

UV/H₂O₂ 산화 공정에서 페놀의 산화분해 반응에 대한 고주파 조사의 영향

차상엽 · 전재성 · 임재경 · 양해영 · 한도홍[†]

영남대학교 공과대학 화학학부
(1998년 9월 16일 접수, 1998년 12월 24일 채택)

Effect of Microwave on Oxidative Degradation of Phenol in UV/H₂O₂ Oxidation Process

Sang-Yeob Cha, Jae-sung Jeon, Jae-kyeung Lim, Hae-young Yang and Do-Hung Han[†]

School of Chemical Engineering and Technology, Yeungnam University,
214-1 Tae-Dong, Kyongsan, Kyongbuk 712-749, Korea
(Received 16 September 1998; accepted 24 December 1998)

요 약

본 연구에서는 phenol 수용액의 산화분해를 향상시키기 위해서 고급산화 공정을 고주파 조사와 결부시켰다. 열적 효과를 배제한 상태에서, 이와 같은 새로운 공정은 기존의 UV/H₂O₂ 공정과 비교했을 때 산화분해 반응속도를 상당히 촉진시킨다. 예를 들면, 반응속도는 50 %까지, TOC에 기초한 제거효율은 60 %이상 증가하였다. Phenol수용액의 산화과정에서 hydroquinone, catechol, maleic acid, glyoxalic acid, formic acid 등과 같은 여러 종류의 중간체들이 HPLC분석기에 의해 관찰되었다. Hydroquinone 및 catechol과 같은 벤젠고리 중간체들은 고주파 조사 시스템을 가진 UV/H₂O₂ 공정이 기존의 UV/H₂O₂ 공정에서 보다 훨씬 빠르게 생성 및 분해되었다. 새로운 공정의 높은 효율은 고주파가 극성분자들을 격렬하게 진동시키기 때문에 반응물 분자들이 높은 여기상태를 가지고 또한 반응물들간의 물질전달 속도를 증진시켜서 산화반응을 촉진시킬 수 있다는 사실들로부터 기인되는 것으로 판단된다.

Abstract—In this study, to improve oxidative degradation of aqueous phenol, an advanced oxidation process of UV/H₂O₂ was combined with microwave irradiation. This new process, comparing with a conventional UV/H₂O₂ process, was found to considerably accelerate the oxidative degradation rate. For example, it accelerates up to 50 % increase of the reaction rate and more than 60 % increase of the removal efficiency based on TOC values, without any thermal effect. In the course of the oxidative degradation of aqueous phenol, several kinds of intermediates, such as hydroquinone, catechol, maleic acid, glyoxalic acid, formic acid, and etc., could be observed by HPLC analyzer. Benzene ring intermediates such as hydroquinone and catechol were both formed and degraded much more rapidly in the UV/H₂O₂ process with microwave irradiation system than in the conventional process. High efficiency of the new process with microwave irradiation will arise probably from such facts that, since microwave violently vibrate polar substances, reactant molecules might change into high excited states to be easily oxidized and such vibration of polar substances can also improve the mass transfer rates between reactants.

Key words: Microwave, Advanced Oxidation Process, Ultraviolet, Phenol, Hydrogen Peroxide

1. 서 론

고급산화법(advanced oxidation process)은 폐수 중에 하이드록실 라디칼(OH radical)을 생성시켜서 각종의 유기화합물의 산화분해 반응을 촉진시키는 방법을 일컫는다. 고급산화법으로는 ultraviolet/ozone(UV/O₃), ultraviolet/hydrogen peroxide(UV/H₂O₂), ozone/hydrogen peroxide(O₃/H₂O₂) 등의 방법이 있다. 이들 공정으로부터 생성된 하이드록실 라디칼(OH radical)은 반응성이 우수할 뿐만 아니라 오존과는 달리 비선택적으로 유기화합물들을 산화시키기 때문에, 특히 난분해성 유기화합물들을 포함하고 있는 폐수의 정화에 고급산화법을 이용하고

자 많은 연구가 진행되어 왔다. 이들 공정 중에서 가장 산화효율이 높은 UV/O₃ 공정은 기존의 생물화학적 처리[1, 2] 또는 물리화학적 처리[3-6] 방법들에 비해 운전비가 다소 고가이기 때문에 일반 산업 폐수를 다량으로 처리하는데 이용하기에는 경제성 문제가 지적되어 왔다. 반면에 오존에 비해 저가인 과산화수소를 사용하는 UV/H₂O₂ 공정에서는 과산화수소의 자외선에 대한 흡광도가 낮기 때문에 하이드록실 라디칼의 생성속도가 낮다. 따라서 여러 연구자들은 UV/O₃ 공정이 UV/H₂O₂ 보다 성능이 우수한 것으로 평가하고 있다[7-12]. 그러나 기체상의 오존과는 달리 과산화수소는 액상에서 공급되므로 기체-액체간의 물질전달 저항이 없고 물에 대한 용해도가 높기 때문에, UV/H₂O₂ 공정에서 하이드록실 라디칼의 생성 효율을 높일 수 있다면 산화력을 상당히 증대시킬 수 있으리라 본다.

