

열에너지 저장을 위한 $\text{Ca}(\text{OH})_2/\text{CaO}$ 계의 가역 총괄 반응속도

이수각·이종호·架谷 昌信*

한국동력자원연구소 설비형연구실

*나고야대학 공학부 화학공학과

(1988년 4월 20일 접수, 1988년 7월 30일 채택)

Overall Rate of Reversible Thermochemical Reaction by Means of $\text{Ca}(\text{OH})_2/\text{CaO}$ Reaction Cycle for the Thermal Energy Storage

Soo-Kag Lee, Jong-Ho Lee, and Hasatani Masanobu*

Korea Institute of Energy and Resources, Daedeok Science Town, Daejeon, Korea

* Department of Chemical Engineering, Nagoya University, Nagoya, Japan

(Received 20 April 1988; accepted 30 June 1988)

요 약

약 780K 정도로 비교적 높은 온도에서 열저장을 할 목적으로 다음과 같은 발열 및 흡열과정을 가진 기-고 반응사이클을 선택하였다. 즉



수증기 발생장치가 부착된 미량 열천칭을 사용하여 총괄 반응속도에 관하여 기초적인 관점에서 이 반응사이클을 연구하였다. 반응물질 입자내의 수증기 농도분포는 여기서 제안한 수증기 확산모델을 근거로 하여 수치적으로 계산하였다. 본 모델에 의한 계산결과는 열중량 분석계(TGA)를 사용하여 시료의 평균입경 300-900 μm , 반응온도 403-689K, 수증기 농도 4.2 vol. % 이하의 실험범위에서 얻은 실험결과와 잘 일치되고 있음을 보였다. 본 연구의 실험범위내에서는 CaO 입경이 증가함에 따라 느려지며, $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 의 탈수반응중에는 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 입경의 영향이 거의 무시됨을 알 수 있었다.

Abstract—For the purpose of the thermal energy storage at relatively high temperature around 780 K, the following gas-solid reaction cycle including both an exothermic(hydration) and an endothermic(dehydration) process was chosen;



This reaction cycle was studied from a fundamental point of view concerning overall reaction rate by using a micro-thermobalance equipped with a steam generator.

Concentration profiles of steam within the reactant particle are numerically calculated based on the diffusion model of steam proposed here. The calculated results showed fairly good agreement with experimental data which were obtained by using a thermogravimetric analysis (TGA) with the reactant solid particle size under 900 μm , the reaction temperature 403-689 K and steam concentration under 4.2 vol. %.

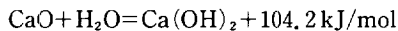
It was found within the range of experimental conditions employed in the present study that the reaction rate for the hydration of CaO decrease as the particle size of CaO pellet increases, but it is not a function of the particle size of $\text{Ca}(\text{OH})_2$ pellet during the dehydration of $\text{Ca}(\text{OH})_2$.

1. 서 론

최근 공업폐열 및 태양열 등의 온도의 질적 또는 양적 변동이 심한 열에너지를 잘 이용할 수 있는 축열법의 기술개발이 여러 방면으로 연구되고 있다. 이와같은 축열법을 크게 나누면; 1) 고체 및 액체의 현열이용, 2) 용융·응고, 결정전이 등의 상변화가 일어나는 잠열이용, 그리고 3) 흡·탈착열, 용해·회석열, 화학반응열과 같은 화학열을 이용(화학 축열)하는 축열법이 있다.

이 중에서 현열 및 잠열을 이용하는 축열법은 장기간 열저장이 어려우며, 근본적으로 히트펌프로 사용할 수 없는 단점이 있다. 이와같은 단점을 보완할 수 있는 것이 화학 축열법이다. 이 축열법을 실용화시킬 목적으로 여러가지 반응계에 대한 연구가 계속되고 있다[1].

본 연구에서는 화학 축열법으로 실용화시에 적용 가능한 반응중에서 몇가지 장점을 가진 다음의 Ca(OH)₂/CaO계 가역 열화학 반응을 택하였다[2].



