

흡착과 정밀여과의 혼성공정에 의한 페놀 제거에 관한 연구

이 호 원[†] · 김 규 진* · A. G. Fane*

제주대학교 공과대학 화학공학과, *뉴사우스웨일즈대학교 막과학기술연구소
(1996년 3월 21일 접수, 1996년 6월 8일 채택)

A Study on the Removal of Phenol by Hybrid Process coupling adsorption with microfiltration

H. W. Lee[†], K. J. Kim*, and A. G. Fane*

Dept. of Chem. Eng., Cheju National University, Cheju 690-756, Korea

*UNESCO Centre for Membrane Science and Technology, University of New South Wales,
Sydney 2052, Australia

(Received March 21, 1996, Accepted June 8, 1996)

요 약 : 본 연구는 흡착과 막분리를 결합시킨 혼성 시스템을 폐수처리에 응용하기 위한 기초 연구로서, 페놀을 분말 활성탄에 의해 흡착하고, 흡착된 페놀을 활성탄과 함께 정밀여과에 의해 분리하였다. 분말활성탄의 입자크기가 클수록 여과 저항은 감소하였으며, 입자크기가 클수록 여과저항에 대한 입자농도의 영향은 감소하였다. 흡착속도는 활성탄의 페놀 부하 정도에 크게 의존하였으며, 활성탄의 양이 적을수록 단절점(break point) 이전의 투과농도 변화율과 페놀 부하 변화율은 증가하였다. 분말활성탄의 입자크기가 작을수록 활성탄의 외표면적과 경막물질전달계수의 증가로 인해 단절점 전의 투과농도는 감소하였다.

Abstract: This work is a fundamental study for applying hybrid process coupling adsorption with microfiltration to waste-water treatment. Phenol was separated by adsorption on powdered activated carbon, adsorbed phenol with activated carbon was separated by microfiltration. As the particle size in suspension increased, filtration resistance decreased, and effect of particle concentration on resistance was less pronounced. The rate of uptake was greatly dependent on the degree of phenol loading. For a smaller amounts of activated carbon, the change of permeate concentration before break point and phenol loading with time were steeper than in the case of large amounts. Permeate concentration before break point decreased with decreasing particle size, this could be due to the increase of outer surface of particle and film mass transfer coefficient.

1. 서 론

페놀은 정유공장, 석유화학공장, 페놀계 수지공장 및 전자기관 제조공장 등의 방류수로부터 광범위하게 유출되는 유해물질이다[1]. 이러한 폐수중의 페놀 제

거 및 회수에는 충전탑 등을 이용한 흡착, 화학적 산화 및 생물학적 방법 등이 수행되어 왔으며, 최근에는 에너지 절약형인 막분리 공정이 기존 방법의 대체 공정으로서 제시되고 있다. 그러나 역삼투 공정에 의해 페놀과 같은 저분자 물질들을 분리할 때 낮은 배

제(rejection)을 뿐만 아니라 막 오염(membrane fouling)에 의한 flux의 급격한 감소 및 막의 수명 단축 등으로 인해 실제 공정으로의 적용에는 어려움이 있다[2]. 따라서 막분리 공정만으로는 제거 효율이 좋지 않은 용존성 유기물의 효율적 제거와 투과 flux의 증진을 위하여 분리막 공정에 흡착 또는 이온 교환을 조합시키는 새로운 기술이 시도되고 있다[3-6].

본 연구는 흡착과 막분리의 혼성 시스템을 폐수처리에 응용하기 위한 기초 연구로서, 폐수중 대표적인 유해 성분인 페놀을 분말활성탄에 의해 흡착하고, 흡착된 페놀은 활성탄과 함께 정밀여과에 의해 분리하였다. 분말활성탄의 입자크기 및 양 변화와 도입 페놀 농도 변화에 대하여 조업시간에 따른 페놀의 투과 농도 변화를 측정하여 파과 거동(breakthrough behavior)을 규명하고, 페놀 부하(loading)량 및 물질 전달 속도를 계산 분석하여, 본 시스템의 설계 및 효율적 조작을 위한 기초 자료를 제시하였다.

