

## 삼상순환유동층에서 액상의 반경방향 혼합특성

신광식 · 조용준 · 강 용<sup>†</sup> · 김상돈\*

충남대학교 화학공학과

\*한국과학기술원 화학공학과

(2000년 9월 7일 접수, 2000년 11월 6일 채택)

## Radial Mixing Characteristics of Liquid Phase in Three-Phase Circulating Fluidized Beds

Kwang-Sik Shin, Yong-Jun Cho, Yong Kang<sup>†</sup> and Sang-Don Kim\*

Department of Chemical Engineering, Chungnam National University, Taejeon 305-764, Korea

\*Department of Chemical Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Taejeon 305-701, Korea

(Received 7 September 2000; accepted 6 November 2000)

### 요 약

기체-액체-고체 삼상순환유동층(직경 0.102 m × 높이 3.5 m)의 상승관에서 액상의 반경방향 혼합특성을 고찰하였다. 분산상인 기체로는 건조된 공기를, 연속상인 액상으로는 물을, 그리고 고체입자로는 2.1 mm의 유리구를 사용하였다. 기체유속(0.01-0.07), 액체유속(0.25-0.31 m/s) 그리고 고체순환속도(2-8 kg/m<sup>2</sup>s)를 실험변수로 선정하였으며 이들 변수들이 액상의 반경방향 분산계수에 미치는 영향을 고찰하였다. 액상의 반경방향 분산계수는 반경방향의 추적자 농도분포로부터 무한공간모델(infinite space model)을 사용하여 구하였다. 본 연구결과 액상의 반경방향 분산계수는 기체유속과 고체순환속도가 증가함에 따라 증가하였으나 액체유속이 증가함에 따라서는 감소하였다. 또한 삼상순환유동층 상승관에서 충공극률이 증가함에 따라 액상의 반경방향 분산계수는 감소하였다. 상승관에서의 액상의 반경방향 분산계수는 기체와 액체의 유속 그리고 고체순환속도의 상관식으로 나타낼 수 있었다.

**Abstract** – Radial mixing characteristics of liquid phase have been investigated in the riser of a three-phase circulating fluidized bed(0.102 m ID × 3.5 m in height). Compressed air and water have been used as a dispersed gas and a continuous liquid phase, respectively, while glass beads with the diameter of 2.1 mm have been used as a dispersed solid phase. Effects of gas(0.01-0.07) and liquid velocities(0.25-0.31 m/s) and solid circulation rate(2-8 kg/m<sup>2</sup>s) on the radial dispersion coefficient of liquid phase have been discussed. The radial dispersion coefficient of liquid phase was determined by using the infinite space model from the radial concentration profiles of tracer. As a result of this study, the radial dispersion coefficient of liquid phase has increased with increasing gas velocity and solid circulation rate, however, it has decreased with increasing not only liquid velocity but also bed porosity in the riser of a three-phase circulating fluidized bed. The radial dispersion coefficient has been well correlated in terms of operating variables such as gas and liquid velocities and solid circulation rate.

**Key words:** Three-Phase Circulating Fluidized Bed, Radial Liquid Mixing, Infinite Space Model, Radial Dispersion Coefficient

### 1. 서 론

기체-액체-고체 삼상순환유동층은 고체가 층내부에서만 유동하는 기존의 삼상유동층과는 달리 고체입자의 종말속도 이상으로 연속상의 유속을 증가시켜 고체입자를 상승관 밖으로 유출시키고 하강관을 거쳐 고체순환장치를 이용하여 다시 상승관안으로 순환시키는 장치로 최근들어 다상반응기, 생물반응기 그리고 다상의 접촉계 등에서 그 중요성이 인식되면서 활발한 연구가 진행되고 있는데, 특히 유동입자의 밀도가 매우 작거나 입자의 크기가 매우 작은 경우 또는, 고체유동입자가 다공

성인 촉매이거나 흡착제 또는 흡수제 등일 경우에 매우 효과적으로 응용될 수 있는 것으로 보고되고 있다[1-3].

삼상순환유동층은 기존의 일반적인 삼상유동층에서 발생할 수 있는 dead zone을 효과적으로 없앨 수 있는 다상접촉공정이므로 기체-액체-고체간의 접촉효율을 더욱 증가시킬 수 있으며, 높은 기상 및 액상유속 상태에서 운전되므로 단위시간당 처리용량이 크며, 반응물의 양과 조건을 조절할 수 있는 운전조건의 폭이 넓어서 다상반응기로 사용될 경우 반응전환율을 획기적으로 증가시킬 수 있는 반응기로 평가받고 있다[4, 5]. 또한, 삼상순환유동층 반응기는 활성저하(deactivation)된 촉매나 흡착제의 효과적인 재생이 가능하므로 삼상순환유동층에 대한 관심은 전 세계적으로 증대되고 있는 실정이다.

