

연속흐름교반반응기에서의 액체 혼합특성

김태옥* · 강웅기

*명지대학교 공과대학 화학공학과
고려대학교 공과대학 화학공학과

(1985년 2월 15일 접수, 1985년 3월 21일 채택)

Liquid Mixing Characteristics in a Continuous Flow Stirred Tank Reactor

Tae Ok Kim* · Woong Ki Kang

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

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

(Received 15 February 1985 ; accepted 21 March 1985)

요약

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

반응기내의 혼합지역을 입구지역, 임펠라지역과 재순환흐름지역으로 나누고 각 혼합지역의 혼합특성을 고려한 액체혼합 모델을 세워 비가역 2차반응계의 실험값과 비교하였다.

실험결과, 입류속도가 낮고 교반속도가 낮은 경우에는 입구지역과 재순환흐름지역이 macrofluid의 혼합특성을 가지나 입류속도가 높거나 교반속도가 큰 경우에는 macrofluid인 재순환흐름의 영향으로 입구지역은 microfluid가 완전혼합되는 특성을 나타내었다. 또한 microfluid로 볼 수 있는 임펠라지역은 교반속도가 증가할수록 그 크기가 증가되었다.

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

For the CFSTR, three zones (inlet zone, impeller zone and recirculation flow zone) with different mixing characteristics were assumed and the theoretical conversions based on the assumption were compared with the experimental results obtained from the irreversible second order reaction system.

For the case of the lower inlet flow rate and the lower agitation speed, the experimental results showed that the mixing characteristics of the inlet and the recirculation flow zones were considered to be that of macrofluid. For the higher inlet flow rate as well as the higher agitation speed, however, the inlet zone showed the perfect mixing nature of microfluid with a considerable dilution of the macrofluid of recirculation. Also, the higher agitation speed, the larger was the volume of the impeller zone, in which the microfluid characteristics could be excellently assumed.

1. 서 론

액체의 흐름특성과 반응속도식이 동일한 경우에도 서로 다른 전환율을 주는 반응기내 반응물의 미시적 혼합특성은 반응기의 성능예견과 반응속도식이 1차가 아닌 반응계의 전환율을 결정하는데 매우 중요한 인자로서 관형반응기에서 보다 교반반응기에서 그 영향이 크며[1] 특히 교반반응기에서의 혼합특성은 교반장치와 교반속도 그리고 평균체재 시간의 변화에 따라 혼합과정이 복잡다양하여 많은 연구가 진행되어 왔다[2-6].

Danckwerts[7]가 완전혼합반응기에서 유체의 두 극한 분급상태를 micromixing과 macromixing으로 구분하고 point농도를 규정하여 혼합정도를 설명하였고 Zwietering[8]이 임의의 흐름특성을 갖는 반응기 내에서 complete segregation과 maximum mixedness의 두 극한 혼합경우를 정의하여 임의의 반응에 대한 전환율을 결정하는 방법을 제시한 이래 액체혼합특성을 해석하기 위한 많은 모델의 제시와 실험이 진행되어 왔다. 이들 대부분의 연구는 교반속도와 반응물의 주입방법에 따라 분자의 age 개념에 의하여 해석하였고[9-12] 그밖에 물질전달속도를 매개변수로 한 two-environment model[13, 14], 유체간의 합체와 분산수를 매개변수로 한 random coalescence model과 Monte Carlo method[15, 16] 등이 제시되었다. 그러나 이들 모델의 대부분은 반응기내의 혼합정도를 고려하지 않은 여러개의 매개변수를 사용하였기 때문에 정확한 물리적 표현결핍과 사용된 매개변수의 측정이 어렵고 실험조건과의 관련이 불충분하여 보다 적절한 혼합모델이 요구된다.

본 연구는 출구와 입구가 반응기의 상, 하부에 위치한 연속흐름교반반응기에서 액체의 흐름특성을 고찰한 전보[17]의 결과를 이용하여 각 혼합지역의 혼합특성을 고려한 혼합모델을 세우고 비가역 2차 액상반응의 전환율에 미치는 액체혼합특성을 정량적으로 해석하고자 하였다.

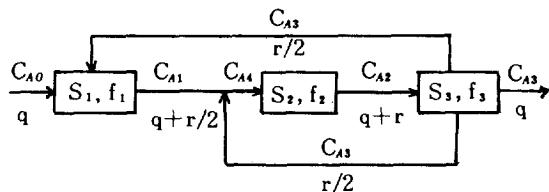
2. 0 | 론

입구를 반응기의 하부에, 출구를 반응기의 상부에 위치시킨 연속흐름교반반응기내의 액체혼합지역

을 입구지역, 임펠라지역과 재순환흐름지역으로 나눌 때 입구지역의 혼합특성에 따라 크게 두 가지의 혼합모델을 세울 수 있다.