이 반응계를 축열에 이용하기 위한 연구는 Ervin [3], Kanzawa 등[4]에 의한 축열원리의 검토 및 Halstead 등[5], Samms[6]에 의한 화학평형 등을 들 수 있다. 또한 이 반응계를 화학 축열에 적용할 목적으로 Matsuda 등[7]에 의한 화학반응 속도식, 이 등[8]에 의한 갑압조건에서 Ca(OH)₂ 열분해 반응 및 Fujii 등[9, 10]에 의해 기초연구가 수행되었다. 이와같은 기초연구를 토대로 하여 화학 축열장치 level에 대한 검토는 Matsuda, Hasatani 등[11, 12], Fujii 등[10]에 의해 연구되고 있다. 그러나 이 반응계가 화학 축열재로 사용될 경우, 미세입자(5μm 이하)보다는 어느 정도의 큰 입경이 사용되기 때문에 입경차에 따른 반응속도론적인 검토가 요구되고 있으나 현재까지는 연구되지 않은 상태이다.

따라서 본 연구에서는 Ca(OH)₂/CaO계의 가역 열화학 반응에 대한 기초연구로서 시료 입경에 따른 반응 실험과 총괄 반응속도에 대한 해석을 통하여 시료 입경의 증가에 따른 반응물질 교체내 수증기 확산에 대한 영향을 고찰해 보고자 한다.

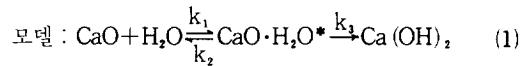
2. 이 론

2-1. 화학 반응속도

Matsuda 등[7]은 미세입자(5μm 이하)를 사용하여 CaO의 수화반응 및 Ca(OH)₂ 탈수반응에 대하여 다

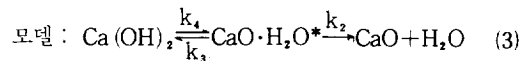
음과 같은 반응 중간체를 형성하는 2단계 기초반응(elementary reaction)을 고려하여 grain 모델에 의한 반응속도식을 유도하였다.

·CaO의 수화반응



$$\text{속도식: } \frac{dX_h}{d\theta} = \frac{k_1/r_g}{1+k_2/k_3} (1-X_h)^{\frac{2}{3}} (P-P_e) \quad (2)$$

·Ca(OH)₂의 탈수반응



$$\text{속도식: } \frac{dX_d}{d\theta} = \frac{k_4/r_g}{1+k_3/k_2} (1-X_d)^{\frac{2}{3}} (P_e-P) \quad (4)$$

여기서 k_i(i=1-4)는 각각의 기초반응에 대한 반응속도 상수이다. P, X_j(j=h, d) 및 r_g는 각각 시간, 수증기 분압, j-반응의 전환율과 grain의 반경을 나타낸다. 또한 첨자 d, e, h는 각각 탈수반응, 평형 및 수화반응을 나타낸다.

2-2. 총괄 반응속도

2-2-1. 기초식

먼저, 등온조건에서 반경 r₀인 구의 CaO pellet를 생각해 보기로 한다. CaO pellet내 세공 사이의 수증기 확산방정식은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$\frac{\partial C_g}{\partial \theta} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (D_{ea} r^2 \frac{\partial C_g}{\partial r}) + \bar{r}_A \quad (5)$$

$$\bar{r}_A = f(C, C_s, T \text{ etc}) = C_{so} \frac{\partial X_i}{\partial \theta} \quad (6)$$

초기조건 및 경계조건은 아래와 같다.

$$\text{초기조건: } \theta=0, 0 \leq r \leq r_b; C_g=0, X_i(i=d, h)=0, C_s=C_{so} \quad (7)$$

$$\text{경계조건: i) } \theta \geq 0, r=0; \partial C_g / \partial r = 0$$

$$\text{ii) } \theta \geq 0, r=r_b; \partial C_g / \partial r = -\frac{k_f}{D_{ea}} (C_\infty - C) \quad (8)$$

여기서, \bar{r}_A 는 반응에 의해 생성 또는 소실되는 양을 나타내며 grain 모델을 근거로 하면 식(6)으로 표시된다. 그리고 C_g, r, D_{ea}, C_{so}, k_f, C_{g∞}는 각각 수증기 농도, pellet 중심에서 반경 방향의 거리, 유효 확산계수, 교체의 초기 농도, 물질전달계수 및 bulk 수증기를 나타낸다. 또한 식(5)중 $-\bar{r}_A$ 는 CaO 수화반응을, $+\bar{r}_A$ 는 Ca(OH)₂ 탈수반응을 해석할 경우에 사용된다.

