

액-액계의 액적형성기구와 그 크기 예측

김해성* · 김우식

연세대학교 공과대학 화학공학과

*명지대학교 공과대학 화학공학과

(1984년 6월 5일 접수, 1984년 9월 13일 채택)

The Mechanism of Drop Formation and Drop Size Prediction in a Liquid-Liquid System

Hae Sung Kim*, Woo Sik Kim

Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Yonsei Univ., Seoul 120, Korea

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

(Received 5 June 1984; accepted 13 September 1984)

요 약

액-액 분산계에서 액적이 형성될 때 액적의 형성기구를 생성단계와 성장단계로 구분하고 액적 주변의 흐름을 경계층이론에 근거한 속도분포함수에 근사시켜 힘수지와 운동량수지를 취함으로서 액적의 크기를 예측하는 모델을 제시하였다. 제시된 상관식은 실험치와 표준편차 19.8% 범위에서 일치하였다.

Abstract A model was presented for predicting the drop size in the liquid-liquid dispersion system using a force balance and a momentum balance in the two-stage process of drop formation and drop growth to which it was possible to apply the boundary-layer theory. The formulated correlation predicted the drop volume with standard deviation of 19.8 percent.

1. 서 론

액-액 2 상계에 있어서 액적의 형성기구와 그 크기 예측은 물질전달 속도와 분리조작의 해석에 가장 기초가 되는 자료로서 많은 사람들에 의하여 연구되어 왔다[1-3]. 액적의 형성기구로부터 그 크기를 예측하는 모델은 힘수지 모델(force balance model)과 운동량수지 모델(momentum balance model)로 구분되며, 전자는 액적 형성에 작용하는 힘의 수치로부터 유도되고 후자는 그 형성기구에 관여하는 운동량수지에 근거하는 모델이다. 힘

수지 모델은 분산관으로부터 액적이 형성되는 과정에서 부력, 계면장력, 점성력 및 관성력이 작용할 때 그 힘들의 수치로부터 액적의 크기와 조작 조건을 상관시키는 모델이며, 운동량수지 모델은 액적형성기구를 생성단계와 성장단계로 구분하고 각 단계에 관한 운동량수지로부터 액적의 크기를 예측하는데 그 특징이 있다. 힘수지 모델은 Hayworth와 Treybal[4]에 의하여 확립되었고, 운동량수지 모델은 Rao등[5], Scheele와 Meister[6], Kagan등[7], Kumar와 Kuloor[8], Chazal와 Ryan[9] 등에 의하여 발전되어 왔으나, 각 모델의 이론적 한

계성으로 인하여 그 적용범위와 타당성의 관점에서 문제점이 제기되었다. 지금까지 제시된 모델은 액적이 형성될 때 관여하는 점성력을 종말속도에 도달한 액적에 작용하는 점성력이나 Stokes의 법칙이 성립하는 영역에서의 점성력으로 간주하였고, 힘수지와 운동량수지에서 점성력과 계면장력의 영향을 상대적으로 낮게 평가함으로써 수지식의 일관성을 결여하였으며, 제시된 이론식의 실험상수가 물리적인 의미가 부여되지 않으면서 제한된 범위의 실험결과로부터 결정되었다는 점에서 보면 타당성있는 이론으로 발전되지는 못하였다. 따라서, 본 연구에서는 분산판으로부터 단일 액적이 형성될 때 액적의 형성기구를 생성단계와 성장단계로 구분하고 분산판의 오리피스를 통과하는 흐름에 경계층이론과 힘수지식 및 운동량수지식을 적용함으로써 보다 더 신빙성있는 액적모델을 제시하고자 하였다.