[†]E-mail: dhhan@ynucc.yeungnam.ac.kr

과산화수소와 고주파를 이용하는 방법은 폐유와 같은 고농도의 유기물 중에 함유하고 있는 미량의 금속이온을 검출하기 위한 전처리 기술이 응용되고 있다[13]. 이 전처리 방법은 대상시료에 과산화수소를 가한 후 고주파를 조사시켜 유기물을 고온에서 분해시켜 제거함으로써 미량의 금속이온 농도를 정확히 분석하는 기술로 기존의 가열방법과는 달리 고주파의 유전가열을 이용하여 과산화수소와 유기물의 반응을 촉진시키는 효과적인 방법이다[14, 15]. 그러나 이 방법은 고온에서 유기물을 산화분해시켜야 하기 때문에 대량의 실제 폐수처리에는 이용되기가 어렵다고 본다.

본 연구에서는 미생물에 독성이 강한 난분해성인 phenol의 산화 분해를 촉진시키기 위하여 UV/H₂O₂ 산화공정에 고주파를 도입하였다. 이는 고주파가 극성분자들을 격렬하게 진동시켜서 반응물 분자들이 용이하게 산화될 수 있는 높은 여기상태를 가질 뿐만 아니라 미시적 혼합효과에 의한 반응물들간의 물질전달 속도를 증진시킬 수 있으리라 보기 때문이다.

2. 실험

2-1. 실험장치 및 방법

본 연구에 사용된 실험장치도를 Fig. 1에 나타내었다. 고주파를 발생하는 고주파 발전기는 주파수 2.45 GHz의 전자파를 발생하며 최대 소요전력은 1kW이다. 자외선 lamp(G10T8, TOKI)는 8 W의 저압 수은램프를 사용하였으며 원통형 반응기의 중심에 위치하도록 하여 조사된 자외선의 대부분이 반응물에 흡수되어 외부로의 손실을 최대한 억제시켰다. 반응기는 내경 45 mm, 외경 50 mm, 길이 300 mm의 원통형 pyrex관을 사용하였다. 산에 의한 부식을 막기 위해 장치에 사용된 모든 line은 6 mm Teflon tube를 사용하였다. 또한 고주파의 효과를 배제한 순수한 UV/H₂O₂ 공정에서 폐놀의 산화분해 반응을 관찰하기 위하여, 고주파 발생기 대신에 반응기 주위에 열선을 감아 PID형 온도 조절기로 반응온도를 조절하여 동일한 온도에서 반응속도를 비교하였다.

고주파의 강도는 고주파발전기의 인가전류를 변화시킴으로써 조절하였다. 고주파를 조사하게 되면 반응기내부의 온도가 올라가게 되는데 이러한 온도상승 효과를 줄이기 위해 순환펌프를 사용하여

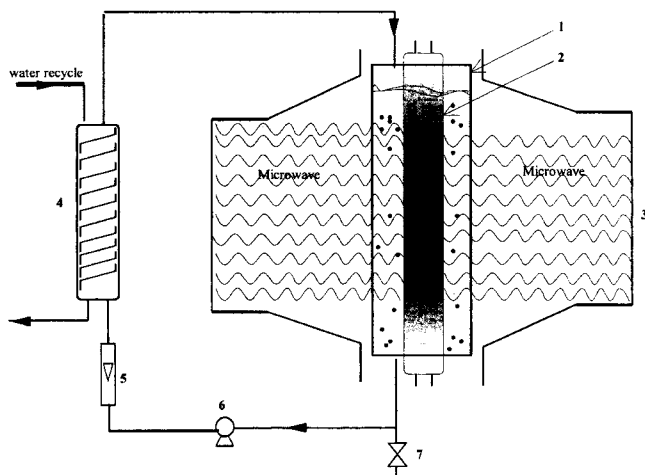


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus with microwave irradiation system.

- | | |
|------------------------------------|--------------------|
| 1. Reactor | 5. Rotameter |
| 2. Low pressure mercury vapor lamp | 6. Recycle pump |
| 3. Microwave generator | 7. Three way-valve |
| 4. Heat exchanger | |

열교환기로 반응물을 순환시켜 온도를 내리고 동시에 순환에 의한 혼합이 잘 일어나도록 하였다. 순환펌프에 의한 반응물의 순환속도는 0.6 l/min이고 반응기 및 순환시스템에서의 총 반응물 부피는 400 ml이다.

