

## 슬러리에 CO<sub>2</sub> 기체의 흡수 (I) —카올린과 백카본 슬러리에 CO<sub>2</sub>의 용해도와 확산계수—

박상욱·김성수\*·김종현\*\*

부산대학교 공과대학 화학공학과

\*지산간호보건전문대학

\*\*경남전문대학

(1989년 7월 11일 접수, 1989년 11월 15일 채택)

## Absorption of CO<sub>2</sub> into Slurries (I) —Solubility and Diffusivity of Carbon Dioxide in Aqueous Slurries of Kaolin and White Carbon—

Sang Wook Park, Sung Soo Kim\* and Jong Hyun Kim\*\*

Dept. Chem. Eng., College of Eng., Pusan National University

\*Ji-San Junior College

\*\*Kyung Nam Junior College

(Received 11 July 1989; accepted 15 November 1989)

### 요 약

1 atm, 20°C에서 카올린과 백카본 슬러리에 CO<sub>2</sub> 기체의 용해도와 확산계수를 중량법과 젖은 벽탐을 사용하여 측정하였다.

백카본 슬러리의 백카본 고체입자 표면에 흡착된 CO<sub>2</sub> 기체의 양을 구할 수 있었으며, 이로부터 백카본 슬러리에 흡수된 CO<sub>2</sub> 기체의 증가현상을 설명할 수 있었다.

슬러리용액에 기체가 흡수될 경우 슬러리의 농도 변화에 따라 측정된 기체의 용해도 및 확산계수와 농도와의 상관관계식을 얻을 수 있었다.

**Abstract**—The solubilities and diffusivities of CO<sub>2</sub> gas in aqueous kaolin and white carbon slurries at 1 atm and 20°C were obtained by the gravitational method and using a wetted-wall column.

The amounts of CO<sub>2</sub> gas adsorbed onto the surface of white carbon in aqueous slurries could be calculated and the increase of solubilities of CO<sub>2</sub> gas in aqueous white carbon slurries could also be explained.

Linear equations could be used for the prediction of the solubilities and diffusivities of gas in aqueous slurries and the calculated values from the equations could be correlated with the experimental values very well.

### 1. 서 론

슬러리에 기체를 흡수시키는 공정은 석회석 슬러리를 이용한 연소가스의 탈황공정, 일산화탄소와 수소로부터

탄화수소 제조를 위한 Fischer-Tropsch 슬러리 공정, 생화학적 반응기 (biochemical reactor) 등의 화학공정에서 종종 사용되고 있다[1, 2].

이들 공정의 흡수기 혹은 반응기 설계를 위한 기초자

료로서 슬러리에 기체의 용해도와 확산계수에 대한 실험치 또는 산출방법이 필요하나 이에 대한 연구는 미미하며 물리화학적 물성추정에 대한 방법도 거의 제시된 바가 없는 실정이다.

본 연구에서는 power-law 액체의 거동을 나타내는 카올린과 백카본[amorphous(SiO<sub>2</sub>)<sub>n</sub>] 슬러리 중에 탄산가스의 용해도를 측정하고, 액체의 층류상태에서 수력학적 처리방법이 정립되어 있는 것은 벽탐을 사용하여 탄산가스의 확산계수를 구하여, 첨가한 고체입자의 부피분율과 측정한 확산계수와와의 상관관계식을 얻어 슬러리 중에 용해된 기체의 확산계수의 일반적인 추산식을 제시하고자 한다.

## 2. 실험

### 2-1. 시료

탄산가스(대원가스주식회사, 순도 99.9%)가 용해되는 슬러리(aqueous slurries)는 카올린(Hayashi Chem. Co., Japan)과 백카본(삼양화학)으로 제조하였는데, 이들 고체입자들을 증류수에 수차례 세척하고 산성이온 교환수지를 사용하여 카올린과 백카본 표면에 흡착된 알칼리금속 불순물을 제거[3, 4]한 후 증류수로 수차례 세척한 다음 105°C에서 항온건조 후 평량하여 일정 농도의 슬러리를 조제하였다.