2 - 1. Divided-zone model with inlet jet-mixing

전보[17]의 액체흐름특성 고찰의 결과와 같이 교반속도가 높거나($\text{rpm} \geq 100$) 입류의 속도가 큰 경우($\text{Rei} \geq 3000$)에는 임펠라에 의한 하부의 재순환흐름이 입류와 합쳐져서 입구지역에서는 jet-mixing을 나타내는 완전혼합흐름으로 이때 교반효과가 없는 입구지역은 macrofluid로 볼 수 있다. 특히 입류속도가 낮고 교반속도가 높은 경우에는 임펠라에 의한 강한 난류형성으로 분자크기로 분쇄된[9] 하부의 재순환흐름이 입류와 빨리 혼합되므로 입구지역의 분급상태가 microfluid에 근접할 것이다. 따라서 임펠라지역과 재순환흐름지역을 각각 하나의 micro-mixer와 macromixer로 가정할 때 입류에 의한 suction효과를 무시하고 임펠라에 의한 재순환흐름이 상, 하 대칭으로 가정한 액체의 혼합모델은 Fig. 1과 같다.



- S_1 : System function of inlet macromixer, ...
 S_2 : System function of micromixer, ...
 S_3 : System function of recirculation macromixer, ...
 C_{A1} : Reactant concentration at each stream, mole/l
 f_i : Volume fraction of each reactor, ...
 r : Pumping capacity with no flow, cm^3/sec .
 q : Inlet flow rate, cm^3/sec .

Fig. 1. Divided-zone model with inlet jet-mixing.

각 혼합지역에 대한 물질수지식은

$$C_{A1} = S_1 C_{A5} \quad (1)$$

$$C_{A2} = S_2 C_{A4} \quad (2)$$

$$C_{A3} = S_3 C_{A2} \quad (3)$$

$$(q+r) C_{A4} = (q+\frac{r}{2}) C_{A1} + \frac{r}{2} C_{A3} \quad (4)$$

$$(q + \frac{r}{2}) C_{A5} = q C_{A0} + \frac{r}{2} C_{A3} \quad (5)$$

이들식을 $y_3 = C_{A3}/C_{A0}$, $p = r/2q$ 를 사용하여 무차원식으로 나타내고 y_3 에 대해 정리하면

$$y_3 = \frac{S_1 S_3 S_3}{(1+2p) - p S_3 S_3 (1+S_1)} \quad (6)$$

이때 비가역 2차액상반응이 진행될 때 정상상태에서의 입구지역의 system function(S_1)은 반응물의 분급상태에 따라 다음과 같이 표시된다[18].

$$S_1 = \int_0^\infty \left(\frac{C_{A1}}{C_{A5}} \right)_{\text{batch}} E(t) dt$$

$$= c_1 M_5 \int_0^1 \frac{dg}{1 - M_5 g c_1 K'_1} \text{ for macrofluid} \quad (7)$$

$$S_1 = \frac{-1 + \sqrt{1 + 4M_5^2 K'_1 / [(1 - M_5) K'_1 + M_5]^2}}{2M_5 K'_1 / [(1 - M_5) K'_1 + M_5]} \quad \text{for microfluid} \quad (8)$$

여기서,

$$c_1 = \frac{1 - M_5}{(1 - M_5) K'_1 + M_5}$$

$$E(t) = \frac{1}{\tau'_1} \exp(-t/\tau'_1)$$

$$K'_1 = k C_{A5} \tau'_1$$

$$M_5 = C_{A5}/C_{B5}$$

$$\tau'_1 = f_1 V / (q + \frac{r}{2})$$

또한 임펠라지역과 재순환흐름지역의 system function은 (9), (10)식과 같다.

$$S_2 = \frac{-1 + \sqrt{1 + 4M_4^2 K_2 / [(1 - M_4) K_2 + M_4]^2}}{2M_4 K_2 / [(1 - M_4) K_2 + M_4]} \quad (9)$$

$$S_3 = c_2 M_2 \int_0^1 \frac{dg}{1 - M_2 g c_2 K'_2} \quad (10)$$

여기서,

$$c_2 = \frac{1 - M_2}{(1 - M_2) K'_2 + M_2}$$

$$K_2 = k C_{A4} \tau_2, \quad K'_2 = k C_{A4} \tau'_2$$

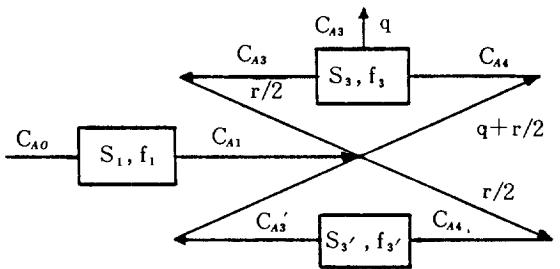
$$M_2 = C_{A2}/C_{B2}, \quad M_4 = C_{A4}/C_{B4}$$

$$\tau_2 = f_2 V / (q + r), \quad \tau'_2 = f_2 V / (q + r)$$

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

전보[17]의 결과와 같이 임펠라에 의한 하부의 재순환흐름이 입류와 혼합되지 않고 출류에서 시간지연을 나타내는 경우는 교반속도가 낮고($\text{rpm} \leq 50$) 낮은 입류속도($\text{Rei} < 3000$)의 경우이다. 이때 임펠

