

다중회전로라 흡수기를 이용한 고분자 수용액의 기체 흡수

윤종태* · 한순교* · 이보성

*한국조폐공사 기술연구소
충남대학교 공과대학 화학공학과
(1987년 1월 13일 접수, 1987년 3월 30일 채택)

Gas Absorption onto Polymer Solution using Rotating Multiroller Absorber (RMRA)

Jong-Tae Youn*, Soon-Kyo Han* and Bo-Sung Rhee

*Research Institute of KSPMC, Taejeon 300, Korea.
Department of Chemical Engineering, College of Engineering, Chungnam National Univ., Taejeon 300, Korea
(Received 13 January 1987; accepted 30 March 1987)

요 약

고점도 용액과 기체를 효과적으로 접촉시켜서 물질전달의 효과를 촉진시키기 위한 다중회전로라 흡수기(RMRA)를 설계 제작하고, 고분자 수용액들에 대한 산소 흡수실험을 하였다.

본 흡수기는 1~700 P. 정도의 고점도 용액을 액막상태로 기체와 접촉시키므로, 넓은 유효접촉면적을 부여할 수 있었으며, $1 \times 10^{-3} \sim 10$ 초 정도의 범위에서 접촉시간을 조절할 수 있었다.

흡수실험 결과, 로라들 간극에서 액막의 미시적 혼합현상을 고려한 물질전달속도를 측정할 수 있었으며, $\pm 15\%$ 범위에서 $N_{sh} = 1.05(N_{Ref} \times N_{Sc})^{0.5}$ 의 관계를 갖는 데이터들을 얻었다.

Abstract—In order to bring gas into contact with high viscosity liquid the rotating multiroller absorber (RMRA), as a gas-liquid contactor, was designed and studied with oxygen-polymer aqueous solution system. Gas and high viscosity (1~700 P.) liquid film contact on the wide range of effective interfacial area, and contact time could be controlled in the range of $1 \times 10^{-3} \sim 10$ sec. As a experimental result of absorption, mass transfer rates could be measured in consideration of micromixing of liquid film in the nips of rollers, and has been obtained the data which correlated within $\pm 15\%$ by an equation $N_{sh} = 1.05(N_{Ref} \times N_{Sc})^{0.5}$.

1. 서 론

Non-Newtonian 유체에 기체를 흡수시키는 조작은 고분자 제조공정, 발효, 폐수처리 등 많은 분야에서 중요하게 취급되고 있으나, 고점도인 액체에 기체를 효과적으로 흡수시킬 수 있는 기-액 접촉기는 많지 않다 [1, 2]. 따라서 본 연구는 700 P.까지 고점도 액상과 기상

간에 접촉면적을 증가시켜서, 기체흡수조작의 효과를 높이기 위하여 소위 다중회전로라 흡수기(Rotating multiroller absorber, 이하 RMRA로 칭함)를 설계 제작하고, 산소-고분자 수용액 흡수계를 모델로 선택하여, 그 결과와 장치의 이용가능성을 제시하고자 하였다.

RMRA는 도료, 인쇄, 고분자가공 등 고점도 물질

을 취급하는 분야에서 사용되는 로라시스템이, 틸새에서 일어나는 압력변화 및 slip 현상으로 박판화, 혼합, 전이 등이 용이하다는 점에 착안한 것으로, 넓은 범위의 접촉시간 조절, 접촉면적의 증가, 틸새혼합효과 등 여러가지 잇점을 예상할 수 있었다.

로라들의 표면에 형성되는 액막의 거동[3], 유량에 관한 정량식[4, 5], 액막두께[6, 7], 틸새거동[8] 등에 관한 연구는 비교적 많이 보고된 바 있으므로, 액상의 유동학적 특성은 이해하기 쉽다. 그러나 고분자 수용액에 대한 물리화학적 특성(물질전달상수, 확산계수, 표면장력 등)은 자세한 보고가 없으므로, 적당한 흡수기를 선택하여 측정되어야 했다.

2. 이 론

RMR 시스템은 액체의 경로가 단일로라에 비해 일정하지 못하여, 상부로라로 갈수록 미분적인 해석이 복잡해지므로, 평균접촉시간의 개념을 도입하기 어렵다. 따라서 연결된 전체 로라들을 한개의 커다란 로라로 생각하여, 흡수기내의 전체적인 기체 흡수량이 시간에 따라 일정하다고 가정한다. 그러므로 흡수기에서 시간에 대하여 흡수되는 기체의 총량 Q 는 다음과 같다.

$$\frac{dQ}{dt} = V \frac{dC}{dt} = K_L A (C^* - C) \quad (1)$$

(1)식을 적분하면,

$$\ln \frac{C^* - C_0}{C^* - C_t} = \frac{K_L A t}{V} = K_A t \quad (2)$$

이며, C_0 와 C_t 는 $t=0$ 와 $t=t$ 에서 용존기체의 농도를 나타낸다.