2. 데이터 분석

분말활성탄을 함유한 교반 셀(stirred cell)에서의 파과거동을 해석하기 위하여 다음과 같이 실험 데이터를 분석하였다.

시료채취 시간동안 ($\Delta t_i = t_{e,i} - t_{s,i}$) 투과된 투과액의 부피는 식 (1)과 같이 계산될 수 있다.

$$\Delta V_i = (m_{i, \text{tot}} - m_{i, \text{tare}}) / \rho_{\text{perm}} \quad (1)$$

이때, 페놀 수용액의 밀도는 페놀 농도가 본 실험 조건의 한계치인 0.4mg/mL에서 0.9980로서 같은 온도 (22°C)에서의 물의 밀도, 0.9978g/mL와 거의 동일하므로 투과액의 밀도는 물의 밀도로서 계산하였다.

시료채취 시작시간과 끝시간의 중간시간으로서 정의된 t_i 에서 투과된 투과액의 총 부피는 식 (2) 또는 식 (3)과 같이 나타낼 수 있으며, t_i 에서 셀에 도입된 페놀의 총 양은 식 (4)와 같다

$$V_i = 0.5 \Delta V_i \quad (2)$$

$$V_i = V_{i-1} + 0.5(\Delta V_{i-1} + \Delta V_i), \quad i > 1 \quad (3)$$

$$m_{\text{ph, feed}, i} = V_i C_{\text{feed}} \quad (4)$$

여기서 C_{feed} 는 도입 용액의 페놀 농도이다.

또한 t_i 에서 투과된 페놀의 총 양은 식 (5) 또는

식 (6)과 같이 계산될 수 있다.

$$m_{\text{ph, perm}, i} = 0.5 \Delta V_i C_i \quad (5)$$

$$m_{\text{ph, perm}, i} = m_{\text{ph, perm}, i-1} + 0.5(\Delta V_{i-1} C_{i-1} + \Delta V_i C_i), \quad i > 1 \quad (6)$$

활성탄에 흡착된 페놀의 양을 페놀 성분에 대한 물질수지로부터 구하기 위해서는 시간 변화에 따른 벌크(bulk) 용액의 페놀 농도에 대한 데이터가 필요하다. 교반 셀 내의 막 위에 많은 양의 활성탄 케이크(cake)가 형성되는 경우에 본 연구에 사용된 교반 셀은 연속 이상 교반조(continuous ideal stirred tank)와 충전층이 연결된 것으로 보는 것이 타당하다. 그러나 본 연구의 실험 조건하에서 셀 내에 존재하는 분말활성탄의 거의 대부분이 부유(suspension)되어 있어 투과액의 페놀 농도는 벌크 액상의 농도와 같다고 볼 수 있다. 이러한 가정 하에서 셀 내의 슬러리(slurry) 부피와 액상의 부피 분율을 각각 V_{holdup} 및 ϵ 이라 하면, t_i 에서 활성탄에 흡착된 페놀의 총량은

$$m_{\text{ph, PAC}, i} = m_{\text{ph, feed}, i} - m_{\text{ph, perm}, i} - V_{\text{holdup}} \epsilon C_i \quad (7)$$

와 같고, 조업시간에 따른 활성탄 단위 질량당 흡착된 페놀의 양, 즉 페놀 부하량(q_i)은 식 (8)로부터 구할 수 있다.

$$q_i = \frac{m_{\text{ph, PAC}, i}}{M_{\text{PAC}}} \quad (8)$$

단, M_{PAC} 는 셀 내의 활성탄의 질량이다.

