

현탁 이중 기포탑 내에서 현탁액의 순환에 관한 실험 및 이론적 연구

박찬진 · 도동섭

고려대학교 화학공학과
(1989년 3월 30일 접수, 1989년 7월 4일 채택)

An Experimental and Theoretical Study on the Circulation of Suspension in a Solid-Suspended Bubble Column with a Draft Tube

C.J. Park and D.S. Doh

Department of Chemical Engineering, College of Engineering, Korea University, Seoul, Korea

(Received 30 March 1989; accepted 4 July 1989)

요 약

화학 및 생화학 공정에서 자주 접할 수 있는 평균 입경 $100\text{ }\mu\text{m}$ 이하의 미세한 고체입자가 혼탁되어 있는 액체의 내부순환식 이중 기포탑 내에서의 기포교반에 의한 순환특성을 규명하기 위하여 추적자주입에 의한 체류시간 분포곡선의 해석으로 순환시간 및 확산 정도를 측정하였으며 동일한 조건에서 기포탑 내의 내관과 순환관에서 축방향에 대한 압력분포를 측정하여 각 영역의 정압력구배 및 국부기체체류량을 산출하였다. 혼탁액의 순환시간은 bubbly flow 영역 및 transition flow 영역에서 순수한 액체보다 감소하는 경향을 나타내었으며 이는 혼탁되는 고체입자에 의한 기포의 합체현상에 기인함을 알 수 있었다. 이를 설명하기 위하여 기포탑 내 순환유체를 대상부피로 하여 에너지수지를 세워서 각 영역의 국부기체체류량과 혼탁액의 밀도 및 내관과 외관의 면적비 그리고 내관의 길이에 의존하는 혼탁액의 순환속도에 관한 다행식을 유도하여 수치모사를 행한 결과 산출된 혼탁액의 순환속도로써 실험적으로 측정한 혼탁액의 순환특성을 적절히 표현할 수 있었다.

Abstract— The characteristics of circulation of slurry suspension by bubble-agitation in a bubble column with a draft tube have been studied in a 8.90 cm I.D. \times 150 cm high acryl column. The circulation time and the degree of dispersion of fluid were measured by the analysis of Residence Time Distribution which were obtained by the pulse input of tracer. Static pressure gradient and local gas holdup in the riser and downcomer sections were calculated using the measured pressure profile in each section. The circulation time of suspension was diminished compared with that of solid-free liquid in the bubbly and transition flow regimes. An energy balance was made over the circulating fluid in the bubble column as the control volume and from which a polynomial equation with a velocity of the suspension as a variable was obtained. The velocities of suspension calculated from the steady-state numerical simulation of the polynomial equation which is dependent on the local gas holdup of each section of bubble column, physical properties of suspension, the ratio of the cross-sectional area of inner to outer column and the length of the draft tube, could explain the characteristics of circulation of suspension in a solid-suspended bubble column with a draft tube very well.

1. 서 론

삼상 유동층 반응기 중에서 혼탁(suspension)되는 고체입자의 크기가 매우 작고 고체입자의 농도가 10 vol%이내 일 경우 유동화는 기체교반만으로도 이루어 질 수 있으며 이 경우 고체입자는 유동화상 (fluidized phase), 액체는 유동화 매체 (fluidizing medium), 기체는 입자교반에 필요한 에너지를 액체에 공급하게 된다[1, 2].

이와 같은 혼탁 기포탑은 기포에 의해서만 반응기 내 유체의 교반이 이루어지므로 장치가 비교적 단순하고 기계적 교반장치가 필요없으며 액상 체류시간의 신축성 있는 조절이 가능하다는 이점이 있고 생물학적 물질에게 낮은 전단응력이 주어지고 물질전달 및 혼합도가 우수하여 특히 폐수처리 및 발효공정에 많이 이용되고 있다[3-5].

그 중에서도 기포탑 내에 유체의 흐름을 구분지어주는 내관이 설치되어 있는 이중 기포탑은 단순한 기포탑보다 탑 내 상간의 혼합효과가 더욱 우수하며 이는 탑 내에 유입된 기체에 의해 내관에는 유체의 상향류가 조성되고 순환관에서는 하향류가 조성되어 전체적으로 안정된 순환류가 형성되기 때문이다.

공업적으로 널리 응용되는 이중 기포탑에 관하여 많은 연구자들은 기포탑 내부의 동적현상과 전달현상에 관한 다양한 연구를 행하여 왔으나 이러한 현상의 해석에 대한 이론적인 접근은 대부분 순수한 액체에서 수행되었다[6].

그러나 전술한 바와 같이 공업적으로 널리 사용되고 있는 기포탑에는 고체 입자가 첨가되어 공정이 수행되고 있는 경우가 대단히 많으며[7, 8], 이때에는 기포의 교반에 의한 슬러리 유동상에서의 전달현상에 관한 보다 체계적인 이론적 해석이 매우 중요한 문제로 대두된다.

특히 평균입경이 $100\text{ }\mu\text{m}$ 이하인 미세한 고체입자가 혼탁되어 있는 이중 기포탑 내에서 슬러리의 순환특성은 동일한 계의 열전달 및 물질전달 특성의 해석에 기초가 되는 정보를 제공하므로 순환특성에 관한 연구가 필수적임에도 불구하고 극히 미비한 상태이다.

따라서 본 연구에서는 순수한 액체에 미세한 입자군에 속하는 입자를 첨가한 후의 이중 기포탑 내에서 기체 속도와 입자의 크기 및 입자의 농도가 슬러리의 순환 특성에 미치는 영향을 연구 검토하여 삼상류에서의 흐름 특성을 규명하고자 하였다.

2. 이 론

2-1. 축방향 확산 모델에 의한 순환특성의 고찰

혼탁 이중 기포탑 내의 순환 슬러리에 대한 흐름특성을 고찰하는 데에 축방향 확산 모델을 적용할 수 있으며 유입되는 기체속도가 일정할 경우 기포탑 내의 내관과 순환관 사이에는 기체체류량의 차이에 기인하는 압력구배가 형성되며 이에 따라 기포탑 내에는 안정된 순환류가 형성된다. 이러한 유체의 순환은 Bodenstein 수와 유체의 순환시간을 매개변수로 하는 축방향 확산 모델로 나타낼 수 있으며 추적자가 계속적인 순환을 수행할 때에 추적자의 상대농도로써 다음과 같이 표시할 수 있다.

$$C_r = \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{Bo}{4\pi\tau} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(- \frac{d/L_c + n - \tau}{4\tau} \right)^2 Bo \quad (1)$$

여기에서 Bo 는 Bodenstein 수이고 τ 는 상대시간 그리고 d 는 추적자의 주입부와 검출부간의 거리, L_c 는 평균순환경로이며 n 은 유체의 순환횟수이다. 일반적으로 밀폐계의 재순환 현상은 위의 (1)식으로 잘 표현된다고 보고되고 있다[9-11].

2-2. 유체 순환속도의 산출

본 절에서는 기포탑 내 순환 유체에 대하여 에너지수지를 세우고 이에 의하여 유도된 유체속도에 관한 식을 내관과 외관에서의 국부기체체류량과 연관시키어 기포탑내의 혼탁액의 속도를 산출하여 혼탁액의 순환특성을 설명하고자 한다. 우선 기포탑 내부의 각 지역에 대한 상세도를 Fig. 1에 나타내었으며 그림과 같이 세분화된 영역을 각각 대상부피(control volume)로 하여 에너지수지를 세울 수 있다.

우선 기포탑에 유입된 에너지는 다음과 같은 이유로 소멸(dissipation)되는 데 이하 혼탁액의 속도를 유체(fluid)의 속도로 나타내기로 한다.

1. 내관을 통하여 상승하는 기포에 의한 에너지의 소멸.
2. 순환관에 존재하는 기포에 의한 에너지 소멸.
3. 기포탑의 상부 및 하부에서 유체의 방향 전환에 의한 에너지의 소멸.
4. 내관과 순환관에서 유체와 관벽면간의 마찰에 의한 에너지의 소멸.

Fig. 1에서의 각 영역에 대한 에너지수지를 다음과 같이 세울 수 있다. 이때 순환 슬러리의 물성치는 혼탁

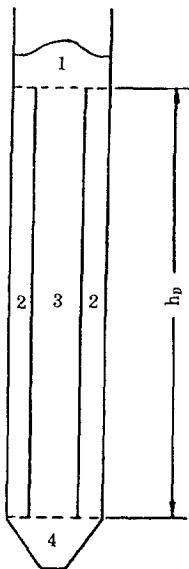


Fig. 1. Schematic diagram of bubble column for the representation of control volume.