카올린과 백카본의 밀도는 pycnometer, 입자 평균 직경은 자동 입도분석기(Coulter Counter Electronics), 비표면적은 BET 표면적(Quantasorb M space Analyzer)으로 측정하였다[3]. 20°C에서 카올린과 백카본의 밀도는 각각 2.691(±0.002)과 1.987(±0.001)g/cm<sup>3</sup>, 입자 평균 직경은 7.1과 4.2

μm, 그리고 면적은 4.2와 184.0m<sup>2</sup>/g이었다.

### 2-2. 용해도 및 흡수속도 측정

카올린과 백카본 슬러리에 CO<sub>2</sub> 기체의 용해도는 재래적인 중량법에 의해 측정하였으며[3, 4], 슬러리 농도별 CO<sub>2</sub> 기체의 용해도는 3회 측정하여 평균하였다. 슬러리 농도별 CO<sub>2</sub> 기체의 용해도, A<sub>2</sub>값들을 Table 1에 나타내었다. 즉 탈가스된 슬러리의 일정한 양을 교반시키면서 CO<sub>2</sub> 기체와 접촉시켜 평형에 도달하였을 때 액체무게의 증가로부터 용해도를 구하였다.

슬러리에 흡수되는 CO<sub>2</sub> 기체의 흡수속도를 측정하기 위하여 사용한 흡수장치는 전보[5, 6]에서 사용한 것은 벽탐과 같으며 실험온도는 20(±0.5)°C에서 행하였다. 탄산가스는 흡수기 주입 전에 포화조(saturation bottle)를 통과시켜 흡수관 내에서 기-액 접촉시 슬러리 상의 물이 기체상으로 전달되는 것을 방지하였다.

슬러리 실험에서 고체입자의 침강을 방지하고 액의 균일성을 유지하기 위하여 자석교반기로 교반을 행하였다. 기-액 접촉이 일어나는 것은 벽부의 길이를 25 cm, 직경 1.39 cm로 고정하고 슬러리 유량속도를 80에서 250 cm<sup>3</sup>/min 까지 변화시키면서 CO<sub>2</sub> 기체의 흡수속도를 측정하였다.

층류막의 rippling을 방지하기 위하여 미량의 비이온계면활성제(scourol 100, Kao Chemical Co., Japan)를 흡수액에 첨가하였다.

기체 흡수속도의 측정은 전보[5]와 같이 비누막 유량계로서 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

비뉴튼액체인 슬러리의 특성치, n과 k 값은 모세관

Table 1. Physical properties, solubility and diffusivity of CO<sub>2</sub> in slurries at 1 atm and 20°C

Material	Conc. (wt%)	n	k × 10 <sup>2</sup> (dyne-s <sup>n</sup> /cm <sup>2</sup> )	Density (g/cm <sup>3</sup> )	C <sub>A0</sub> × 10 <sup>5</sup> (gmol/cm <sup>3</sup> )	D <sub>A</sub> × 10 <sup>5</sup> (cm <sup>2</sup> /s)
Water	0	1.0	1.00	0.998	3.829(±0.002)	1.610(±0.005)
Kaolin	3	0.96	1.49	1.017	3.788(±0.003)	1.582(±0.004)
	5	0.94	1.96	1.035	3.763(±0.004)	1.571(±0.003)
	7	0.90	2.60	1.051	3.736(±0.002)	1.565(±0.003)
	10	0.87	3.87	1.071	3.695(±0.005)	1.542(±0.005)
	15	0.81	7.93	1.115	3.631(±0.002)	1.519(±0.007)
White carbon	3	0.96	1.68	1.012	4.021(±0.004)	1.587(±0.006)
	5	0.94	2.55	1.027	4.167(±0.003)	1.558(±0.005)
	7	0.91	3.95	1.034	4.268(±0.003)	1.546(±0.003)
	10	0.88	7.50	1.053	4.511(±0.005)	1.532(±0.004)
	12	0.86	11.24	1.059	4.622(±0.002)	1.515(±0.005)

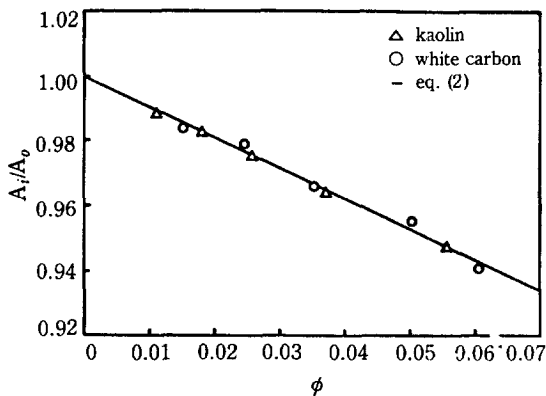


Fig. 1. Solubilities of CO<sub>2</sub> in aqueous slurries of kaolin and white carbon at 20°C.

