

물은 고분자 수용액의 층류막에서의 CO₂의 물리적 흡수

박상욱·한성범*·김성수·박태용

부산대학교 공과대학 화학공학과

*부산동의공업전문대학

(1987년 11월 25일 접수, 1988년 3월 30일 채택)

Physical Absorption of CO₂ in Laminar Falling Films of Dilute Polymeric Solutions

Sang Wook Park, Sung Bum Han*, Sung Soo Kim and Tae Yong Park

Department of Chemical Engineering, College of Engineering,

Pusan National University, Pusan 609-735, Korea

* Dong Eui Technical Junior College

(Received 25 November 1987; accepted 30 March 1988)

요 약

젖은 벽탐을 사용하여 뉴턴액체 (PEG 수용액)와 지수법에 일치하는 비뉴턴액체 (CMC 수용액)에 CO₂ 기체를 흡수시켜 CO₂의 확산계수를 고분자 분자량 변화에 따라 측정하였다. 확산계수와 용액의 점도와의 관계를 다음과 같은 실험식으로 나타내었다.

25°C의 PEG 수용액에 대해서

$$D = 1.78 \times 10^{-5} \cdot \mu^{-\left(\frac{15.66}{M_p^{0.48}}\right)}$$

20°C의 CMC 수용액에 대해서

$$D = 1.57 \times 10^{-5} \cdot \mu_{app}^{-\left(\frac{78.18}{M_p^{0.48}}\right)}$$

Abstract—Diffusion coefficients of CO₂ in aqueous Newtonian solution of PEG (polyethylene glycol) and power-law non-Newtonian solution of CMC (sodium carboxymethyl cellulose) with molecular weights varying from 600 to 8400 and from 32300 to 136800, respectively, were obtained from absorption rate measurements in a wetted-wall column. The diffusivity-viscosity relation is found to be a strong function of the molecular weight of the applied polymers. The data suggest the following correlations.

For PEG solution at 25°C,

$$D = 1.78 \times 10^{-5} \cdot \mu^{-\left(\frac{15.66}{M_p^{0.48}}\right)}$$

For CMC solution at 20°C,

$$D = 1.57 \times 10^{-5} \cdot \mu_{app}^{-\left(\frac{78.18}{M_p^{0.48}}\right)}$$

The diffusivity of CO₂ in CMC solution was constant with respect to the change of the shear rate at the wall in the studied range of flow rate.

1. 서 론

물리적 또는 화학반응이 수반된 액체에 의한 기체의 흡수는 기-액 접촉경계면을 통하여 이루어지며, 이론적 또는 실험적 측면에서 오랫동안 많은 연구가 이루어져 왔다. 계면에서의 물질이동현상은 물리적 또는 화학적 분리조작에 대한 해석의 기초가 되는 자료로서 화학공정 단위조작, 고분자가공, 발효의 미생물학적 공정, 폐기물의 생물학적 처리방법, 슬러리 처리방법 등 산업적 공정에서 중요한 분야이다.

기체가 액체에 흡수될 때의 물질전달에 대한 액막저항을 알기 위해서는 전달되는 분자의 확산계수를 구하여야 한다. 비뉴톤 액체에서 용해기체의 분자확산계수의 측정 및 산출은 많은 연구자에 의해 보고되고 있지만[1-31] 이 계수를 정확히 구한다는 것은 기술적으로 매우 어려울 뿐 아니라 비뉴톤 액체의 거동에 대한 이론이 확립되어 있지 않아 이에 대하여 해결해야 할 많은 문제가 남아 있다. 즉 용액에서의 기체용질의 확산계수는 기체용질의 분자크기, 용액의 점도, 용매 및 고분자의 분자크기, 온도 등에 의해 영향을 받게 되며, 확산계수의 측정에 사용되는 측정장치의 종류에 따라 용액의 유체역학적 거동이 다르게 나타나고 비뉴톤 액체의 유체역학적 거동의 이론적 결핍으로 서로 상반되는 측정값을 제시한다.

고분자용액에서 저분자용질의 확산계수 산출방법을 저분자용액에서 사용되는 Stokes-Einstein 상관관계식과 같은 재래식 방법에 적용하였을 때, 또는 뉴톤액체에 적용되는 측정방법을 비뉴톤 액체에 적용하였을 때 많은 차이가 있음을 발견할 수 있다. 즉 저분자용액과 고분자용액의 점도차이가 매우 큼에도 불구하고 고분자용액에서의 기체의 확산계수가 순수 용매에서의 값과 같은 크기 ($\sim 10^{-5}$ cm²/s)를 나타내며, 용액의 shear rate가 확산계수에 미치는 정도가 측정방법에 따라 다르게 나타나고 있다.