3. 경막 물질전달 계수(film mass transfer coefficient)

난류 유체 중에 부유된 구형 입자로의 경막 물질전달 계수는 식 (9)와 같은 Sherwood law로서 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} \text{Sh}_p &= \frac{d_p k_f}{D_m} \\ &= A + B \text{Re}_p^m \text{Sc}^n \\ &= A + B \left(\frac{u_i d_p}{\nu} \right)^m \left(\frac{\nu}{D_m} \right)^n \end{aligned} \quad (9)$$

여기서 u_i 는 활성탄 입자와 주위 유체(surrounding fluid)의 상대 속도이다. Ranz와 Marshall[7]은

이에 대한 실험으로부터 다음과 같은 상관 관계식을 제시하였다.

$$Sh_p = 2 + 0.60Re_p^{1/2} Sc^{1/3} \quad (10)$$

Kolmogoroff의 이론[8]에 의하면 Re_p 는 식 (11)로 표현되는 에디 크기(eddy size), η 와 입자 크기의 대소에 따라 식 (12) 및 식 (13)으로 각각 정의된다.

$$\eta = \left(\frac{\nu^3}{E_D}\right)^{1/4} \quad (11)$$

$\eta \ll d_p$ 인 경우,

$$Re_p = \left(\frac{E_D d_p^3}{\nu^3}\right)^{1/3} \quad (12)$$

$\eta \gg d_p$ 인 경우,

$$Re_p = \left(\frac{E_D d_p^2}{\nu^3}\right)^{1/2} \quad (13)$$

여기서 에너지 소산 속도(energy dissipation rate), E_D 는 식 (14)의 관계식으로부터 구할 수 있다.

$$E_D = \frac{P}{W} = \frac{N_p \rho_p N^3 d_p^3}{W} \quad (14)$$

4. 실험 재료, 실험 장치 및 방법

4. 1. 실험 장치

본 실험의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 질소 압력에 의해 투과 flux를 조절하였고, 전 시스템의 온도는 $22 \pm 1^\circ\text{C}$ 로 유지하였다. 교반 셀은 막과학기술연구소(UNESCO Centre for Membrane Science and Technology)에서 제작한 것으로 유효 막 면적은 15.9cm^2 ($\phi 4.5\text{cm}$)이고 최대 체류 부피는 115mL이다.

4. 2. 실험 재료 및 분석

막은 친수성으로서 평균 세공크기가 $0.1\mu\text{m}$ 인 정밀여과막(Millipore, VVLP)을 사용하였다. 순수(pure water)는 Milli-Q Ultrapurer Water System으로 처리한 탈 이온수(전도도 $0.05\mu\text{scm}^{-1}$ 이하)를 사용하였고, 폐놀(GR, Ajax Chemicals)의 분석은 Spectrophotometer (Varian 1E, Varian Australia Pty.

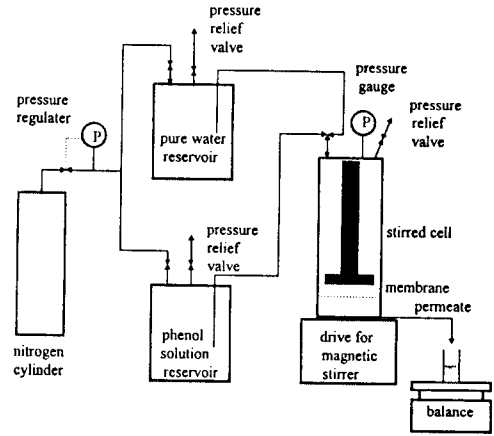


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus.

Ltd.)로 268nm 에서 측정하였다.