점도계로써, 밀도는 pycnometer 로써 측정하였으며, 슬러리에서 고체입자의 부피분율,  $\phi$  는 식 (1)에 의해 구하였다.

$$\phi = \frac{(W/\rho_s)\rho}{(W/\rho_s) + \{(1-W)/\rho_o\}} \quad (1)$$

여기서  $\rho$  는 슬러리의 밀도,  $W$  는 슬러리에서 고체입자의 질량분율,  $\rho_s$ 와  $\rho_o$ 는 20°C에서 각각 고체입자와 물의 밀도를 나타낸다.  $\rho$ ,  $\phi$  값을 Table 1에 나타내었다.

### 3-1. 탄산가스의 용해도

카올린과 백카본 슬러리의 탄산가스 용해도,  $A_i$ 와 물에서의 용해도  $A_o$ 의 비,  $A_i/A_o$ 를 첨가한 고체입자의 부피분율에 따라 plot 하여 Fig. 1에 나타내었다. 여기서  $A_o$ 는 20°C에서 순수한 기체의 용해도로써 문헌치[2],  $3.829 \times 10^{-5} \text{ gmol/cm}^3$ 를 사용하였다.

Fig. 1에 나타난 바와 같이 카올린 슬러리에서 탄산가스의 용해도는 고체입자의 농도증가에 따라 감소하였으며,  $A_i/A_o$ 는  $\phi$ 에 상관관계 계수 97.6%의 직선관계가 잘 성립되며 이에 대한 실험식은 다음과 같다.

$$\frac{A_i}{A_o} = 1 - 0.94\phi \quad (2)$$

슬러리의 고체입자 농도증가에 의한 기체의 용해도 감소는 Hikita 등[4]이 밝힌 바와 같이 카올린 고체입자가 슬러리에 용해한 CO<sub>2</sub> 기체에 대하여 불활성 고체로 작용하여, 농도증가에 의한 연속상의 감소에 기인함을 알 수 있다.

또한 Astarita[7]와 Lachout 등[8] bentonite 슬러리의 농도증가에 따라 탄산가스의 용해도가 감소함을

Table 2. Amount of CO<sub>2</sub> adsorbed onto surface of white carbon in aqueous slurry

Conc. (wt%)	$A_i \times 10^5$ (gmol/cm <sup>3</sup> )	$A_w \times 10^5$ (gmol/cm <sup>3</sup> )	$A_s \times 10^7$ (gmol/m <sup>2</sup> )
3	4.021	3.768 <sup>a</sup>	4.58 <sup>b</sup>
5	4.167	3.748	4.55
7	4.268	3.699	4.42
10	4.511	3.656	4.64
12	4.622	3.603	4.62

average 4.56(stand. dev. 1.9%)

<sup>a</sup>Amount of CO<sub>2</sub> absorbed in water in slurry per cm<sup>3</sup> of aqueous slurry:  $(1.012-0.03)/0.998 \times 3.829 \times 10^{-5} = 3.768 \times 10^{-5} \text{ gmol/cm}^3$

<sup>b</sup>Amount of CO<sub>2</sub> adsorbed onto surface of particles per m<sup>2</sup> of white carbon:  $(4.021 \times 10^{-5} - 3.768 \times 10^{-5})/(184 \times 0.03) = 4.58 \times 10^{-7} \text{ gmol/m}^2$

제시하였다.

한편 Table 1에서 알 수 있는 바와 같이 백카본 슬러리는 고체입자의 농도증가에 따라 용해도가 증가하고 있으며 이는 백카본 슬러리와 CO<sub>2</sub> (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 혹은 CO<sub>3</sub><sup>-2</sup>) 사이에 상호작용이 존재하는 것으로 추측할 수 있다[2].