액의 평균값을 나타내며 외관과 내관의 국부기체체류량은 각 영역 내에서 기포탑의 측방향에 관계없이 일정하고 순환 슬러리는 내관을 기준으로 안정된 흐름을 형성한다고 가정한다.

우선 distributor를 통하여 유입된 기체는 내관의 내부 영역을 기포형태로 상승하여 분출되며 이때 기체에 의한 유입 에너지, E_i 는 상승기포에 의한 에너지와 압력변화 및 위치변화에 의한 에너지 그리고 상승유체와 내관벽면간의 마찰에 의한 에너지로 소멸되며 그림의 영역 3을 대상부피(control volume)로 하였을 때 다음과 같이 표현된다.

$$E_i = E_{bi} + \{P_{ta} - [P_{ta} + \rho_{SL}gh_D(1 - \epsilon_{ci})U_{SLi}A_i]\} + \rho_{SL}gh_DU_{SLi}A_i + 2\rho_{SL}h_Df_iU_{SLi}^3A_i/d_i \quad (2)$$

여기에서 E_{bi} 는 내관의 상승기포에 의한 에너지소멸속도이고 P_{ta} 는 내관상부의 압력, 그리고 A_i, d_i 는 각각 내관의 단면적 및 내경이다.

이 식을 내관에서의 상승기포에 의한 에너지소멸속도, E_{bi} 에 관하여 정리하면 다음과 같이 표시된다.

$$E_{bi} = E_i - \rho_{SL}gh_DU_{SLi}\epsilon_{ci}A_i - 2\rho_{SL}h_Df_iU_{SLi}^3A_i/d_i \quad (3)$$

여기에서 f_i 는 Fanning friction factor이며 다음과 같이 표시된다.

$$f_i = 0.079 \left(\frac{\rho_{SL}U_{SLi}d_i}{(1 - \epsilon_{ci})\mu_{SL}} \right)^{-0.25} \quad (4)$$

여기에서 ρ_{SL}, μ_{SL} 는 각각 현탁액의 평균밀도 및 점도이고 ϵ_{ci} 는 내관의 국부기체체류량이다.

한편 순환관과 내관 사이의 환형(annulus)공간인 영역 2를 대상부피로 하여 에너지 수지식을 세우면 다음과 같다.

$$0 = E_{bo} + \{[P_{ta} + \rho_{SL}gh_D(1 - \epsilon_{co})U_{SLo}A_o] - P_{ta}\} - \rho_{SL}gh_DU_{SLo}A_o + 2\rho_{SL}h_Df_oU_{SLo}^3A_o/d_e \quad (5)$$

여기에서 E_{bo} 는 순환관에 존재하는 기포에 의한 에너지 소멸속도이고 P_{ta} 는 순환관 상부의 압력, A_o 는 순환관의 단면적을 나타낸다. 그리고 d_e 는 annulus의 상당직경(equivalent diameter)으로서 $d_o - d_r$ 와 같으며 f_o 는 다음과 같이 표현된다.

$$f_o = 0.085 \left(\frac{\rho_{SL}U_{SLo}d_e}{(1 - \epsilon_{co})\mu_{SL}} \right)^{-0.25} \quad (6)$$

여기에서 ϵ_{co} 는 순환관의 국부기체체류량을 나타낸다.

이 식을 순환관에서의 기포에 의한 에너지 소멸, E_{bo} 에 관하여 정리하면 다음과 같다.

$$E_{bo} = \rho_{SL}gh_DU_{SLo}A_o\epsilon_{co} - 2\rho_{SL}h_Df_oU_{SLo}^3A_o/d_e \quad (7)$$

한편 기포탑 내 탑 상부와 탑 하부(그림의 영역 1과 영역 2)에서의 에너지 소멸은 도관 내를 흐르는 유체가 방향 전환시 겪는 마찰 손실에 의한 에너지 손실로 간주하여 산출할 수 있으며 이에 의거하여 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$E_b + E_t = \frac{1}{2} \rho_{SL} [V_{SLi}^2 f_{Db} A_o (1 - \epsilon_{ci}) + V_{SLi}^2 f_{Dt} A_i (1 - \epsilon_{ci})] \quad (8)$$

여기서 f_{Db} 와 f_{Dt} 는 Darcy-Weinsbach friction factor이며 유체의 방향 전환에 의한 에너지 손실을 나타낸다.

한편 실제의 유체속도와 공탑 유체속도간에는 다음 관계가 성립된다.

$$V_{SLi}(1 - \epsilon_{ci}) = U_{SLi} \quad (9)$$

$$V_{SLo}(1 - \epsilon_{co}) = U_{SLo} \quad (10)$$

그리고 내관과 순환관간에는 정상상태에서 다음과 같은 연속방정식이 성립된다.

$$A_o(1 - \epsilon_{co})V_{SLo} = A_i(1 - \epsilon_{ci})V_{SLi} \quad (11)$$

(8)식을 공탑 유체속도에 관한 표현식으로 고쳐서 정리하면 다음과 같다.

$$E_b + E_t = \frac{1}{2} \rho_{SL} [U_{SLi}^2 f_{Db} (\frac{A_i}{A_o})^2 \frac{A_o}{(1 - \epsilon_{co})^2}] \quad (12)$$

$$+ U_{SLt}^3 f_{Dt} \frac{A_t}{(1 - \epsilon_{Gt})^2}] \quad (12)$$

그리하여 에너지 수지식을 세우고 (3)-(12)식을 대입 정리하면 다음과 같다.

$$0 = \rho_{SL} g h_b U_{SLt} A_t \epsilon_{Gt} - \rho_{SL} g h_b U_{SLt} A_o \epsilon_{Co} + 2 \rho_{SL} h_b \\ (f_i U_{SLt}^3 A_t / d_t + f_o U_{SLt}^3 A_o / d_e) - \frac{1}{2} \rho_{SL} U_{SLt}^3 A_t \\ [f_{Dt} / (1 - \epsilon_{Gt})^2 + (A_t / A_o)^2 f_{Db} / (1 - \epsilon_{Co})^2] \quad (13)$$

이때 내부 순환식 기포탑의 경우 탑 상부에서의 유체의 방향 전환에 의한 에너지 손실은 탑 하부에서의 유체의 방향 전환에 의한 에너지 손실에 비하여 무시할 정도로 작으며 이는 탑 하부의 밀폐된 흐름 경로에 비하여 탑 상부는 대기 중에 개방되어 있어 유체의 방향 전환이 용이하기 때문이다[12]. 그러므로 탑 상부에서의 유체의 방향 전환에 의한 에너지 손실에 해당하는 항을 지운 후 friction factor를 대입하고 유체 속도에 관하여 implicit form으로 정리하면 다음과 같다.

$$U_{SLt}^2 \left[\left(\frac{A_t}{A_o} \right)^2 \frac{f_{Db}}{(1 - \epsilon_{Co})^2} \right] - 4 h_b U_{SLt}^{1.75} \\ \left\{ \frac{0.079}{d_t} \left[\frac{\rho_{SL} d_t}{(1 - \epsilon_{Gt}) \mu_{SL}} \right]^{-0.25} + \left(\frac{A_t}{A_o} \right)^2 \frac{0.085}{d_e} \right. \\ \left. \left[\frac{A_t}{A_o} \frac{\rho_{SL} d_e}{(1 - \epsilon_{Co}) \mu_{SL}} \right]^{-0.25} \right\} - 2 g h_b (\epsilon_{Gt} - \epsilon_{Co}) = 0 \quad (14)$$

이 식을 다음과 같이 간단한 함수형태로 나타낼 수 있다.

$$f(U_{SLt}) = AU_{SLt}^2 - BU_{SLt}^{1.75} - C = 0 \quad (15)$$

여기서 A, B, C는 다음과 같다.

$$A = \left(\frac{A_t}{A_o} \right)^2 \frac{f_{Db}}{(1 - \epsilon_{Co})^2} \quad (16)$$

$$B = 4 h_b \left\{ \frac{0.079}{d_t} \left[\frac{\rho_{SL} d_t}{(1 - \epsilon_{Gt}) \mu_{SL}} \right]^{-0.25} + \left(\frac{A_t}{A_o} \right)^2 \frac{0.085}{d_e} \right. \\ \left. \left[\frac{A_t}{A_o} \frac{\rho_{SL} d_e}{(1 - \epsilon_{Co}) \mu_{SL}} \right]^{-0.25} \right\} \quad (17)$$

$$C = 2 g h_b (\epsilon_{Gt} - \epsilon_{Co}) \quad (18)$$

또한 f_{Db} 는 다음과 같이 표현된다[13-15].

$$f_{Db} = 11.402 (A_o / A_b)^{0.789} \quad (19)$$

여기에서 A_b 는 기포탑 하부의 유체의 자유통과영역을 나타낸다.

