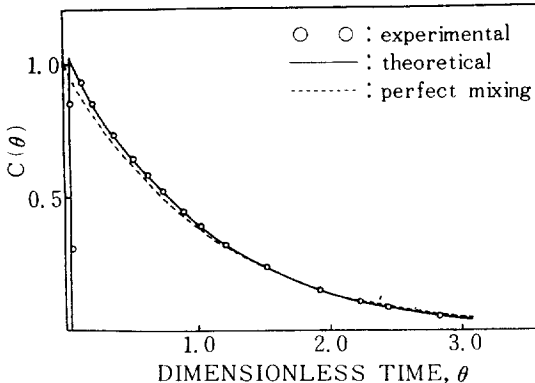


Fig. 11. Comparison of theoretical curve and experimental data for divided-zone model with inlet potential flow:  $f_1=0.028$ ,  $f_3=0.998$ ,  $\epsilon=0.028$ ,  $p=69.50$ .

반속도가 낮은 범위에선 재순환흐름이 다소 플러그 흐름특성을 가짐에도 잘 일치하고 있다. 이것은 재순환흐름은 각 흐름속도가 다르고 순환길이가 다른 플러그흐름의 병렬로 이루어져 완전혼합과 동일한 결과를 갖는 것으로 판단된다.

## 5. 결 론

입구와 출구를 반응기의 하부와 상부에 위치시킨 교반반응기에서 액체의 흐름특성에 관한 결과는 다음과 같다.

(i) 임펠라를 중앙에 위치시킨 경우 입류효과는 무시될 수 없으며 우회현상은 감소된다.

(ii) 낮은 교반속도와 긴 공간속도의 범위에서는 입구지역의 potential flow와 재순환흐름만이 중요하며 제시된 모델이 합당하다.

(iii) 높은 교반속도나 짧은 공간속도에서는 입구 지역에서 jet-mixing이 일어나고 완전혼합흐름인 임펠라지역의 크기는 교반속도증가에 따라 증가한다. 이때 제시된 모델이 적당하다.

## NOMENCLATURE

- $a_1, a_2$  : A constant defined in Eq.(12)
- $A_1, A_2$  : A constant defined in Eq.(11)
- $C_1^*$  : Arbitrary trace concentration at each stream, (g/cm<sup>3</sup>)
- $C_i(\theta)$  : C-curves
- $d_i$  : Impeller diameter, (cm)
- $d_n$  : Nozzle diameter, (cm)
- $f_i$  : Volume fraction of each flow zone
- $F(\theta)$  : F-curves
- $I(\theta)$  : Internal age distribution function
- $N$  : Agitation speed, (1/sec)
- $p$  : Dimensionless flow rate defined in  $p = r/2q$
- $q$  : Inlet liquid flow rate, (cm<sup>3</sup>/sec)
- $Q$  : Total amount of tracer
- $r$  : Pumping capacity with no flow, equal to  $1.3 Nd_1^3$  (cm<sup>3</sup>/sec)
- $R_i$  : Flow zone of reactor
- $Re_i$  : Inlet Reynolds number equal to  $\rho d_n \cdot u/\mu$
- $Ret$  : Turbine Reynolds number equal to  $\rho Nd_1^2/\mu$
- $s$  : Laplace transform operator
- $t$  : Time, (sec)
- $u$  : Liquid velocity in nozzle, (cm/sec)
- $V$  : Volume of reactor, (cm<sup>3</sup>)
- $\alpha$  : Initial time-lag, (sec)
- $\delta(\theta)$  : Dirac delta function
- $\epsilon$  : Dimensionless time-lag equal to  $\alpha q/V$
- $\theta$  : Dimensionless mean residence time equal to  $tq/V$
- $\lambda(\theta)$  : Intensity function defined in Eq.(1)
- $\mu$  : Viscosity of fluid, (cP)

$\rho$  : Density of fluid, (g/cm<sup>3</sup>)

## REFERENCES

1. Mitsuishi, N., Nakano, K. and Ide, Y.: J. Chem. Eng. Japan, 5, 407 (1972).
2. Harada, M., Tanaka, K., Eguchi, W. and Nagata, S.: J. Chem. Eng. Japan, 1, 148 (1968).
3. Ritche, B.W.: Can. J. Chem. Eng., 58, 626 (1980).
4. Paul, E.L. and Treybal, R.E.: AIChEJ., 17, 718 (1971).
5. Plasari, E., David, R. and Villermoux, J.: J. ACS Symp. Ser., No. 65, 125 (1978).
6. Danckwerts, P.V.: Chem. Eng. Sci., 2, 1 (1953).
7. Bischoff, K.B. and McCracken, E.A.: Ind. Eng. Chem., 58, 18 (1966).
8. Danckwerts, P.V.: Appl. Sci. Res., A3, 279 (1952).
9. Kang, W.K. and Ranz, W.E.: KICChEJ., 1, 17 (1963).
10. Manning, F.S. and Wilhelm, R.H.: AIChEJ., 9, 12, (1963).
11. Levenspiel, O.: "Chemical Reaction Engineering", 2nd ed., John Wiley and Sons, New York (1972).
12. Holland, F.A. and Chapman, F.S.: "Liquid Mixing and Processing in Stirred Tank", Reinhold Pub., New York (1966).
13. Nagata, S.M., Nishikawa, T., Katsube, T. and Takaishi, K.: Kagaku Kogaku, 35, 794 (1971).
14. Sinclair, C.G. and McNaughton, K.J.: Can. J. Chem. Eng., 48, 411 (1970).
15. Manning, F.S., Wolf, D. and Keairns, D.C.: AIChEJ., 11, 723 (1965).
16. Serner, H.E.: Chem. Eng., 57, No. 4 (1950).
17. Holmes, D.B., Vocken, R.M. and Dekken, J.A.: Chem. Eng. Sci., 19, 201 (1964).