2-2-2. 유효 확산계수의 변화

유효 확산계수 D_{eA} 는 일반적으로 세공률, ϵ 의 함수로서 다음과 같이 표시할 수 있다[14].

$$D_{eA} = \frac{\epsilon}{\tau} D_A, \quad \frac{1}{D_A} = \frac{1}{D_{AK}} + \frac{1}{D_{AM}} \quad (9)$$

Knudsen 확산계수, D_{AK} 는

$$D_{AK} = 9700 a \sqrt{T/M_{H_2O}} \quad (10)$$

이며, 세공률의 반경 a 는

$$a = a_0 \left(\frac{\epsilon}{\epsilon_0} \right) \left(\frac{1 - \epsilon_0}{1 - \epsilon} \right)^{1/3} \quad (11)$$

이다. 또한 분자 확산계수, D_{AM} 은 다음과 같은 Hirshfeld 등[13]에 의한 식으로 구할 수 있다.

$$D_{AM} = \frac{0.028 \sqrt{T^3 (M_{H_2O} + M_{N_2}/2 \cdot M_{H_2O} M_{N_2})}}{P \alpha_{H_2O - N_2}^2 \Omega_D} \quad (12)$$

여기서 P , σ , M , T 는 각각 절대압, 분자력 정수, 분자량, 절대온도를 나타낸다. $\text{H}_2\text{O}-\text{N}_2$ 계에 대한 충돌적분, Ω_D 는 참고문헌 (14)로부터 아래와 같은 상관식을 구하였다.

$$\Omega_D = \{1.2082 \left(\frac{T-503}{1000} \right) - 0.7843\} \left(\frac{T-503}{1000} \right) + 1.0596 \quad (13)$$

2-2-3. 세공률의 변화

Pellet내 세공률, ϵ 은 반응이 진행됨에 따라 전하율, X_i 의 함수로서 아래와 같은 식으로 표현할 수 있다.

$$\epsilon(X_i) = 1 - (1 - \epsilon_0) (1 - f_c \cdot X_i + \gamma \cdot f_c \cdot X_i) \quad (14)$$

$$\text{단, } f_c = \frac{W_o/\rho_R}{(1 - W_o)/\rho_{inert} + W_o/\rho_R} \quad (15)$$

$$\gamma = (\rho_R/M_R) / (\rho_P/M_P) \quad (16)$$

여기서 ρ 및 W_o 는 각각 밀도와 초기 중량분율을 나타내며, 첨자 P , R 및 $inert$ 는 반응생성물, 반응물질과 $inert$ 물질을 나타내고 있다. 또한 격막 물질전달계수, k_s 는 다음과 같은 식으로부터 구할 수 있다[14].

$$\text{Sh} = 2 + 0.6 \text{Re}^{1/2} \text{Sc}^{1/3} \quad (17)$$

3. 실험

본 연구의 실험장치는 Fig. 1에 도시된 바와 같이 Matsuda 등[7]이 사용한 TGA를 사용하여 반응속도를 측정하였다. 먼저, 출발 반응물질의 시료는 순도가

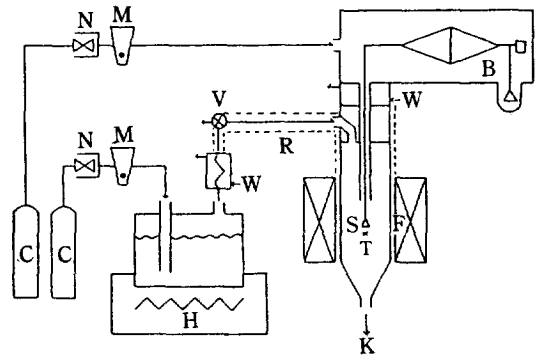


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus employed.

- | | |
|--|----------------------|
| B : Balance | N : Needle valve |
| C : N_2 cylinder | R : Ribbon heater |
| F : Furnace | S : Sample holder |
| H : Heater | T : Temperature |
| K : Moisture content measurement point | V : Triangular valve |
| M : Flow meter | W : Cooling water |

99 wt. % 이상인 석회석 (CaCO_3)을 사용하였으며, CaO 와 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 의 물성치는 Table 1에 도시한 바와 같다. 또한 시료 입경이 $5\mu\text{m}$ 이하일 때는 체의 크기가 $5\mu\text{m}$ 이하를 사용하여 습식 체질법으로, 그 외의 입경의 경우에는 체를 사용하여 건식법으로 체질하여 석회석 시료를 만들었고, 시료의 양은 약 10 mg씩 취하였다.