위의 식을 이용하여 각 실험조건에 대한 정상상태의 혼탁액의 속도를 수치해석에 의하여 산출해 낼 수 있다.

3. 실험

3-1. 실험장치 및 방법

본 연구에서 내부 순환식 이중 기포탑에서의 기포교반에 의한 혼탁액의 순환특성을 해석하기 위하여 사용한 실험장치는 Fig. 2에 나타낸 바와 같다. 이중 기포탑은 주탑이 내경 8.90 cm, 길이 150 cm이고 두께 6 mm인 원통형 아크릴 수지로 제작되었고 내관은 내경 5.63 cm, 길이 90 cm 그리고 두께 1 mm의 동일한 재질로 제작되어 분배기(distributor)에서 5.2 cm 상단에 고정시켰다. 분배기는 탑 하부에 입자가 쌓이는 것을 방지하기 위하여 아크릴 수지를 각도 60°의 원추형으로 제작한 다음 하부에 내경 3.0 cm인 분산판을 부착하였고 분산판 하부에는 기체가 균일한 속도로 유입되도록 길이 12 cm의 calming section을 두었다. 분산판은 기공 직경이 100 μm인 Vyon porous plate를 사용하였다. 기포탑의 벽에는 탑 내의 정압을 측정하기 위하여 pressure tap을 순환관측에 9개, 내관측에 6개를

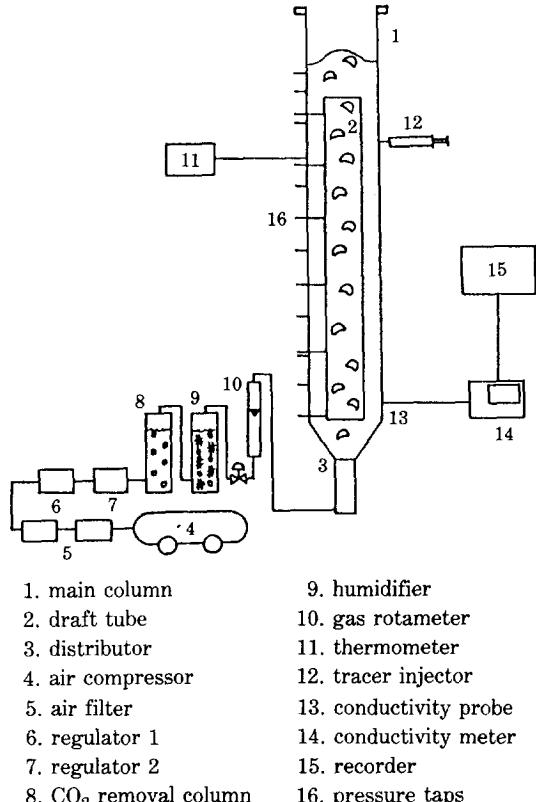


Fig. 2. Schematic diagram of experimental apparatus.

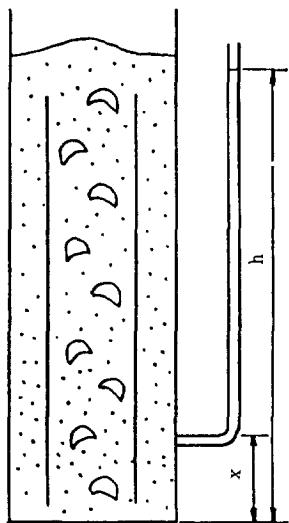


Fig. 3. Measurement of local pressure along the height of bed.

설치하고 각 tap에는 L형 manometer를 설치하여 액주의 높이를 읽을 수 있게 하였다.

기포탑 내 현탁액의 순환시간측정을 위한 conductivity probe는 가로, 세로가 각각 7mm인 정사각형 백금판 2장을 7mm 간격으로 평행하게 두었고 백금 전극은 표면이 검게 되도록 platinization 시킨 후 분산판에서 높이 8cm 되는 지점에 순환관측으로 부착하여 추적자를 검지하도록 하였다. 그리하여 각 실험조건에 대하여 추적자를 분산판으로부터 84cm 상부지점의 순환관에 설치된 syringe를 이용하여 1회에 5cc를 가능한 한 impulse input 형태로 주입하고 conductivity probe로 conductivity를 읽어 들여 conductivity meter에 연결된 recorder를 이용하여 시간에 대한 추적자의 농도변화를 기록하였고 이 곡선에서 현탁액 내 추적자의 확산 정도, 순환 및 혼합시간을 산출하였다. 이때 conductivity 값과 농도값은 미리 calibration 하였고 실험범위 내에서 두 측정치간에 선형관계가 성립됨을 확인하였다. 추적자로는 3M의 sodium chloride 용액을 이용하였고 이같은 추적자의 존재가 탑 내 기포의 거동에 거의 영향을 주지 않음을 확인하였다. 총괄 기체체류량은 bed expansion measuring technique를 이용하여 다음 식에 의하여 산출하였다.

$$\varepsilon_c = \frac{H_e - H_s}{H_e - (Vd/So)} \quad (20)$$

여기에서 H_e 는 팽창된 층높이이며 H_s 는 초기 층높이, Vd/So 는 내관이 차지하는 부피에 대한 보정치이다.

한편 순환관 및 내관의 국부기체체류량은 Fig. 3에서와 같이 각 실험조건에 따른 기포탑 내의 축방향에 대한 정압을 측정하여 다음의 식으로 산출하였다.

$$\varepsilon_{ci} = 1 + \frac{\rho_L d (h - x)}{\rho_{SL} dx} \quad (21)$$

여기에서 ρ_L 및 ρ_{SL} 은 각각 순수한 액체와 슬러리의 밀도이고 h 와 x 는 각각 기체분산판을 기준으로 한 manometer의 액주 높이 및 압력 tap이 위치한 거리이다.

한편 추적자를 주입하여 얻은 RTD 곡선에서 각 peak의 간격에서 평균시간을 구하여 유체 element의 순환시간을 측정하였으며 식 (1)과 비교분석하여 Bodenstein 수를 구하였다. 한편 현탁액의 순환속도는 (15)식을 각 실험조건에 대하여 Newton-Raphson의 iteration method로 처리하여 산출하였으며 산출된 현탁액의 순환속도를 유체순환의 평균행로에 대하여 나누어 주어 현탁액의 순환시간을 산출하고 실험값과 비교분석하였다. 혼합시간은 추적자가 주입된 시간부터 농도의 변이가 최초와 최종 농도차의 5%이내에 들 때 까지의 시간경과를 측정하여 구하였다. 한편 현탁액의 점도는 Vand[16]의 식을 이용하였으며 그 식은 다음과 같다.

$$\mu_{SL} = \mu_L (1 + 2.5\phi_s + 7.17\phi_s^2 + 16.2\phi_s^3) \quad (22)$$

3-2. 실험재료 및 실험변수범위

실험에 사용된 시료는 Union 및 Ferro 사의 glass beads이며 평균 밀도는 2.450g/cm³이다. 고체입자는 진동체에서 충분한 진동시간을 주어 균일한 입자 분포를 갖게 하였고 PSA(Particle Size Analyzer)를 이용하여 입자의 평균직경을 구하였으며 SEM(Scanning Electron Microscope)으로 입자의 형태를 촬영하여 입자가 구형임을 확인할 수 있었다. 실험변수의 범위는 Table 1과 같다.

Table 1. Experimental conditions

Variables	Condition of operations
Mean diameter of glass beads (μm)	47.0, 69.0, 91.0
Slurry concentration (vol %)	2.0, 4.0, 6.0
Superficial gas velocity based on cross-sectional area of outer column (cm/sec)	1.60, 2.10, 3.10, 4.20, 5.20

4. 결과 및 고찰

4-1. 흐름영역

기포탑 내의 흐름특성은 유체의 속도, 유체의 물성치 및 탑경의 크기에 따라 결정되며 이러한 흐름특성은 순환유체의 열 및 물질전달속도, 운동량 손실, 역혼합(backmixing) 및 각 상의 체류량에 큰 영향을 미치게 되며 각 흐름영역은 bubbly flow, transition flow, slug flow 및 churn turbulent flow로 대별할 수 있다[17].