본 연구는 액체의 층류상태에서 수력학적 처리방법이 충분히 정립되어 있는 것은 벽탐을 사용하여 기체의 흡수기구를 관찰함에 있어 CO₂ 기체를 비뉴톤 액체의 거동을 나타내는 CMC(Carboxymethyl cellulose)와 뉴톤 액체의 거동을 나타내는 PEG(Polyethylene glycol) 수용액에 흡수시켰을 때 CO₂의 확산계수와 용액의 점도와의 관계를 관찰하고 점도와의 의존성으로부터 고분자물질의 특성치의 하나인 분자량과의 상관관계를 검토하고자 한다.

2. 이 론

원주형 막대(rod) 주위로 흘러내리는 층류경막의 액체에 기체가 흡수될 경우 정상상태에서 액막의 흐름이 완전발달흐름(fully developed flow)이고 액막의 두께가 rod에 비해 매우 적어 액막의 굴곡이 무시되며 Peclet수가 100보다 적어 축방향흐름(axial flow)이 무시될 경우[32] 2성분계에서 용해되는 기체의 질량보존법칙과 Fick의 제1법칙으로 부터 다음과 같이 A성분의 convective-diffusion 식이 얻어진다.

$$v_z \frac{\partial C_A}{\partial z} = D_A \frac{\partial^2 C_A}{\partial x^2} \quad (1)$$

Power-law 비뉴톤 액체는 다음과 같이 정의되며,

$$\tau_{xz} = K \left| -\frac{dv_z}{dx} \right|^{n-1} \left(\frac{dv_z}{dx} \right) \quad (2)$$

전보[35]에서 제시한 바와 같이 power-law에 적용되는 비뉴톤 액체에 기체의 물리흡수가 Higbie[36] 침투설에 의해 진행된다고 가정하면 기-액 접촉표면에서 기체의 평균 흡수속도는 식 (1)로 부터 다음과 같이 나타난다.

$$q = 2f(n) \sqrt{\pi} A_i d (hD_A)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\rho g}{K} \right)^{\frac{1}{n+2}} \left(\frac{v}{\pi d} \right)^{\frac{n+1}{n+2}} \quad (3)$$

여기서

$$f(n) = \left(\frac{2n+1}{n+1} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{n}{2n+1} \right)^{\frac{n}{n+2}} \quad (4)$$

한편 액체의 속도분포식은 일반적으로 다음과 같이 식 (5)로 나타낼 수 있으며[34]

$$v_z = v_i \left[1 - \left(\frac{x}{\delta} \right)^{\frac{n+1}{n}} \right] \quad (5)$$

power-law 액체의 벽에서 shear rate와 겔보기 점도는 식 (2)와 (5)로 부터 각각 다음과 같이 나타난다[33].

$$\dot{\gamma}_{wall} = \frac{dv_z}{dx} \Big|_{x=\delta} = \frac{n+1}{n} \frac{v_i}{\delta} \quad (6)$$

$$\mu_{app} = K \left(\frac{n+1}{n} \frac{v_i}{\delta} \right)^{n-1} \quad (7)$$

3. 실험장치 및 실험방법

CO₂ 기체(순도 99.5%)를 분자량이 다른 CMC(Carboxymethyl Cellulose, 고려인삼주식회사)와

Table 1. Physical and hydrodynamic properties of PEG solution (25°C).

Polymer	mol.wt.(g/mol)	conc. (wt%)	viscosity (cp)
PEG-600	600	10-40	1.39-6.92
PEG-1000	1000	5-30	1.13-4.50
PEG-1500	1500	7-30	1.40-6.50
PEG-4000	3350	5-25	1.45-8.63
PEG-6000	8400	3-15	1.51-7.79

Table 2. Physical and hydrodynamic properties of CMC solution (20°C).

Polymer	mol.wt. (g/mol)	DS*	conc.(wt%)	n	K × 100 (dyne sec ⁿ /cm ²)
KP-1000	32300	0.80	0.02-0.20	0.81-0.99	1.30-7.78
KFA-851	44400	0.90	0.02-0.20	0.80-0.99	1.52-10.42
KFA-853	90150	0.86	0.02-0.20	0.91-0.99	2.15-11.49
HV	115800	0.81	0.02-0.12	0.80-0.90	11.19-26.22
KFA-858	136800	0.87	0.02-0.20	0.92-0.98	1.91-11.28