<sup>†</sup>E-mail: kangyong@hanbat.chungnam.ac.kr

지금까지 삼상순환유동층에 대한 연구는 주로 기상, 액상유속 그리고 고체순환속도 등의 변화에 따른 층내 압력강하특성 및 각 상들의 체류량 특성[1-4], 기포특성[5] 등 기초적인 연구가 이루어지고 있을 뿐이며, 삼상순환유동층 내부에서 순환되고 있는 유동고체입자의 유동특성과 기포특성 그리고 분산상과 연속상간의 접촉 등에 의해서 발생하는 복합적인 수력학적 특성들에 대한 연구는 지금 막 시작단계에 와 있다. 더욱이 이러한 수력학적 특성들의 상호작용 결과 층내에서 발생하는 전달현상이나 혼합 등에 대한 연구는 극히 미비한 실정이다.

따라서 본 연구에서는 삼상순환유동층에서 기상 및 액상유속 그리고 고체순환속도의 변화에 따른 액상의 반경방향 혼합특성을 액상의 반경방향 분산계수를 실험적으로 구함으로써 고찰하였으며 이와 같은 연구 결과는 삼상순환유동층의 산업적 응용에 필수적인 기초자료가 될 것으로 사료된다.

## 2. 실험

본 연구에 사용된 실험장치는 Fig. 1에서 보는 바와 같이 상승관으로 직경이 0.102 m이고 높이가 3.5 m인 아크릴관을 사용하였다. 실험장치는 상승관과 상승관 상부의 액체-고체 분리부, 하강관 그리고 고체순환을 위한 inner loop-seal로 구성되어 있으며 순환되는 고체의 양은

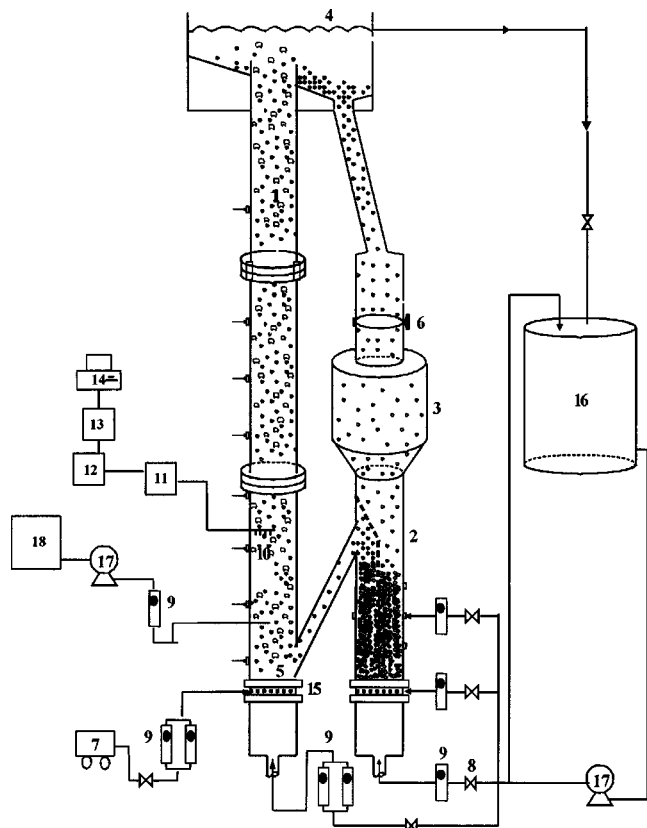
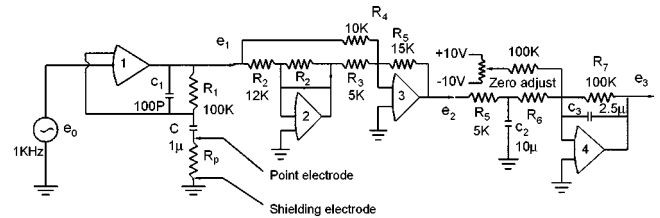
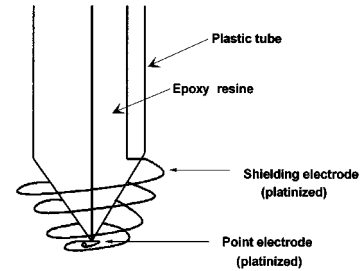


Fig. 1. Experimental apparatus.

