

Bubble Stripping 탱크에서 염소화탄화수소의 물질이동

조정식 · 전해수 · 박찬영*

고려대학교 화학공학과

*전남대학교 정밀화학과

(1990년 5월 1일 접수, 1990년 9월 21일 채택)

Mass Transfer of Chlorinated Hydrocarbons in a Bubble Stripping Tank

Jeong-Shik Cho, Hai-Soo Chun and Chan-Young Park*

Department of Chemical Engineering, Korea University

*Department of Fine Chemical Engineering, Chonnam National University

(Received 1 May 1990; accepted 21 September 1990)

요 약

Bubble stripping 탱크를 이용한 5종류의 염소화탄화수소와 산소에 대한 물로부터의 물질이동을 연구하였다. 5종류의 염소화탄화수소와 산소의 총괄물질이동용량계수는 가스유속에 비례하였고, 염소화탄화수소의 총괄물질이동용량계수는 가스유속에 관계없이 산소에 대한 값보다 약 0.58배 작았다. 액측물질이동계수에 대한 기체측물질이동계수의 비(k_G/k_L)는 본 실험범위에서 22내외임이 추론되었고, 이 결과로부터 자연계에서 얻어 기체측저항을 무시하는데 관습적으로 사용되어온 표준값($k_G/k_L=100$)은 본 실험과 같은 인공계하에서는 재평가되어야 함을 알았다.

Abstract—The mass transfer of five chlorinated hydrocarbons and oxygen from aqueous solution was studied using a bubble stripping tank. The overall volumetric mass transfer coefficients for five chlorinated hydrocarbons and oxygen were proportional to gas flow rate. The overall volumetric mass transfer coefficients for the chlorinated hydrocarbons were approximately 0.58 times as great as those of oxygen, independent of gas flow rate. The ratio of individual phase mass transfer coefficient, k_G/k_L was inferred to be the value of ca. 22 in the regime of this experiment. It was found from this result that under the artificial system like this experiments, the criterion value ($k_G/k_L=100$) which was obtained from the natural system and has been used customarily in neglecting the gas-phase resistance must be reassessed.

1. 서 론

휘발성유기물, 특히 염소화탄화수소는 공장 및 도시의 폐수중, 또 폐수처리 후의 침출액중에 상당한 양이 존재하고 있어, 그 유기물의 휘발은 심각한 환경문제로 대두되어 왔다. 휘발성유기물을 처리하는데 있어서, gas

stripping법은 조작이 간단하고 경제성이 좋기 때문에 널리 사용되어 왔다. 또한 gas stripping법은 염소용매를 포함하는 휘발성저분자유기물의 제거에 상당히 유용하다. 따라서 gas stripping법에 의해 염소화탄화수소를 물로부터 대기로 제거하는 물질이동에 대한 연구가 많이 이루어졌다[3-5, 12, 15, 16].

염소화탄화수소의 물질이동에 대한 연구[5, 12, 15, 16]는, Mackay와 Leinonen의 보고($k_G/k_L=100$) [10]에 의거하여 Henry 정수가 $0.2(\text{kg/m}^3\text{-gas})/(\text{kg/m}^3\text{-liquid})$ 이상의 유기물은 가스측의 저항이 무시될 수 있다는 가정하에서 행해져 왔다. 그러나, Mackay와 Leinonen의 기체측과 액측물질이동계수비(각 상의 저항비)는 지금까지 관습적으로 사용되어 왔을 뿐, 이것에 대한 검토는 전혀 행해지지 않았다.

본 연구에서는 bubble stripping 탱크를 이용하여, 산소와 염소화탄화수소에 대한 물로부터의 물질이동을 조사하였으며, 또 지금까지 관습적으로 사용되어온 Mackay와 Leinonen의 각 상 저항비를 간접적으로 검토하였다.