라지역의 크기와 입류에 의한 suction 효과는 무시가능하며 potential flow를 나타내는 입구지역은 하나의 플러그흐름반응기로 볼 수 있다. 따라서 재순환흐름지역을 각각 하나의 macromixer인 상, 하부지역으로 분리시키고 임펠라에 의한 재순환흐름이상, 하대칭으로 생각할 때의 액체혼합모델은 Fig. 2와 같다.



S_1 : System function of plug flow reactor, ...

S_2 : System function of upper macromixer, ...

S_3' : System function of lower macromixer, ...

C_{A1} : Reactant concentration at each stream, mole/liter

f_i : Volume fraction of each reactor, ...

r : Pumping capacity with no flow, cm^3/sec .

q : Inlet flow rate, cm^3/sec .

Fig. 2. Divided-zone model with inlet potential flow.

각 지역에 대한 물질수지식은

$$C_{A1} = S_1 C_{A0} \quad (11)$$

$$C_{A3} = S_3 C_{A4} \quad (12)$$

$$C_{A3}' = S_3' C_{A4} \quad (13)$$

$$(q+r) C_{A4} = q C_{A1} + \frac{r}{2} C_{A3} + \frac{r}{2} C_{A3}' \quad (14)$$

이들식을 (6)식과 같이 무차원식으로 정리하면 (15)식과 같다.

$$y_3 = \frac{S_1 S_3}{(1+2p) - p (S_3 + S_3')} \quad (15)$$

(11)~(13)식에서 각 혼합지역에 대한 system function은 정상상태에서 비가역 2차액상반응이 진행될 때 각각 다음과 같이 표시된다.

$$C_{A0} \left(\frac{1}{M_0} - 1 \right) k \tau_1 = \ln \left[\frac{M_0 \left(\frac{1}{M_0} - 1 + S_1 \right)}{S_1} \right] \quad (16)$$

$$S_3 = c_2 M_2 \int_0^1 \frac{dg}{1 - M_2 g c_2 K'_2} \quad (17)$$

$$S'_3 = c'_3 M_4 \int_0^1 \frac{dg}{1 - M_4 g c'_3 K'_3} \quad (18)$$

여기서,

$$c_3 = \frac{1 - M_4}{(1 - M_4) K_3 + M_4}, \quad c'_3 = \frac{1 - M_4}{(1 - M_4) K'_3 + M_4}$$

$$K_3 = k C_{AO} \tau_3, \quad K'_3 = k C_{AO} \tau'_3$$

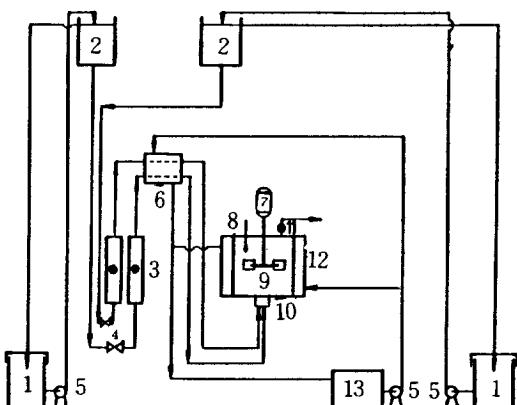
$$M_0 = C_{AO}/C_{BO}$$

$$\tau_1 = f_1 V/q, \quad \tau_3 = f_3 V/(q + \frac{r}{2}), \quad \tau'_3 = f'_3 V/(\frac{r}{2})$$

3. 실험

사용된 실험 장치는 Fig. 3 과 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 변화시켰으며 내경이 1cm인 출구는 임펠라축에서 1cm거리에 설치하고 임펠라축부분은 공기의 흡입을 막기 위해 수은으로 sealing하였다. 임펠라는 표준형태의 6-bladed turbine impeller [19]로 반응기내의 혼합을 증대시키고자 반응기 높이의 중앙에 위치시켰으며



- | | |
|-----------------------|-------------------------------|
| 1. Preparatory tank | 8. Thermometer |
| 2. Constant head tank | 9. Reactor |
| 3. Rotameters | 10. Feed chamber |
| 4. Needle valves | 11. Sample tap |
| 5. Circulation pumps | 12. Water jacket |
| 6. Preheater | 13. Constant temperature bath |
| 7. D.C motor | |

Fig. 3. Schematic diagram of experimental apparatus for chemical reaction.