백카본의 분자구조(amorphous polysilicate)와 20°C의 물에 백카본을 첨가하였을 때 첨가 전후의 pH 값이 6.8 근방에서 변화가 없는 점으로 보아 화학반응은 일어나지 않는 것으로 사료되며, 카올린에 비해 상대적으로 비표면적이 큰 백카본 표면에 탄산가스 기체가 흡착되는 것으로 추측된다.

Sylvester와 Dianat[9]는 powdered activated carbon(직경 5.4  $\mu\text{m}$ , 표면적 1000-1100 m<sup>2</sup>/g) 슬러리에서 산소의 흡착에 의한 용해도 증가현상을 보고하였으며, Schumpe 등[10]도 activated carbon(직경 5  $\mu\text{m}$ ) 슬러리가 산소를 흡착하여 산소의 용해도를 증가시킨다고 보고하였다. 그러나 이들[9, 10]의 결론은 고체입자가 흡착된 기체의 양을 배제한 연속상단의 용해도에 대해서는 고찰된 바가 없다.

백카본 슬러리에 CO<sub>2</sub> 기체가 흡수될 경우 백카본 고체입자 표면에 CO<sub>2</sub> 기체가 흡착되는 정도를 검토하기 위하여 Table 1에 나타난 백카본 슬러리에 대한 탄산가스의 용해도로부터 입자표면의 탄산가스의 양,  $A_s$ 를 Table 2에 나타내었으며, 백카본의 농도에 상관없이 백카본 고체입자의 단위표면적당 탄산가스의 흡착량은  $4.56 \times 10^{-7}$  (표준편차 1.9%) gmol/m<sup>2</sup>로서 백카본의 전 농도에 대하여 거의 동일한 값을 나타내고 있음을

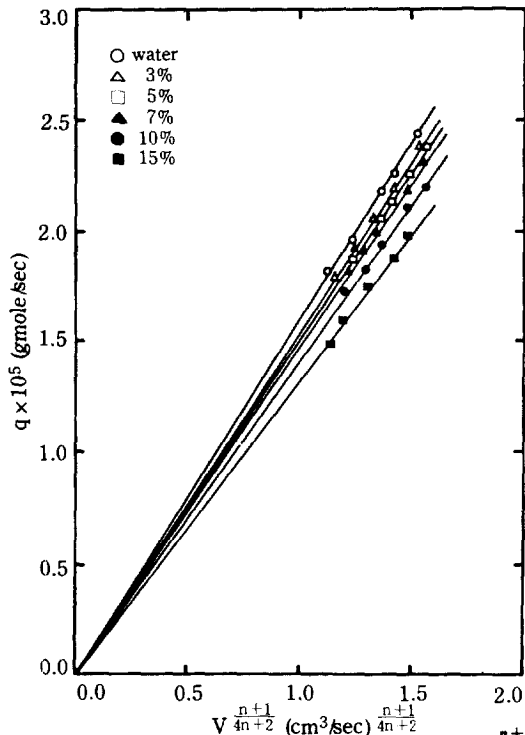


Fig. 2. Absorption rate of CO<sub>2</sub> vs. (flow rate) $^{\frac{n+1}{4n+2}}$  for water and aqueous kaolin slurries at 20°C.

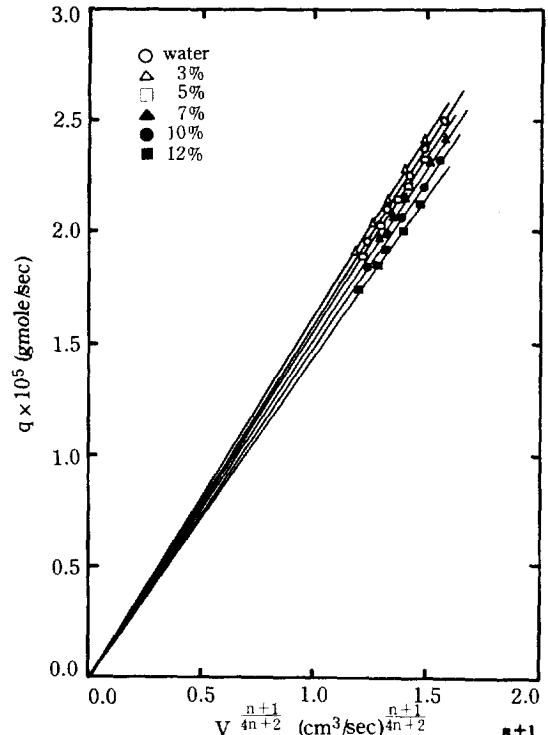


Fig. 3. Absorption rate of CO<sub>2</sub> vs. (flow rate) $^{\frac{n+1}{4n+2}}$  for water and aqueous white carbon slurries at 20°C.