2. 이 론

액적이 형성될 때 오리피스를 통과하는 유속이 낮아서 분사류가 형성되지 않는 유량의 범위에서는 액적은 균일하게 생성되는데 오리피스와 액적 부근의 속도분포는 경계층이론에 의하여 다음과 같이 표시할 수 있다. 오리피스의 축방향과 반경 방향으로의 좌표를 z, r 라 하고 각각의 속도성분을 U_z, U_r 로 표시할 때, 오리피스 주변의 흐름을 축방향으로의 운동량이 보존되는 정상상태흐름이라고 가정하여 경계층 이론을 적용시키면 운동방정식과 연속방정식 및 경계조건은 다음과 같고,

$$U_z \frac{\partial U_z}{\partial z} + U_r \frac{\partial U_z}{\partial r} = \nu \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial U_z}{\partial r} \right) \quad (1)$$

$$\frac{\partial U_z}{\partial z} + \frac{\partial U_r}{\partial r} + \frac{U_r}{r} = 0 \quad (2)$$

$$\left. \begin{aligned} r=0; U_r=0, \frac{\partial U_z}{\partial r}=0 \\ r=\infty; U_z=0 \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

U_z 와 U_r 는 (4)식으로 주어진다[10].

$$\left. \begin{aligned} U_z &= \frac{3}{8\pi} \cdot \frac{K}{\nu z} \cdot \frac{1}{(1+\frac{\eta^2}{4})^2} \\ U_r &= \frac{1}{4} \sqrt{\frac{3\sqrt{K}}{\eta z}} \frac{\eta - \eta^3/4}{(1+\eta^2/4)^2} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

여기서 η 와 J 는 (5), (6)식으로 표시되는데

$$\eta = \sqrt{\frac{3}{16\pi}} \cdot \frac{\sqrt{K}}{\nu} \frac{r}{z} \quad (5)$$

$$J = \rho_c K = 2\pi \rho_a \int_0^\infty U_z^2 r \, dr \quad (6)$$

η 는 무차원변수이고 J 는 분산상으로 부터 축방향으로 전달되는 단위면적당 운동량이다.

액적에 작용하는 점성력을 F_D 라 하면 그 점성력은 속도 분포함수로 부터 결정할 수 있다. 점성력에 작용하는 액적의 형태를 직경 D_o , 길이 D_o 인 원통형으로 근사시키면

$$\begin{aligned} F_D &= \pi D_o \int_0^{D_o} \left\{ -\mu_c \left(\frac{\partial U_{za}}{\partial r} \right)_{r=\frac{D_o}{2}} - \mu_a \left(\frac{\partial U_{za}}{\partial r} \right)_{r=\frac{D_o}{2}} \right\} dz \\ &= \frac{\frac{3}{4} \rho_c K}{\left(1 + \frac{3}{256\pi} \cdot \frac{K}{\nu_c^2}\right)^2} + \frac{\frac{3}{4} \rho_a K}{\left(1 + \frac{3}{256\pi} \cdot \frac{K}{\nu_a^2}\right)^2} \quad (7) \end{aligned}$$

이 된다.

액적이 오리피스에서 생성되어 생성단계가 종식되는 순간에는 부력, 계면장력, 관성력, 점성력은 평형이 유지되므로

$$\begin{aligned} \Delta \rho g V_s + \pi \sigma D_o - \frac{4}{\pi} \rho_a \left(\frac{Q}{D_o} \right)^2 + \frac{3}{4} K \left\{ \frac{\rho_c}{\left(1 + \frac{3}{256\pi} \cdot \frac{K}{\nu_c^2}\right)^2} \right. \\ \left. + \frac{\rho_a}{\left(1 + \frac{3}{256\pi} \cdot \frac{K}{\nu_a^2}\right)^2} \right\} = 0 \quad (8) \end{aligned}$$

생성단계에서의 액적체적 V_s 는

$$\begin{aligned} V_s &= \frac{\pi \sigma \cdot D_o}{\Delta \rho g} + \frac{\frac{3}{4} K}{\Delta \rho g} \left\{ \frac{\rho_c}{\left(1 + \frac{3}{256\pi} \cdot \frac{K}{\nu_c^2}\right)^2} + \frac{\rho_a}{\left(1 + \frac{3}{256\pi} \cdot \frac{K}{\nu_a^2}\right)^2} \right\} \\ &\quad - \frac{4}{\pi} \frac{\rho_a}{\Delta \rho g} \left(\frac{Q}{D_o} \right)^2 \quad (9) \end{aligned}$$

이 된다.