본 연구에 사용된 분말활성탄은 Sigma사(U. S. A) 제품의 활성탄을 여러 단계의 체(sieve)로 체분리한 것이다. 체분리 후 세분(fines)을 제거하기 위하여 순수로 수차례 세척하고, 110°C 로 oven에서 2일 동안 건조한 후, 건조기(desiccator)에 보관하여 사용하였다. 분말활성탄의 입자크기와 진 밀도(true density)는 각각 Malvern Mastersizer(Marvern co., U. K)와 Autopycnometer (Micrometrics Helium Air Pycnometer 1320)로 분석하였는 바, 분말활성탄의 평균 입자직경은 각각 $8.46\mu\text{m}$, $54.63\mu\text{m}$, $114.64\mu\text{m}$ 및 $512.50\mu\text{m}$ 이었고, 진 밀도는 입자크기에 관계없이 2.29g/mL 이었다. 측정된 분말활성탄의 입자크기 분포는 Fig. 2와 같다.

4. 3. 실험 방법

측정된 일정 질량의 분말활성탄을 셀 내에 넣고, 일정한 투과 flux를 얻기 위하여 각 실험조건을 유지하면서 1시간 동안 부유(suspension)시킨 후 본 실험을 행하였다. 또한 질소 bombe에서 두 저장조로 연결된 tube의 밸브를 미리 모두 열어 두 저장조에 같은 압력이 걸리게 함으로써, 도입 용액을 순수에서 폐놀 용액으로 전환할 때 셀 내의 체류량이 변하지 않도록 하였다. 투과 flux는 각 시료의 무게를 재서 즉시 구하였고, 시료채취 간격은 2분으로 하였다. 한편 교반 속도는 Stroboscope(Philips, PR9155)을 사

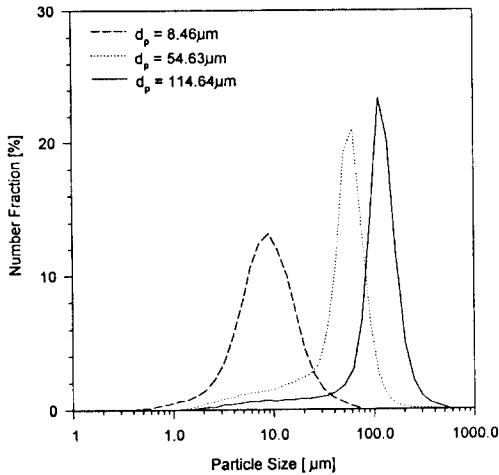


Fig. 2. Particle size distributions of powdered activated carbons.

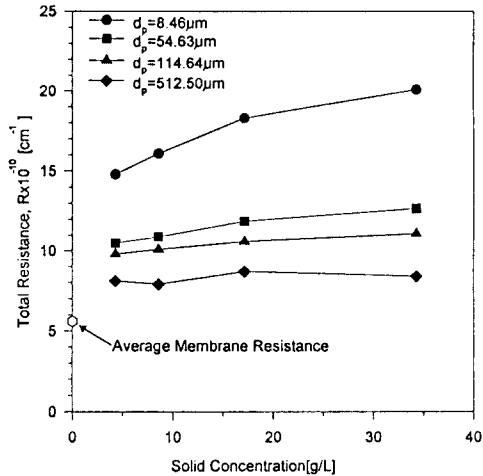


Fig. 3. Total resistance to flow for different particle sizes.

용하여 측정하였다.

5. 결과 및 고찰

5. 1. 여과

본 연구에서 분리막은 폐놀용액으로부터 활성탄의 완전 분리만을 위하여 사용하였으며, 모든 실험 조건 하에서 활성탄 및 폐놀의 배제율은 각각 100% 및 0%이었다. 또한 압력차 변화에 따른 순수 투과 flux 변화로부터 구한 막저항은 각 실험에 사용된 막마다

±5% 이내로 차이가 있었으며, 평균 막저항은 $R_m = 5.6 \times 10^{10} \text{cm}^{-1}$ 이었다.