2. 이 론

Cho와 Wakao[2]는 회분식 bubble stripping 탱크에서 한 휘발성성분이 stripping될 때 탱크내의 액은 완전혼합을 이루고, 기포는 액중에서 피스톤류로 상승하며, stripping은 기포가 액중을 상승하는 과정에서 일어나고 액상부 표면에서의 stripping은 무시할 정도로 적다고 가정하여 다음과 같은 물질수지식을 세웠다. 기체농도가 축방향에 따라 변하는율은

$$u_G dC_G/dx = K_L a (C_L - C_G/H) \quad (1)$$

$$x=0, C_G=0 \quad (1a)$$

이고, 탱크내에서 액중 휘발성분의 농도변화는

$$V_L dC_L/dt = -K_L a V \{C_L - (C_G)_{av}/H\} \quad (2)$$

$$t=0, C_L=C_{L0} \quad (2a)$$

로 표시된다. 여기서, $(C_G)_{av}$ 는 기체중 휘발성분의 평균농도로서 다음과 같다.

$$(C_G)_{av} = 1/X \int_0^X C_G dx \quad (3)$$

또한 Henry 정수, H는 평형상태에서 기상농도와 액상농도의 비로 정의하였다.

$$H = (C_G/C_L)_{equilibrium} \quad (4)$$

한편 총괄물질이동용량계수, $K_L a$ 는 위치, x의 함수가 아니라고 가정하여 (1)-(4)식을 풀면 다음식이 얻어진다.

$$-\ln(C_L/C_{L0}) = F_G H/V_L \{1 - \exp(-K_L a V/HF_G)\} t \quad (5)$$

$K_L a V/(HF_G)$ 의 값이 큰 경우에 (5)식은 다음과 같이 된다.

$$-\ln(C_L/C_{L0}) = F_G H t/V (1 - \epsilon_G) \quad (6)$$

이 식은 여러 유기물에 대하여 실험적으로 Henry 정수를 측정한 Mackay 등[11]의 식과 일치한다.

한편, $K_L a V/(HF_G)$ 의 값이 작으면 (5)식은 다음과 같이 된다.

$$-\ln(C_L/C_{L0}) = K_L a t / (1 - \epsilon_G) \quad (7)$$

이 식은 출구($x=X$)에서의 기체측농도가 평형농도보다 상당히 낮은 경우에 적용가능하며, Henry 정수가 큰 경우(예 ; 산소, 이산화탄소)의 stripping에 이용될 수 있다.

(5), (7)식의 총괄물질이동용량계수의 역수, $1/K_L a$ 는 기액양측저항의 합이므로 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$1/K_L a = 1/k_L a + 1/(Hk_G a) \quad (8)$$

$$\text{즉, } R_T = R_L + R_G \quad (9)$$

따라서, 액측과 기체측저항의 상대적 중요성은 다음식으로 평가될 수 있다.

$$R_L/R_G = Hk_G/k_L \quad (10)$$

또는,

$$R_L/R_T = 1/\{1 + k_L/(Hk_G)\} \quad (11)$$

따라서 Henry 정수가 큰 경우나 k_G/k_L 의 값이 큰 경우에는 총괄물질이동용량계수는 액측저항이 지배한다. Mackay와 Leinonen[10]은 surface aeration에서의 k_G/k_L 의 값은 100임을 Liss와 Slater[9]가 발표한 바 다와 대기계면에서의 물질이동에 대한 연구에 의거하여 보고하였다. 이 값은 여러 연구[5, 12, 15, 16]에서 액측저항지배의 기준으로 사용되어 왔다.

Mackay와 Leinonen의 보고[10]에 의하면, Henry 정수가 0.2보다 큰 경우 모든 물질은 액측저항이 전 저항의 95%이상이므로 액측저항이 지배한다. Table 1에 표시되어 있는 각 성분의 Henry정수로부터 판단하면, 본 연구에서 사용된 성분중 chloroform을 제외한 물질은 액측저항이 지배하게 되고, chloroform도 액측의 저항이 전저항의 94% 정도로 액측저항이 지배한다고 할 수 있다.