D. C. 모터의 입력변화로 교반속도를 조절하였다.

액체반응물을 분리주입하기 위한 feed chamber는 노즐의 중앙을 2등분한 것으로 반응물이 반응기내에 들어가기 전의 혼합에 의한 반응과 두개의 흐름에서 상호방해효과를 없애주기 위하여 설치하였다. 반응기내의 온도는 water jacket와 관형열교환기를 설치하여 실험온도의 $\pm 0.2^\circ\text{C}$ 이내로 조절하였다. 사용된 반응은 NaOH에 의한 초산에틸의 비누화반응으로서 전보[17]의 실험조건과 액체의 물리적 성질을 동일하게 유지시키기 위하여 반응물의 농도를 0.05N이하로 유지시켰다.

실험방법은 원료탱크에서 두 반응물을 펌프로 3m상부에 있는 constant head tank로 보낸후 중력에 의해 유량계와 예열기를 지나서 feed chamber를 통해 반응기로 동시에 주입시킨다. 액체유량(0.2~18.5cm³/sec)과 교반속도(50~500 rpm)를 일정하게 유지시키고 평균체재시간의 5~10배 시간이 지나면 출구농도가 일정하게 유지되는데 이때 sample tap에서 반응물을 25ml 정도 채취하여 0.05N HCl 용액과 혼합시켜 미반응 NaOH의 반응을 정지시킨 후 NaOH로 역적정하여 출구농도를 측정하였다. 이 때 전환율에 미치는 혼합효과를 증가시키기 위하여 두반응물의 초기농도와 유량을 동일하게 하여 실험하였다.

4. 결과 및 고찰

Fig. 4~7은 노즐직경이 0.39cm와 0.745cm인 경우 공간시간과 교반속도의 변화에 대한 반응물의 실험전환율을 나타낸 것이다. 그림에서 일정한 공간시간에서 점선으로 나타낸 두개의 수평선은 완전혼합흐름에서 액체의 분급상태가 각각 상한선은 macrofluid상태에서, 하한선은 microfluid상태에서 구한 이론전환율[7]을 나타낸 것이다. 그림에서 공간시간이 짧은 경우 낮은 교반속도에서는 macrofluid상태보다 다소 높은 전환율을 보이나 교반속도가 증가할수록 실험전환율은 감소하여 200rpm 근처에서 최소값을 나타내며 그 이상의 교반속도에서는 다시 전환율이 증가하고 있다. 이와 같은 현상은 공간시간이 길어져서 macrofluid와 microfluid상태에서의 두 극한 전환율의 차이가 클수록 현저하게 나타나고 있다. 또한 공간시간이 긴 경우 낮은 교반속도에서

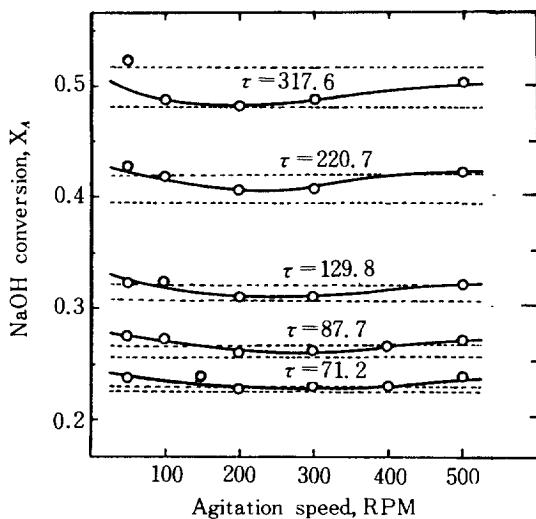


Fig. 4. Experimental conversion of NaOH vs. agitation speed at short residence times for $d_n = 0.390 \text{ cm}$.

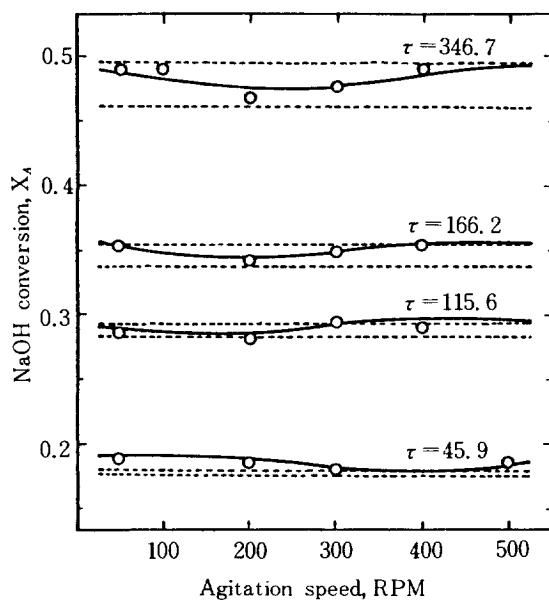


Fig. 6. Experimental conversion of NaOH vs. agitation speed at short residence times for $d_n = 0.745 \text{ cm}$.