활성탄 입자크기 및 입자농도 변화에 따른 총 여과 저항(total filtration resistance)의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 여기서 사용된 평균직경 $512.50 \mu\text{m}$ 의 활성탄에 대한 분리는 엄밀한 의미에서 일반 여과 영역에 속하나, 입자크기 변화에 따른 여과저항 변화 및 파과 거동 특성을 같은 조업조건에서 상호 비교하기 위하여 이에 대한 실험을 행하였다. 또한 총 여과저항은 식 (15)와 같이 정의된 관계식으로부터 구하였으며, 이때 투과액의 점도, μ 는 물의 점도와 같다고 가정하였다.

$$R = \frac{\Delta P A_m}{\mu V} \tag{15}$$

평균 입자직경이 $8.46 \mu\text{m}$ 인 활성탄을 사용한 경우 총 여과저항은 막저항의 약 3배 정도로 크게 나타났으며, 입자 농도가 증가할수록 여과저항은 증가하였다. 그 원인은 Fig. 2의 입자크기 분포에 나타난 바와 같이 일부 극소 입자에 의한 세공 막힘(plugging)과 막 표면 위에 형성된 미량의 활성탄 층에 의한 결과로 판단된다.

한편 활성탄 입자크기가 감소하거나 입자농도가 증가할수록 여과저항은 증가하였으나, 입자크기가 증가할수록 입자농도 증가에 따른 여과저항의 변화는 작아져, 입자직경이 $512.50 \mu\text{m}$ 인 활성탄을 사용한 경우에는 입자농도에 관계없이 일정한 경향을 나타내었다. 이러한 현상은 활성탄 입자가 크고 입자농도가 증가할수록 부유 입자들과 막 표면 위의 입자들간의 충돌이 많아지면서, 막 표면 위의 입자들이 재부유(resuspension)되어 발생하는 결과로 판단된다.

5. 2. 파과 곡선(breakthrough curve)과 폐놀 부하 (loading)

서로 다른 분말활성탄 양에 대해서 시간 경과에 따른 파과 곡선과 폐놀 부하 변화를 각각 Fig. 4와 Fig. 5에 나타내었다. 시간 경과에 따라 도입 폐놀 농도에 대한 투과 농도의 비(C/C_{feed})와 폐놀 부하량은 증가하며, 실제 조업시 C/C_{feed} 가 한계허용치인 0.1 [10]에 도달하면 흡착제를 새것으로 교체하는 것이 일반적인 바, 이 지점을 단절점(break point)이라 한다. 활성탄 양이 많을수록 단절점에 도달하는 시간은 길어지고, 투과액의 폐놀 농도는 보다 낮은 값을 나

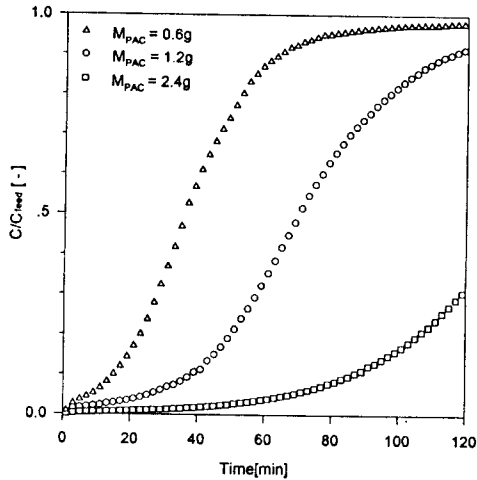


Fig. 4. Breakthrough curves for different amounts of powdered activated carbon. ($C_{feed}=0.2\text{mg/mL}$, $V'=0.19\text{mL/s}$, $V_{holdup}=70\text{mL}$, $N=600\text{rpm}$, $d_p=114.64\mu\text{m}$).