3. 실험

내경 0.11m, 높이 0.4m인 아크릴 원통관과 직경 5

Table 1. Henry's law constants and liquid-phase diffusivities of the solutes at 298 K

Solute	Henry's law constant ^a	Diffusivity in water ^c D_L [m ² /s]
	H {(kg/m ³ -gas)/ (kg/m ³ -liquid)}	
CCl ₄	1.244	0.99×10^{-9}
CCl ₂ = CCl ₂	0.723	0.92×10^{-9}
CH ₃ CCl ₃	0.703	0.99×10^{-9}
CHCl = CCl ₂	0.392	1.03×10^{-9}
CHCl ₃	0.150	1.12×10^{-9}
O ₂	32 ^b	2.42×10^{-9}

^aGossett [6]

^bMatter-Müller et al. [12]

^cCalculated by using the Wilke-Chang correlation, with the molecular volumes estimated as described in Table 3-11 of Reid et al. [13]

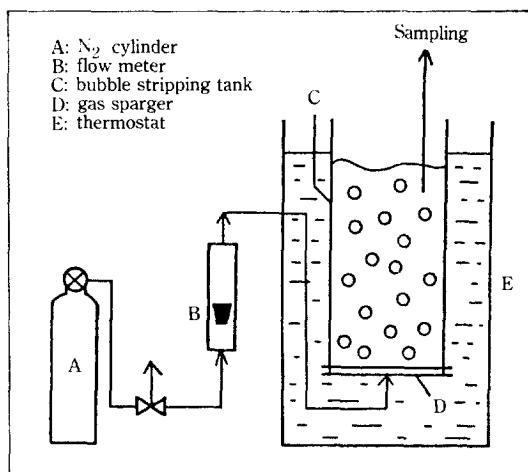


Fig. 1. Experimental apparatus.

mm인 단일공을 갖는 아크릴평판을 Fig. 1과 같이 항온조(298K)내에 설치하고 탱크내부에는 산소를 포화시킨 중류수 0.003m³을 채운 다음 여기에 5종류의 염소화탄화수소(carbon tetrachloride(CCl₄); chloroform(CHCl₃); tetrachloroethylene(CCl₂=CCl₂); 1, 1, 1-trichloroethane(CH₃CCl₃); trichloroethylene(CHCl=CCl₂))를 단독으로 각각의 초기농도가 0.008-0.04 kg/m³이 되도록 용해시켰다. 탱크하부에 있는 단일공으로 유량이 조절된 질소가스(99.95%의 순도)를 통과시켜 각각의 물질이 stripping되는 양을 추적하였다. 액체내에 남아있는 용존산소량은 Winkler 법[17]으로 측정하였고, 5종류의 염소화탄화수소의 농도는 Gaschro-

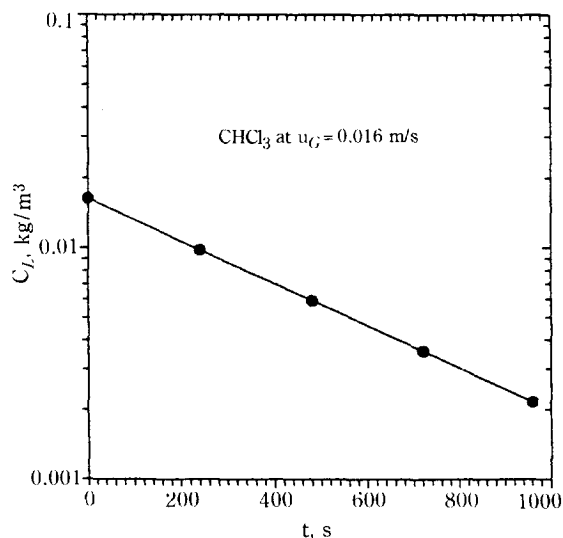


Fig. 2. Concentration changes of chloroform at u_c of 0.016 m/s.

pack 54를 충전시킨 유리칼럼을 이용한 FID 가스크로마토그래프(Shimadzu, GC-7A)로 분석하였다. 한편 298K에서 Henry 정수, H와 액상확산계수, D_L 값은 Table 1에서와 같이 알려진 값을 이용하였다. 여기서 D_L 은 Wilke와 Chang의 상관식[13]으로부터 계산되었으며, 그 정확도는 약 $\pm 10\%$ 정도라고 믿어진다[13].