실험은 일정한 입경의 석회석을 sample holder에 넣은 후, 약 1173K에서 열분해 탈탄산시킨 것 (CaO)을 CaO 시료로 사용하였다. 먼저 CaO 수화반응은 열분해에 의해 생성된 CaO 를 설정된 반응온도까지 온도를 내린 후, 일정한 농도의 수증기를 반응관에 도입시켜서 반응을 시작하였다. 이때 수증기 농도는 carrier gas로 질소를 사용하여 조절하였으며, 유입 가스의 유량은 CaO 수화반응 및 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응의 경우 모두 100 ml/min 로 하였다. 수화반응이 완료된 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 생성물은 반응관의 수증기 농도를 높여서 가열시 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 열분해가 일어나지 않도록 하여 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 의 반응온도를 설정하였다. 설정된 반응온도에

Table 1. Physical properties of the calculation employed

Item	ρ	ϵ	M
Materials			
CaO	2.24	0.59	56.1
$\text{Ca}(\text{OH})_2$	3.48	0.165	74.1

서 곧 일정한 수증기 농도로 감소시켜서 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응을 시작하였다. CaO 수화반응 및 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응 반응속도는 시간에 따른 시료 무게변화를 근거로 하여 결정하였으며, 시료 무게변화는 반응이 끝날 때까지 연속적으로 측정하였다. 본 연구에서의 실험조건은 다음과 같다.

- 시료의 평균입경 : $900\mu\text{m}$ 이하
- 반응온도 : $403\text{--}687\text{K}$
- 수증기 농도 : 4.2 vol. \% 이하

4. 실험결과 및 고찰

본 반응해석에 있어서 CaO 수화반응의 전환율, X_h 및 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응의 전환율, X_d 는 다음과 같은 식으로 나타내며 실험을 근거로 한 무게변화로부터 구하였다.

$$X_i = \frac{1 - W_i/W_{i,0}}{1 - M_h/M_p} \quad (i=h, d) \quad (18)$$

여기서 M 와 W_i 는 각각 분자량과 시료의 무게를 나타내고, 첨자 P, R, 0은 생성물, 반응물 및 초기치를 표시하고 있다.

4-1. 화학 반응속도

$\text{Ca}(\text{OH})_2/\text{CaO}$ 계 화학 반응속도는 Matsuda 등[7]에 의하면 식 (1) 및 식 (3)과 같은 복합반응이 일어난다고 가정하여 grain 모델을 근거로 아래와 같은 실험 결과를 얻었다.

$$k_1/r_g = 51.1 \exp(-1.096 \times 10^4/R_g \cdot T) \quad (19)$$

$$k_2/k_3 = 5.24 \times 10^4 \exp(-4.81 \times 10^4/R_g \cdot T) \quad (20)$$

$$k_4/r_g = 3.0 \times 10^2 \exp(-3.62 \times 10^4/R_g \cdot T) \quad (21)$$

4-2. 총괄 반응속도

총괄 반응속도의 실험은 평균입경이 300, 600, $900\mu\text{m}$ 인 석회석을 출발물질로 하여 CaO 수화반응과 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응을 행하였으며, 이론해석은 식 (5)에서 식 (17)까지의 방정식을 수치적분에 의해 풀었다. 수치적분시 식 (5)중의 축적항은 수증기 분압차 $[(P-P_e) \text{ 또는 } (P_e-P)]$ 가 적을 경우에는 각 반응의 반응속도가 느려지기 때문에 준 정상상태(quasi steady state)를 가정하였다.

4-2-1. CaO 수화반응

Fig. 2-4에 평균입경, dp 가 $900\mu\text{m}$ 이하인 시료를 사용하여 수증기 농도 및 반응온도를 매개변수로 한 전

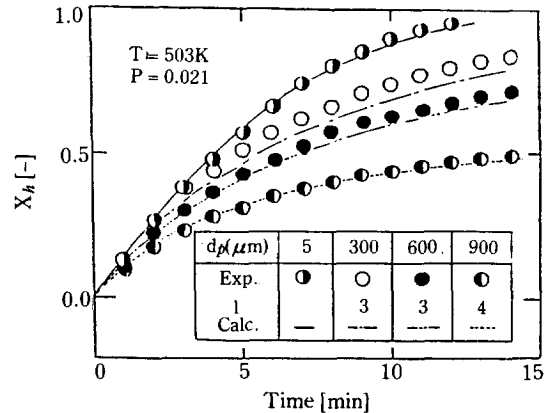


Fig. 2. Effect of particle size on conversion yield during the hydration of CaO with steam.