*DS; Degree of substitution

PEG(Polyethylene glycol, 한국포리올주식회사) 수용액에 20°C와 25°C에서 전보[35]에서 사용하였던 것은 벽탑 흡수기에 흡수시켜 CO₂의 확산계수를 구하였다. 액체의 유량은 60-190 cm³/min, 기체는 120 cm³/min, 기-액 접촉 rod의 길이는 6-30 cm로 변화시키면서 CO₂의 흡수속도를 비누막유량계에 의해 측정하였다. 층류막의 rippling을 방지하기 위하여 0.03 vol%의 비이온 계면활성제 (Scourol 100, Kao Chemical Co., Japan)를 흡수액에 첨가하였다. Table 1과 2에 사용한 고분자 수용액의 특성치 및 실험조건을 제시하였다. PEG 수용액의 점도는 Cannon-Fenske Routine Viscometer에 의해 측정하였고 CMC 수용액의 n 및 K는 Cone and Plate Viscometer(Tokyo Keiki Co., Japan)를 사용하여 측정하였다. 기체의 흡수속도의 측정방법은 전보[35]에서 행하였던 방법과 동일하다.

4. 결과 및 고찰

4-1. 물-CO₂계

20°C와 25°C에서 물의 유량을 고정하고 rod의 길이, h를 변화시키면서 측정된 CO₂의 흡수속도, q를 \sqrt{h} 에 대하여 plot한 결과를 Fig. 1에 나타내었다. 여기서 plot은 원점을 지나는 직선을 최소자승법으로 얻을 수

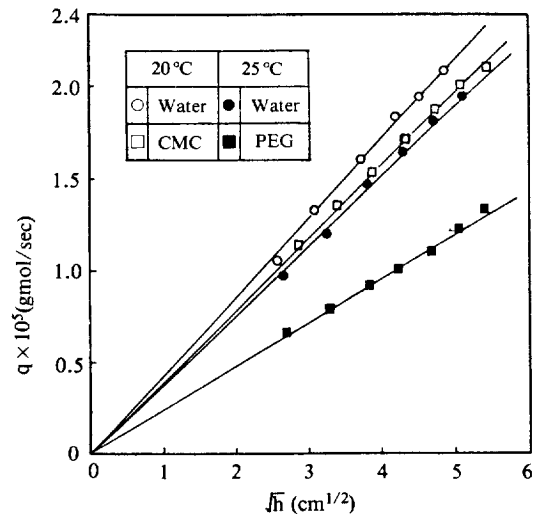


Fig. 1. Absorption rate of CO₂ vs. (film length)^{1/2} (PEG-1500; 0.15wt.%, CMC KFA-851; 0.02 wt.%).

있었으며 이 직선의 기울기와 식 (3)으로 부터 CO₂의 확산계수값을 구하였다. 이때 식 (3)에서 물의 점도는 20°C와 25°C에서 각각 1.002 cp[37] 및 0.8904 cp이며, 밀도는 각각 0.9982 g/cm³[38] 및 0.9971 g/cm³이고 물에서 CO₂의 용해도, A_i는 문헌치[39]인 3.829 × 10⁻⁵ gmol/cm³ 및 3.295 × 10⁻⁵ gmol/cm³이었다. 이로 부터 구한 CO₂의 확산계수는 20°C에서 1.61(±0.042) × 10⁻⁵ cm²/s, 25°C에서 1.80(±0.023) × 10⁻⁵ cm²/s이었다. 물에서 CO₂의 확산계수의 문헌치들을 Table 3에 나타내었으며, 본 실험에서 얻은 값들이 문헌치의 범위에 들어 있음을 알 수 있다. 이와같은 사실은 전보[35]에서와 같이 본 실험에서 사용한 것은 벽탑은 기체흡수에 사용할 수 있고, Higbie

Table 3. Diffusivity coefficients of CO₂ in water.

Investigator	D × 10 ⁵ (cm ² /s)	
	20 °C	25 °C
Himmelblau [40]	1.77	
Davison and Cullen [41]	1.62	1.90
Ferrel and Himmelblau [42]		1.92
Unrer and Himmelblau [43]		1.85
Duta and Vrentas [44]		1.98
Vivian and King [45]		2.00
Thomas and Adams [46]		1.95
Algerman and Gainer [47]	1.70	1.82
This work	1.61	1.80

의 침투설을 적용할 수 있음을 알 수 있다.