- |                    |                         |
|--------------------|-------------------------|
| 1. Riser           | 10. Conductivity probe  |
| 2. Down comer      | 11. Conductivity bridge |
| 3. Hopper          | 12. Low-pass filter     |
| 4. L/S Separator   | 13. A/D convertor       |
| 5. Tracer inlet    | 14. Computer            |
| 6. Butterfly valve | 15. G/L Distributor     |
| 7. Compressor      | 16. Liquid reservoir    |
| 8. Control valve   | 17. Pump                |
| 9. Flowmeter       | 18. Tracer tank         |



(a) Circuit for conductivity bridge



(b) configuration of conductivity probe

Fig. 2. Configuration of conductivity probe with a point electrode and a shielding coiled wire electrode and circuit for conductivity bridge.

butterfly valve를 이용하여 실험적으로 측정하였다[1, 2, 5].

액상의 반경방향 혼합계수를 측정하기 위해서 추적자 주입방법[6-11]을 사용하였다. 추적자로는 1.0 N의 NaCl용액을 사용하였으며, 관내 추적자의 주입은 주어진 실험조건에서 정상상태에 도달된 다음 고체입자 순환지점의 10 cm 상부의 관중앙에서 점주입(point source) 시켰다. 관 내에서 추적자(tracer)의 반경방향 농도분포를 측정하기 위해서 4개의 전기전도도탐침을 추적자의 주입위치에서 30 cm 상부에 설치하였으며, 이들의 반경방향 위치는 관의 중앙으로부터 각 1.5 cm의 거리를 두고 설치하였다. 전기전도도탐침은 직경 6 mm의 plastic tube에 0.3 mm직경의 백금 wire를 사용하였으며, 여러 가지 탐침형태중 가장 민감한 검출이 가능한 것으로 알려진[12] shielding electrode와 point electrode로 구성된 전기전도도탐침 형태를 제작하여서 사용하였다(Fig. 2).

반경방향의 추적자 농도변화는 반경방향으로 설치된 4개의 탐침들과 conductivity bridge를 통해 정류, filter 및 증폭과정을 거쳐 전기적 신호로 변환된 후 data logging system으로 유입되어 컴퓨터에 저장되었다. 이때 얻어진 전기적 신호는 출력볼트(output voltage)와 conductance와의 보정곡선을 이용하여 농도로 변환하여 사용하였다. 실험변수인 액체와 기체의 유속범위는 각각 0.25-0.33 m/s, 0.01-0.07 m/s이었고, 고상으로는 직경이 2.1 mm이고 밀도가 2,500 kg/m<sup>3</sup>인 유리구를 사용하였으며 이들의 순환속도는 2-8 kg/m<sup>2</sup>s이었다.

추적자 주입 후 정상상태에서 측정된 추적자의 반경방향 농도분포로부터 액상의 반경방향확산계수는 무한공간모델(infinite space model)을 사용하여 구하였는데, 이 모델은 본 연구와 같은 유동층에 적용하는 데 적합한 것으로 알려져 있다[6-11].

무한공간모델의 해는 식 (1)과 같이 무차원 축방향 좌표,  $\xi$ 와 변형된 Peclet Group,  $\phi$  및 무차원 반경방향 좌표  $X$ 의 함수로 나타낼 수 있다.

$$\frac{C}{C_0} = \frac{\phi}{2\xi} \exp\left(-\frac{\phi}{2\xi} \cdot X^2\right) \quad (1)$$

여기서

$$\phi = \frac{U_L \cdot R}{2D_Z^{0.5} D_r^{0.5}}$$

$$\xi = \frac{D_r^{0.5} \cdot Z}{D_z^{0.5} \cdot R}$$

$$X = \frac{r}{R}$$

이며,  $D_z$ 와  $D_r$ 은 각각 액상의 축방향 및 반경방향 확산계수,  $Z$ 와  $R$ 은 각각 전기전도도탐침이 있는 높이와 유동층의 반경을 나타낸다. 액상의 반경방향 확산계수( $D_r$ )는 반로그좌표(semilogarithmic coordinate)에서 실험적으로 측정된 반경방향 추적자의 농도분포 기울기로부터 식 (2)에 의하여 계산하였다.