4. 결과 및 검토

4-1. 총괄물질이동용량계수에 미치는 가스유속의 영향

총괄물질이동용량계수, $K_L a$ 는 가스유속 0.006-0.054 m/s의 범위에서 구하였다. 시간경과에 대한 액체내 휘발성분(chloroform, $u_c = 0.016$ m/s)의 농도변화를 Fig. 2에 나타내었다. 시간경과에 대한 농도변화의 기울기를 최소자승법에 의해 구하여 염소화탄화수소는 (5)식으로부터, 산소는 (7)식으로부터 각각의 $K_L a$ 를 계산하였다.

본 실험에서 사용된 5종류의 염소화탄화수소에 대하여 가스유속의 함수로 $K_L a$ 를 표현한다면, 총괄적으로 1개의 직선을 그을 때 Fig. 3의 직선으로 표시할 수 있을 것이므로 5종류의 염소화탄화수소의 평균 총괄물질이동용량계수 및 산소의 총괄물질이동용량계수를 가스유속에 대하여 다음과 같이 각각 상관시킬 수 있었다. 또한 Table 2에 각 염소화탄화수소의 산소에 대한 총괄물질이동용량계수비를 따로 표시하였다.

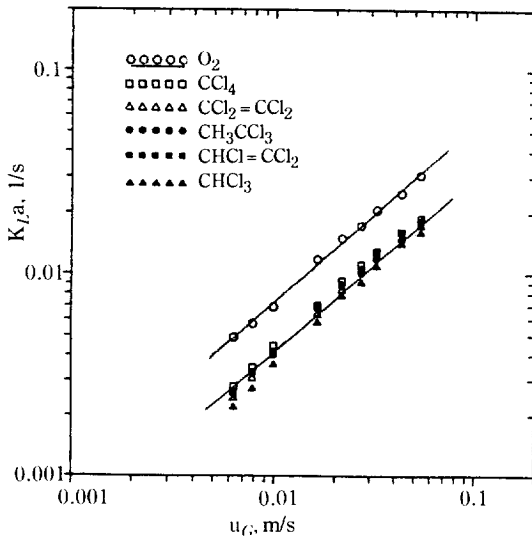
Fig. 3. $K_L a - u_G$ relationship.

Table 2. The values of the mass transfer proportionality coefficient, the each phase mass transfer coefficient ratio and the resistance ratio

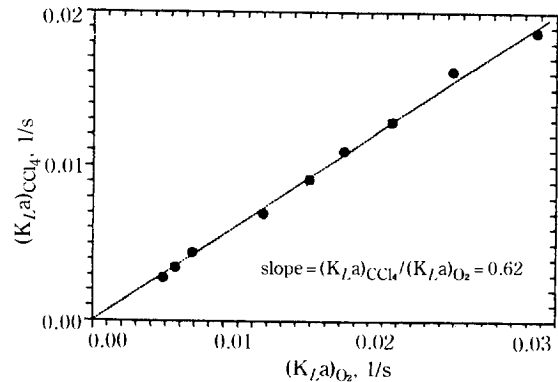
Solute	Proportionality coeff. $(K_L a)_i / (K_L a)_{O_2}$ av \pm std dev (N = 9)	Each phase mass transfer coeff. ratio $(k_G a) / (k_L a)$ av \pm std dev (N = 9)	Resistance ratio R_L / R_T
CCl_4	0.62 ± 0.02	25 ± 5	0.97
$CCl_2 = CCl_2$	0.57 ± 0.03	20 ± 8	0.94
CH_3CCl_3	0.59 ± 0.03	20 ± 8	0.93
$CHCl = CCl_2$	0.58 ± 0.02	22 ± 4	0.90
$CHCl_3$	0.52 ± 0.03	25 ± 4	0.79