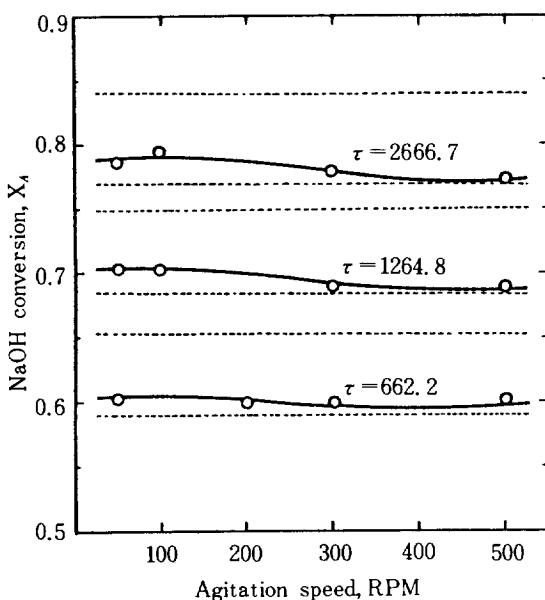


Fig. 5. Experimental conversion of NaOH vs. agitation speed at long residence times for $d_n = 0.390 \text{ cm}$.

는 macrofluid보다 낮은 전환율을 보이나 교반속도가 증가함에 따라 실험전환율은 점차적으로 감소하여 300rpm 이상에서는 거의 microfluid상태에 균접하고 있다.

이와같이 공간시간의 변화에 따라 전환율의 변화

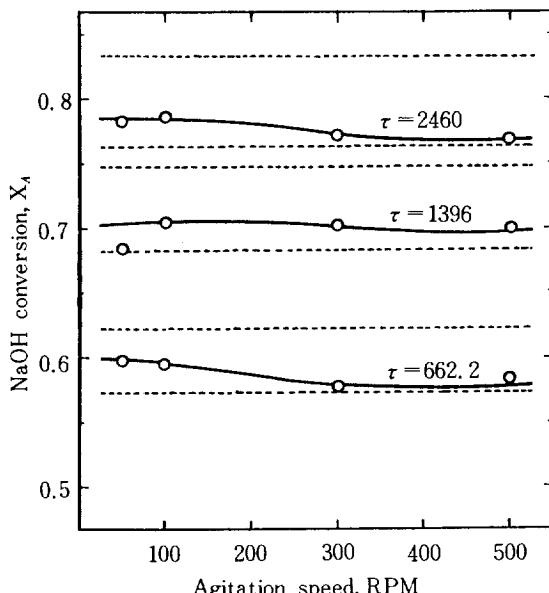


Fig. 7. Experimental conversion of NaOH vs. agitation speed at long residence times for $d_n = 0.745 \text{ cm}$.

가 교반속도의 증가에 대해 서로 다른 경향을 나타내는 것은 동일한 교반속도에서는 임펠라지역의 크기와 채수환흐름속도가 공간시간에 무관하게 동일

한 값을 가짐에도 공간시간의 변화에 따라 입구지역의 크기와 재순환흐름속도에 대한 입류의 흐름속도가 서로 다르기 때문으로 보인다. 즉, 200rpm이하의 낮은 교반속도에서는 공간시간에 관계없이 교반속도가 증가할수록 입구지역보다 임펠라지역의 크기가 작아져서 반응기내의 microfluid의 양이 증가하여 전환율은 감소하게 된다. 그러나 200rpm 이상의 높은 교반속도에서는 교반속도가 일정하면 각 혼합지역의 크기가 공간시간에 관계없이 일정하지만 입류와 재순환흐름이 합쳐지며 이때 입류에 대한 상대적인 재순환흐름속도가 짧은 공간시간에서는 작으나 반대로 긴 공간시간에서는 크기 때문에 반대현상을 나타내게 된다. Fig. 8, 9는 혼합모델에 의한 이론전환율과 실험전환율을 비교한 것인데 이때 이론전환율은 50rpm과 $Rei < 3000$ 범위에서는 입구지역이 potential flow인 모델식 (15)에서, 나머지 실험조건에서는 입구지역이 jet-mixing인 모델식 (6)에서 입구지역의 분급상태가 macrofluid인 경우 (macro-feed)는 (7)식을, microfluid인 경우 (micro-feed)는 (8)식을 사용하여 컴퓨터로 계산하였다. 여기서 입구지역의 크기 (f_1)는 염료를 사용하여 카메라로 촬영하여 측정한 흐름특성고찰의 결과[17]를