4-2. 고분자 수용액-CO₂계

PEG 수용액에 CO₂를 흡수시켜 h의 변화에 따라 측정한 흡수속도, q를 \sqrt{h} 에 대해 plot하여 대표적인 경우를 Fig. 1에 나타내었다. 물에서의 경우와 같이 원점을 지나는 직선을 얻을 수 있었으며 이 직선의 기울기값과 식 (3)으로 부터 CO₂의 확산계수를 구하였다. 25°C에서 PEG 수용액의 각 농도에 대한 CO₂의 용해도, A_i는 Lohse 등[25]이 측정한 다음과 같은 식 (8)을 사용하여 구하였다.

$$\log \frac{A_i}{A_w} = h_i C_p \quad (8)$$

여기서 C_p는 첨가한 PEG의 농도(mol/l)이며, h_i는 PEG 분자량에 따라 측정된 상수이다. 20°C에서 CMC 수용액의 각 농도별 CO₂의 용해도, A_i는 첨가한 고분자의 양이 매우 적을 경우에 Zandi와 Turner[13]가 제안한 다음 식을 사용하여 구하였다.

$$A_i = A_w(1 - \frac{s}{10^4}) \quad (9)$$

여기서 s는 첨가한 CMC의 농도(mg/l)이다. 고분자 수용액의 밀도는 전보[35]에서와 같이 pycnometer를 사용하여 구하였다.

Hayduk과 Cheng[48]이 제시한 바와 같이 분자확산계수와 용액의 점도와의 관계는 다음과 같이 나타낼 수 있으며

$$D = B \mu^A \quad (10)$$

그들은 식 (10)의 B는 온도, 용매의 분자량 및 mol당 부피에 관계되고 A는 확산하는 용질의 특성에 관계됨을 제시하였다. 작은 용매분자내로 큰 분자의 용질이 확산될 경우 식 (10)은 Stokes-Einstein 식과 같이 A가 -1이 되며[48], Hiss와 Cussler[49]에서 작은 용질 분자가 큰 용매의 용액에 확산될 경우 A는 -2/3로 감소하였다. 한편 작은 분자의 기체가 고분자 용액에 흡수될 때는 매우 복잡하며[5, 13, 19, 20, 22] Stokes-Einstein 식에서 보다 분자확산계수의 용액의 점도의 의존성이 적으며, 용액의 점도증가에 따라 확산계수가 오히려 증가하는 현상까지 나타났다. 본 실험에서는 PEG와 CMC 수용액의 농도 증가에 의한 용액의 점도 변화에 대하여 확산계수의 영향을 관찰하기 위하여 각 분자량별 고분자 수용액의 점도와 분자확산계수를 plot하여 Fig. 2와 3에 나타내었다. 이들 그림에서 알 수 있는 바와 같이 CO₂의 확산계수는 수용액의 점

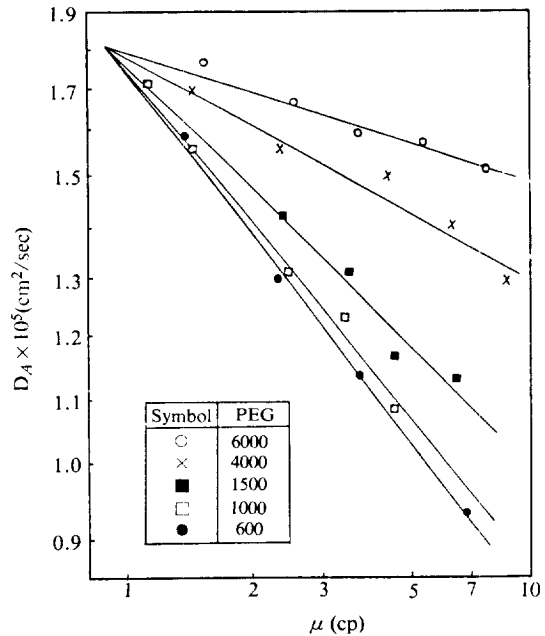


Fig. 2. Diffusivity of CO₂ vs. viscosity of PEG solution at 25°C.

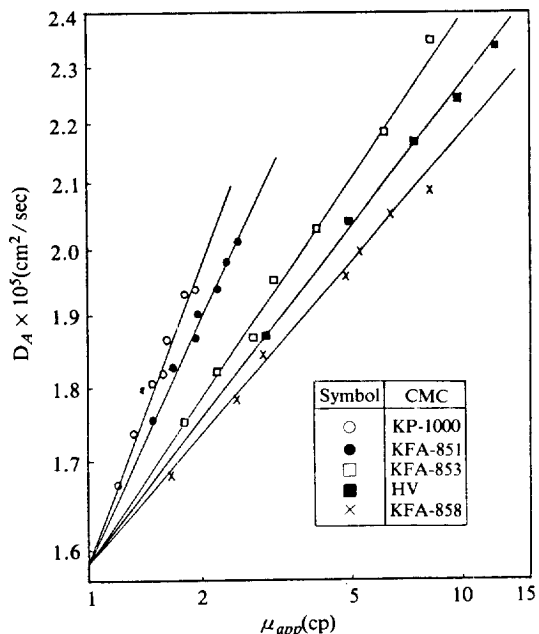


Fig. 3. Diffusivity of CO₂ vs. apparent viscosity of CMC solution at 20°C.