$$(K_L a)_{Cl_2} \approx 4.2 \times 10^{-3} u_G^{0.88} \quad (12)$$

$$(K_L a)_{O_2} = 7.2 \times 10^{-3} u_G^{0.88} \quad (13)$$

여기서, u_G 의 단위는 m/s, $K_L a$ 는 s^{-1} 이다. Shah 등의 보고[14]에 의하면, 물로부터 산소의 흡수실험을 행하여 산소의 물질이동용량계수 $(K_L a)_{O_2} = bu_G^n$ 형으로 나타낼 수 있으며, n의 값은 0.82라고 하였다. 본 실험에서 구한 n값은 Shah 등의 값에 근접하고 있다.

Fig. 3을 보면 5종류 염소화탄화수소의 $K_L a$ 는 거의 같은 값이었으나, 산소의 $K_L a$ 보다는 작음을 알 수 있다. 이것은 물속에서의 확산계수의 상대적인 크기(Table 1)로부터 예측되어 진다. 즉 사용된 염소화탄화수소들의 확산계수는 거의 같으나 산소와는 큰 차이가 있기 때문이다.

Fig. 4. $(K_L a)_{O_2} - (K_L a)_{CCl_4}$ relationship.

4-2. 산소와 염소화탄화수소간의 비례성

염소화탄화수소의 총괄물질이동용량계수, $(K_L a)_{Cl_2}$ 는 산소의 그 값 $(K_L a)_{O_2}$ 에 거의 비례하고 있다는 것은 Fig. 3으로부터 알 수 있으므로 횡축에 산소의 $(K_L a)_{O_2}$ 를, 종축에 염소화탄화수소의 $(K_L a)_i$ 를 plot하여 염소화탄화수소로서 CCl_4 를 사용한 경우의 예를 Fig. 4에 나타내었다. 이 그림으로부터 $(K_L a)_i / (K_L a)_{O_2}$ 의 값은 가스 유속(액체의 혼합정도)에 관계없이 일정함을 알 수 있다. 이 결과는 Matter-Muller 등[12]과 Smith 등[15]의 보고와 일치하고 있다. 이 비례성은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$(K_L a)_i = P_i (K_L a)_{O_2} \quad (14)$$

여기서 P_i 는 염소화탄화수소 i에 대한 비례계수[12]이다. Table 2에 각 염소화탄화수소 i에 대한 비례계수 P 값들을 나타내었는데 그 평균값은 0.58이었다.

Matter-Muller 등[12]과 Smith 등[15]은 관련물질로서 산소를 이용한 경우, 넓은 범위에 걸쳐서 (14)식의 타당성을 검토하였으며, 자연계나 인공계에서 고휘발성유기물의 물질이동을 측정하는 기초로 제안하였다. 여기서 산소가 관련물질로서 선택된 이유는 산소의 stripping에 대한 전저항이 사실상 액측에 있기 때문에 산소의 총괄물질이동용량계수는 액상물질이동용량계수와 같으며 또한 자연적, 인공적 조건에서 산소의 물질이동을 예측하는 상관식들은 다수 보고되어 있기 때문이다.