2-2. 시료 및 분석

반응물은 특급시약의 phenol을 증류수에 일정량 녹여 사용하였다. 산화제로 사용한 과산화수소는 30 %농도의 특급시약을 사용하였고 상온에서 자연분해될 가능성이 있기 때문에 냉장고에서 암냉 보관하였다.

Phenol과 중간생성물의 분석은 HPLC(Shimadzu, LC10A)를 이용하였으며 반응물의 총 유기탄소의 변화는 TOC분석기(Shimadzu, TOC 5000-A)를 사용하였다. 시료의 채취는 반응기의 하부에 위치한 three way-valve를 통하여 일정한 시간 간격을 유지하여 행하였다. HPLC의 분석 조건은 Table 1과 같다. Phenol, hydroquinone, catechol과 같은 유기물은 ODS컬럼(condition I)을 이용하여 정량분석하였으며, 그외 중간생성물의 확인에는 Phenomenex컬럼(condition II)을 사용하였다.

3. 결과 및 토의

3-1. 고주파의 출력계산 및 반응물의 온도 제어

반응기내 반응물은 고주파에 의해 유전가열되어 외부로 열전달이 없을 경우 반응기의 온도는 급격히 상승한다. Fig. 2는 증류수 300 ml를 반응기에 채운뒤 단열상태에서 고주파를 조사하여 유전가열로 인한 반응물의 온도변화를 관찰한 것이다. 인가전류를 3-5 A로 변화

Table 1. Analyzing conditions for liquid chromatography

	Condition I	Condition II
Column	ODS	Phenomenex
Temperature	45 °C	45 °C
Flow-rate	1 ml/min	0.5 ml/min
Injection volume	1 µl	1 µl
Mobile phase	10 mM Phosphate buffer 70 %/Methanol 30 %	0.005 N H ₂ SO ₄
Attenuation	4	4
Chart speed	5 mm/min	5 mm/min
Detector	UV(210 nm)	UV(210 nm)

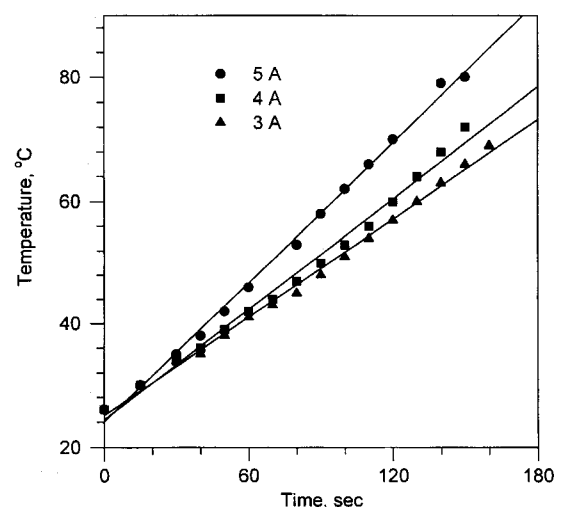


Fig. 2. Temperature change of water by microwave irradiation.

Table 2. Output of microwave power calculated by Eq. (1)

Electric current	$\Delta T/t(^{\circ}\text{C}/\text{sec})$	P(W)
5A	0.367	460.65
4A	0.283	355.215
3A	0.258	323.836

시킬 때 2-3분내의 범위에서 온도가 70 $^{\circ}\text{C}$ 이상까지 시간에 따라 거의 선형적으로 상승하였다. 이때 직선의 기울기로부터 고주파의 출력을 식 (1)에 의해 간접적으로 추정할 수 있다[16].

$$P = c \cdot m \cdot \frac{\Delta T}{t} \quad (1)$$

여기서 P는 고주파출력(W), m은 물의 질량(g), c는 물의 열용량(J/g $^{\circ}\text{C}$), t는 시간(s)을 나타낸다. Table 2에서 보는 바와 같이 인가전력이 3A, 4A, 5A일 때, 식 (1)에 의해서 계산한 고주파의 출력은 각각 460.7 W, 355.2 W, 232.8 W이다. 열교환기를 통하여 반응물을 0.6 l/min으로 순환시킨 결과, 고주파에 의한 유전자열로부터 반응기의 온도는 Fig. 3에서 보듯이 5분 부근에서 50 $^{\circ}\text{C}$ 로 일정하게 유지되었다.

3-2. Phenol의 산화분해 반응에서 고주파 조사의 효과

Phenol의 산화분해 반응에 미치는 고주파의 영향을 알아보기로 자외선과 고주파를 동시에 조사한 경우와 자외선만을 조사한 경우를 동일한 반응온도에서 비교하였다. 반응전에 증류수를 반응기에 일정량을 채우고 고주파 또는 전열선을 이용하여 반응온도를 50 $^{\circ}\text{C}$ 로 유지시킨 후, phenol과 과산화수소의 초기농도가 각각 200 ppm과 600 ppm에서 반응을 시작했다.