오리피스에서 생성된 액적은 병목현상이 진행되면서 성장하는데 이 과정에 작용하는 운동량수지식과 초기조건은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} M \frac{dU}{dt} &= \Delta \rho \cdot g \cdot Q \cdot t + Q U_o \rho_a - F_D \quad (10) \\ U &= 0, @ \quad t=0 \end{aligned}$$

따라서, 액적의 축방향속도 U 는

$$U = \frac{\Delta \rho \cdot g \cdot Q}{2M} \cdot t^2 + \frac{Q U_o \rho_a - F_D}{M} t \quad (11)$$

인데, 액적의 축방향으로의 속도 U 가 임계속도 U_c 에 도달하면 액적은 오리피스로부터 분리된다. 그

러므로, 임계조건으로부터

$$U = U_c = \frac{dD_s}{dt} = \frac{2Q}{\pi D_s^2}, \text{ @ } t = t_c \quad (12)$$

이므로 t_c 동안에 첨가된 체적 V_n 은

$$V_n = Q t_c = (V_D - V_K) + \sqrt{(V_D - V_K)^2 + V_A^2} \quad (13)$$

$$V_K = \frac{Q \rho_A U_c}{\Delta \rho \cdot g} \quad (14)$$

$$V_D = \frac{F_D}{\Delta \rho \cdot g} \quad (15)$$

$$V_A = \left(\frac{4M}{\pi \Delta \rho \cdot g} \right)^{1/2} \cdot \frac{Q}{D_s} \quad (16)$$

으로 표시되며 M 은 보정된 액적의 질량으로서

$$M = V_s (\rho_d + \frac{11}{16} \rho_c) \quad (17)$$

로 표시할 수 있다[8]. 따라서, 형성된 액적은 Harkins 의 보정계수(3) ϕ 만큼이 분리되므로 액적의 최종체적 V_f 는

$$V_f = \phi \cdot (V_s + V_n) \quad (18)$$

이 된다.

3. 실험장치 및 방법

액적을 형성하는 분산상은 규산소다로 조제된 실리카 수용액으로서 질산을 함유한 tributyl phosphate (TBP) - ethanol (체적비, 50 : 7) 유기상과 함께 액-액계를 구성하는데, Fig. 1 과 같이 지름 34mm 높이 120mm의 초자관 상부에는 두께 2mm의 테프론으로 제작한 단일공경의 오리피스판이 설치되어 있고 하부에는 액적을 수집하기 위한 플라스크가 연결되었다. 이 플라스크에는 비중 1.1로 조절된 질산알루미늄 수용액이 채워져 있어서 낙하한 액적이 유기상과 분리되도록 하였고, 낙하속도에 의하여 액적이 변경되거나 파손되지 않도록 하였다. 액적을 형성시키기 위해서는 질산알루미늄 수용액으로 채워진 플라스크와 초자관을 연결시킨 다음에 질산을 함유한 유기상으로 수위를 맞추고 오리피스판을 결합시켰다. 미량펌프로 급송되는 규산소다수용액은 메스실린더로 유량이 측정되고 오리피스판으로부터 액적이 형성되어 연속상인 TBP-ethanol 유기상을 통과하며, 유기상을 통과하는 액적은 연속상으로부터 물질이동 하는 질산에 의해 생성된 실리카로 고화되므로 초자관의 하부에서 수

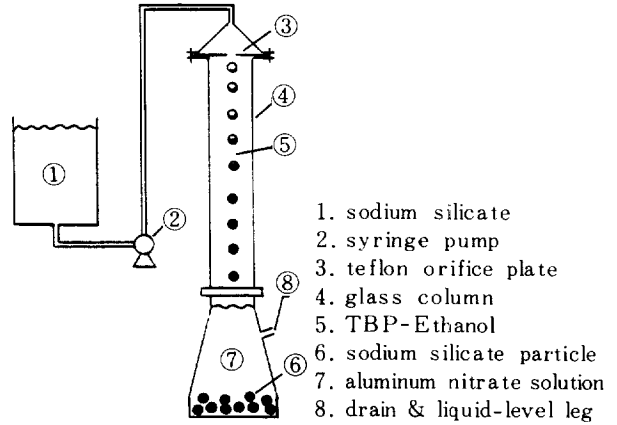
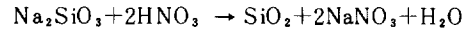


Fig. 1. Experimental apparatus for drop size measurement.