여기서

$$K_A' = K_L A / V \quad (3)$$

이므로 $\ln(C^* - C_0 / C^* - C_t)$ 를 t 에 대해 도식하면 K_A' 값을 구할 수 있다. 즉, (3)식에서 단위부피당 유효접촉면적 a 는 다음과 같다.

$$a = A / V \quad (4)$$

한편, n 개의 로라를 연결했을 때, 물리적으로 측정된 총 접촉면적은 용액에 부분적으로 잠겨있는 첫번째 로라중 기상에 노출된 면적과, 완전히 노출된 두번째 이상의 로라에서 측면과 로라들이 접하는 부분을 제외한 표면적의 총 합이 되므로, 첫번째 로라의 접촉면적은

$$A_1 = (2\pi - \theta) r \cdot l \quad (5)$$

이고, θ 는 액체에 잠긴 로라의 perimeter 각도이다. 두번째 또는 그 이상의 로라에서는

$$A_{(n < 1)} = 2\pi r l \quad (6)$$

이 되며, n 개의 로라를 연결하면,

$$A_n = 2\pi r l (n+1) - r l \theta \quad (7)$$

이고, 로라들이 접촉하는 nip width는 기상에 노출되지 않기 때문에 이 면적을 β 라 하면, 총 접촉면적은 다음과 같다.

$$A_T = [2\pi r l (n+1) - r l \theta] - \beta \quad (8)$$

즉, A_T 는 물리적으로 측정된 접촉면적이 된다. 따라서 A_T/V 를 a' 로 나타내고, a 와 비교하면 효과적인 유효 접촉면적을 비교 검토할 수 있다.

3. 실 험

본 실험장치는 Fig. 1에서 보는 바와 같이 모타에 의해 강제회전되는 stainless steel 로라를 용액속에 일부 잠기게 하고, 그 위에 동일한 크기의 로라들을 측면을 맞대어 연결시켜서, 액체박막이 로라들의 표면에 형성될 때 기상과 접촉시켰다. 로라들은 직경 1cm의 축과 베어링을 끼워서 수직의 요부 guarder에 고정시키고, 처음과 마지막 로라는 속도를 각각 조정하며, 액

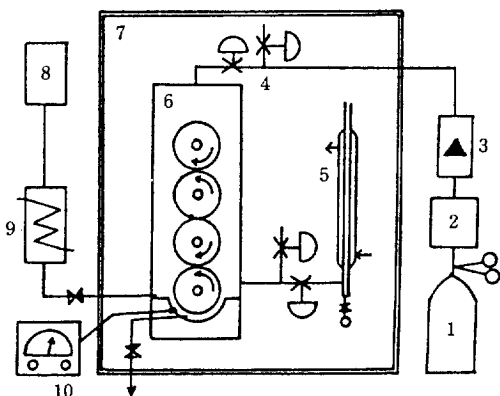


Fig. 1. Schematic diagram of the RMR absorber.

- | | |
|-------------------|---------------------|
| 1. Oxygen | 2. Oxygen meter |
| 3. Rotameter | 4. Magnetic valve |
| 5. Gas burette | 6. Absorber |
| 7. Air bath | 8. Liquid tank |
| 9. Heat exchanger | 10. Oxygen analyzer |

Table 1. Dimensions of RMR absorber.

Elements	Material	Dimension
Roller	Stainless steel	O.D. 5 cm
		Length 10 cm
		Area of one roller 157 cm ²
Shaft	Stainless steel	O.D. 1 cm
Chamber	Acrylic resin	Length 5 cm
		Width 0.5-1.5 cm
Housing	Acrylic resin	Length(inside) 20 cm
		Width(") 15 cm
		Height(") 35 cm
		Thickness 0.5 cm

막의 두께조절은 경사진 docter tip으로 하였다. 기체의 경로는 열교환기와 산소농도분석기를 거치고, 유량계를 지나 흡수기로 들어가게 되었다. 용액은 Semi batch식으로 유입되며, 장치의 치수는 Table 1과 같다.