화율의 시간적 변화를 실험 및 이론해석 결과를 나타낸 것이다. 그림중에서 l 은 굴곡인자(tortuosity factor) τ 를 입자의 세공률, ϵ 의 함수로서 편의상 $\tau = (1 - \epsilon)^{-1}$ 과 같이 나타낼 때의 지수를 말한다. 평균입경이 300, 600 및 $900\mu\text{m}$ 일 때, l 의 값은 실험결과를 가장 잘 설명할 수 있는 값으로 각각 3, 3, 4를 취하였다. 이들의 그림으로부터 실험결과와 이론해석 결과는 본 실험조건 하에서 비교적 잘 일치하고 있으며, 시료 입경이 증가함에 따라 반응속도에 미치는 수증기 확산의 영향이 현저하게 나타나고 있음을 알 수 있다. Fig. 5에서는 Fig. 2에 도시된 평균입경 $dp=900\mu\text{m}$ 일 때의 이론해석 결과로서 CaO pellet내 무차원 수증기 농도 및 전화율의 분포를 나타낸 것이다. 그림중에서 $C_{g,\infty}$ 는 bulk 수증기 농도를 표시한다. 이 그림으로부터 시간이 경과함에 따라 CaO 입자표면에서 반응이 진행되어 점차 중심부로 향하고 있음을 알 수 있다. 또한, 수증기의 농

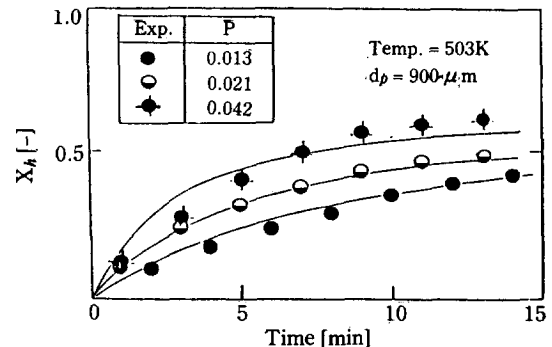


Fig. 3. Effect of water vapor pressure on conversion yield during the hydration of CaO with steam.

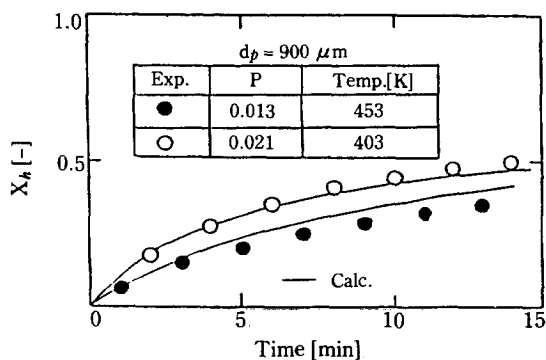


Fig. 4. Effect of temperature on conversion yield during the hydration of CaO with steam.

도는 준정상 상태를 가정하였으므로 반응개시와 동시에 bulk 상태에서 반응에 의하여 점차 중심부 농도가 저하됨을 알 수 있다. 이와 같은 현상은 CaO 수화반응에서 식 (16)중의 γ 가 약 2이므로 반응이 진행됨에 따라 입자내 세공률이 적어지기 때문에 입자내 세공 사이의 수증기 확산이 점차 어렵게 되는 것으로 생각할 수 있다.

4-2-2. $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 의 탈수반응

평균입경이 $5\mu\text{m}$ 이하, $600\mu\text{m}$, $900\mu\text{m}$ 을 사용한 실험 및 이론해석 결과의 예를 Fig. 6, 7에 도시하였다. 이 그림에서는 반응속도, 입경을 매개변수로 하였으며, Carrier gas는 질소(수증기 분압, $P \approx 0$)를 사용하였다.