본 연구의 실험범위는 공탑 기체속도와 탑경에 따라 흐름영역을 구분하여 놓은 Barnea의 흐름영역 도표에 의하면[18, 19] Fig. 4와 같으며 그림에서 알 수 있듯이 실험범위를 외관에 대하여 환산한 공탑 기체속도로 나타내면 A의 경우에 속하고 내관에 대하여 나타낼 경우에는 B의 경우에 해당된다.

A의 경우 외관을 기준으로 한 공탑 기체속도가 1.60-3.10 cm/s 일 때에는 bubbly flow 영역에 속하고 4.20-5.20 cm/s 일 경우에는 transition flow 영역이 되지만 본 실험에서 기포는 주로 내관을 통하여 상승하면서 흐름특성을 형성하므로 그림의 B에 해당되며 외관을 기준으로 한 공탑 기체속도가 1.60-2.10 cm/s 일 경우 내관에 대해서는 공탑 기체속도가 3.90-5.10 cm/s 이 되므로 bubbly 및 transition flow 영역에 속하고 외관에 대한 값이 3.10-5.20 cm/s 일 때에는 내관에 대해서는 7.50-12.50 cm/s 이 되므로 slug flow 영역에 해당된다. 실제로 기-액 2상류를 관찰한 결과 B에 해당되는 흐름특성이 형성됨을 확인할 수 있었다.

4-2. 기체체류량 및 압력분포특성

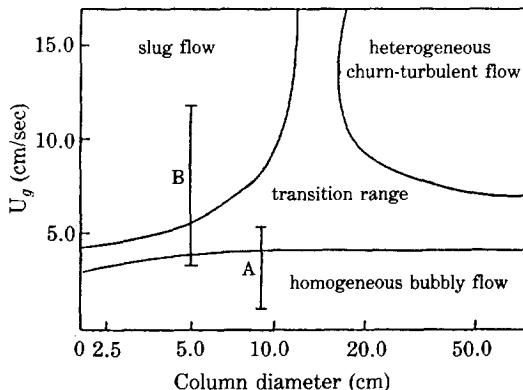


Fig. 4. Flow regime chart based on column diameter and superficial gas velocity.

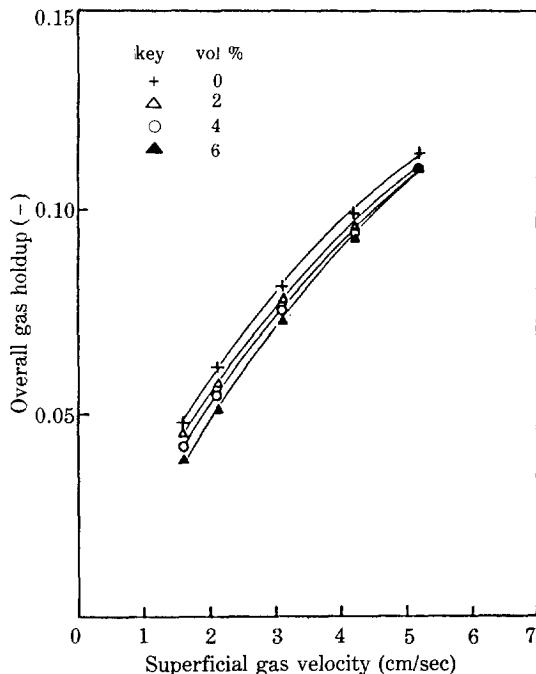


Fig. 5. Effect of superficial gas velocity on the overall gas holdup ($\bar{d}_p = 91.0 \mu m$).

기체체류량은 기체의 체류시간과 유효계면적 및 유체의 순환에 영향을 미치는 중요한 변수이다[20]. 첨가입자의 크기와 농도에 따라서 기체의 체류량이 달라질 경우 이러한 현상은 기포의 합체현상과 이에 따른 흐름형태의 전이와 밀접한 관계를 갖게 된다. 공탑 기체속도가 총괄기체체류량(overall gas holdup)에 미치는 영향을 고체의 농도를 매개변수로 하여 나타낸 그림이 Fig. 5이다. 총괄기체체류량은 순수 액체에 비하여 입자가 혼탁이 되어 있는 경우에 작게 나타났고 전반적으로 입자의 크기가 커질수록 그리고 고체농도가 증가할수록 감소하는 경향을 나타내었다. 이러한 경향은 특히 낮은 기체유속(bubbly flow에서 transition flow에 이르는 영역)에서 입자크기 전반에 걸쳐서 뚜렷이 나타나며 이는 입자첨가에 의해 내관을 통하여 액상을 상승하는 기포의 합체 때문이고 이에 따라서 기포의 크기(dvs : volume-surface mean diameter)가 증가하게 된다. 고체입자의 크기가 총괄기체체류량에 미치는 영향을 Fig. 6에 나타내었다. Fukuma 등[21]은 슬러리기포탑 내에서 이중 전기저항 탐침법을 이용하여 기포의 크기 및 상승속도를 측정하였는데 낮은 기체유속에서 고체입자를 첨가시킨 결과 기포크기분포, 속도분포의 변화 및 흐름의 영역이동을 관찰하였다고 발표하였는데 이같은 결과는 본 실험의 입자첨가에 의한 흐름

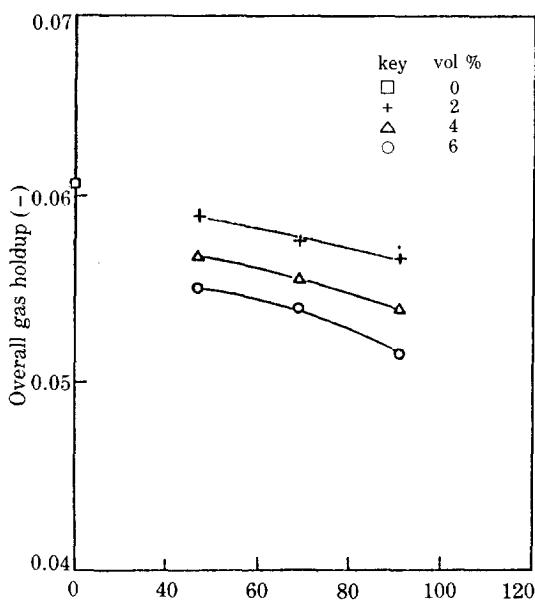


Fig. 6. Effect of particle size on the overall gas holdup ($U_{go} = 2.10 \text{ cm/sec}$).

영역의 전이발생과 그 경향이 일치된다. 기체 유속이 점차 증가하여 slug flow로 접어 들면서 입자가 기체 체류량에 미치는 영향은 감소하여 거의 차이가 없어지게 된다.

총괄기체체류량과 실험 변수간의 주어진 조건 내에서의 상관 관계식은 다음과 같다.

$$\varepsilon_c = 0.202 U_c^{0.783} d_p^{-0.100} (1 - \phi_s)^{1.155} \quad (23)$$

이때에 상관계수는 0.997이고 표준 편차는 0.149이다.

한편 공탑 기체속도가 국부기체체류량(local gas holdup)에 미치는 영향을 고체 입자농도를 매개변수로 하여 나타낸 그림이 Fig. 7이다. 그림에서 볼 수 있듯이 국부기체체류량은 실험범위 전반에 걸쳐서 공탑 기체속도가 증가함에 따라 내관에서는 선형적인 증가를 나타낸 반면 외관에서는 기체체류량의 증가율이 감소하였으며 입자의 첨가에 대해서는 총괄기체체류량의 경향과 동일한 경향을 나타내어 내관의 경우 첨가입자의 농도와 크기가 증가함에 따라서 순수한 액체에 비하여 감소하는 경향을 나타내었고 외관도 유사한 경향을 보였는데 이는 내관의 상승기포가 합체되면 외관으로 비밀동반되는 기포의 갯수가 감소하고 이에 따라 국부기체체류량도 감소하기 때문이다.