알 수 있다.

슬러리의 백카본 농도가 증가함에 따라 고체입자의 표면적이 증가함으로 CO<sub>2</sub> 기체의 흡착량이 증가되어 CO<sub>2</sub> 기체 용해도가 증가하는 것으로 해석할 수 있다. 백카본 슬러리에 흡수된 CO<sub>2</sub> 기체의 흡수량,  $A_i$ 와 Table 2에서 백카본 표면에 흡착된  $A_s$ 으로부터 구한 slurry의 물에 흡수된 CO<sub>2</sub> 기체량,  $A_w$ 를 백카본 슬러리의 흡착된 양이 배제된 CO<sub>2</sub> 기체의 흡수량 카올린에서  $A_i$ 로 간주하여  $A_i/A_o$ 를  $\phi$ 에 대해서 plot 하여 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1에서 알 수 있는 바와 같이  $A_i/A_o$ 와  $\phi$ 와의 상관관계는 99.2% 상관관계 계수를 지닌 직선,  $A_i/A_o = 1 - 0.94\phi$ 를 얻을 수 있었으며, 이로부터 카올린과 백카본 슬러리의 전 농도에 대한  $A_i/A_o$ 와  $\phi$ 의 상관관계식(상관관계 계수 94.6%)은  $A_i/A_o = 1 - 0.94\phi$ 로 나타낼 수 있다.

따라서 본 연구의 슬러리에 CO<sub>2</sub> 기체의 용해도는 Hikita 등[3], Astarita[7] 및 Lachout 등[8]이 제안하였듯이 슬러리 농도의 증가에 따라 연속상이 감소하여 용해도가 감소함을 알 수 있다.

### 3-2. 탄산가스의 확산계수

Power-law에 적용되는 비뉴튼액체에서 기체의 물리흡수기구가 Higbie의 침투설에 적용될 경우 기-액 접촉계면에서 기체의 평균 흡수속도는 전보[6]에서 제시하였던 식 (3)으로 나타낼 수 있다.

$$q = 2f(n)\sqrt{\pi}A_i d (hD_A)^{1/2} \left(\frac{\rho g}{k}\right)^{1/4n+2} \left(\frac{v}{\pi d}\right)^{n+1/4n+2} \quad (3)$$

여기서

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

젖은 벽탐에서 측정된 카올린과 백카본 슬러리에 CO<sub>2</sub> 기체의 평균 흡수속도와 슬러리의 유량과의 관계를 Fig. 2와 3에 나타내었으며, 이들 그림에서 나타난 바와 같이 plot는 원점을 지나는 직선관계가 성립됨을 알 수 있다.

Fig. 2와 3에서 카올린과 백카본의 농도증가에 따라 기울기는 감소하고 있으나 백카본 3% 슬러리의 기울기는 물보다 더 크게 나타나 있다. 이것은 백카본의 탄산

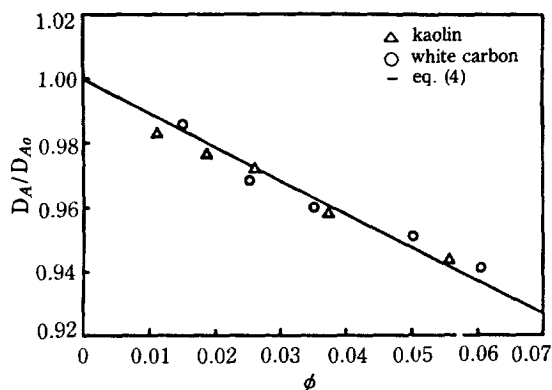


Fig. 4. Diffusivities of CO<sub>2</sub> in aqueous slurries of kaolin and white carbon at 20°C.