반응시간에 따른 phenol의 농도변화를 HPLC로 분석한 결과는 Fig. 4에 나타내었다. 그림에서 보듯이 phenol의 산화반응에서 자외선만 조사한 경우보다 자외선과 고주파를 동시에 조사한 반응에서 높은 전환율을 보이고 있다. 또한 phenol의 산화반응속도를 서로 비교하면 'pseudo first-order reaction'으로 가정할 경우 phenol의 산화반응 속도는 자외선과 고주파를 함께 조사한 경우가 자외선만 조사하였을 때 보다 57% 증가하였다(Fig. 5). Phenol과 과산화수소의 초기농도비를 1/3로 유지하고 phenol의 여러 농도를 변화시켜 고주파의 효과를 비교한 결

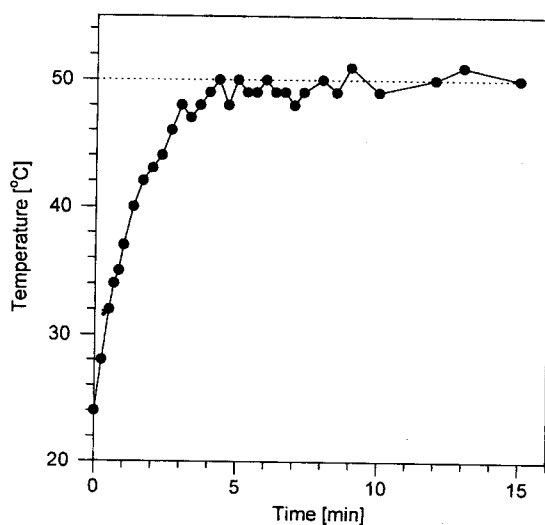


Fig. 3. Steady state temperature of water during irradiation of microwave(electric current of microwave: 5A; recycling rate: 0.6 l/min).

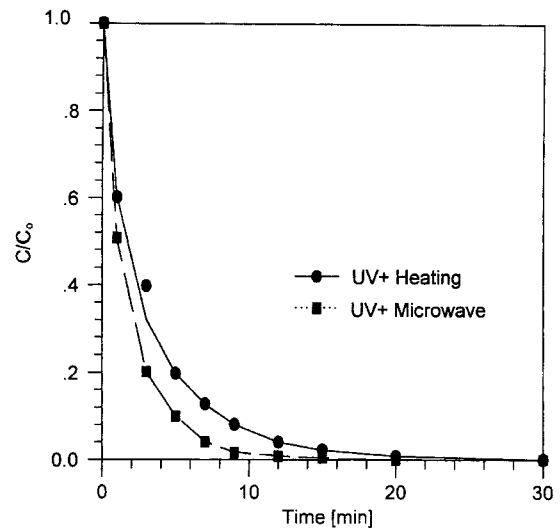


Fig. 4. Effect of microwave on decomposition of phenol(initial concentrations: phenol 200 ppm, H_2O_2 600 ppm; reaction temp.: 50 $^{\circ}\text{C}$).

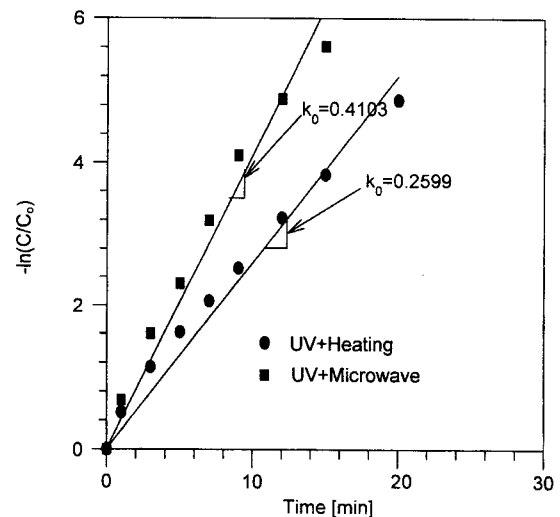


Fig. 5. Pseudo first-order plot for decomposition of phenol(initial concentrations: phenol 200 ppm, H_2O_2 600 ppm; reaction temp.: 50 $^{\circ}\text{C}$).

과, Phenol 농도가 증가함에 따라 두 반응시스템에서의 반응속도는 같이 감소하지만 50%이상의 반응속도 차이를 확인하였다(Fig. 6).

고주파를 조사하였을 경우 총 유기탄소량(Total Organic Carbon: TOC)의 변화에 미치는 과산화수소의 초기농도의 영향을 알아보기 위해서, phenol의 초기농도를 200 ppm으로 고정하고 과산화수소의 농도를 변화시킨 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 과산화수소의 초기농도가 600 ppm일 때는 TOC변화가 완만하지만 1,200 ppm일 때는 TOC변화가 매우 급격히 일어남을 알 수 있다.