흡수속도의 측정방법은 docter의 간격을 최대로 띄운 후에 첫번째 로라를 회전시켜서, 원심력과 표면장력에 의해 형성되는 액막의 상태를 관찰하고, 2, 3, 4번 로라들을 서서히 접촉시킨 후에, 상부로라의 속도가 하부로라에 비해 빠르도록 기어를 변속시켰다. 따라서, 로라들의 틈새를 통과하는 유량에 관한 정량식[4]에 의해 속도가 빠른쪽 로라에 감기는 유량이 항상 많고, 최종 로라는 일정한 체류량 이외의 용액을 다시 하부로 보내기 때문에, 일정시간 후에는 정상상태에 도달하게 된다. 이때 가스부렛[9]에 의해 단위시간당 산소의 흡수속도를 측정하며, 용액은 시간별로 일정량을 채취하여 용존산소의 농도를 분석하였다.

물질전달상수와 확산계수를 구하기 위해서는 한개의 로라만을 사용하며, 액막이 로라를 타고 오르는 시간부터 다시 chamber로 돌아갈 때 까지를 평균노출시간 t_R 로 보고, 로라의 회전속도를 변화시키면서 흡수속도를 측정하였다. 또한 액막두께는 전기적 탐침[7]에 의해 측정되므로 기지의 접촉면적과 노출시간에 의해 확산계수를 구할 수 있다.

단일로라에서는 docter tip에 의해 간단히 액막두께가 조절되고, 측정방법도 용이하지만, RMR 시스템은 액체의 물리적인 특성에 따라서 액막두께가 변하게 된다. 물리적인 특성에 대한 액막두께변화의 관계는 이미 차원해석적으로 구한 바가 있기 때문에[10], 이 식을

이용하였다.

$$\delta = 0.083 (\rho g / \mu \Omega r)^{0.5} (N_{Re})^{1.5} (N_{Ca})^{-2.5} (\eta)^3 \quad (9)$$

단, (9)식에서 무차원 표면장력 η 와 Capillary number N_{Ca} 에 포함되어 있는 임계표면장력 σ_c 의 측정은 접촉각 측정법[11]을 사용하였다.

사용한 고분자 시약들은 미국 Dow Chemical에서 공급되는 제품이며, 이들을 용해시키기 위한 물은 HPLC용 순수(일본 Wako제품)를 사용하였다. 시료의 조제는 삼구 플라스크에서 질소에 의한 탈기를 하면서 용해시킨 후 저장조로 옮기는 데, 이때 저장조는 모두 질소로 충전시켰다.

고분자 수용액에 대한 산소의 용해도(C^*)는 기-액 평형시 용존산소의 농도 측정으로 얻었으며, 점도는 Cone-and-plate(Ferranti-shirley)viscometer를 사용하였다.

4. 실험결과 및 고찰

4-1. 액상 물질전달상수

고분자 수용액의 물질전달상수는 우선 확산계수 D 가 구해져야 하며, 이것은 이미 다른 연구자들[12, 13]에 의해 측정된 바와 같이 산소-물 흡수계와 별로 차이가 없었다. Table 2는 Danckwerts[14] 등이 사용했던 RDA(Rotating drum absorber)와 마찬가지로 단일로

Table 2. Comparison of experimental and theoretical K_L of PAA solution[†]

Ω (rad/ sec)	t (sec)	$\delta / \sqrt{D t_R}$	$K_L(\text{Theo.})$ $\times 10^3$ (cm/sec)	$K_L(\text{Exp.})$ $\times 10^3$ (cm/sec)	$K_L(\text{Theo.})$ $K_L(\text{Exp.})$
1	4.16	0.522	2.313	2.063	1.121
2	2.08	0.739	2.784	2.918	1.048
3	1.39	0.904	3.703	3.574	1.036
4	1.04	1.044	4.224	4.125	1.024
5	1.01	1.168	4.622	4.613	1.002
6	0.69	1.280	4.995	5.055	0.998
7	0.59	1.382	5.445	5.461	0.997
8	0.52	1.477	5.821	5.833	0.998
9	0.46	1.566	6.192	6.186	1.001
10	0.42	1.654	6.506	6.532	0.996
11	0.38	1.734	6.588	6.851	1.001
12	0.35	1.810	7.145	7.138	1.001