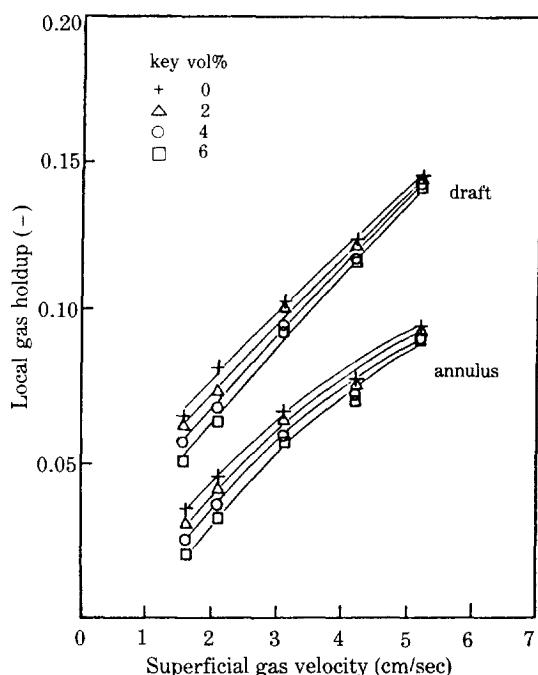


Fig. 7. Effect of superficial gas velocity on the local gas holdup ($\bar{d}_p = 91.0 \mu\text{m}$).

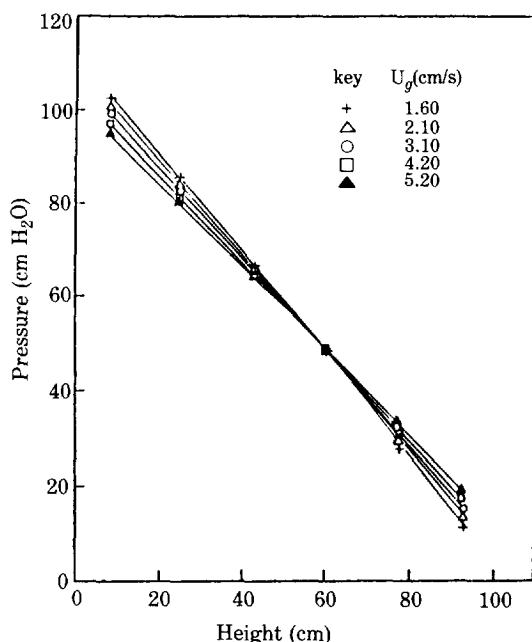


Fig. 8. Pressure profile along the height of bed in the draft tube ($\bar{d}_p = 69.0 \mu\text{m}$, $\phi_s = 6 \text{ vol } \%$).

탑 내 유동층의 축방향 높이에 따른 압력분포를 공탑 기체속도를 매개변수로 나타낸 그림이 Fig. 8이다. 그림은 내관에서의 경향을 나타낸 것이며 전반적으로 공탑 기체속도의 증가에 따라 압력의 기울기가 증가함을 알 수 있다. 여기에서 각 조건에 대한 정압력구배를 산출할 수 있으며 Fig. 9, 10에 공탑 기체속도가 탑 내의 정압력구배 (static pressure gradient)에 미치는 영향을 고체농도를 매개변수로 하여 나타내었다. 이때에 정압력구배는 기포탑 내에서 유동화되는 슬러리의 축방향으로의 압력분포를 나타내는 변수이며 상체류량의 산출에 필수적인 정보를 제공한다. 그림에서 알 수 있듯이 정압력구배는 내관 및 순환관에서 모두 공탑 기체속도의 증가에 따라 그리고 입자크기 및 농도가 감소할수록 증가한다. 한편 분배기에서 생성된 기포는 액체에 에너지를 공급하고 액체는 입자를 유동화시키게 되는데 이 때 혼탁상태에서 축방향의 입자농도 분포는 입자의 크기와 농도에 따라 달라지고 새롭게 상승되는 기포는 같은 입자의 축방향 분포의 영향을 받게 된다. 내관을 상승하는 기포의 합체현상이 심화되면 내관 및 외관의 국부기체체류량이 감소되고 이에 따라 탑 내의 정압력구배도 감소하게 된다. 그리고 공탑기체속도 증가에 따른

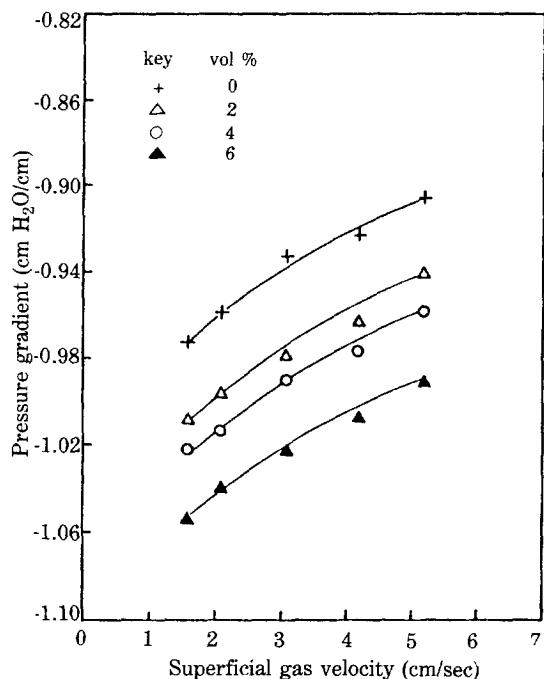


Fig. 10. Effect of superficial gas velocity on the pressure gradient in the annulus ($\bar{d}_p = 91.0 \mu\text{m}$).

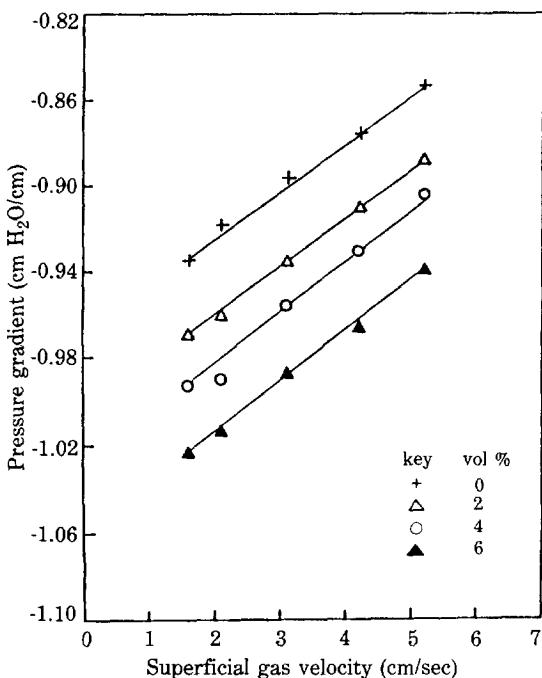


Fig. 9. Effect of superficial gas velocity on the pressure gradient in the draft tube ($\bar{d}_p = 91.0 \mu\text{m}$).

압력구배의 증가는 다소 그 양상이 달라서 내관에서는 선형적인 증가를 나타낸 반면에 외관에서는 압력구배의 증가율이 감소하여 입자첨가에 의한 국부기체체류량의 경향과 일치하고 있다. McMath[22]는 순수한 액체가 흐를 경우보다 비콜로이드성 고체입자가 첨가되었을 때에 같은 조건에서 압력구배가 감소됨을 관찰하였고 이러한 경우 압력두손실이 감소되어 pumping 효율을 높일 수 있다고 보고하였으며 다른 학자들[23-25]도 동일한 결과를 보고하였는 바, 본 실험의 결과와 일치됨을 알 수 있다.

4-3. 순환특성

상승기포만이 탑 내의 액상을 통과하면서 고체입자의 혼탁에 필요한 에너지(운동량)를 공급하는 gas-spared bubble column[26]에서 기포의 거동은 유체의 순환특성과 가장 밀접한 관계를 지니게 된다[27]. 이는 내관을 통하여 상승하는 기포군(bubble swarm)에 의한 내관과 외관의 밀도차가 유체순환의 주된 기전력이 되기 때문이다. 입자는 액체의 상승속도가 입자의 침강 속도보다 커질 때에 유동화되기 시작하여 이후에는 항력에 의하여 입자의 혼탁이 유지된다[28]. 이때 탑 내에

형성되는 입자의 농도 분포는 sedimentation-dispersal 모델에 의하여 표현되며[29] 기체의 유입속도가 일정할 때 고체입자의 크기와 농도에 따라서 각각 상이한 농도분포를 형성하게 된다. 이러한 축방향에 대한 입자 농도분포의 차이가 기포의 거동에 영향을 주어 기포합체를 야기하게 된다. 즉 탑 하부의 고체입자농도가 증가하면 상승기포의 자유상승영역은 그만큼 감소하며 이에 따라 기포와 기포간의 충돌확률도 높아져서 그만큼 기포의 합체현상이 증가된다. 또한 일정한 기체유속에서 축방향에 대한 고체입자의 불균일분포에 의한 유동층 하부에서의 정압(static pressure)이 높아져서 기포상승의 방해요인으로 작용하여 기포합체를 야기시킨다. 한편 입자농도증가에 의한 슬러리 점도의 증가도 기포합체의 또 다른 원인이라고 사료된다. 한편 기포는 탑 내의 액상을 통하여 상승 및 팽창되면서 액상에 에너지를 공급하는 데 실제 유입된 기체의 모든 에너지가 액체운동에 쓰이지는 않으며 일부는 기체와 액체, 액체와 고체간의 미끄러짐(slip)에 의한 난류 에너지 소멸에 의해 소멸된다[28].