$$D_r = \frac{\frac{U_L}{\varepsilon_L} \cdot R^2}{4Z \cdot \text{slope}} \quad (2)$$

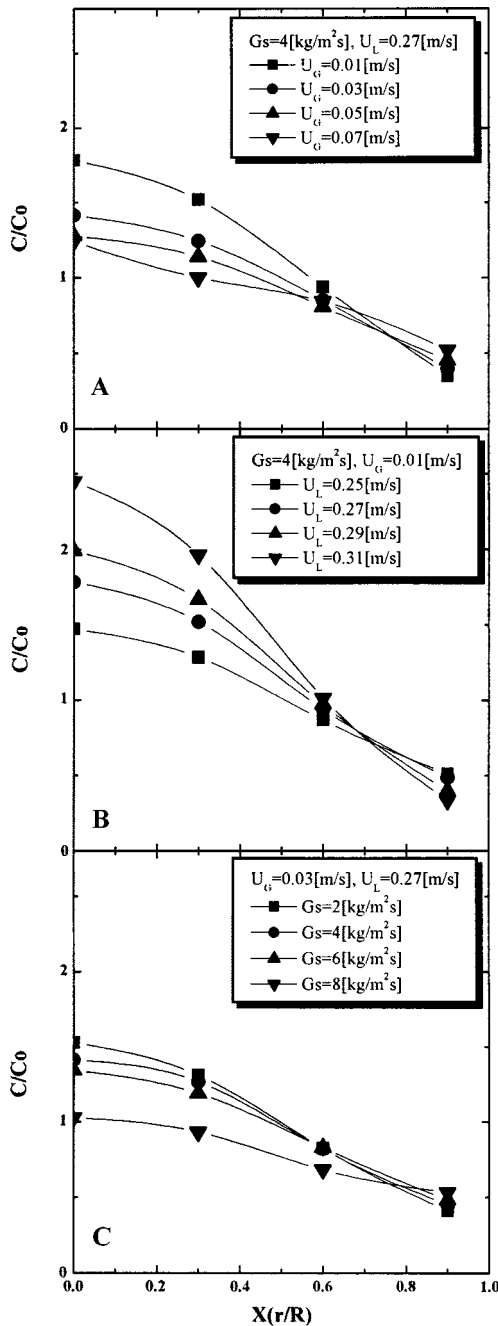


Fig. 3. Concentration profiles in the radial direction in three-phase circulating fluidized beds.

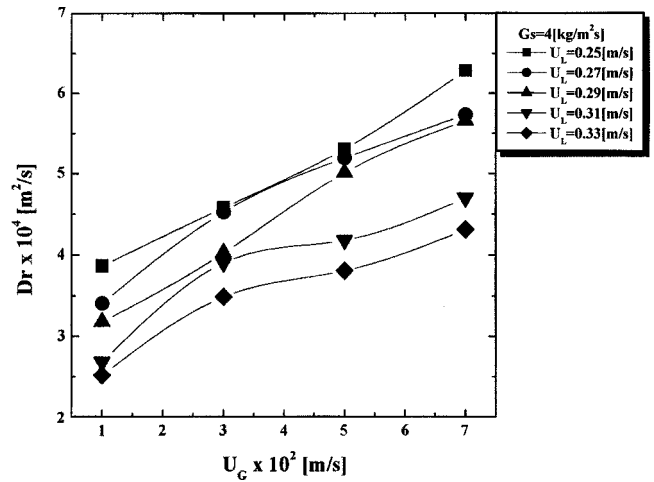


Fig. 4. Effects of gas velocity on the liquid radial dispersion coefficient in three-phase circulating fluidized beds.

### 3. 결과 및 고찰

삼상순환유동층에서 기체유속, 액체유속 그리고 고체순환속도 변화에 따른 반경방향의 전형적인 농도분포 곡선을 Fig. 3에 나타내었다. Fig. 3에서 볼 수 있듯이 기체유속과 고체순환속도가 증가함에 따라서는 반경방향 농도분포의 기울기는 감소하지만(A, C) 액체유속의 증가에 따라서는 그 기울기가 증가하는 것을 알 수 있는데(B), 이는 기체유속 및 고체순환속도가 증가함에 따라서는 반경방향으로 액상의 혼합현상이 증가되지만 액체유속이 증가함에 따라서는 반경방향 혼합현상이 저하된다는 것을 의미한다.