집될 때는 액적의 형태가 변형되지 않았다. 다음식으로 표시되는 실리카의 생성반응(11)은



규산소다 수용액의 pH가 10.5일때 시작되고 pH 7, 8에서는 순간적으로 진행되므로 액적이 형성되는 오리피스 입구 부근에서는 일어나지 않으나 액적이 초자관의 중앙부를 통과할 때는 순간적으로 완결되었다. 이 실리카의 생성반응은 물질 이동하는 질산에 의하여 수용액의 pH가 조절되어야만 일어나고 pH가 7~8이 되면 순간적으로 완결되며, 액적의 형성기구에는 영향을 미치지 않고 액적을 고화시킨다는 점에서 액적의 크기를 측정하는 방법으로 이용되었다. 이와같은 방법으로 고화된 액적은 초자관내의 용액과 분리시킨 후에 사진촬영에 의한 영상을 확대·인화시켜 그 크기를 측정하였다. 수용상과 유기상의 밀도, 점도는 비중계와 점도계로 측정하였고 계면장력은 Harkins 보정계수를 이용한 액적중량법으로 측정하였다. 계면장력을 측정할때의 물질이동속도와 액적의 생성속도는 오리피스에서 액적이 형성될 때의 조건에 근사되도록 하였다. Table 1에는 선택된 분산상과 연속상의 물리화학적 특성과 조업조건 및 장치의 크기를 나타내었다.

4. 실험결과 및 고찰

Fig. 2~4는 오리피스의 공경과 유량변화에 따라서 형성된 액적체적과 Scheele와 Meister [6], Chazal와 Ryan [9] 및 본 연구에서 제시된 모델의 이

Table 1. Experimental condition of drop size measurement.

dispersed phase: sodium silicate solution, $[\text{SiO}_2] = 1.30 \text{ kgmole/m}^3$ continuous phase: TBP-EtOH (50/7), $[\text{HNO}_3] = 0.6 \text{ kgmole/m}^3$

physical properties of TBP-EtOH-aqueous solution system					
phase	density, kg/m ³	viscosity, kg/m/s	density difference, kg/m ³	interfacial tension, N/m	temperature, °C
continuous	974	3.81×10^{-3}	150	9.40×10^{-3}	22 ± 0.5
dispersed	1124	1.46×10^{-3}			
geometrical structure of apparatus used					
column	borosilicate pyrex glass tube, I. D. 3.4cm×height 120cm				
orifice	teflon, thickness 2mm, hole dia. 2.52, 2.00, 1.40mm				

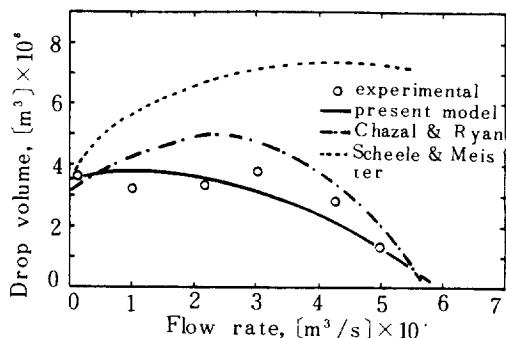


Fig. 2. Dependence of drop volume on flow rate for orifice diameter 2.52mm.

론치와 비교한 것이다. Scheele와 Meister의 모델에 의한 액적의 체적은

$$V_F = \phi \left\{ \frac{\pi \sigma D_o}{\Delta \rho \cdot g} - \frac{4}{\pi} \rho_a \left(\frac{Q}{D_o} \right) + 30.8 \frac{\mu_c D_o Q}{\Delta \rho \cdot g V_F^{1/3}} + 4.5 \times \left(\frac{\rho_a \sigma D_o^2 Q^2}{(\Delta \rho \cdot g)^2} \right)^{1/3} \right\}$$

으로 표시되는데, 순차치환(successive substitution)법에 의하여 계산하였다. Chazal와 Ryan의 이론치는

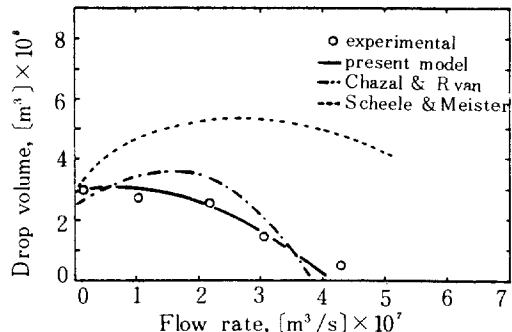


Fig. 3. Dependence of drop volume on flow rate for orifice diameter 2.00mm.