도와 고분자물질의 분자량에 영향을 받고 있다. 뉴톤 액체의 거동을 나타내는 PEG 수용액에서의 CO₂의 확산계수는 물에서 보다 작은 값이며 농도 증가에 따라

Table 4. Diffusivity parameter B and exponent A of eq. (10) for various polymer solutions.

Polymer	B	A
PEG-600	1.778	0.363
PEG-1000	1.763	0.316
PEG-1500	1.757	0.247
PEG-4000	1.788	0.137
PEG-6000	1.810	0.087
KP-1000	1.580	0.320
KFA-851	1.585	0.261
KFA-853	1.553	0.193
HV	1.568	0.161
KFA-858	1.570	0.144

감소현상을 나타내고 있어 재래식 경향에 일치하며, 비뉴턴 액체의 CMC 수용액에서는 물에서 보다 큰 값을 나타내고 있고 농도 증가에 따라 증가하고 있어 이는 Astarita[5], Mashelkar과 Soylu[20], Ravetkar와 Kale[27], Zandi와 Turner[13], Aiba와 Someya[6] 등의 결과와 일치하고 있다. 이들 그림에서 고분자 물질의 분자량이 작을수록 분자확산계수는 점도에 크게 영향을 받고 있으며, 이들 실험치들은 직선관계가 성립하고 이들 직선들은 한점에 거의 일치하고 있다. 각 직선들의 기울기와 물의 점도에 해당되는 절편을 식 (10)에 적용하여 A와 B값을 구하여 Table 4에 나타내었다. PEG 수용액에서 B의 평균값은 $1.78(\pm 0.04) \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$, CMC 수용액에서는 $1.57(\pm 0.06) \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ 가 되어 이 값들은 물에서 CO_2 의 확산계수 $1.83 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}(25^\circ\text{C})$ 및 $1.61 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}(20^\circ\text{C})$ 와 잘 일치하고 있다. Table 4의 A를 고분자물질의 분자량, M_p 에 대해서 plot하여 Fig. 4와 5에 나타내었으며, 각 plot는 직선적이며 최소자승법에 의하여 A와 M_p 의 관계는 다음 식들과 같이 주어졌다.

PEG 수용액에 대해서,

$$A = - \frac{15.66}{M_p^{0.515}} \quad (11)$$

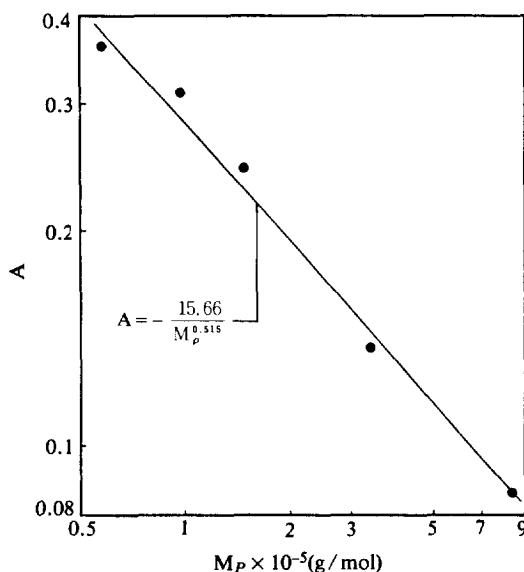
CMC 수용액에 대해서,

$$A = \frac{78.18}{M_p^{0.530}} \quad (12)$$

식 (11)과 (12)를 식 (10)에 대입하여 CO_2 의 분자확산계수와 고분자물질의 분자량과의 관계를 다음과 같이 나타낼 수 있다.

PEG 수용액에 대해서,

$$D = 1.78 \times 10^{-5} \mu^{-\frac{15.66}{M_p^{0.515}}} \pm 0.069 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s} \quad (13)$$

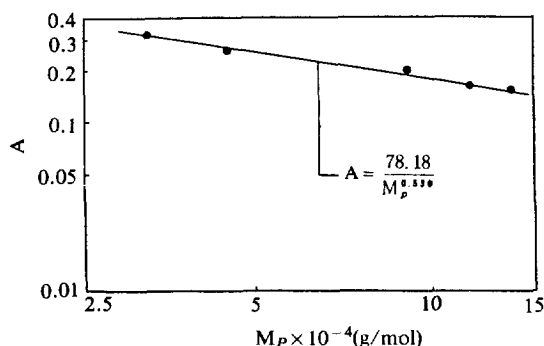
**Fig. 4. Dependency of exponent A of eq. (11) on the molecular weight of PEG.**

CMC 수용액에 대해서,

$$D = 1.57 \times 10^{-5} \mu^{-\frac{78.18}{M_p^{0.530}}} \pm 0.014 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s} \quad (14)$$

식 (13)과 (14)로부터 계산된 D_{cat} 와 측정치, D_{exp} 와의 상관관계를 Fig. 6, 7에 나타내었으며 계산치는 측정치에 $\pm 5\%$ 의 범위내에서 잘 일치하고 있음을 알 수 있다.