내관에 기체가 유입되면 내관과 순환관간에는 기체체류량의 차이에 기인하는 상이한 압력구배가 형성되어 이에 따라 안정된 순환류가 형성된다. 본 실험에 사용

된 내부순환식 이중 기포탑은 외부로부터의 액체 공급 없이 단순히 기체의 유입만으로 기-액 병류흐름이 형성되며 이때 기체 유입에 의한 내관에서의 상승유체의 속도는 전술한 (15)식에 의하여 유도해 낼 수 있으며 외관에서의 유체속도도 (11)식을 이용하여 구할 수 있는데 산출된 결과에 의하면 순환유체의 유속은 내관 및 순환관의 평균 기체체류량의 차와 순환유체의 방향 전환에 의한 에너지의 소멸 그리고 유체와 벽면간의 마찰손실에 의하여 결정되며 이 중에서 탑 하부에서의 유체의 방향 전환에 의한 에너지 소멸과 내관과 순환관간의 평균 밀도차가 가장 중요한 변수로 작용한다.

4-3-1. 기체속도의 영향

공탑 기체속도가 순환시간에 미치는 영향을 입자 농도를 매개변수로 하여 나타낸 그림이 Fig. 11이다. 순환시간은 공탑 기체속도가 증가할수록 처음에는 급격히 감소하다가 흐름 영역이 transition flow에서 slug flow로 옮겨감에 따라 그 감소율이 점차 감소하는 데 이것은 낮은 기체속도에서 형성되었던 외관과 내관간의 국부기체체류량의 차이에 기인한 큰 밀도차가 기체속도가 증가하게 되면 상승기포가 순환유체를 따라 티말동반(entrainment)되면서 점차 줄어들어 순환기전력이

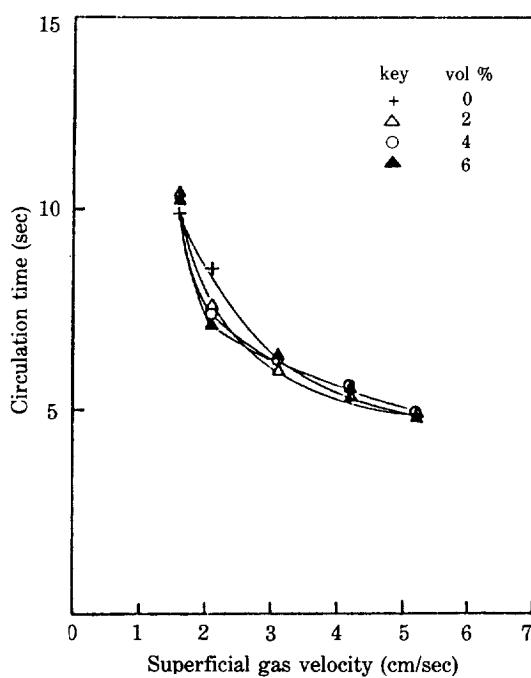


Fig. 11. Effect of superficial gas velocity on the circulation time ($\bar{d}_p = 91.0 \mu\text{m}$).

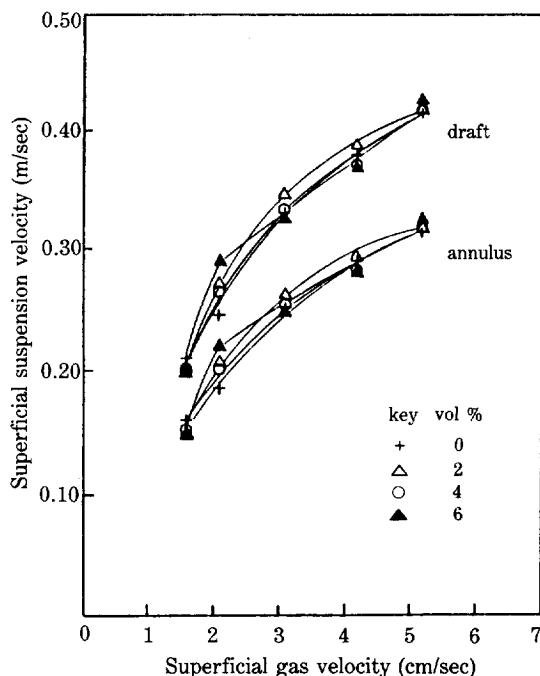


Fig. 12. Superficial suspension velocity calculated by energy balance method ($\bar{d}_p = 91.0 \mu\text{m}$).

감소하기 때문이다. 기포의 순환은 액체의 외관에서의 하강속도가 기포의 종말상승속도보다 커지면 시작되며 낮은 기체속도에서는 순환관에서 기포의 존재영역과 부재영역의 경계면이 존재하나 기체속도가 증가할수록 점차 하강하며 높은 기체속도에서는 이같은 경계면이 완전히 아래로 사라지고 내관과 순환관을 통하여 기포가 순환하는 완전한 기체의 재순환(recirculation)이 이루어진다.

이러한 경향을 설명하기 위하여 이론식에 의하여 산출한 내관 및 외관에서의 혼탁액의 공립속도를 고체입자의 농도를 매개변수로 하여 공립 기체속도의 변화에 대하여 나타낸 그림이 Fig. 12이며 전술한 순환시간의 경향과 정성적으로 일치되는 경향을 나타냄을 알 수 있다. 이때에 내관의 혼탁액속도는 상향류의 속도를 의미하고 외관의 혼탁액의 속도는 하향류의 속도를 의미한다.

4-3-2. 입자 크기의 영향

본 실험에 사용된 glass beads의 크기는 기포의 합체를 야기시키는 입자군에서 비교적 작은 크기에 속하는 것이며[30] 많은 연구자들이 본 입자 영역에서의 기포의 거동에 관하여 연구하였다[31-34].

현탁 입자의 영향에 의한 기포의 합체는 주로 bubbly flow 영역에서 관찰되며 입자가 순환시간에 미치는 영향을 살펴보면 슬러리의 비중이 순수 액체의 비중보다 크므로 순환시간도 증가하여야 하나 Fig. 11에서 알 수 있듯이 평균입경 $91.0 \mu\text{m}$ 인 입자가 현탁되었을 때 공립 기체속도가 2.10 cm/s 일 때에는 순환시간이 감소되는 것을 알 수 있다. 이는 입자의 존재에 의한 합체 현상으로 기포의 수직길이가 커지고 이에 따라 기포의 상승속도가 증가하여 액체 순환을 촉진시키기 때문이라고 생각된다. 기포의 상승속도는 다음과 같이 Davies-Taylor 방정식으로 나타낼 수 있다[34-37].

$$Ub = k\sqrt{g \cdot dvs} \quad (24)$$

이 식에 의하면 기포합체에 의한 기포경의 증가는 기포 상승속도의 증가를 초래하게 된다. 또한 이러한 현상은 나머지 입자에서도 기체속도 $1.60-3.10 \text{ cm/s}$ 영역에서 관찰되었으며 에너지 수지식에서 산출한 유체속도도 동일한 경향을 나타내었다. Fig. 13에 고체입자의 크기가 유체순환에 미치는 영향을 입자농도를 매개변수로 하여 나타내었으며 그림에서 알 수 있듯이 입자농도가 6 vol%일 때에는 입자크기증가에 따라 순환시간이 감소 하지만 전반적으로는 뚜렷한 경향을 나타내지 않는다. 이러한 사실은 다음에 나타낼 (22)식의 순환시간의 입

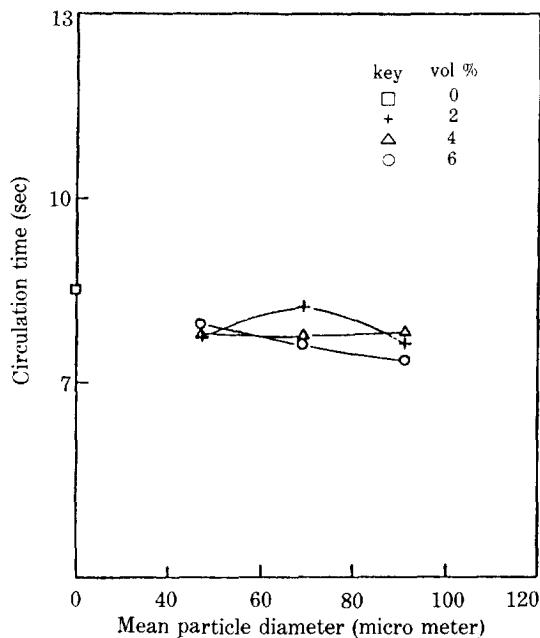


Fig. 13. Effect of particle size on the circulation time ($U_{go} = 2.10 \text{ cm/sec}$).