가스 흡착효과에 의한 용해도 증가, 비뉴튼액체의 물성치인  $n$ 과  $k$  그리고 묽은 슬러리 용액에서 입자의 거동 등의 복합적인 현상 때문이라고 생각된다.

이들 직선의 기울기값과 각 농도별 슬러리의 물성치, 젖은 벽타의 rod 직경 및 길이와 중량법에서 측정된 탄산가스의 용해도값들과 식 (3)을 사용하여 탄산가스의 확산계수를 구하여 Table 1에 나타내었다.

고체입자 첨가에 대한 확산계수의 영향을 고찰하기 위하여  $D_A/D_{A0}$ 를 식 (1)로부터 구한  $\phi$ 에 대하여 plot 하여 Fig. 4에 나타내었다. 여기서  $D_{A0}$ 는 물에 대한 CO<sub>2</sub> 기체의 확산계수값으로서 전보[6]의 문헌치,  $1.61 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ 를 사용하였다. Fig. 4의 상관관계로부터 다음과 같은 직선식(상관관계 계수 98.4%)을 얻을 수 있다.

$$D_A/D_{A0} = 1 - \phi \quad (4)$$

Clough 등[11]은 Kaolin slurry에서 Bezoic acid의 확산계수는 slurry의 부피분율에 직선적으로 감소함을 나타내었고, Hikita 등[3]은 카올린 슬러리에서 확산 cell을 사용하여 측정된 탄산가스의 확산계수로부터 고체입자의 부피분율과의 상관관계식,  $D_A/D_{A0} = 1 - \phi$ 를 보고하였다.

Eyring의 rate theory[12]에 의하면 비뉴튼액체와 뉴튼액체의 확산계수의 비는 아래식으로 표현된다.

$$D_A/D_{A0} = X_{cp} \frac{\xi}{\xi_{cp}} \frac{\mu}{\mu_{cp}} \quad (5)$$

여기서  $D_A$ 는 비뉴튼액체에서의 확산계수,  $D_{A0}$ 는 뉴튼액체에서의 확산계수,  $X_{cp}$ 는 연속상 부분이 차지하는 부피분율 그리고  $\xi$ 는 확산하는 분자와 그 분자의 이웃간의 기하학적 배열에 의존하는 상수이다. 액체에 현탁

된 수화되지 않은 불활성 고체의 경우에 연속상에서의 점도,  $\mu_{cp}$ 는 순수용매의 점도  $\mu$ 와 같다고 할 수 있다.

Ree와 Eyring[13]에 의하면  $\xi$ 는 5.5-8.0의 값으로, Clough 등[13]은  $\xi_{cp}$ 는 항상 6.0에 접근하는 값으로 보고하였다. 따라서  $\xi$ 와  $\xi_{cp}$ 를 동일한 값으로 취급할 경우 불활성 고체 슬러리계에 대해서 식 (5)는 식 (6)으로 나타낼 수 있다.

$$D_A/D_{A0} = X_{cp} \quad (6)$$

$X_{cp}$ 는 연속상 부분이 차지하는 부피분율이므로 슬러리에서 고체입자의 부피분율로서 나타내면 식 (6)은 식 (4)와 같이 나타내어진다. 따라서 본 연구에서 얻어진 실험결과로부터 슬러리에서 용질의 확산계수비와 고체입자의 부피분율과의 관계는 식 (4)로 나타낼 수 있다.

## 4. 결 론

20°C, 1 atm에서 카올린과 백카본 슬러리에 탄산가스의 용해도를 중량법에 의하여 측정하였으며, 젖은 벽타를 사용하여 구한 이들 슬러리에서 탄산가스의 흡수속도를 침투설에 적용하여 기체의 분자 확산계수를 구하였다.

카올린 슬러리에서 탄산가스의 용해도는 고체입자의 농도에 따라 감소하였고, 백카본에서는 증가하였다. 백카본 슬러리에서 백카본 입자에 흡착된 CO<sub>2</sub> 기체의 양을 계산할 수 있었으며, 백카본 슬러리에 흡수된 CO<sub>2</sub> 기체의 양으로부터 백카본 입자에 흡착된 CO<sub>2</sub> 기체를 감한 CO<sub>2</sub> 기체의 흡수량과 고체입자의 부피분율과의 상관관계는 카올린 슬러리에서의 상관관계와 동일한 관계식을 얻을 수 있었다.