$$V_F = \frac{\pi \sigma D_o}{\Delta \rho \cdot g} \left\{ \phi - 0.695 \frac{\rho_a Q^2}{\sigma D_o^3} (1 + \beta) + 1.05 \times \frac{\Delta \rho \cdot g Q V_F^{1/3}}{\sigma \cdot D_o U_T} \right\}$$

종말속도 U_T 에 관한 Hu와 Kinter [12]의 상관식을 이용하여 Newton-Raphson법으로 계산하였다. 본 연구에서 제시된 이론식 (18)식은 상기의 모델과는 달리 계산이 용이 하여 V_s , V_d , V_k , V_a , V_n , ϕ , V_F 순서로 계산하였고 Harkins의 보정계수 ϕ 는 Hartland등 [13]이 제시한 다음식을

$$\phi = 0.60 + 0.40 \exp \left\{ - \left(\frac{8 \Delta \rho \cdot g \cdot D_o^2}{\pi \sigma} \right)^{1/3} \right\}$$

이용하여 반복계산이 필요하지 않도록 하였다. 본 연구에서는 제시된 모델의 이론치는 대체로 실험치에 근접하였으므로 타당한 액적형성기구에 근거한 모델로 판단되었으나 Scheele와 Meister 모델은 크게 편기하여 본 연구범위에서는 적용될 수 없었다. Chazal와 Ryan모델은 실험치에 근접하는

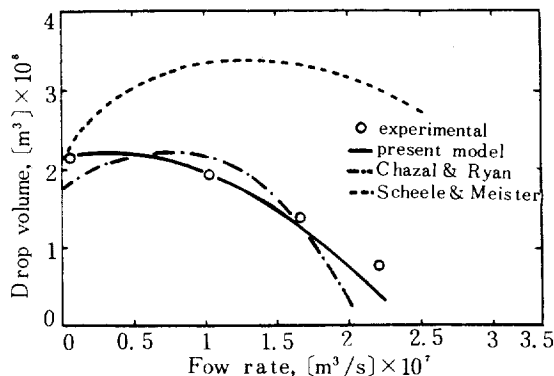


Fig. 4. Dependence of drop volume on flow rate for orifice diameter 1.40mm.

경향을 보였으나 액적의 체적이 최대가 되는 유량에서 가장 큰 편차를 나타내었다.

Scheele와 Meister 모델은 유량이 0에 접근할 때는 실험치에 접근하였으나, 유량이 증가하면 이론치가 실험치에서 크게 편기하였다. 이 모델은 액적생성단계와 성장단계로 구분한 액적형성기구로부터 유도될 때 점성력의 계산에 Stokes법칙을 적용하였고, 성장단계에서 첨가되는 액적의 체적을 예측하는데 실험상수를 도입하였기 때문이다. Scheele와 Meister의 연구에서는 연속상의 점도가 크고 밀도차가 상대적으로 작기때문에 액적의 레이놀드수가 충분히 작아서 Stokes법칙이 적용되었으나 본 연구의 실험범위에서는 액적의 레이놀드수가 30~130으로 Stokes법칙이 적용될 수 없었다. 또한, 액적형성기구의 성장단계에서 첨가되는 액적의 체적을 예측하기 위하여 도입된 실험상수는 물리적인 의미가 부여되지 않고 실험적으로만 결정됨으로서 부력, 점성력, 계면장력 및 관성력의 상호작용효과가 서로 다르게 나타나는 계에서는 그 타당성이 희박하다고 판단된다.