자크기에 대한 기여도에서 확인할 수 있다. 이것은 전반적으로 액체 순환은 입자가 클수록 합체 현상이 심화되어 순환속도가 증가될 것으로 예상되나 입자의 크기가 증가함에 따라 종말속도도 증가하고 이에 따라 액체와 고체간의 미끄러짐 현상이 증가하여 순환시간은 기포의 크기와 액체 - 고체간의 slip 속도의 영향을 받게 되므로 뚜렷한 경향을 나타내지 않는 것으로 사료된다.

4-3-3. 입자 농도의 영향

입자의 농도가 증가함에 따라 액체의 순환시간은 공립속도가 $1.60-3.10 \text{ cm/s}$ 인 영역에서 평균입경이 $91.0 \mu\text{m}$ 인 입자의 bubbly flow 영역을 제외하고는 순수한 액체에 비해 전반적으로 감소하였으며 공립 기체속도가 2.10 cm/s 일 때에 가장 뚜렷하였다. 이같은 경향은 기포의 합체 현상에 의한 기포의 상승속도와 고체입자크기에 따른 고 - 액체간의 slip 속도의 대소에 따라 결정된 결과이다.

기포의 합체 현상은 슬러리의 혼합 효과와 관련되며 입자농도의 증가에 의해 합체 현상이 심화되면 큰 기포의 형성으로 순환관으로 비밀동반되는 작은 기포의 유입량이 감소되어 순환관 내의 평균 기체체류량도 감소하게 된다. 반대로 합체 현상이 감소되면 순환관으로 많은 기포가 비밀동반되며 이로 인하여 액체혼합의 기전력이 감소하여 순환조의 효율면에서는 바람직하지 못하

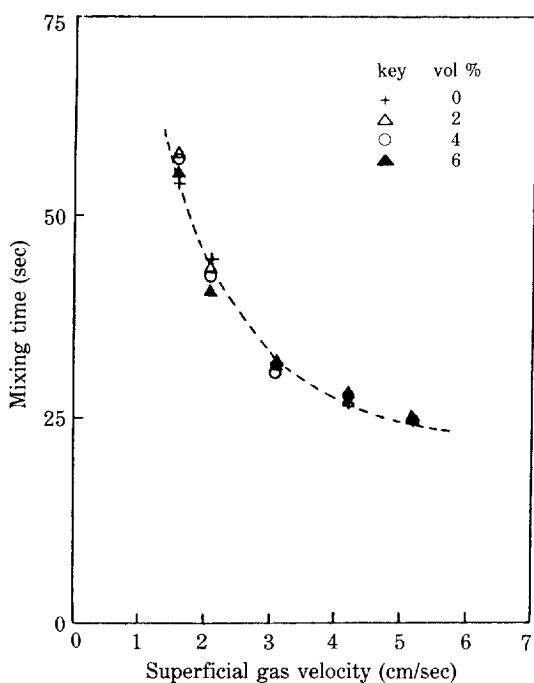


Fig. 14. Effect of superficial gas velocity on the mixing time ($\bar{d}_p = 91.0 \mu\text{m}$).

게 된다. Fukuma 등[34]에 의하면 액체에 입자를 첨가하였을 때 기포의 길이분포 및 속도분포는 동일한 조건에서의 순수한 액체의 경우보다 큰 영역으로 이동하였고 흐름 영역도 bubbly flow에서 heterogeneous flow 영역으로 이동하는 경향을 나타내었다고 발표하였으며 이러한 사실은 본 실험결과를 잘 뒷받침하여 주고 있다.

유체의 평균 순환시간과 실험변수간의 주어진 조건에서의 상관 관계식은 다음과 같다.

$$t_c = 2.917 U_g^{-0.541} \cdot (1 - \phi_s)^{0.295} \quad (25)$$

이때에 상관계수는 0.982이고 표준 편차는 0.104이었다.

한편 혼합시간(mixing time)의 공탑 기체속도에 대한 변화를 고체입자의 농도를 매개변수로 하여 나타낸 그림이 Fig. 14이다. 혼합시간은 대체적으로 순환시간과 비슷한 경향을 나타내었는데 이는 기포가 합체될수록 탑 상부의 난류형성이 촉진되고 혼탁액의 순환시간도 감소되므로 혼합효과가 높아지기 때문이다. Fig. 15는 공탑 기체속도가 Bodenstein 수에 미치는 영향을 입자 농도를 매개변수로 하여 나타낸 그림이며 Bodenstein 수는 전반적으로 기체유속의 증가에 따라 감소하며 기포의 합체 현상의 민감한 영향을 받게 되어 고체

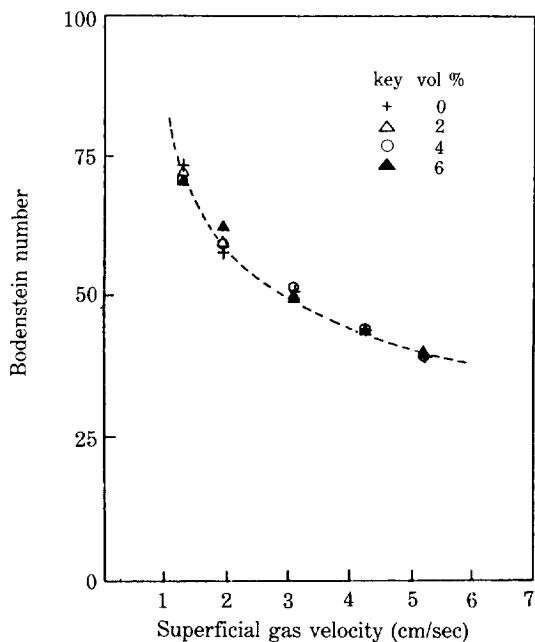


Fig. 15. Effect of superficial gas velocity on the Bodenstein number ($\bar{d}_p = 69.0 \mu\text{m}$).

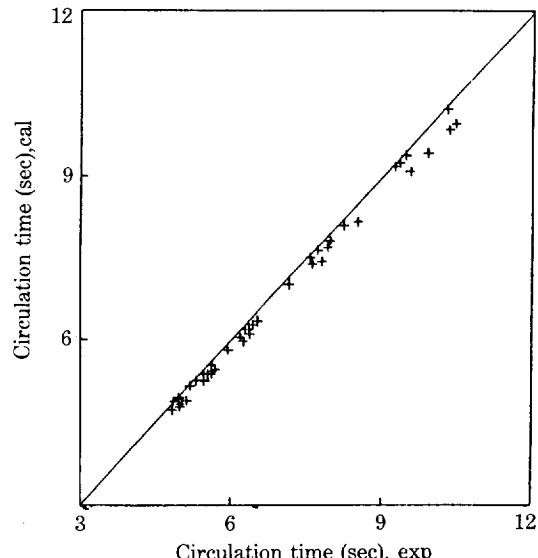


Fig. 16. Comparison of experimental values of circulation time with calculated ones.

입자에 의한 기포의 합체가 뚜렷할 때에는 기-액 2상류의 경우보다 큰 값을 갖게 된다.

Fig. 16은 에너지수지에 의하여 산출해 낸 혼탁액의 내관과 외관에서의 공탑속도를 평균순환경로에 대하여 나누어 산출한 이론적 순환시간과 추적자 주입에 의한

실험적 순환시간을 비교한 값이며 전반적으로 잘 일치됨을 알 수 있다.

5. 결 론

이중 기포탑 내에서 순수한 용액에 고체입자를 첨가하였을 때 첨가입자가 기포의 교반에 의한 순환 액체의 순환특성에 미치는 영향을 연구 검토하기 위하여 고체입자의 농도를 2.0-6.0 vol%, 탑 내에 유입되는 공탑 기체속도를 1.60-5.20 cm/s로 변화시키고 평균입경 47.0-91.0 μm 인 고체입자에 대하여 실험을 행하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 혼탁액의 순환특성에 큰 영향을 미치는 기체체류량은 전반적으로 순수한 액체의 경우보다 작게 나타났고 기체속도의 증가에 따라서는 증가하였으나 고체입자의 크기 및 농도의 증가에 따라서는 감소하였다.