[†]Concentration of PAA solution: 1 wt. %

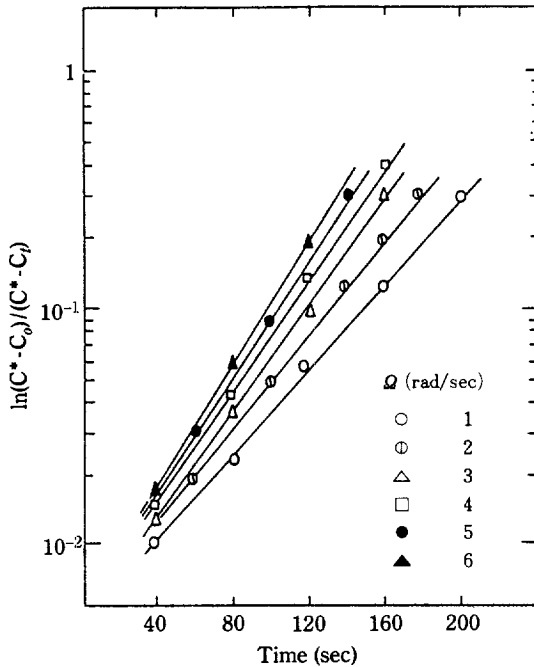


Fig. 2. Experimental determination of K_A of 1 wt.% PAA solution on low speed roller at 25°C.

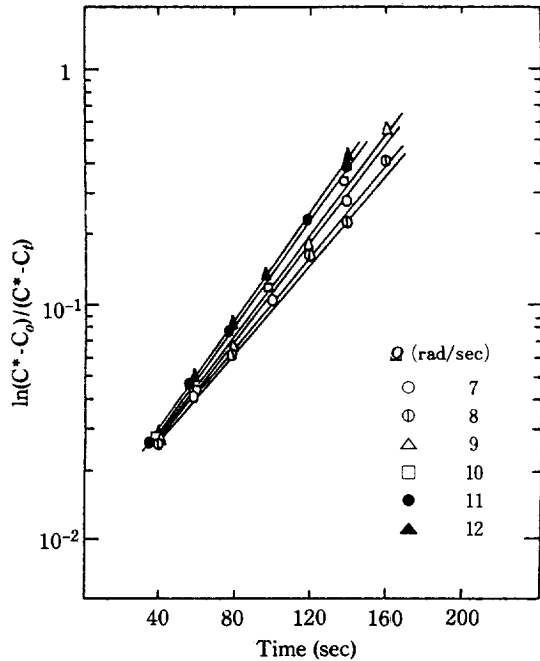


Fig. 3. Experimental determination of K_A of 1wt.% PAA solution on high speed roller at 25°C.

라를 사용한 결과이다. 단일로라에서는 침투설[15]에 의해 $\delta/\sqrt{\pi t_R}$ 이 1.7 보다 클 때 3% 이내의 오차범위에서 $K_L = 2\sqrt{D/\pi t_R}$ 로 볼 수 있으므로, 회전속도가 약 3rad/sec 이상이면 침투설에 근접하고, 계면으로 부터 농도가 현저히 다른 초기농도값을 생각할 수 있었다.

Fig. 2와 Fig. 3은 (2)식과 (3)식에 의해 결정된 K_L 값을 구하기 위한 PAA 수용액의 실험결과이며, Table 3은 각 용액들에 대한 특성실험값이다. 한편 RDA는 5.96~16 rad/sec 범위에서 수행되었고 액상의 표면 stretching이 없는 잇점과, 접촉시간 0.25초

정도에서 무한히 깊은 액막으로 볼 수 있다는 점은, 본 실험결과와 거의 일치하나, 액막두께를 0.01cm로 고정하여 실험하였기 때문에 다소 차이를 보인다.

4-2. 흡수속도의 측정

가스뷰렛으로 측정되는 단위시간당 산소의 감소 속도는 액상에 흡수되는 속도와 같으므로, 용액중의 용존산소농도를 시간별로 측정하는 방법과 병행하면, 흡수기 내에서 용질의 이동속도를 알 수 있다.

몇가지 고분자 수용액들에 산소를 흡수시킨 결과는

Table 3. Physical data obtained in this work at 25°C.

Polymer	wt. %	Diffusivity (cm/sec) $\times 10^5$	Viscosity (P)	Solubility(O_2) C^* (gmole/cm) $\times 10^6$	Critical surface tension (dyne/cm)
Poly acrylamide	1	2.26	0.022	1.28	43
(PAA)	5	2.03	2.26	1.26	46
Carboxy methyl	1.5	1.95	0.0035	1.30	44
cellulose (CMC)	6	1.62	247	1.27	45
Polyvinyl alcohol	2	1.70	0.046	0.91	45
(PVA)	10	1.55	698	0.81	46
Poly ethylene	2	2.29	0.047	1.88	40
oxide (PEO)	6	2.28	513	1.80	42