Chazal와 Ryan의 모델은 실험치에 접근하는 경향을 보이나 낮은 유속과 높은 유속에서는 실험치보다도 과소평가되고 있으며 액적의 체적이 최대가 되는 유량 범위에서는 과대평가되고 있다. 낮은 유속에서 과소평가되는 것은 액적성장단계에서 계면장력을 Harkins 상수로서 보정하였기 때문이며, 유속이 높은 범위에서 과소평가된 것은 운동량수지식에서 액적의 운동량변화가 무시되었는데, 유속이 높으면 무시될 수 없으므로 병목형성시간이 과소평가되었기 때문이라고 판단된다. 그러나 액적의 체적이 최대가 되는 유량 범위에서는 Chazal와 Ryan모델의 이론치는 항상 실험치보다 크게 예측되는데, 이 때 가장 중요한 인자는 드래그이다. 이 과정에서 계면장력은 일정하게 유지되고 부력과 관성력이 증가할 때 액적의 체적을 증가시키는 힘은 드래그가 되며 이 모델의 드래그는 Hu와 Kinter [12]의 상관식을 사용하였다. 이 과정에서 액적의 축방향선속도는 Scheele와 Meister가 밝힌바와 같이 액적의 종말속도보다는 작으므로 Hu와 Kinter의 식을 이용한 Chazal와 Ryan식의 드래그는 과대평가되고 액적체적은 실험치보다 크게 예측되었다. 이와같은 관점에서 상기모델을 비교·검토한 결과

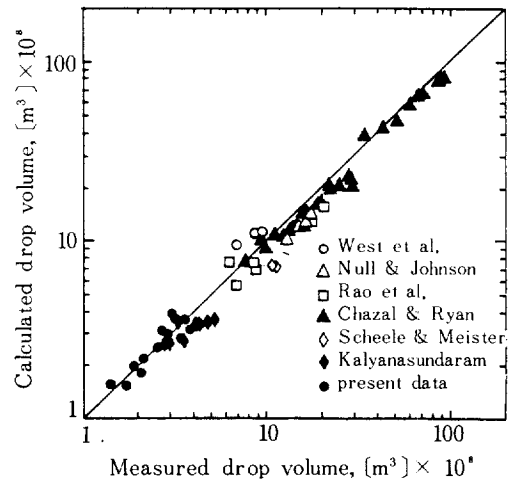


Fig. 5. Comparison of drop volume data available with those calculated by present model.

본 연구의 이론식은 Scheele와 Meister, Chazal와 Ryan의 이론식보다도 액적의 형성기구와 그 크기를 더 잘 예측할 수 있다고 판단되었다.

Fig. 5에서는 West 등 [14], Null와 Johnson [15], Rao 등 [5], Chazal와 Ryan [9], Scheele와 Meister [6], Kalyanasundaram [16] 등이 임계분사유속 이하에서 측정된 액적의 체적에 관한 자료와 제시된 (18) 식의 이론치를 비교하였으며 이론치와 실험치는 표준편차 19.8% 이내에서 일치하였다. Scheele와 Meister의 모델과 Chazal와 Ryan의 모델을 상기의 실험치와 비교한 결과는 표준편차로 각각 54.0%, 28.1%이었다. 이와같은 결과로 볼 때 본 연구의 이론식은 본 실험범위와 다른 실험범위에서도 유용함을 알 수 있었다.

5. 결 론

액적생성단계와 성장단계로 이루어진 액적형성기구로부터 경계층이론에 근거한 힘수지식과 운동량수지식을 적용하여 액적의 형성기구와 그 크기에 관한 연구를 수행한 결과 얻어진 결론은 다음과 같다.

1. 액적의 체적은 다음식에 의하여 예측할 수 있으며, 실험치와 표준편차 19.8% 이내에서 일치하였다.

$$V_F = \phi (V_s + V_n)$$

여기에서,

$$V_s = \frac{\pi \sigma D_o}{\Delta \rho \cdot g} + \frac{3K}{4 \Delta \rho \cdot g} \left\{ \frac{\rho_c}{\left(1 + \frac{3}{256 \pi} \cdot \frac{K}{\nu_c^2}\right)^2} + \frac{\rho_d}{\left(1 + \frac{3}{256 \pi} \cdot \frac{K}{\nu_d^2}\right)^2} \right\} - \frac{4}{\pi} \frac{\rho_d}{\Delta \rho \cdot g} \left(\frac{Q}{D_o} \right)^2$$

$$V_n = (V_D - V_K) + \{(V_D - V_K)^2 + V_A^2\}^{1/2}$$

2. 본 연구범위에서 액적의 형성과정에서 작용하는 점성력은 Stokes 법칙이나 Hu와 Kinter의 드래그계수로부터 결정하기 보다는 경계층이론에 근거한 것이 더 정확하였다.