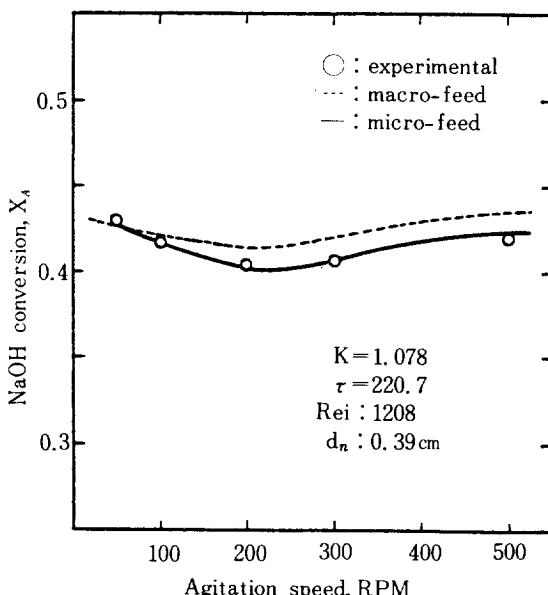


Fig. 8. Model simulation for short residence times.

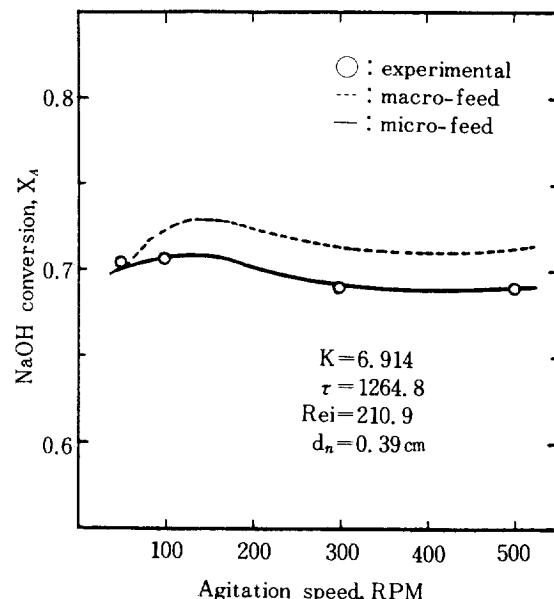


Fig. 9. Model simulation for long residence times.

이용하였고 임펠라지역의 크기 (f_2)는 교반속도만의 함수로 생각한 Serner의 방법[20]으로, pumping capacity (r)는 동일한 형태의 임펠라를 사용하여 유사한 실험조건에서 얻은 Holmes 등[21]의 결과를 사용하여 계산하였다.

초산에틸의 비누화반응은 전환율이 80% 이내에서는 비가역 2차반응으로 볼 수 있었으며 측정된 반응속도 상수에 대한 온도의 영향은 (19)식과 같으며 이 결과는 여러 사람의 실험결과로 부터 구한 David 와 Villermaux [22]의 결과와 비슷하다.

$$k = 3.82 \times 10^7 \exp(-11624/RT), \quad l \cdot \text{mole}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1} \quad (19)$$

Fig. 8은 공간시간이 짧은 경우로 낮은 교반속도보다 높은 교반속도에서 입구지역의 분급이 전환율에 크게 영향을 미치며 macro-feed보다 micro-feed 경우의 이론전환율이 실험값과 잘 일치하고 있다. 이것은 입류는 실제로 macrofluid이지만 임펠라에 의해 분자의 집합체 (aggregate)가 하부의 재순환흐름에서 입류와 빨리 혼합되어 분쇄되어서 입구지역에서 microfluid의 양이 많기 때문이다. 공간시간이 길어 질수록 Fig. 9에서와 같이 입구지역의 분급상태는 액체반응물의 전환율에 크게 영향을 미치며 입류속도에 대한 재순환흐름의 속도가 상대적

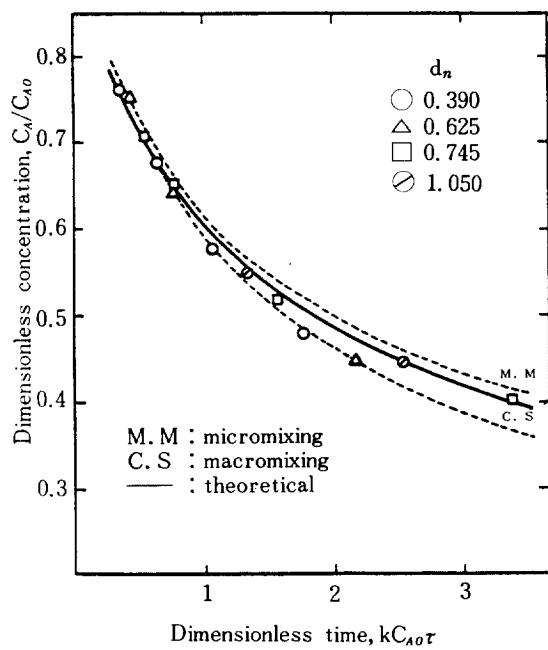


Fig. 10. Dimensionless concentration of NaOH as a function of dimensionless time at agitation speed 50 RPM.