TOC값이 감소하는 것은 식 (2)와 같이 phenol이 과산화수소에 의해 완전 산화되어 CO_2 와 H_2O 로 무기화되는 것을 의미한다.



Phenol의 완전 산화반응이 반응식 (2)에 따를 경우 그 양론비에 따른 과산화수소의 이론적 요구량은 식 (3)에 의해서 계산된다.

$$[\text{H}_2\text{O}_2] = 14 \cdot \frac{34.02}{94.11} \cdot [\text{C}_6\text{H}_6\text{O}] \quad (3)$$

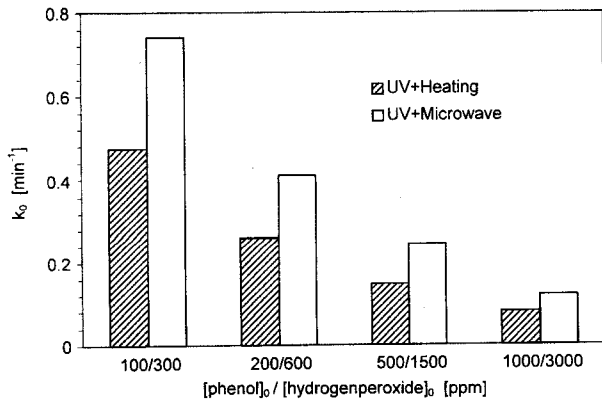


Fig. 6. Comparison of microwave effect on pseudo first-order rate constants of phenol decomposition (reaction temp.: 50 °C).

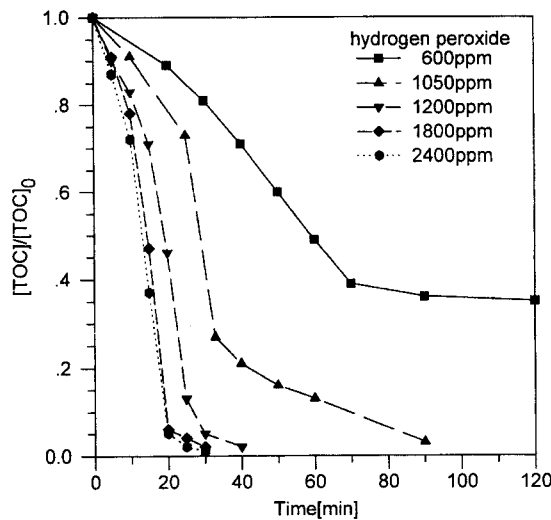


Fig. 7. Degradation of TOC in UV/H₂O₂ process with microwave irradiation system (initial concentration of phenol: 200 ppm; reaction temp.: 50 °C).

이 식으로부터 phenol 200 ppm을 완전 산화분해시키기 위한 과산화수소의 이론량은 1,012 ppm이기 때문에 600 ppm 농도에서는 충분한 시간이 지나도 TOC 제거율은 65%를 넘지 못한다. 이것은 과산화수소가 불충분하여 phenol이 완전 산화하지 못하고 중간생성물인 저분자량의 유기산의 형태로 남아있는 것으로 사료된다. 반면에 과산화수소가 양론비에 가깝게 주입된 1,050 ppm에서는 높은 TOC 제거율을 보이고, 1,200 ppm 이상에서는 급격한 TOC 감소변화를 나타내었다. 과산화수소의 초기농도 1,800 ppm과 2,400 ppm에서 각각의 TOC의 차이는 큰 변화를 보이지 않아서 과산화수소의 주입량이 어느 한계치 이상에서는 TOC 제거속도가 거의 일정하게 유지된다고 본다.

Fig. 8은 phenol의 산화분해에서 고주파를 조사하였을 때와 조사하지 않았을 때의 TOC변화를 비교한 것인데, phenol과 과산화수소의 초기농도는 각각 200 ppm과 1,200 ppm, 동일한 반응온도 50 °C에서 고주파의 영향이 매우 큼을 알 수 있다. 특히, 반응시간이 30분 일 때 고주파를 조사하였을 경우에는 TOC 제거율이 95%인 반면 고주파를 조사하지 않았을 경우 40%에 그쳤다. TOC를 90% 이상 제거하는데 필요한 반응시간도 20분 이상 차이가 난다.