4-3. 산소의 물질이동에 대한 상관치와 실측치와의 비교

기체측저항이 무시되고 액측저항만이 존재하는 산소의 물질이동에 대한 자료를 기준으로 해서 얻어진 상관식으로서 Akita와 Yoshida의 식[1], Hikita 등의

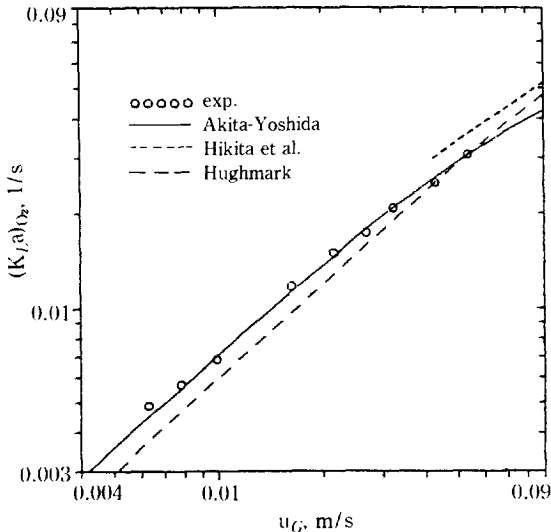


Fig. 5. Comparison of the experimental $(K_L a)_{O_2}$ data with the correlations.

식[7], Hughmark의 식[8] 등이 있다. 각 실험조건에서 물의 물성치와 Table 1에 나타난 산소의 확산계수값을 이용하여 각 상관식으로부터 산소의 물질이동용량계수값을 구하였고, 각각의 결과를 본 실험에서 얻은 $(K_L a)_{O_2}$ 와 함께 Fig. 5에 나타내었다. Hikita 등의 상관치는 본 실험에서 구한 $(K_L a)_{O_2}$ 보다 크고, Hikita 등의 상관식이 적용가능한 가스유속범위가 0.04-0.38m/s로서 본 실험의 가스유속범위 전부를 포함하고 있지 않다. Akita와 Yoshida의 식과 Hughmark식은 가스유속을 비롯한 실험파라미터의 범위가 본 실험조건과 부합되는데 본 실험의 가스유속범위에서 Hughmark의 $(K_L a)_{O_2}$ 는 실험치보다 낮은 값을 나타내고 있으며 Akita와 Yoshida의 $(K_L a)_{O_2}$ 는 실험치와 아주 잘 일치하고 있다. 따라서 본 실험조건에서는 Akita와 Yoshida의 상관식이 액체물질이동을 예측하는데 적용될 수 있음을 알 수 있다.

4-4. 기체측의 저항

5종류 유기물의 Henry 정수는 산소보다 약 26-213배나 작으므로 기체측저항이 어느 정도 존재하리라 추측된다. 따라서 5종류의 유기물에 대한 기체측저항의 존재가능성을 조사하기 위하여, Akita와 Yoshida의 상관식으로부터 각 유기물의 $(k_L a)$ 를 구하고 이 값과 실험한 $(k_G a)$ 값을 (8)식에 대입하여 각 유기물의 $(k_G a)$ 를 구한다. Cho와 Wakao[4]는 본 연구에서와 같이 유기물의 농도가 0.04 kg/m³(40 ppm) 이하일 때

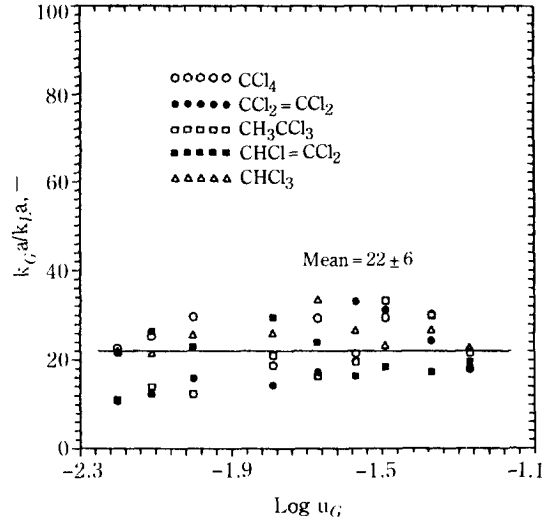


Fig. 6. Estimated ratio of $k_G a$ to $k_L a$.