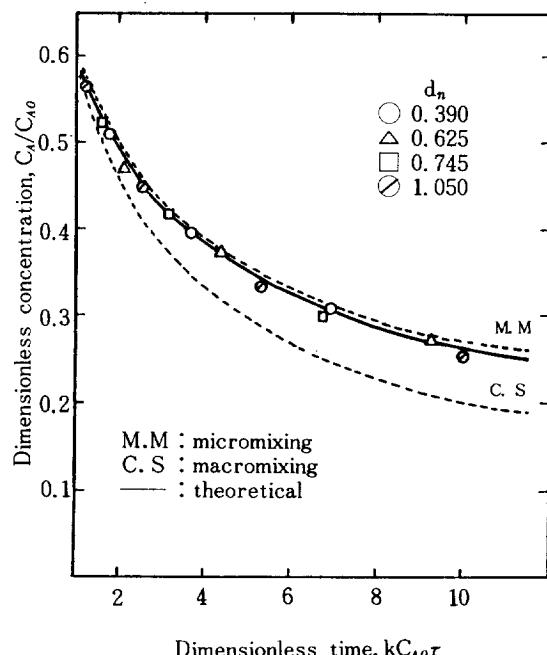


Fig. 12. Dimensionless concentration of NaOH as a function of dimensionless time at agitation speed 300 RPM.

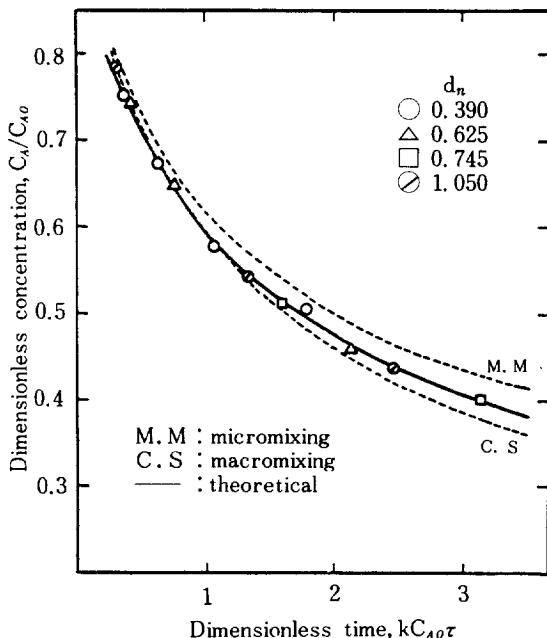


Fig. 11. Dimensionless concentration of NaOH as a function of dimensionless time at agitation speed 100 RPM.

으로 증가되어 micro-feed의 경우가 매우 잘 일치하고 있다. 이와같이 입구지역의 분급상태는 낮은 교반속도(50rpm)에서는 macrofluid이나 교반속도가 증가할수록 재순환흐름의 영향으로 microfluid상태가 되며 입구지역의 크기는 작으나($f_1 < 0.025$) 분급상태가 전환율에 상당한 영향을 미치게 된다.

Fig. 10~12는 일정한 교반속도에서 무차원시간, $kC_{A0}\tau$,의 변화에 따른 이론과 실험에 의한 무차원농도(y)를 비교한 것인데 노즐직경이 0.39cm인 경우의 이론값을 사용하였음에도 매우 잘 일치하고 있다. 이것은 노즐직경의 변화에 의한 입구지역의 크기변화보다 입구지역의 분급상태가 전환율에 미치는 영향이 크기 때문이며 교반속도가 증가할수록 입구지역의 jet-mixing 현상으로 인하여 노즐의 크기는 전환율에 영향을 미치지 않는다.

5. 결 론

입구와 출구를 반응기의 하부와 상부에 위치시킨 연속흐름교반응기에서 비가역 2차반응을 사용하

- 여 액체의 혼합특성을 고찰한 결과는 다음과 같다.
1. 입류의 속도가 낮고($Re_i < 3000$) 교반속도가 낮은 경우(50 rpm)에는 입구지역은 플러그흐름이고 상, 하부의 재순환흐름은 macrofluid이며 이때 제시된 모델의 적용이 적합하였다.
 2. 입류속도가 크거나($Re_i > 3000$), 교반속도가 높은 경우(rpm ≥ 100)에는 입구지역과 임펠라지역의 분급상태는 microfluid이며 재순환흐름은 macrofluid이다. 이때 제시된 모델의 적용이 적합하였다.
 3. 입구지역의 분급상태와 입류에 대한 재순환흐름의 상대적인 속도비가 전환율에 미치는 영향은 매우 크다.