이들 농도분포로부터 액상의 반경방향 분산계수를 구하였는데, 기체유속이 0.01 m/s에서 0.07 m/s로 증가함에 따라서 Fig. 4에서 보는 바와 같이 액상의 반경방향 분산계수는 모든 액체유속의 범위에서 단조증가하는 것을 볼 수 있다. 이는 기체유속이 증가함에 따라 기포의 크기와 크기분포가 커지게 되며[5] 기포하부에 많은 선회류(vortex)를 형성시켜 반경방향 분산계수를 증가시키는 역할을 하는 기포의 wake가 커지게 되고, 또한 반경방향으로 큰 액체유속구배를 가지게 되기 때문에 액체의 recirculation과 혼합이 원활하게 이루어지기 때문이라고 할 수 있다. 이러한 결과는 기존의 비순환 삼상유동층의 결과와도 유사한데, Kang 등[7]은 상승하는 기포는 연속적으로 형성되고 분해되는 turbulence wake에 의해서 상승하게 되며 이렇게 빠르게 상승하는 액체요소(liquid element)들이 층내의 혼합현상을 유발한다고 하였으며, 기체유속의 증가는 기포와 wake의 이러한 거동을 원활하게 발생케 함으로써 기포영역과 연속액상 사이에서 불균일한 유속구배와 기체체류량 분포를 발생시키기 때문에 액상의 반경방향 분산계수를 증가시킨다고 하였다.

기체유속이 0.03 m/s로 일정하고 고체순환속도가 2, 4, 6, 8 kg/m²s일 경우 액체유속 증가에 따른 액상의 반경반경방향 분산계수 변화양상을 Fig. 5에 나타내었다. 이 그림에서, 모든 고체순환속도에서 액체유속이 증가함에 따라서는 반경방향 분산계수는 감소하였다. 일반적으로 삼상유동층에서 액체유속이 증가하면 층내의 난류(turbulence)를 증가시키고 결과적으로 축방향 및 반경방향 혼합을 증가시킨다[13-15]. 하지만 삼상순환유동층은 연속상인 액상의 유속이 매우 높기 때문에 기포의 크기 및 크기분포는 작아지고, 액체체류량이 크고 상대적으로 고체의 체류량은 작아지기 때문에 고체입자의 진동운동에 의해 발생하는 고체입자의 방해효과는 급격하게 감소하게 되고 단위 면적당의 난류강도는 작아져서 결과적으로 액체유속의 증가는 액상의 축방향분산은 증가시키는 반면 반경방향 분산계수를 감소시키게 된다. 또한, 높은 액체유속은

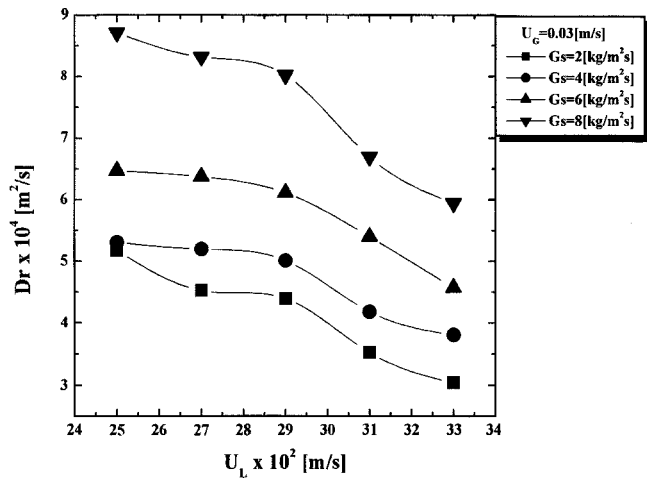


Fig. 5. Effects of liquid velocity on the liquid radial dispersion coefficient in three-phase circulating fluidized beds.

로 인하여 삼상순환유동층의 국부액체유속은 반경방향으로 좀더 균일한 분포를 가지게 되고 따라서 반경방향으로 액상의 속도구배는 거의 일정해지기 때문에 기포와 액상의 대부분은 반경방향으로 큰 혼합현상을 유발하지 않고 축방향으로 상승하게 된다. 결국, 액상의 반경방향 분산계수에 큰 영향을 미치는 액상의 intercell recirculation은 매우 작거나 거의 발생하지 않아 액체유속이 증가할수록 액상의 반경방향 분산계수는 작아지게 된다. 이러한 결과는 Han 등[4]의 실험결과와도 일치하는 것으로, Han 등[4]은 삼상순환유동층에서 액체유속의 증가는 반경방향으로 좀더 균일한 국부액체유속(local liquid velocity) 분포를 가지게 하기 때문에 반경방향으로 액상의 속도구배는 거의 일정해지고 액상의 intercell recirculation은 감소되기 때문에 결과적으로 삼상순환유동층에서 액체유속이 증가함에 따라서 액상의 반경방향 분산계수는 감소한다고 하였다.