카올린 및 백카본 슬러리에서 탄산가스의 확산계수와 고체입자의 부피분율과의 관계는 Eyring의 rate theory에 따라 다음과 같이 나타내었다.

$$D_A/D_{A0} = 1 - \phi$$

## 감 사

본 연구는 한국과학재단 연구비(과제번호: 802-1002-017-2) 지원으로 수행한 연구결과와 일부입니다.

## NOMENCLATURE

- $A_i$  : solubility of CO<sub>2</sub> in liquid phase, [gmol/cm<sub>3</sub>]  
 $A_0$  : solubility of CO<sub>2</sub> in water, [gmol/cm<sub>3</sub>]

- $A_s$  : amount of CO<sub>2</sub> adsorbed onto white carbon per m<sup>2</sup> of white carbon, [gmol/m<sup>2</sup>]  
 $A_w$  : amount of CO<sub>2</sub> in H<sub>2</sub>O per cm<sup>3</sup> of slurry, [gmol/cm<sup>3</sup>]  
 $D_A$  : liquid phase diffusivity of CO<sub>2</sub> in slurry, [cm<sup>2</sup>/sec]  
 $D_{AO}$  : diffusivity of CO<sub>2</sub> in water, [cm<sup>2</sup>/sec]  
 $d$  : column diameter in a wetted-well column, [cm]  
 $f(n)$  : defined by eq. (3)  
 $g$  : gravitational acceleration, [cm/sec<sup>2</sup>]  
 $h$  : height of a wetted-well column, [cm]  
 $k$  : consistency index, [dyne-sec<sup>n</sup>/cm<sup>2</sup>]  
 $n$  : power-law index, dimensionless  
 $q$  : average gas absorption rate, [gmol/sec]  
 $v$  : liquid flow rate, [cm<sup>3</sup>/sec]  
 $W$  : mass fraction of solid in slurry, dimensionless  
 $X_{CP}$  : fractional area occupied by the continuous phase, dimensionless

### Greek Letters

- $\mu$  : viscosity of pure solvent, [g/cm-sec]  
 $\mu_{CP}$  : viscosity of continuous phase, g/cm-sec  
 $\xi$  : a parameter which describes the geometrical configuration of the diffusing molecule and its nearest neighbors  
 $\rho$  : density of slurry, [g/cm<sup>3</sup>]  
 $\rho_o$  : density of water, [g/cm<sup>3</sup>]  
 $\rho_s$  : density of solid, [g/cm<sup>3</sup>]  
 $\phi$  : volume fraction of solid in slurry

### REFERENCES

1. Rochelle, G.T. and King, C.J.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **16**, 67 (1977).
2. Uchida, S. and Ariga, O.: *Can. J. Chem. Eng.*, **63**, 778 (1985).
3. Kim, S.S.: Ph. D. dissertation, Pusan National University (1989).
4. Hikita, H., Ishimi, K., Ueda, K. and Koroyasu, S.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **24**, 261 (1985).
5. Park, S.W., Park, P.W., Kim, S.S. and Yun, Y.W.: *HWAHAK KONGHAK*, **25**, 447 (1987).
6. Park, S.W., Han, S.B., Kim, S.S. and Park, T.Y.: *HWAHAK KONGHAK*, **26**, 280 (1988).
7. Astarita, G.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **4**, 236 (1965).
8. Lachout, Z., Wein, O. and Mitschika, P.: *Chem. Prum.*, **30**, 217 (1980).
9. Sylvester, N.D. and Dianat, S.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **19**, 199 (1980).
10. Schumpe, A., Saxena, A.K. and Fang, L.K.: *Chem. Eng. Sci.*, **42**, 1787 (1987).
11. Clough, S.B., Read, H.E., Metzner, A.B. and Behn, V.C.: *AIChE J.*, **8**, 346 (1962).
12. Glasstone, S., Laidler, K.J. and Eyring, H.: "The Theory of Rate Processes", (p. 480), McGraw-Hill, Inc. New York, N. Y. (1941).
13. Ree, T. and Eyring, H.: "Rheology", ed. by F.R. Eirich, Vol. 11, p. 83, Academic Press, New York (1958).