이들 그림으로부터 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응은 CaO 수화반응과는 달리 입경 변화에 따른 반응속도의 변화를 거의 찾아 볼 수 없음을 알 수 있다. 즉 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응에서는 식 (16)에 표시된 γ 가 1보다 작기 때문에 반응이 진행과 더불어 세공률이 커지는 현상으로 인하여 반응속도가 거의 일정한 것으로 생각된다.

Fig. 8은 Fig. 6에 나타난 평균입경 $d_p = 600\mu\text{m}$, 반응온도 $T = 673\text{K}$ 일 때, pellet내 수증기 농도 및 전

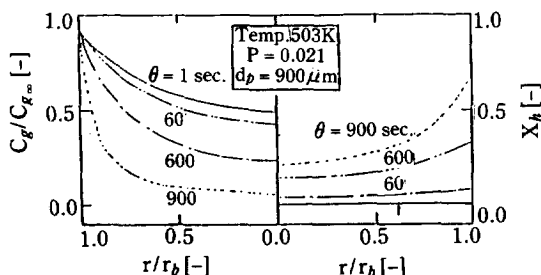


Fig. 5. Concentration and conversion changes in the radial direction in the sample pellet of CaO .

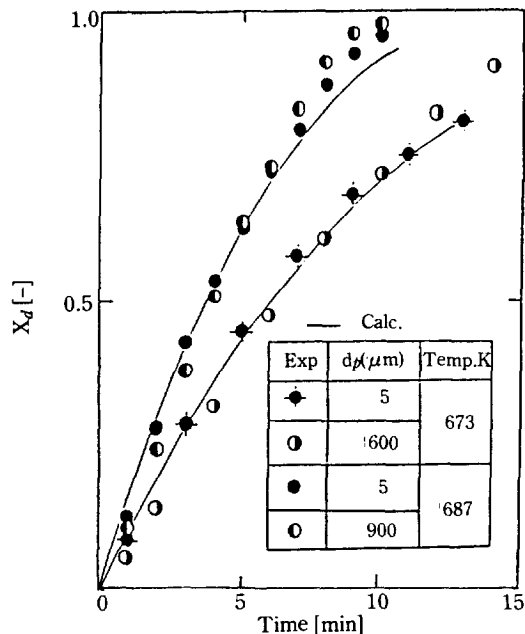


Fig. 6. Effect of temperature on the conversion yield during the dehydration of $\text{Ca}(\text{OH})_2$.

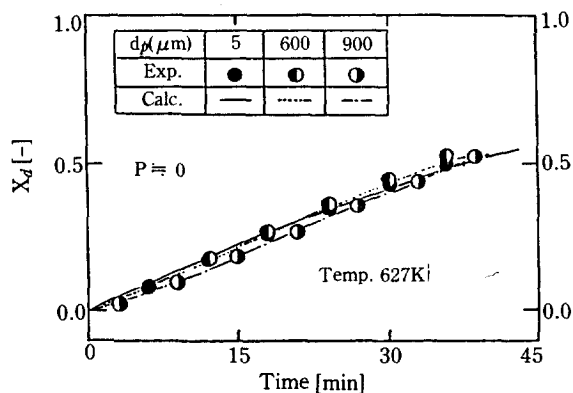


Fig. 7. Effect of particle size on the conversion yield during the dehydration of $\text{Ca}(\text{OH})_2$.

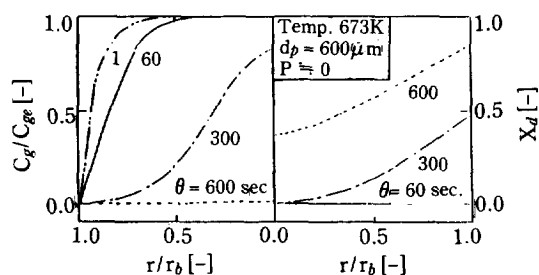


Fig. 8. Concentration and conversion changes in the radial direction in the sample pellet of $\text{Ca}(\text{OH})_2$.

화물 분포를 도식한 것이다. 그림 중 C_{ge} 는 화학 평형 시의 농도를 나타낸다. $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응도 CaO 수화반응과 같이 입자의 표면에서 중심부로 반응이 진행되고 있음을 알 수 있다. 또한 반응에 의해 생성된 수증기는 입자표면을 통하여 입자 외부로 유출되는 현상이 본 모델계산으로 잘 설명되고 있다.