Fig. 4~7과 같다. Fig. 4는 회전속도에 따른 PAA 수용액의 흡수결과이며, wetted wall column 및 wetted sphere 등으로 측정한 연구자들[12, 16]은, 점탄성에 의한 영향으로 0.05%의 용액이 1.5 cm³/sec(약 3 rad/sec에 해당함) 이상에서 파형의 발생으로 측정 불가능함을 밝혔으나, RMR 시스템은 8 rad/sec까지 액막의 안정성을 유지할 수 있었다. 뿐만 아니라, 물에 대한 산소의 흡수속도는 매우 느리기 때문에 접촉면적과 기상에 노출되는 시간을 증가시키기 위해서 칼럼의 길이를 늘리는 방법이 사용되었으나, 그 결과는 흡수속도가 칼럼의 길이에 대해 직선적인 증가를 보이지 않았다[17]. 그 이유는 미시적 혼합효과에 의한 영향이 지배적이었으므로, RMRA에 의한 결과는 로라들의 틈새에서 생기는 혼합효과에 의해 연속적인 노출시간의 연장이 가능함을 예측할 수 있었다.

일반적으로 고분자 수용액의 농도가 높아지면 점도가 증가하고, 산소의 흡수속도는 감소하는 경향을 보이는 데, PEO 등은 감소하는 차이가 별로 크지 않다. 이것은 때때로 화학반응을 동반하기 때문이며[18], 이러한 수용액은 순수한 물리적 흡수실험을 위하여 Hatta number에 의한 확인이 필요하다. 또한 고분자 수용액들의 점도는 Newtonian 유체의 점도와 같이 단순히

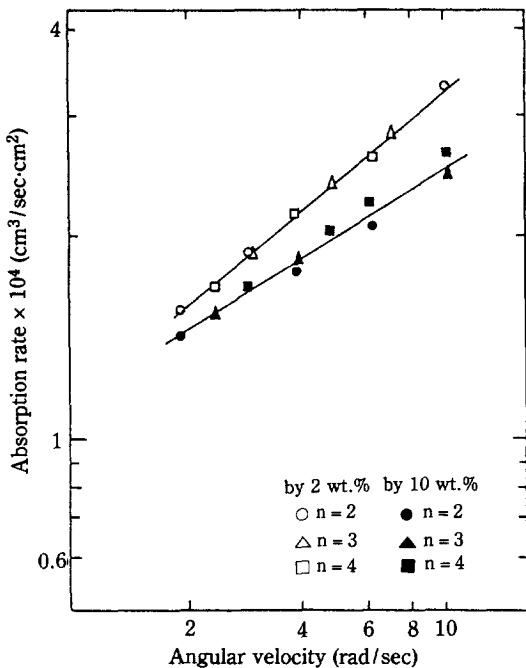


Fig. 4. Absorption rate of PAA solution at different angular velocity and number of rollers.

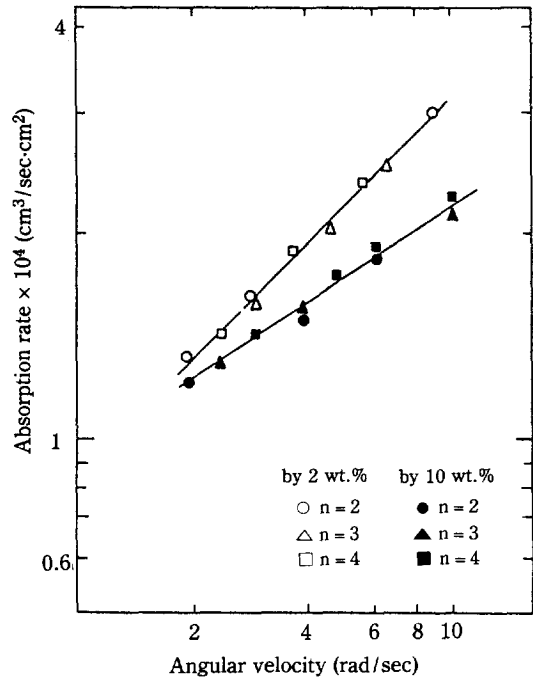


Fig. 5. Absorption rate of CMC solution at different angular velocity and number of rollers.