Fig. 9는 고주파를 조사하지 않고 반응온도를 70 °C까지 상승시킨

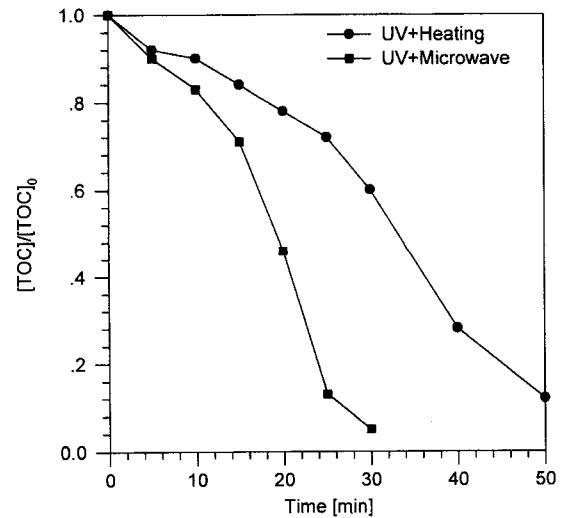


Fig. 8. Effect of microwave on degradation of TOC (initial concentrations: phenol 200 ppm, H₂O₂ 1,200 ppm; reaction temp.: 50 °C).

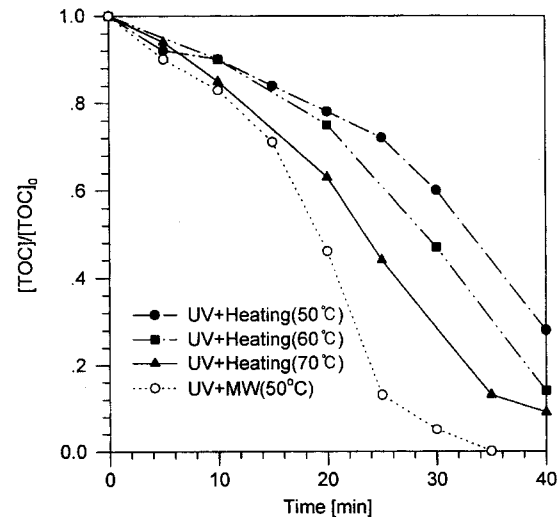


Fig. 9. Effect of temperature on degradation of TOC (initial concentrations: phenol 200 ppm, H₂O₂ 1,200 ppm).

결과와 반응온도 50 °C에서 고주파를 조사하였을 때의 결과를 비교한 것이다. 고주파를 조사하지 않고 자외선만 조사한 실험에서는 반응온도가 증가함에 따라 TOC의 제거율이 증가하지만 70 °C까지 반응온도를 증가시켜도 반응온도 50 °C로 유지하면서 고주파를 조사하였을 경우보다 제거율이 상당히 낮음을 확인하였다. 이상의 실험 결과로부터 UV/H₂O₂ 공정에 고주파 도입이 phenol의 산화분해 효율을 크게 증대시킴을 알 수 있다.

이와 같은 UV/H₂O₂ 공정에서 고주파의 조사로부터 반응성의 증가는 유전자열에 의해 반응온도가 상승하여 일어나는 일반적인 현상이 아니고 고주파에 의한 극성분자들이 격렬하게 진동함으로써, 반응 분자들이 용이하게 산화될 수 있는 높은 여기상태로 되고 또한 반응물의 충돌빈도의 증가로부터 미시적 혼합효과(micro-mixing effect)에 반응물들간의 물질전달 속도가 증대되어 반응성이 상승하기 때문인 것으로 사료된다.

TOC의 변화는 반응초기에는 완만한 감소를 보이다가 반응중반에 접어들어 급격히 감소하게 된다. 이는 phenol이 hydroquinone이나,

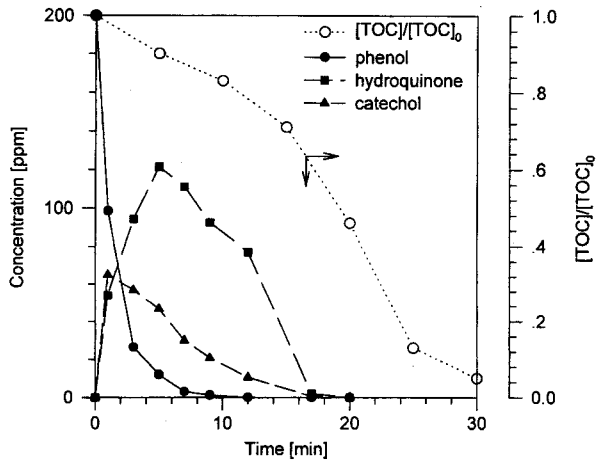


Fig. 10. Intermediates formed in the course of phenol degradation in UV/H₂O₂ process with microwave irradiation system (initial concentrations : phenol 200 ppm, H₂O₂ 1,200 ppm; reaction temp. : 50 °C).