기액계면적 a 에 영향을 주는 기체체류량은 유기물이 물속에 존재해도 순수한 물계에서의 값과 같다고 보고하였고, 또 이 정도로 낮은 농도의 유기물이 물속에 존재하는 한 표면장력과 점도 등의 유기수용액의 물성은 순수한 물과 다르지 않다고 보고하였다. 따라서 Akita와 Yoshida 식으로부터 각 유기물의 $(k_L a)$ 는 물의 물성치와 Table 1에 나타난 각 유기물의 D_L 값을 이용하여 구하였다.

Table 2에 각 유기물에 대한 계산결과를 $(k_G a)/(k_L a)$ 로 표시하여 평균값±표준편차로 나타내었으며, Fig. 6에 각 유기물의 $(k_G a)/(k_L a)$ 값을 각 유속에 대해 나타내었다. Fig. 6을 보면 $(k_G a)/(k_L a)$ 값이 본 실험의 가스유속범위에서 11에서 34사이의 값을 나타내고 있는데 이 편차는 Akita와 Yoshida식에 의한 상관치와 실험치간의 오차로부터 기인된 결과라고 생각되며, 5종류 유기물에 대한 $(k_G a)/(k_L a)$ 의 평균값은 22 ± 6 이다. 따라서 본 연구에서 구한 $(k_G a)/(k_L a)$ 의 추정치는 기체측저항의 중요성을 평가하기 위하여 이제까지 관습적으로 사용되어온 값(100)보다 작다. $(k_G a)/(k_L a)$ 가 작다는 것은 기체측저항이 관습적으로 생각해 온 것보다 크다는 것을 의미하고, 액체측저항이 전저항의 95%이상일 때 기체측저항을 무시할 수 있다고 생각하면, 관습적으로 사용되어 온 값(100)을 기준으로 할 때는 (11)식에 의해 유기물의 Henry 정수가 0.2이상이면 되지만, 본 연구결과를 기준으로 하면 유기물의 Henry 정수가 0.86이상이어야 함을 의미한다. 그러나 $(k_G a)$ 와 $(k_L a)$ 는 직접 측정된 값이 아니며, $(k_L a)$ 추정치에 사

용된 확산계수가 정확한 값이 아니고 어느 정도 오차를 포함하고 있고, 또 실험과정중의 오차를 고려한다면 22는 추리적인 뿐이다.

이런 불확실성에도 불구하고, Table 1의 Henry 정수와 본 실험에서 구한 각 유기물의 $(k_G a)/(k_L a)$ 의 값을 (11)식에 넣어, 본 연구에서 사용된 염소화탄화수소의 액측저항을 계산해 보았다. 그 결과를 전저항과 액측저항의 비로 표시하여 Table 2에 나타내었다. CHCl_3 를 제외한 고휘발성의 염소화탄화수소에 대하여 계산된 R_L/R_T 의 값은 90%이상이었고, CHCl_3 는 79%였다.

여기서 기술한 저항비의 계산은 비록 불확실하지만, 액측저항의 지배를 가질할 때 충분한 검토가 필요하다는 것을 의미하며, 또한 거대한 자연계와 크게 다른 유체조건하의 실험에서, 저항의 비를 계산하는데 자연계로부터 구해진 $(k_G a)/(k_L a)$ 의 값 100을 사용한다는 것은 무리라는 사실을 의미한다.

5. 결 론

Bubble stripping 탱크를 이용하여 5종류의 염소화탄화수소와 산소에 대한 물로부터의 물질이동을 연구하여 다음과 같은 결론을 얻었다

1. 본 연구에서 간접적으로 구한 각 상의 물질이동계수의 비(k_G/k_L)는 22내외로서, 지금까지 관습적으로 사용되어온 값(100)보다 작았다. 이것은 기체측저항이 통상의 기준보다도 크다는 것을 의미하는 것으로서, 휘발성유기물의 물질이동에 대하여 기체측저항의 중요성을 인정하는 깊은 연구가 필요하다.