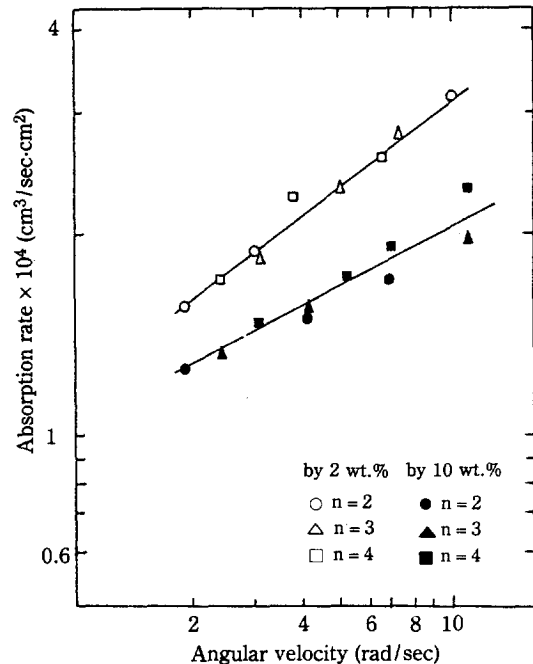


Fig. 6. Absorption rate of PVA solution at different angular velocity and number of rollers.

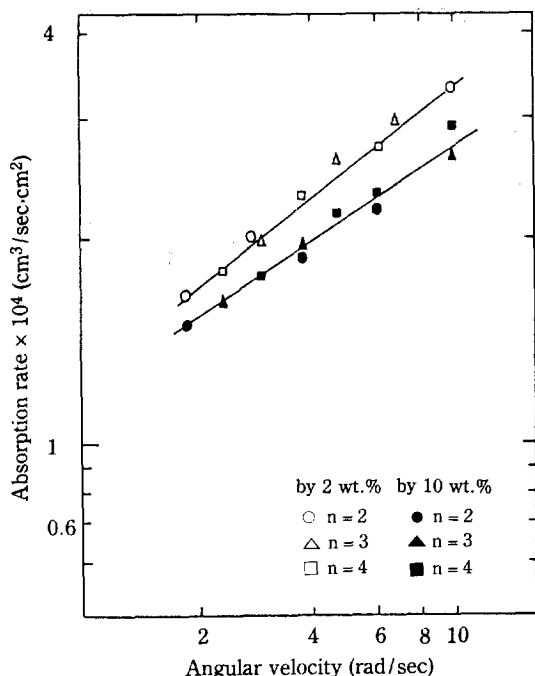


Fig. 7. Absorption rate of PEO solution at different angular velocity and number of rollers.

취급되기 어렵기 때문에, 점도에 대한 흡수속도의 관계식을 얻기는 거의 불가능한 실정이다[12].

Fig. 4~7에서, 같은 회전속도일 때 로라의 갯수를 늘리면, 흡수속도는 약간 증가하고, 그 증가도는 고속에서 더 잘 나타났다. 그러나, 저점도인 수용액에서는 이러한 영향이 거의 없는 것이 발견된다. 이것은 로라들의 틈새에서 혼합효과에 의한 영향으로 판단된다.

Fig. 5의 CMC 수용액은 PAA보다 흡수속도가 다소 낮지만, 역시 같은 경향을 보이며, 2wt.%의 PVA 수용액에 대한 결과는 물-산소 흡수계와 거의 같고, Mashelkar(1wt.% 수용액) 등의 결과와도 근접하지만 PVA는 점도가 높아지면 흡수속도는 매우 감소하는 경향을 보였다.

많은 연구자들은 고분자 수용액의 농도를 낮게 하여 Newtonian 유체로 취급 하였으며[19, 20], stretching 또는 shear에 의해 액막을 형성시켰다. 이러한 액막은 주로 난류흐름을 하고 있으나, 고점도 용액은 중력에 의한 낙하 만으로 난류흐름을 하지 않기 때문에 미시적 혼합효과를 기대할 수 없고, 주기적인 교반이 요구된다. RMRA 내에서 로라들의 거동은 고점도 용액의 교반에 적합하도록 틈새에서 조정되므로, 고농도

의 고분자 수용액을 취급하기에 적합할 것으로 사료된다.