2. 혼탁액의 순환시간은 공탑 기체속도가 낮은 구간에서는 고체입자에 의한 기포의 합체 현상에 의하여 순수한 액체계에 비하여 전반적으로 감소하였으나 공탑 기체속도가 높아지면서 슬러리의 순환시간은 순수한 액체와 거의 동일한 경향을 나타내었다.

3. 또한 슬러리의 순환시간은 고체입자의 농도가 증가함에 따라 대체적으로 감소하였으나 입자크기에 대해서는 뚜렷한 경향을 나타내지 못하였다.

4. 에너지수지에 의하여 산출해 낸 혼탁액의 속도식으로 순환특성을 잘 설명할 수 있었으며 순환속도는 고체입자에 의한 기포의 합체에 크게 영향을 받음을 알 수 있었다.

감 사

본 논문은 이재성 선생님의 정년퇴임을 기념하기 위한 것이며 선생님의 그동안의 가르침에 감사를 드립니다.

NOMENCLATURE

A_b	: free area for liquid flow between riser and downcomer [m^2]
A_o	: cross-sectional area of downcomer [m^2]
A_i	: cross-sectional area of riser [m^2]
Bo	: Bodenstein number, $U_L L_c / D_L$ [-]
C	: concentration of tracer [mol/m^3]
C_∞	: ultimate homogeneous concentration [mol/m^3]

C_r	: dimensionless concentration, C/C_∞ [-]
D_L	: diffusivity of species in liquid phase [m^2/s]
d_i	: diameter of draft tube [m]
d_o	: diameter of outer tube [m]
d_{us}	: volume surface mean diameter [m]
E_i	: total energy input rate [W]
E_b	: energy loss in bottom section [W]
E_{bi}	: energy dissipation due to bubbles in the riser [W]
E_{bo}	: energy dissipation due to bubbles in the downcomer [W]
E_t	: energy loss in top section [W]
f_{Db}	: Darcy-Weinsbach friction factor at bottom section [-]
f_{Dt}	: Darcy-Weinsbach friction factor at top section [-]
f_i	: fanning friction factor in the riser section [-]
f_o	: fanning friction factor in the downcomer section [-]
h_D	: gas-liquid dispersion height [m]
L_c	: length of circulation path [m]
n	: number of circulation [-]
P_{ta}	: pressure at the top of outer section of draft tube [N/m^2]
P_{td}	: pressure at the top of inner section of draft tube [N/m^2]
t	: time [s]
t_c	: circulation time [s]
t_m	: mixing time [s]
U_b	: bubble rising velocity [m/s]
\bar{U}_b	: arithmetic mean of U_b in bubble column [m/s]
U_G	: superficial gas velocity [m/s]
U_{SLO}	: superficial suspension velocity in downcomer [m/s]
U_{SLi}	: superficial suspension velocity in riser [m/s]
U_L	: superficial liquid velocity [m/s]
V_{SLO}	: interstitial suspension velocity in downcomer [m/s]
V_{SLi}	: interstitial suspension velocity in riser [m/s]
x	: location in the circulation loop [m]

Greek Letters

ρ	: density [kg/m^3]
ρ_L	: density of liquid [kg/m^3]
ρ_{SL}	: density of slurry [kg/m^3]
μ	: viscosity [$\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2$]
ε_G	: overall gas holdup [-]
ε_{GO}	: gas holdup in the downcomer [-]
ε_{GI}	: gas holdup in the riser [-]
ϕ_s	: volume fraction of solid [-]
τ	: circulation time, t/t_c [-]

REFERENCES

1. Narayanan, S., Bhatia, V.K., and Guha, D.K.: *Can. J. Chem. Eng.*, **47**, 360 (1969).
2. Farkas, E.J. and Leblanc, P.F.: *Can. J. Chem. Eng.*, **47**, 215 (1963).
3. Fan, L.S., Ramesh, T.S., Tang, W.T., and Long, T.R.: *Chem. Eng. Sci.*, **42**, 543 (1987).
4. Fukuda, H., Shiotani, T., Okada, W., and Morikawa, H.: *J. Ferment. Technol.*, **56**, 619 (1978).
5. Hwang, S.J. and Fan, L.S.: *Chem. Eng. J.*, **33**, 49 (1986).
6. Viswanathan, K. and Rao, D.S.: *Chem. Eng. Sci.*, **38**, 474 (1983).
7. Hatate, Y., Tajiri, S., Fujita, T., Fukumoto, T., Ikari, A., and Hano, T.: *J. Chem. Eng. Japan*, **20**, 568 (1987).
8. Bartos, T.M. and Satterfield, C.N.: *AIChE J.*, **32**, 773 (1986).
9. Tinge, J.T. and Drinkenburg, A.A.: *Chem. Eng. Sci.*, **41**, 165 (1986).
10. Ohki, Y. and Inoue, H.: *Chem. Eng. Sci.*, **25**, 1 (1970).
11. Levenspiel, O.: "Chemical Reaction Engineering", Wiley, N.Y., 1972.
12. Warnecke, H.J., Pruss, J., Leber, L., and Langemann, H.: *Chem. Eng. Sci.*, **40**, 2321 (1985).
13. Hatch, R.T.: Ph.D. Dissertation, MIT, 1973.
14. Merchuk, J.C., Stein, Y., and Mateles, R.I.: *Biotech. and Bioeng.*, **22**, 1109 (1986).
15. Warnecke, H.J., Pruss, J., Leber, L., and Langemann, H.: *Chem. Eng. Sci.*, **40**, 2327 (1985).
16. Vand, V.: *J. Phys. and Colloid Chem.*, **52**, 300 (1948).
17. Wallis, G.B.: "One-dimensional two phase flow", McGraw-Hill, N.Y. (1969).
18. Kelkar, B.G., Godbole, S.P., Hanath, M.F., Carr, N.L., and Deckwer, W.D.: *AIChE J.*, **29**, 361 (1983).
19. Brauner, N. and Barnea, D.: *Chem. Eng. Sci.*, **41**, 159 (1986).
20. Guy, C., Carreau, P.J., and Paris, J.: *Can. J. Chem. Eng.*, **64**, 23 (1986).
21. Fukuma, M., Muroyama, K., and Yasunishi, A.: *J. Chem. Eng. Japan*, **20**, 28 (1987).
22. McMath, R.E.: *Van Nostrand's Engineering Magazine*, p. 36, 1883.
23. Vanoni, V.A.: *Trans. ASCE*, Publication 2267, 111, 67 (1964).
24. Babkowicz, A.J. and Gauvin, W.H.: *Pulp and Paper Research Institute of Canada*, TR 357, 1964.
25. Zandi, I.: *J. American Waterworks Association*, **2**, 213 (1967).
26. Dharwadkar, S.V., Sawant, S.B., and Joshi, J.B.: *Can. J. Chem. Eng.*, **65**, 406 (1985).
27. Grace, J.R.: *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **51**, 116 (1973).
28. Nicklin, D.J.: *Chem. Eng. Sci.*, **17**, 693 (1962).
29. Smith, D.N. and Ruether, J.A.: *Chem. Eng. Sci.*, **40**, 741 (1985).
30. Henrikson, H.K. and Ostergaard, K.: *Chem. Eng. Sci.*, **31**, 309 (1976).
31. Morooka, S., Mizoguchi, T., Kato, T., and Kato, Y.: *J. Chem. Eng. Japan*, **19**, 507 (1986).
32. Yasunishi, A., Fukuma, M., and Muroyama, K.: *J. Chem. Eng. Japan*, **19**, 444 (1986).
33. Fukuma, M., Muroyama, K., and Yasunishi, A.: *J. Chem. Eng. Japan*, **20**, 28 (1987).
34. Fukuma, M., Muroyama, K., and Yasunishi, A.: *J. Chem. Eng. Japan*, **20**, 321 (1987).
35. Carderbank, P.H., Johnson, D.S.L., and Loudon, J.: *Chem. Eng. Sci.*, **25**, 235 (1970).
36. Guthrie, R.I.L. and Bradshaw, A.V.: *Chem. Eng. Sci.*, **28**, 191 (1973).
37. Mao, Z.S. and Dukler, A.E.: *Chem. Eng. Sci.*, **40**, 2158 (1985).