다상유동층에서 혼합은 일반적으로 유동층내의 난류현상, 액상과 유동입자의 흐름형태 및 액체분산판 등의 영향을 받는 것으로 알려져 있는데[7-9, 16], 특히 유동입자의 크기 및 흐름형태는 유동층내의 난류현상을 유발하여 축방향 뿐만 아니라 반경방향 혼합현상에도 중요한 영향을 미친다고 할 수 있다.

최근까지 비순환 삼상유동층에서 유동입자가 반경방향 혼합현상에 미치는 영향에 대한 연구들을 살펴보면[7-11], 액체가 물이고 고체입자가 유리구슬인 경우 입자의 크기가 2 mm보다 작을 경우에는 입자에 의한 기포의 분쇄현상이 발생하지 않아서 wake 유속과 wake 부피가 커지기 때문에 2 mm보다 큰 농도분포를 가지게 되어 액상의 반경방향 혼합은 작은 값을 가지나 고체입자가 2 mm보다 클 경우에는 기포의 분쇄현상이 발생하기 때문에 고체입자의 직경이 커질수록 반경방향 혼합현상은 증가한다고 하였다.

삼상순환유동층에서 고체입자의 직경이 2.1 mm로 일정하고 액체유속이 0.25-0.33 m/s일 경우에 고체순환속도(solid circulation rate)가 2 kg/m<sup>2</sup>s에서 8 kg/m<sup>2</sup>s로 증가함에 따른 액상의 반경방향 분산계수의 변화를 Fig. 6에 나타내었다. 이 그림에서 볼 수 있듯이 모든 액체유속범위에서 고체순환속도가 증가함에 따라서 반경방향 분산계수는 증가함을 알 수 있다. 앞에서 언급하였듯이 삼상순환유동층에서 혼합정도는 층내 발생하는 난류강도에 크게 영향을 받게 된다. 즉, 층내에서 발생하는 난류강도는 고체입자들의 진동운동과 기포의 불규칙한 운동에 의해서 발생하게 되는데 삼상순환유동층에서 고체순환속도가 증가하게 되면 고체체류량이 커지고 따라서 고체입자들의 유효진동운동 강도가 증가하여 난류강도(turbulence intensity)가 증가할 뿐 아니라, 고체체류량의 증가는

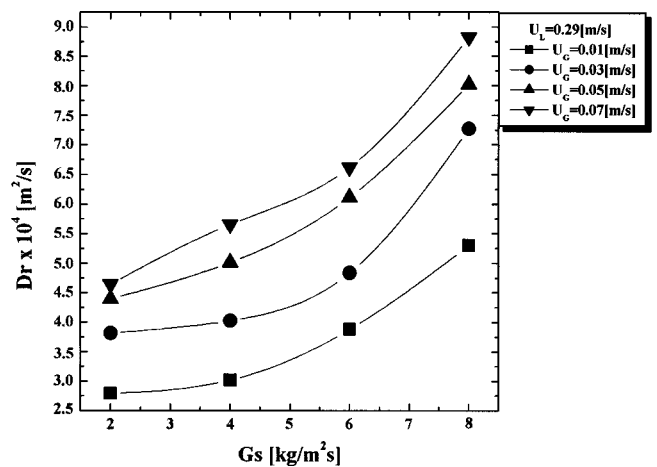


Fig. 6. Effects of solid circulation rate on the liquid radial dispersion coefficient in three-phase circulating fluidized beds.

삼상순환유동층 내부에서 기체-액체 흐름에 상대적인 방해효과(hindrance effects)의 증가를 가져와 층내의 난류강도를 증가시키기 때문에 고체순환속도가 증가함에 따라서 액상의 반경방향 분산계수는 커지는 것으로 사료된다.