4-3. 유효접촉면적

로라의 갯수를 늘리면 (8)식의 A_r 와 a' 는 증가하지만, 흡수기에서 실험적으로 측정된 유효접촉면적 a 는 Fig. 8에서 보는 바와 같이 약간의 편차가 발생된다. 이러한 편차는 두가지로 추측되는 데, 첫째는 상부 로라와 하부로라에서 유체의 평균접촉시간이 다를 수 있으며, 둘째는 최종로라에 액체가 도달하기 전에 산소의 포화상태가 될 수 있기 때문이다. 또한 액상 내에 대류현상이 좋지 않은 고점도 용액에 충분한 접촉시간을 부여하면, 액막표면에 계면저항이 존재하고, 농도구배가 무시되므로 유효접촉면적은 확산계수와 액막두께에만 영향을 받게 된다. 따라서 침투설보다 격막설에 의존하는 경향을 보이게 된다. Fig. 8에서 나타난 편차는 액막중에 이미 흡수된 용존산소를 제거하도록 Na_2SO_3 (단, 물리적인 흡수가 되도록 Hatta number < 3을 확인)를 소량 첨가하면, 거의 무시될 수 있었다. 한편 용액을 각 로라에 공급하는 첫번째 로라가 용액에 잠기는 부분이 적을 때는 액막형성이 나쁘며, 너무 많을 때는 로라의 양면까지 잠기게 되므로 장치상 문제를 고려하여, 최적잠김상태를 구하는 것이 필요하다. 이것은 약 42% 정도 잠기는 것이 적당하였고, 이때 perimeter 각도는 150° 이었으며 용적물질전달상수가 최대가 되도록 $d/d\theta(K_L A) = 0$ 일 때 구한 값과 일치하였다[21].

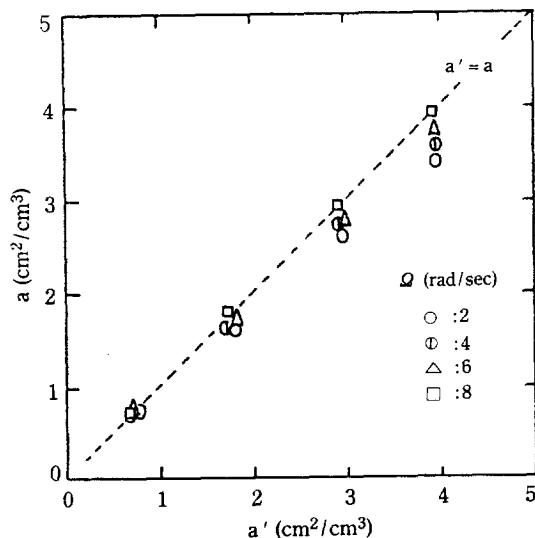


Fig. 8. Effective interfacial area due to increasing the number of rollers.

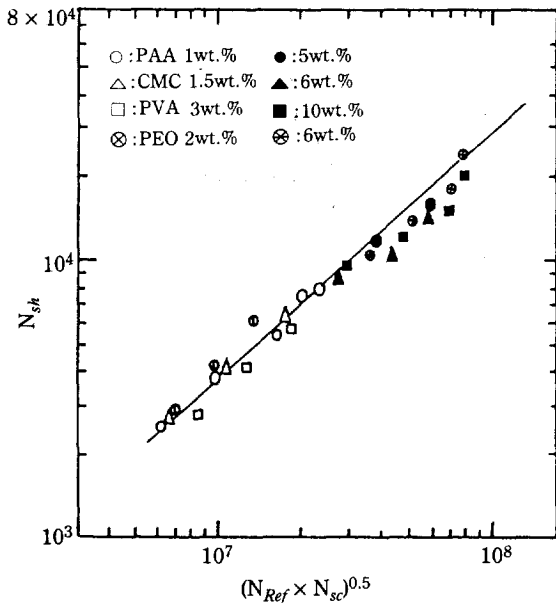


Fig. 9. Correlation for mass transfer characteristics in RMR absorber.

4-4. 물리적인 특성의 상관관계

RMRA에서 얻어진 고분자 수용액들에 대한 데이터들은 Sherwood수(N_{sh})와 film Reynolds수(N_{ref}) 및 Schmidt수(N_{sc})의 관계로 나타낼 수 있다[21]. Fig. 9의 결과들은 약 $\pm 15\%$ 이내의 범위에서 다음과 같다.

$$N_{sh} = 1.05 (N_{ref} \times N_{sc})^{0.5} \quad (10)$$

(10)식에서 상당직경은 로라들 전체를 한개의 커다란 로라로 생각하여, 접촉면적으로부터 계산한 값을 사용하고, N_{ref} 는 $4\Gamma/\mu$ 로써, Γ 는 로라의 단위길이당 유량을 나타낸다.

5. 결 론

고점도 용액과 기체를 효과적으로 접촉시켜서 물질전달의 효과를 촉진시키기 위한 다중회전로라 흡수기를 설계 제작하고, 고분자 수용액들을 적용한 결과들은 다음과 같다.

1. 본 흡수기는 1~700 P. 정도의 고점도 용액을 액막 상태로 기체와 접촉시킬 수 있으므로, 넓은 유효접촉면적을 부여할 수 있었으며, $1 \times 10^{-3} \sim 10$ 초 정도의 범위에서 접촉시간을 조절할 수 있었다.