Fig. 8은 식 (3)과 (6)을 사용하여 CMC 수용액의 유량변화에 따라 CO_2 의 분자확산계수를 rod벽의 shear rate에 대해서 plot한 것이다. Edwards와 Smith[51]는 Na-CMC 수용액에 $\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$ ion의 확산계수가 shear rate에 무관함을 제시하였고,

**Fig. 5. Dependency of exponent A of eq. (12) on the molecular weight of CMC.**

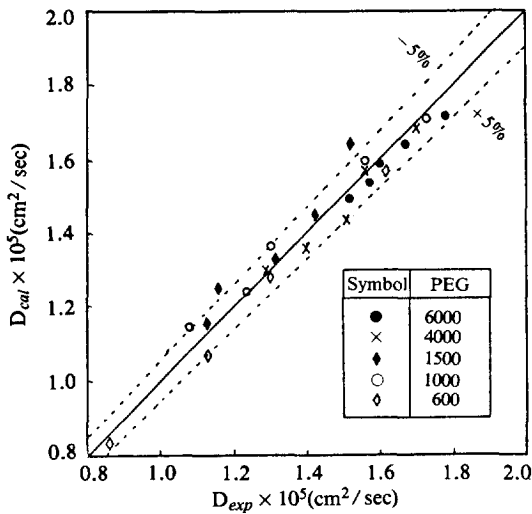


Fig. 6. Comparison of experimental and calculated diffusivity for PEG solution.

Mashelkar과 Soyulu[20], Clough 등[4]도 같은 결과를 얻었다. Wason 등[22]은 젖은 벽탑(길이 3.28 cm)에서 CMC, Polyox 수용액의 산소 흡수실험에서 shear rate가 증가하면 산소 분자확산계수가 증가한다고 보고하였다. 이들의 실험결과는 column의 길이가 짧아서 end-effect에 기인된 것으로 사료된다. Perez와 Sandall[19]은 젖은 벽탑(길이 20.0 cm)에서 Carbopol 수용액에서 CO₂의 분자확산계수는 shear rate에 무관하다고 보고하였다. Kumar와 Upadhyay[23]

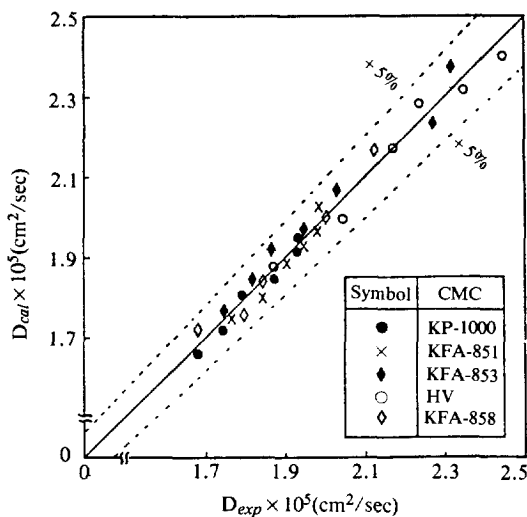


Fig. 7. Comparison of experimental and calculated diffusivity of CMC solution.

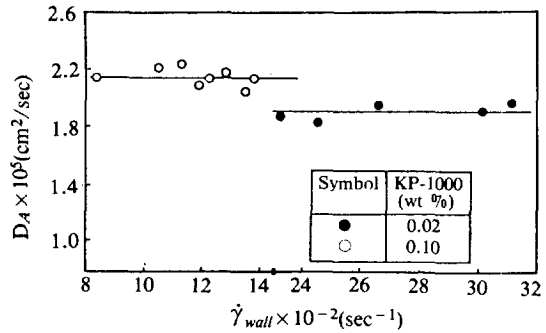


Fig. 8. Diffusivity vs. shear rate at the wall.

는 CMC 수용액에 Benzoic acid가 층류에서 용해될 때의 Benzoic acid가 용액의 shear rate에 무관함을 보여주었다. Kulkarni와 Mashelkar[50]는 고분자물질이 용해될 때 free volume model을 설정하여 기체의 분자확산계수와 shear rate는 무관하다는 이론을 제시하였다.

Fig. 8에 나타난 바와 같이 shear rate의 증가에 대해서 분자확산계수는 거의 일정한 값을 나타내었다. 즉 CO₂의 확산계수는 shear rate에 의존하지 않음을 알 수 있다.