5. 결 론

$\text{Ca}(\text{OH})_2/\text{CaO}$ 계 반응을 화학 축열에 적용하는 것을 목적으로 하여 CaO 수화반응 및 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응에 있어서 총괄 반응속도에 대한 실험결과 및 수학적 모델에 의한 이론해석을 해 본 결과, 아래의 결론을 얻을 수 있었다.

1. CaO 수화반응에서는 시료의 입경이 커짐에 따라 반응속도가 입자내 수증기 확산 영향으로 인하여 현저하게 늦어지는 것으로 나타났다.

2. $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 탈수반응에서는 평균입경이 $900\mu\text{m}$ 이하의 경우 입경에 관계없이 반응속도가 거의 일정하게 나타났다.

NOMENCLATURE

a	: radius of pore within particle	[m]
C_g	: concentration of water vapor	[mol·m ⁻³]
$C_{g\infty}$: concentration of water vapor in bulk fluid	[mol·m ⁻³]
C_s	: concentration of solid reactant	[mol·m ⁻³]
D_{eA}	: effective diffusivity of water vapor	[m ² ·s ⁻¹]
D_{AK}	: Knudsen diffusivity	[m ² ·s ⁻¹]
D_{AM}	: molecular diffusivity	[m ² ·s ⁻¹]
D_p	: particle diameter	[m]
f_c	: initial volume fraction of solid reactant in particle	[-]
K_r	: mass transfer coefficient on the external surface of particle	[m·s ⁻¹]
K_i	: reaction rate constant	[min ⁻¹]
K_j	: reaction rate constant	[m·min ⁻¹]
M	: molecular weight	[kg]
P	: dimensionless partial pressure of water vapor	[-]
Pr	: Prandtl number	[-]
Re	: Reynolds number	[-]
R_g	: gas constant	[kJ·mol ⁻¹ ·K ⁻¹]
r	: radial distance from the center of particle	[m]
r_b	: radius of particle	[m]
r_g	: radius of a solid grain	[m]
S_c	: Schmidt number	[-]

S_h	: Sherwood number	[-]
T	: absolute temperature	[K]
W	: weight of a sample	[kg]
X_i	: conversion of reaction	[-]
ε	: void fraction within particle at $X = X$	[-]
Ω_D	: Diffusion collision integral	[-]
ρ	: density	[kg·m ⁻³]
γ	: ratio of molar volume of solid reactant to solid product	[-]
θ	: reaction time	[s] or [min]
σ	: Lennard-Jones potential parameter	[nm]
τ	: tortuosity factor	[-]

Subscripts

e	: equilibrium
i	: d(dehydration) or h (hydration)
j	: j-th species (j = 1-4)
P	: product
R	: reactant
o	: initial

REFERENCES

1. Park, W.H., et al.: "A System Development of Thermal Energy Storage at High Temperatures", N235-2796-6, KAIST (1987).
2. Lee, S.K.: Thesis at Nagoya University (1986).
3. Ervin, G.: *J. Solid State Chem.*, **22**, 51 (1977).
4. Kanzawa, A. and Arai, Y.: *Solar Energy*, **27**, 289 (1981).
5. Halstead, P.E. and Moore, A.E.: *J. Chem. Soc.*, 3873 (1957).
6. Samms, J.A.C. and Evans, B.E.: *J. Appl. Chem.*, **18**, 5 (1968).
7. Matsuda, H., Ishizu, T., Lee, S.K., and Hasatani, M.: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **11**, 542 (1985).
8. Lee, S.K., Matsuda, H., and Hasatani, M.: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **12**, 165 (1986).
9. Fujii, I. and Tsuchiya, K.: *Kuuki-Chowa Eisei Ronbunshu*, **4**, 21 (1977).
10. Fujii, I., Tsuchiya, K., Higano, M., and Yamada, J.: *Solar Energy*, **34**, 367 (1985).
11. Matsuda, H., Lee, S.K., Ishizu, T., and Hasatani, M.: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **13**, 20 (1987).
12. Hasatani, M., Matsuda, H., Lee, S.K., Miyazaki, M., and Tanadori, M.: Proc. of CHISA '87 (1987).
13. Hirschfelder, J.O., Curtiss, C.F., and Bird, R.B.: "Molecular Theory of Gas and Liquid", John & Sohns, New York (1964).
14. Sherwood, T.K., Pigford R.B., and Wilke, C.R.: "Mass Transfer", McGrawhill, Tokyo.