삼상순환유동층에서 층공극률(bed porosity)이 액상의 반경방향 혼합특성에 미치는 영향은 Fig. 7에 나타내었는데 층공극률이 증가함에 따라서 액상의 반경방향 분산계수는 감소하였다. Kang 등[8, 9]은 비순환 삼상유동층에서 0.57-0.7 정도의 층공극률에서 반경방향 분산계수는 최대값을 가지고 그 이상이 되면 감소한다고 하였다. 삼상순환유동층에서는 연속상인 액체의 유속이 고체입자의 종말속도(terminal velocity)이상이 운전되므로 비순환 삼상유동층에 비하여 상대적으로 높은 액체유속 조건하에서 운전되며 따라서 층공극률 또한 비순환 삼상유동층과 비교할 때 상대적으로 큰 값을 나타낸다. Fig. 7에서 볼 수 있듯이 고체순환속도의 변화에 따라서 약간의 차이는 있지만 층공극률은 0.75이상으로 높다는 것을 알 수 있다. 따라서 Kang 등[8, 9]의 연구결과와 같이 층공극률이 0.75이상으로 증가할수록 액상의 반경방향 분산계수는 감소한다는 것을 알 수 있다.

액상의 반경방향 혼합특성은 삼상순환유동층에서 물질 및 열전달들의 전달현상에 큰 영향을 미치고, 특히 큰 직경을 가지고 있는 경우 설계 및 운전조작에 매우 중요한 파라메타가 되기 때문에 반경방향 혼합특성에 대한 정보가 확보되어야 한다. 따라서 본 연구의 실험범위에

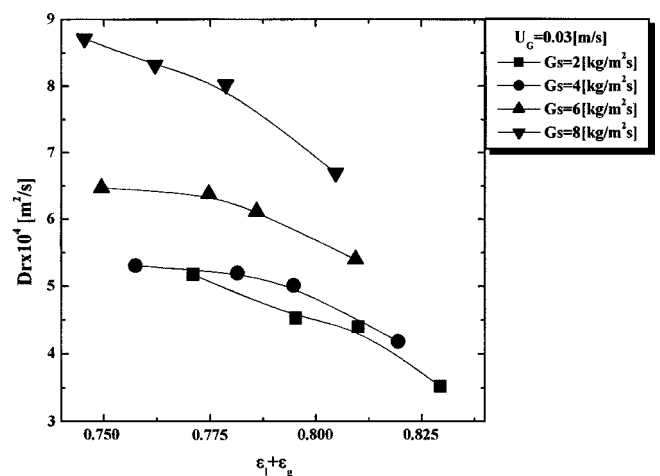


Fig. 7. Effects of bed porosity on the liquid radial dispersion coefficient in three-phase circulating fluidized beds.

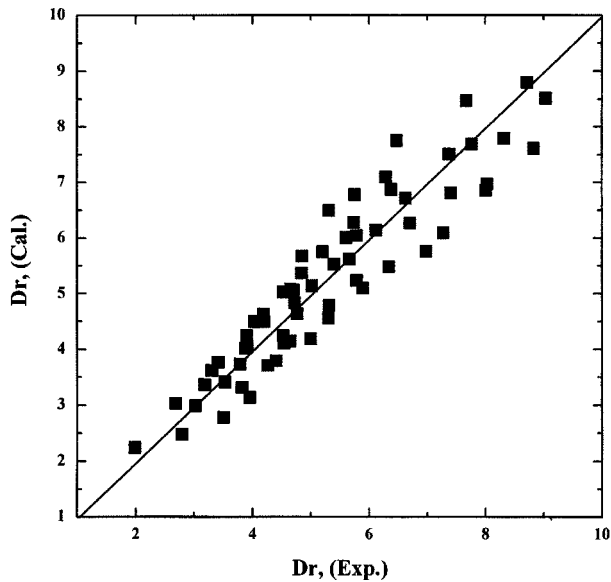


Fig. 8. Comparison of the liquid radial dispersion coefficient between the experimental and the calculated values.

서 액상의 반경방향 혼합특성과 조작변수와의 관계를 유도하기 위하여, 액상의 반경방향 분산계수와 기체유속, 액체유속 그리고 고체체류량과의 상관관계를 식 (3)과 같이 나타낼 수 있었다. 식 (3)의 상관계수는 0.951로 Fig. 8에서 보는 바와 같이 실험결과와 잘 일치하는 것을 알 수 있다.

$$D_r = 0.883 U_G^{0.263} U_L^{-1.269} G_s^{0.438} \quad (3)$$

#### 4. 결 론

삼상순환유동층에서 액상의 반경방향 혼합특성을 고찰한 결과 다음과 같은 몇 가지의 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 삼상순환유동층의 상승관에서 액상의 반경방향 혼합특성은 반경방향의 추적자 농도분포로부터 무한공간모델(infinite space model)을 사용하여 액상의 반경방향 분산계수를 구함으로 효과적으로 해석할 수 있었다.