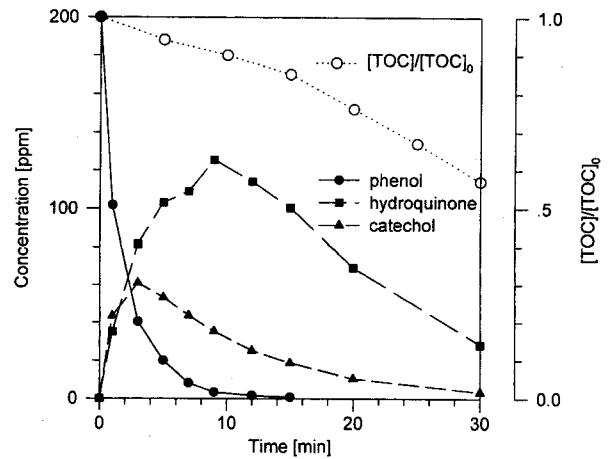


Fig. 12. Intermediates formed in the course of phenol degradation in UV/H₂O₂ process with microwave irradiation system (initial concentrations : phenol 200 ppm, H₂O₂ 600 ppm; reaction temp. : 50 °C).

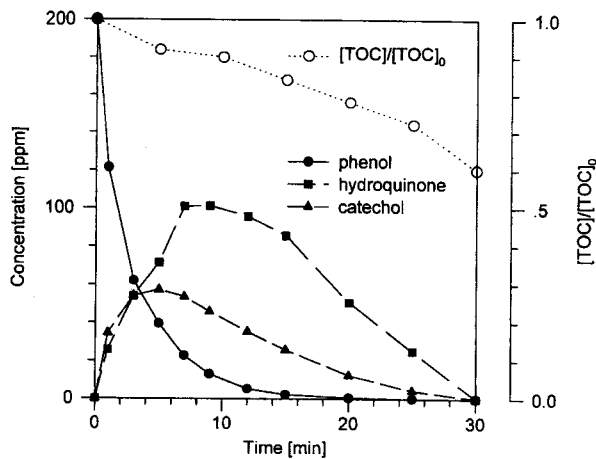


Fig. 11. Intermediates formed in the course of phenol degradation in UV/H₂O₂ process without microwave irradiation system (initial concentrations : phenol 200 ppm, H₂O₂ 1,200 ppm; reaction temp. : 50 °C).

catechol 등 중간단계를 거쳐 저분자량의 유기산으로 산화되기 때문이라 사료된다. 본 연구에서는 이를 확인하기 위해 phenol 및 hydroquinone과 catechol을 HPLC로 정량분석하여 반응진행에 따른 중간생성물의 변화를 관찰하였다. Phenol과 hydrogen peroxide의 초기농도가 각각 200 ppm, 1,200 ppm이고 자외선과 고주파를 동시에 조사시켰을 때, Fig. 10에서 보듯이 phenol은 10분 이내에 95% 이상 제거되지만 2개의 OH기가 벤젠고리에 치환된 hydroquinone과 catechol이 동시에 생성된다. 이들 방향족화합물이 상당량 존재할 때는 TOC 감소 속도가 낮지만 이들 농도가 감소함에 따라 TOC도 급격히 감소한다. 고주파를 조사하지 않았을 경우, Fig. 11에서 보듯이 hydroquinone 및 catechol 등의 방향족 화합물이 오랜시간 동안 잔류하므로 TOC의 감소는 매우 완만하다. 따라서 자외선과 고주파를 동시에 조사하는 것이 hydroquinone과 catechol의 방향족화합물의 고리를 용이하게 개환시켜 저분자량의 유기산으로 변화시키는데 효과적인 것으로 사료된다.

Fig. 12는 phenol 200 ppm을 hydrogen peroxide의 양론비(1,012 ppm)보다 낮은 농도인 600 ppm을 주입하여 반응시킨 것이다. Phenol은 10분 이내에 90% 이상 산화되지만 hydroquinone과 catechol은 반응

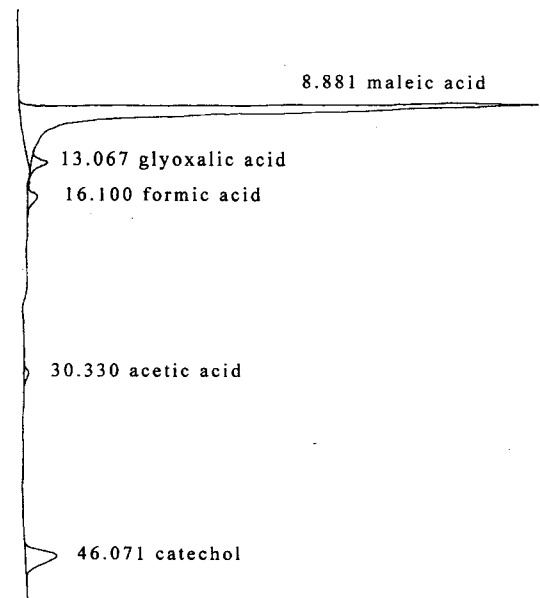


Fig. 13. Liquid chromatogram on intermediates produced from phenol decomposition (HPLC Condition II in Table 1).