2. 액막의 미시적 혼합효과에 대한 물질전달효과를 기대할 수 있었다.

3. 본 흡수기에 의한 고분자 수용액의 흡수실험을 수행한 결과 $N_{sh} = 1.05(N_{ref} \times N_{sc})^{0.5}$ 의 관계식을 얻었다.

이상과 같은 결과에 의하여, 본 다중회전로라 흡수기는 고점도 용액용 기-액 접촉기로 사용될 수 있는 우수한 장치로 사료된다.

NOMENCLATURE

A	: gas-liquid contact area, cm^2
a	: effective gas-liquid contact area, cm^2
C^*, C_0	: saturated, initial concentration of solute in liquid, gmole/cm^3
D	: diffusivity of solute in liquid, cm^2/sec
K_L	: liquid phase mass transfer coefficient, cm/sec
$K_L a$: Volumetric mass transfer coefficient, cm^3/sec
l	: length of roller, cm
n	: number of roller
Q	: absorption rate, $\text{cm}^3/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$
r	: radius of roller, cm
t	: gas-liquid contact time, sec
t_R	: average exposure time, sec
U	: surface velocity, cm/sec
V	: liquid volume, cm^3

Greek Letters

β	: nip area of rollers, cm^2
Γ	: liquid flow loading/unit width perimeter, $\text{g}/\text{cm} \cdot \text{sec}$
δ	: thickness of film, cm
θ	: angle characteristic for a distinct depth of immersion rad
μ	: viscosity, poise
ν	: kinematic viscosity, cm^2/sec
Ω	: angular velocity, rad/sec

Dimensionless groups

N_{ref}	: film Reynolds number, $4\Gamma/\mu$ [—]
N_{ca}	: capillary number, $\mu\Omega r/\sigma_c$ [—]
η	: dimensionless surface tension, $\sigma_c/\rho (g\nu^4)^{-0.333}$ [—]
N_{sh}	: Sherwood number, $K_L d/D$ [—]
N_{sc}	: Schmidt number, ν/D [—]

REFERENCES

1. Lee, Y.Y. and Mun, S.H.: *Chemical Industry and Technology*, **3**(3), 257 (1985).
2. Charpentier, J.C.: *Advanced in Chem. Eng.*, **11**, 1 (1981).
3. Pitts, E. and Greiller, J.: *J. of fluid mechanics*, **12**, 178 (1962).
4. Hintermayer, J.C. and White, R.: *Tappi*, **48**(11), 617 (1965).
5. Merkin, L.O. and Solan, A.: *J. of Fluid Mech.*, **92**(2), 381 (1979).
6. Luninski, Y., Baranea, D. and Taitel, Y.: *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, **61**, 621 (1983).
7. Vijayraghvan, K. and Gupta, P.: *Ind. Eng. Fundm.*, **21**, 333 (1982).
8. Batchelor, G.K.: *Quart. J. and Applied Mech.*, **4**, 29 (1951).
9. Reith, T.: *British Chem. Eng.*, **15**, 1559 (1970).
10. Youn, J.T.: Ph. D Dissertation, Chungnam National Univ., (1986).
11. Rhee, B.S.: *Report of Ind. Educ. Research Center*, **3**, 10 (1980).
12. Mashelkar, R.A. and Soyulu, M.A.: *Chem. Eng. Sci.*, **29**, 1089 (1974).
13. Lamourelle, A.P. and Sandall, O.C.: *Chem. Eng. Sci.*, **27**, 1035 (1972).
14. Danckwerts, P.V. and Kennedy, A.M.: *Chem. Eng. Sci.*, **8**, 201 (1958).
15. Higbie, R.: *Trans. AIChE. (Chem. Eng. Prog.)*, **31**, 365 (1935).
16. Kamal, M.R. and Canjar, L.N.: *Chem. Eng. Prog.*, **62**, 82 (1966).
17. Laurent, A. and Charpentier, J.C.: *Int. Chem. Eng.*, **23**, 265 (1983).
18. Wasan, D.T., Lynch, M.A., Chad, K.J. and Srinivasan, N.: *AIChE J.*, **18**, 928 (1972).
19. Kawase, Y. and Ulbrecht, J.J.: *J. Appl. Electrochem.*, **13**, 289 (1983).
20. Sedahmed, G.H., Abdel-Shalik, A., Abdallah, A.M. and Farahat, M.M.: *J. Appl. Electrochem.*, **1**, 567 (1979).
21. Ravetkar, D.D. and Kale, D.D.: *Chem. Eng. Sci.*, **36**, 399 (1981).