2. 유기물의 물질이동속도는 산소의 이동속도에 비례하였으며, 본 연구에서 사용된 유기물에 대한 비례계수는 약 0.58로 가스유속이나 액체의 혼합정도와는 무관하였다.

감 사

본 논문의 일부자료는 KOSEF Post-Doc. 연구보조에 의해 얻어진 것으로 이에 감사사를 드립니다.

NOMENCLATURE

a : gas-liquid interfacial area per unit volume of tank [m^2/m^3]
 C_G : gas-phase solute concentration [kg/m^3]
 C_L, C_{L0} : liquid-phase solute concentrations, respec-

tively, at time t and time zero [kg/m^3]
 D_L : liquid-phase diffusivity [m^2/s]
 F_G : volumetric gas flow rate [m^3/s]
 H : Henry's law constant [$\text{kg}/\text{m}^3\text{-gas}/[\text{kg}/\text{m}^3\text{-liquid}]$]
 k_G : gas-phase mass transfer coefficient [m/s]
 k_L : liquid-phase mass transfer coefficient [m/s]
 $k_G a$: gas-phase volumetric mass transfer coefficient [s^{-1}]
 $k_L a$: liquid-phase volumetric mass transfer coefficient [s^{-1}]
 $K_L a$: overall volumetric mass transfer coefficient [s^{-1}]
 N : number of data [-]
 R_G : gas-phase mass transfer resistance [-]
 R_L : liquid-phase mass transfer resistance [-]
 R_T : total mass transfer resistance [-]
 t : time [s]
 u_G : superficial gas velocity [m/s]
 V : total volume of tank [m^3]
 V_L : volume of liquid in tank [m^3]
 x : axial distance variable [m]
 X : height of liquid level [m]
 ϵ_G : gas holdup [-]

REFERENCES

1. Akita, K. and Yoshida, F.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **12**, 76 (1973).
2. Cho, J.S. and Wakao, N.: *Chem. Eng. Communications*, **56**, 139 (1987).
3. Cho, J.S. and Wakao, N.: *HWAHAK KONGHAK*, **25**, 578 (1987).
4. Cho, J.S. and Wakao, N.: *J. Chem. Eng. Japan*, **21**, 576 (1988).
5. Dilling, W.B.: *Environ. Sci. Technol.*, **4**, 405 (1977).
6. Gossett, J.M.: *Environ. Sci. Technol.*, **21**, 202 (1987).
7. Hikita, H., Asai, S., Tanigawa, K., Segawa, K. and Kitao, M.: *Chem. Eng. J.*, **22**, 61 (1981).
8. Hughmark, G.A.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **6**, 218 (1967).
9. Liss, P.S. and Slater, P.G.: *Nature*, **247**, 181 (1974).
10. Mackay, D. and Leinonen, P.J.: *Environ. Sci. Technol.*, **9**, 1178 (1975).
11. Mackay, D., Shiu, W.Y. and Sutherland, R.P.: *Environ. Sci. Technol.*, **13**, 333 (1979).
12. Matter-Müller, C., Gujer, W. and Giger, W.: *Water Res.*, **15**, 1271 (1981).
13. Reid, R.C., Prausnitz, J.M. and Sherwood, T.K.: "The Properties of Gases and Liquids", 3rd ed.,

- McGraw-Hill, New York (1977).
14. Shah, Y.T., Kelker, B.G., Godbole, S.P. and Deckwer, W.D.: *AIChE J.*, **28**, 353 (1982).
 15. Smith, J.H., Bomberger, D.C. and Haynes, D.L.: *Environ. Sci. Technol.*, **14**, 1332 (1980).
 16. Smith, J.H., Bomberger, D.C. and Haynes, D.L.: *Chemosphere*, **10**, 281 (1981).
 17. Treadwell, F.T. and Hall, W.T.: "Analytical Chemistry", II, Wiley, New York (1942).