NOMENCLATURE

- D_o : Diameter of orifice, m
 D_s : Diameter of static drop, m
 F_D : Drag force, N
 g : Gravitational acceleration, m^2/s
 J : Momentum of dispersed phase per second, N
 K : J/ρ_c , Kinetic momentum per second, $N m^3/Kg$
 M : Mass of drop, Kg
 Q : Flow rate of dispersed phase, m^3/s
 r : Radial coordinate in cylindrical coordinates, m
 t : Time, s
 t_c : Time duration of drop necking, s
 U : Axial velocity of drop during necking, m/s
 U_c : Axial velocity of drop at detaching, m/s
 U_o : Velocity of dispersed phase through orifice, m/s
 U_r : Radial velocity component, m/s
 U_T : Terminal velocity of drop, m/s
 U_z : Axial velocity component, m/s
 U_{zc} : Axial velocity component in the continuous phase, m/s
 U_{zd} : Axial velocity component in the dispersed phase, m/s
 V_A : Additional drop volume defined by Eqn. (16), m^3

- V_D : Drag drop volume defined by Eqn. (15), m^3
 V_F : Final drop volume, m^3
 V_K : Kinetic drop volume defined by Eqn. (14), m^3
 V_n : Necking drop volume defined by Eqn. (13), m^3
 V_s : Static drop volume defined by Eqn. (9), m^3
 z : Axial coordinate in cylindrical coordinates, m
 β : Chazal and Ryan's model parameter, dimensionless
 η : Dimensionless variable defined by Eqn. (5), dimensionless
 μ_c : Viscosity of continuous phase, Kg/m/s
 μ_d : Viscosity of dispersed phase, Kg/m/s
 ν : Kinematic viscosity, m^2/s
 ν_c : Kinematic viscosity of continuous phase, m^2/s
 ν_d : Kinematic viscosity of dispersed phase, m^2/s
 ρ_c : Density of continuous phase, Kg/m³
 ρ_d : Density of dispersed phase, Kg/m³
 σ : Interfacial tension, N/m
 ϕ : Harkins' correction factor, dimensionless

REFERENCES

- Clift, R., Grace, J.R. and Weber, M.R. : "Bubbles, Drops, and Particles," Academic, New York (1978). pp. 321-351.
- Heetjes, P.M.: Chem. Eng. Sci., **26**, 441 (1971).
- Harkins, W.D. and Brown, F.E. : J. Am. Chem. Soc., **41**, 499 (1919).
- Hayworth, C.B. and Treybal, R.E. : Ind. Eng. Chem., **42**, 1174 (1950).
- Rao, E.V.L.N., Kumar, R. and Kuloor, N.R. : Chem. Eng. Sci., **21**, 867 (1966).
- Scheele, G.F. and Meister, B.J.: AIChE J., **14**, 9 (1968).

7. Kagan, S.Z., Kovalev, Yu. N. and Zakharyev, A.P. : Theor. Fund. Chem. Eng., **7**, 514 (1973).
8. Kumar, R. and Kuloor, N.R. : "The Formation of Bubbles and Drops," Advances in Chem. Eng., Vol. 8, (1970). pp. 256-368.
9. Chazal, L.E.M. and Ryan, J.T. : AIChE. J., **17**, 1226 (1971).
10. Schlichting, H. : "Boundary Layer Theory," 7th ed., McGraw-Hill, New York (1979). pp. 230-234.
11. Iler, R.K. : "The Chemistry of Silica," Wiley, New York (1979). pp. 174.
12. Hu, S. and Kinter, R.C.: AIChE. J., **1**, 42 (1955).
13. Horvath, M., Steiner, L. and Hartland, S.: Can. J. of Chem. Eng., **56**, 9 (1978).
14. West, F.B., Robinson, A.P. and Morgenthaler, A.C. : Ind. Eng. Chem., **43**, 234 (1951).
15. Null, H.P. and Johnson, H.F. : AIChE. J., **4**, 273 (1958).
16. Kalyanasundaram, C.V. : Ph.D. Dissertation, Indian Inst. of Science, Bangalore, India (1967).