5. 결 론

젖은 벽탑에서 구한 CO₂ 기체의 흡수속도를 침투설에 적용하여 층류경막으로 흐르는 물과 두 종류의 고분자 수용액에서 기체의 분자확산계수를 측정할 수 있었으며, 다음과 같은 실험결과를 얻었다.

1. 20℃와 25℃에서 물에서의 CO₂ 분자확산계수는 $1.61 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 및 $1.80 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 이었으며, 이 값들은 문헌에 보고한 값들의 범위에 들었다.
2. 뉴턴 액체의 거동을 나타내는 PEG 수용액에서의 25℃에서 CO₂ 분자확산계수는 물에서 보다 작고 용액의 농도가 증가할수록 감소하였으며, PEG 분자량과의 상관관계식은 다음과 같다.

$$D = 1.78 \times 10^{-5} \mu^{-\left(\frac{15.66}{M^{0.33}}\right)} \pm 0.069 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$$

3. CMC 수용액은 power-law의 비뉴턴 액체 거동을 나타내었으며, 용액의 농도가 증가할수록 20℃에서 CO₂ 분자확산계수는 증가하였으며 물에서 보다 큰 값을 나타내었고, CMC 분자량과의 상관관계식은 다음과 같다.

$$D = 1.57 \times 10^{-5} \left(\frac{78.18}{M_{app}} \right) \pm 0.014 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 / \text{sec}$$

4. CMC 수용액에서 CO₂ 분자확산계수는 본 실험 조건의 용액 유량범위에서 벽의 shear rate 변화에는 무관하였다.

감 사

본 연구는 1986년도 한국과학재단 연구비 지원(과제 번호: 862-1002-017-2)으로 수행한 연구결과의 일부입니다.

NOMENCLATURE

A	: constant of eq. (10)
A _i	: interfacial concentration of a solute in a solution, gmol/cm ³
A _w	: interfacial concentration of a solute in water, gmol/cm ³
B	: constant of eq. (10)
C _A	: concentration of a solute A in a liquid, gmol/cm ³
C _P	: concentration of a polymer in a liquid, gmol/l
d	: rod diameter in a wetted-wall column, cm
D	: molecular diffusivity, cm ² /s
D _A	: molecular diffusivity of a solute in a liquid, cm ² /s
h	: rod length in a wetted-wall column, cm
h _i	: constant of eq. (8)
K	: consistency index, dyne-sec ⁿ /cm ²
M _p	: molecular weight of a polymer, g/gmol
n	: power-law index
q	: average physical absorption rate of a solute in water and aqueous polymer solution, gmol/s
s	: concentration of CMC in a solution, mg/l
t	: contact time between a gas and liquid, sec
v	: liquid flow rate, cm ³ /s
v _i	: surface velocity of a liquid film, cm/s
v _z	: liquid velocity, cm/s
x	: distance beneath a liquid film, cm
z	: coordinate parallel to the direction of flow of liquid, cm

Greek Letters

γ_{wall}	: shear rate of a liquid at a rod wall, sec ⁻¹
δ	: average thickness of film layers on the wall, cm

τ_{xz}	: a component of the shear stress in the rectangular coordinate
μ	: liquid viscosity, g/cm-s
μ_{app}	: apparent viscosity of a liquid, g/cm-s
ρ	: liquid density, g/cm ³

REFERENCES

1. Nishijima, Y. and Oster, G.: *J. Poly. Sci.*, **19**, 337 (1956).
2. Biancheria, A. and Kegeles, G.: *J. Am. Chem. Soc.*, **79**, 5908 (1957).
3. Heertjes, P.M., Van Mens, M.H. and Butaye, M.: *Chem. Eng. Sci.*, **10**, 47 (1959).
4. Clough, S.B., Read, H.E., Metzner, A.B. and Behn, V.C.: *A.I.Ch.E.J.*, **8**, 346 (1962).
5. Astarita, G.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **4**, 236 (1965).
6. Aiba, S. and Someya, J.: *Hakko Kogaku Zasshi*, **43**, 603 (1965).
7. Astarita, G.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **5**, 14 (1966).
8. Quinn, J.A. and Blair, L.M.: *Nature*, **214**, 907 (1967).
9. Hansford, G.S. and Litt, M.: *Chem. Eng. Sci.*, **23**, 849 (1968).
10. Li, S.U. and Gainer, J.L.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **7**, 433 (1968).
11. Huang, A.L., Desai, S.V. and Wellek, R.M.: *J. Chem. Eng. Data*, **14**, 356 (1969).
12. Luikov, A.V., Shulman, Z.P. and Puris, B.I.: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **12**, 377 (1969).
13. Zandi, I. and Turner, C.D.: *Chem. Eng. Sci.*, **25**, 517 (1970).
14. Dim, A., Gardner, G.R., Ponter, A.B. and Wood, T.: *J. Chem. Eng. Japan*, **4**, 92 (1971).
15. Navari, R.M., Gainer, J.L. and Hall, K.R.: *A. I. Ch. E. J.*, **17**, 1028 (1971).
16. Greif, R., Corner, I. and Kappesser, R.: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **15**, 593 (1972).
17. Osmer, H.R. and Metzner, A.B.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **11**, 161 (1972).
18. Mashelkar, R.A. and Chavan, V.V.: *J. Chem. Eng. Japan*, **5**, 160 (1973).
19. Perez, J.F. and Sandall, O.C.: *A. I. Ch. E. J.*, **19**, 1073 (1973).
20. Mashelkar, R.A. and Soyulu, M.: *Chem. Eng. Sci.*, **29**, 1089 (1974).
21. Deo, P.V. and Vasudeva, K.: *Chem. Eng. Sci.*, **32**, 328 (1977).
22. Wasan, D.T., Lynch, M.A., Chad, K.J. and Srinivasan, N.: *A. I. Ch. E. J.*, **18**, 928 (1972).
23. Kumar, S. and Upadhyay, S.N.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **19**, 75 (1980).