(2) 삼상순환유동층의 상승관에서 기체유속이 증가함에 따라 기포의 크기가 커지고 따라서 반경방향의 높은 국부액체유속구배를 발생하기 때문에 액상의 반경방향 분산계수는 기체유속이 증가함에 따라서 증가하였다.

(3) 삼상순환유동층의 상승관에서 연속상인 액체유속의 증가는 반경방향으로 좀더 균일한 액상의 속도구배를 발생시켜 반경방향으로 혼합현상을 억제하는 작용을 하기 때문에 액상의 반경방향 분산계수는 액체유속이 증가함에 따라서 감소하였다.

(4) 삼상순환유동층의 상승관에서 고체순환속도가 증가하게 되면 고체체류량이 커지고 고체입자들의 진동운동에 의한 난류강도가 커질 뿐 아니라, 기체-액체 흐름에 상대적인 방해효과의 증가를 가져와 난류강도를 증가시키기 때문에 고체순환속도가 증가함에 따라서 액상의 반경방향 분산계수는 증가하였다.

(5) 삼상순환유동층의 상승관에서 액상의 반경방향 분산계수는 본 실험범위 내에서 기체 및 액체유속 그리고 고체순환속도의 상관식으로 다음과 같이 나타낼 수 있었다.

$$D_r = 0.883 U_G^{0.263} U_L^{-1.269} G_s^{0.438}$$

#### 사용기호

C	: tracer concentration [mol/l]
$C_o$	: average tracer concentration [mol/l]
$D_r$	: radial dispersion coefficient [ $m^2/s$ ]
$D_z$	: axial dispersion coefficient [ $m^2/s$ ]
$G_s$	: solid circulation rate [ $kg/m^2s$ ]
R	: radius of column [m]
r	: radial distance [m]
$U_G$	: superficial gas velocity [m/s]
$U_L$	: superficial liquid velocity [m/s]
X	: dimensionless radial coordinate
Z	: distance of conductivity probe from the distributor [m]

#### 그리스 문자

$\epsilon_G$	: gas phase holdup
$\epsilon_L$	: liquid phase holdup
$\phi$	: modified Peclet number
$\xi$	: dimensionless axial coordinate

#### 감 사

본 연구는 한국과학재단의 특정기초연구(1999-1-307-00)에 의해 수행되었으며 귀 재단에 감사드립니다.

#### 참고문헌

- Kim, S. H., Cho, Y. J., Song, P. S., Kang, Y. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **37**, 916(1999).
- Cho, Y. J., Song, P. S., Kim, S. H., Kang, Y. and Kim, S. D.: *J. Chem. Eng. Japan*, **34**, in press(2001).
- Liang, W., Wu, Q., Jin, Y. and Wang, Z.: *Can. J. Chem. Eng.*, **73**, 656 (1995).
- Han, S., Zhou, J., Loh, K. C. and Wang, Z.: *Chem. Eng. Sci.*, **70**, 9 (1998).
- Nam, S. H., Cho, Y. J., Kang, Y. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **38**, 877(2000).
- Klinkenberg, A. A., Krajenbrink, H. J. and Lauwerier, H. A.: *Ind. Eng. Chem.*, **45**, 1202(1953).
- Kang, Y. and Kim, S. D.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **25**, 717(1986).
- Kang, Y. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **24**, 277(1986).
- Kang, Y., Lim, W. M. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **25**, 460(1987).
- Han, J. H. and Kim, S. D.: *Chem. Eng. Comm.*, **94**, 9(1990).
- El-Temtamy, S. A., El-Sharnoubi, Y. O. and El-Halwagi, M. M.: *Chem. Eng. J.*, **18**, 161(1979).
- Soon, J. K. and Thomas, J. F.: *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **14**, 209 (1975).
- Kwon, H. W. and Kim, S. D.: *Korean J. Chem. Eng.*, **7**, 182(1990).
- Kim, S. D., Kim, H. S. and Han, J. H.: *Chem. Eng. Sci.*, **47**, 3419 (1992).
- Kim, S. D. and Kim, C. H.: *J. Chem. Eng. Japan*, **16**, 172(1983).
- Kang, Y. and Kim, S. D.: *HWAHAK KONGHAK*, **25**, 394(1987).