시간이 20분이상 지나도 많이 잔류하고 있음을 알 수 있다. 이러한 현상은 hydrogen peroxide가 양론비보다 낮은 농도에서는 phenol이 완전 산화하여 무기화되지 못하고 중간생성물의 형태로 잔존할 것이라는 앞서의 주장을 잘 뒷받침한다.

Fig. 13은 phenol 200 ppm과 hydrogen peroxide 600 ppm을 반응시켜 40분이 경과하였을 때의 chromatography이다. 여기서 확인할 수 있는 중간생성물은 maleic acid, glyoxalic acid, formic acid, catechol 등이다. 이는 반응시간이 경과됨에 따라 hydroquinone과 catechol 등이 분해되어 저분자로 된 것을 알 수 있다.

4. 결 론

(1) Phenol의 산화반응을 pseudo first order reaction으로 가정하여 비교할 경우 microwave조사에 의해 반응속도가 50% 이상 증가하는 효과가 있음을 확인하였다.

(2) UV만 조사하였을 경우보다 microwave를 함께 조사하였을 경우 TOC제거율은 최고 60% 정도 높게 나타났다.

(3) 70 °C까지 반응온도를 높여가며 UV만 조사한 후 TOC제거율을 관찰하였으나 50 °C에서 microwave를 함께 조사하였을 때보다 TOC제거율은 낮게 나타났다.

(4) Phenol의 산화분해 반응은 hydroquinone과 catechol을 동시에 생성하고, 이어서 저분자량의 유기산을 생성하는 연속 산화반응임을 확인하였다.

(5) 본 연구로부터 hydrogen peroxide/UV공정에 고주파 도입이 phenol의 산화분해 효율을 크게 증대시킴을 알 수 있었으며, 이는 고주파에 의한 극성분자들이 격렬하게 진동함으로써, 반응 분자들이 용이하게 산화될 수 있는 높은 여기상태로 되고 또한 반응물의 충돌 빈도의 증가로부터 미시적 혼합효과(micro-mixing effect)에 의한 반응물들간의 물질전달 속도가 증대되어 반응성이 상승하기 때문인 것으로 사료된다.

참고문헌

1. Lee, S. Y., Park, B. K. and Lee, H. Y.: *HWAHAK KONGHAK*, **28**, 172(1990).
2. Ryu, K., Kwon, S. and Kim, Y.: *HWAHAK KONGHAK*, **35**, 296 (1997).
3. Ihm, S. K., Kim, K. S. and Choi, S. J.: *HWAHAK KONGHAK*, **19**, 217(1981).
4. Lee, B. S., Ha, K. S. and Kim, J. B.: *HWAHAK KONGHAK*, **26**, 583(1988).
5. Yun, Y. S., Kweon, S. H., Byun, Y. S., Kim, I. S., Park, P. W. and Jeong, Y. O.: *HWAHAK KONGHAK*, **35**, 705(1997).
6. Joung, S. N., Ahn, S. H., Yoo, K. P., Noh, M. J., Han, J. H. and Han, S. H.: *HWAHAK KONGHAK*, **36**, 92(1998).
7. Kang, J. W.: *Journal of Environmental Hi-Technology*, **January**, 5(1994).
8. Staehelin, J. and Hoigne, J.: *Envir. Sci. & Technol.*, **16**(10), 676 (1982).
9. Staehelin, J. and Hoigne, J.: *Envir. Sci. & Technol.*, **19**, 1206(1985).
10. William, H. G., Kang, J. W. and Douglas, H. C.: *Ozone Sci. & Eng.*, **9**, 335(1987).
11. Guittonneau, J., De Laat, J., Duguet, J. P., Bonnel, C. and Dore, M.: *Ozone Sci. & Eng.*, **1**(12), 73(1990).
12. Schulte, P., Bayer, A., Kuhn, F., Luy, Th. and Volkmer, M.: *Ozone Sci. & Eng.*, **17**, 119(1995).
13. 수질오염 폐기물 공정시험법, 환경처 고시 제1993-82호.
14. Shamsheer, S. B., Ajsy, K. B., Ashok, G. C., Manhas, S. M., Vegesna, S. R. and Eenest, W. R.: *J. of Chem. Educ.*, **69**(11), 938(1992).
15. Pougnet, M. A. B.: *Rev. Sci. Instrum.*, **64**(2), 529(1993).
16. David, A. C.: "Microwave Heating", The AVI publishing Co., Westport, Connecticut(1975).