24. Akita, K., Nakanoh, M. and Yoshida, F.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **19**, 190 (1980).
25. Lohse, M., Alper, E., Quicker, G. and Deckwer, W.D.: *A. I. Ch. E. J.*, **27**, 626 (1981).
26. Peev, G. and Nikolova, A.: *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **8**, 319 (1981).
27. Ravetkar, D.D. and Kale, D.D.: *Chem. Eng. Sci.*, **36**, 399 (1981).
28. Mashelkar, R.A. and Soylu, M.: *J. Appl. Poly. Sci.*, **27**, 697 (1982).
29. Potucek, F. and Stejskal, J.: *Chem. Eng. Sci.*, **41**, 3223 (1986).
30. Ghosh, U.K., Gupta, S.N., Kumar, S. and Upadhyay, S.N.: **29**, 955 (1986).
31. Ju, L.K. and Ho, C.S.: *Chem. Eng. Sci.*, **41**, 579 (1986).
32. Roten, Z. and Neilson, J.E.: *Can. J. Chem. Eng.*, **47**, 341 (1969).
33. Lee, S.J. and Lee, W.K.: *K. J. Chem. Eng.*, **1**, 51 (1984).
34. Hikita, H., Ishimi, K., Hara, M. and Matsunami, T.: *Can. J. Chem. Eng.*, **62**, 352 (1984).
35. Park, S.K., Park, P.W., Kim, S.S. and Yun, J.W.: *HWAHAK KONGHAK*, **25**, 447 (1987).
36. Higbie, R.: *Trans. Am. Inst. Chem. Eng.*, **31**, 365 (1985).
37. Weast, E.W. and Astle, M.J.: "Handbook of chemistry and physics", CRC Press, 6th Ed., PF51, New York (1979).
38. Washburn, E.W.: "International Critical Tables", McGraw-Hill Book Co., Vol. 3, pp. 25, New York (1970).
39. Perry, R.H.: "Perry's Chemical Engineer's Handbook", McGraw-Hill Book Co., pp. 3-98, New York (1984).
40. Himmelblau, D.M.: *Chem. Rev.*, **64**, 527 (1964).
41. Davison, J.F. and Cullen, E.J.: *J. Trans. Inst. Chem. Eng.*, **35**, 5 (1957).
42. Ferrel, R.T. and Himmelblau, D.W.: *J. Chem. Eng. Data*, **12**, 11 (1967).
43. Unrer, A.A. and Himmelblau, D.W.: *J. Chem. Eng. Data*, **9**, 428 (1964).
44. Duta, J.A. and Vrentas, J.S.: *A.I.Ch.E.J.*, **14**, 286 (1968).
45. Vivian, J.E. and King, C.J.: *A. I. Ch. E. J.*, **10**, 220 (1964).
46. Thomas, W.J. and Adams, M.J.: *Trans. Farad. Soc.*, **61**, 668 (1965).
47. Algerman, A. and Gainer, J.L.: *J. Chem. Eng. Data*, **17**, 372 (1972).
48. Hayduk, W. and Cheng, S.C.: *Chem. Eng. Sci.*, **26**, 635 (1971).
49. Hiss, T.G. and Cussler, E.L.: *A.I.Ch.E.J.*, **19**, 698 (1973).
50. Kulkarni, M.G. and Mashelkar, R.A.: *Chem. Eng. Sci.*, **38**, 925 (1983).
51. Edwards, M.F. and Smith, R.: *Chem. Eng. Sci.*, **35**, 1031 (1980).