NOMENCLATURE

- c_i : A constant equal to $(1-M_i)/[(1-M_i)K_i + M_i]$
- C_A : Concentration of A component, (mole/liter)
- C_{Ai} : Concentration of A at each stream, (mole/liter)
- C_{Bi} : Concentration of B at each stream, (mole/liter)
- C_{A0} : Concentration of A in feed stream, (mole/liter)
- C_{B0} : Concentration of B in feed stream, (mole/liter)
- d_i : Impeller diameter, (cm)
- d_n : Nozzle diameter, (cm)
- $E(t)$: Exit age distribution function
- f_i : Volume fraction of each mixing zone
- g : A constant in Eq. (7)
- k : Reaction rate constant, (liter/mole. sec)
- K : Dimensionless time equal to $kC_{A0}\tau$.
- K_i : Dimensionless time of each mixing zone equal to $kC_{Ai}\tau_i$
- M_i : Dimensionless concentration equal to C_{Ai}/C_{B0}
- N : Agitation speed, (1/sec)
- p : Dimensionless flow rate defined in $p = r/2q$
- q : Inlet liquid flow rate, (cm^3/sec)
- r : Pumping capacity with no flow, equal to

$$1.3Nd_b^3 (\text{cm}^3/\text{sec})$$

- R : Gas constant, (cal/gmole. °K)
- Re_i : Inlet Reynolds number equal to $\rho d_n u / \mu$
- S_i : System function of each mixing zone
- T : Temperature, (°K)
- u : Liquid velocity in nozzle, (cm/sec)
- V : Volume of reactor, (cm^3)
- y_i : Reduced concentration equal to C_{Ai}/C_{A0}
- μ : Viscosity of fluid, (cP)
- ρ : Density of fluid, (g/cm³)
- τ : Space time, (sec)
- τ_i : Space time at each mixing zone, (sec)

Subscripts

- A,B : reactant A or B
- i : each mixing zone and each stream of the model
- o : refer to initial condition

REFERENCES

1. Levenspiel, O.: "Chemical Reaction Engineering", 2nd ed., John Wiley and Sons, New York (1972).
2. Beek, J. and Miller, R. S.: Chem. Eng. Prog. Symp. Ser., **55**, 33 (1959).
3. Plasari, E., David, R. and Villermiaux, J.: J. ACS Symp. Ser., No. 65, 125 (1978).
4. David, R. and Villermiaux, J.: Chem. Eng. Sci., **30**, 1309 (1975).
5. Villermiaux, J.: ibid., **29**, 1053 (1974).
6. Aubry, L. and Villermiaux, J.: ibid., **30**, 457 (1975).
7. Danckwerts, P. V.: ibid., **8**, 93 (1958).
8. Zwietering, Th. N.: ibid., **11**, 1 (1959).
9. Manning, F. S., Wolf, D. and Keairns, D. C.: AIChE J., **11**, 723 (1965).
10. Methot, J. C. and Roy, R. H.: Chem. Eng. Sci., **26**, 569 (1971).
11. Takamatsu, T., Sawada, T. and Izumozaki,

- N.: J. Chem. Eng. Japan, **4**, 81 (1971).
12. Treleaven, C. R. and Tobgy, A. H.: Chem. Eng. Sci., **26**, 1259 (1971).
13. Ng, D. Y. C. and Rippin, D. W. T.: 3rd Eur. Symp. on Chemical Reaction Engineering, p. 161 (1965).
14. Nishimura, Y. and Matsubara, M.: Chem. Eng. Sci., **25**, 1785 (1970).
15. Katten, A. and Adler, R. J.: AIChE J., **13**, 580 (1967).
16. Rao, D. P. and Edwards, L. L.: Chem. Eng. Sci., **28**, 1179 (1973).
17. Kim, T. O., Lee, M. H. and Kang, W. K.: J. KIChE, **22**, 235 (1984).
18. Kim, T. O.: Ph. D. Thesis, Korea University (1983).
19. Holland, F. A. and Chapman, F. S.: "Liquid Mixing and Processing in Stirred Tank", Reinhold Pub., New York (1966).
20. Serner, H. E.: Chem. Eng., **57**, No. 4 (1950).
21. Holmes, D. B., Vocken, R. M. and Dekken, J. A.: Chem. Eng. Sci., **19**, 201 (1964).
22. David, R. and Villermaux, J.: Ind. Eng. Chem. Fundam., **19**, 327 (1980).