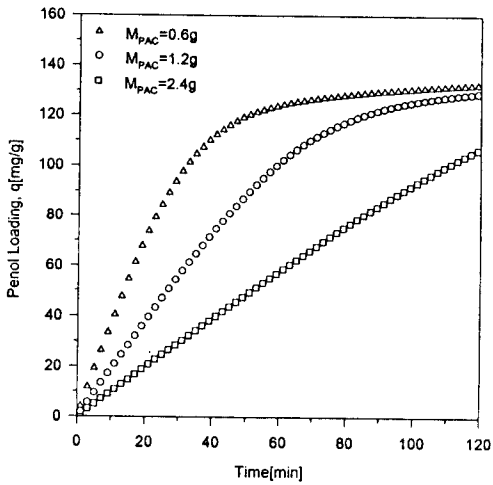


Fig. 5. Phenol loading for different amounts of powdered activated carbon. ($C_{feed}=0.2\text{mg/mL}$, $V'=0.19\text{mL/s}$, $V_{holdup}=70\text{mL}$, $N=600\text{rpm}$, $d_p=114.64\mu\text{m}$).

타내고 있는 바, 이는 흡착 가능한 표면적의 차이에 기인한다. 분말활성탄의 양을 2.4g 사용한 경우 조업 후 85분 동안 도입 폐놀 농도의 0.1이하로 유지할 수 있었다. 또한 활성탄 양에 관계없이 단절점 이내에서도 시간 경과에 따라 투과액의 폐놀 농도와 폐놀 부하는 증가하고, 이러한 증가율은 활성탄 양이 적을수

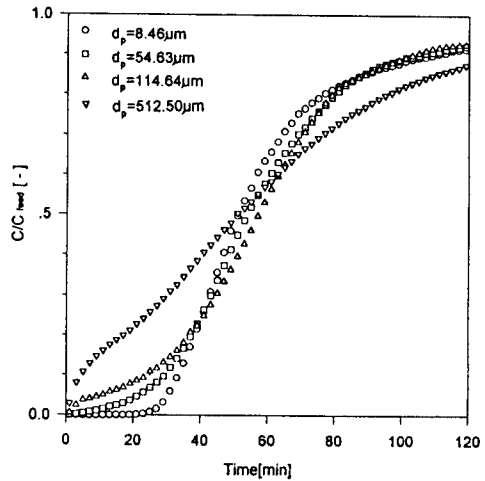


Fig. 6. Breakthrough curves for different particle sizes. ($C_{feed}=0.1\text{mg/mL}$, $M_{PAC}=0.6\text{g}$, $V'=0.19\text{mL/s}$, $V_{holdup}=70\text{mL}$, $N=600\text{rpm}$).

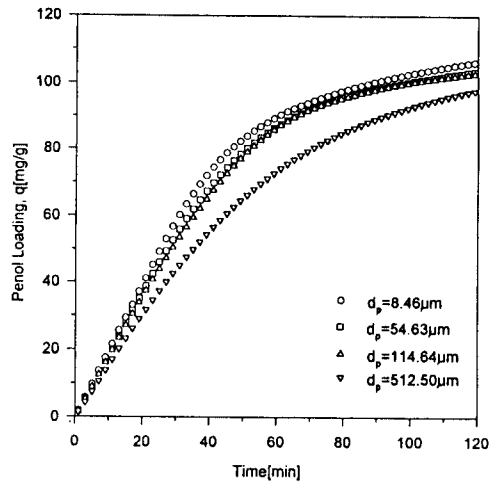


Fig. 7. Phenol loading for different particle sizes. ($C_{feed}=0.1\text{mg/L}$, $M_{PAC}=0.6\text{g}$, $V'=0.19\text{mL/s}$, $V_{holdup}=70\text{mL}$, $N=600\text{rpm}$).

록 높음을 보여주고 있다. 이러한 결과들로부터 흡착 속도는 분말활성탄의 폐놀 부하 정도에 크게 의존함을 알 수 있다.

서로 다른 분말활성탄 입자크기에 대해서 시간 경과에 따른 과과 곡선과 폐놀 부하 변화를 각각 Fig. 6과 Fig. 7에 나타내었다. 평균 입자 직경이 $8.46\mu\text{m}$ 인 활성탄을 사용한 경우 폐놀 부하는 조업 후 약 27분을 경계로 하여 거의 선형으로 증가하다 서서히

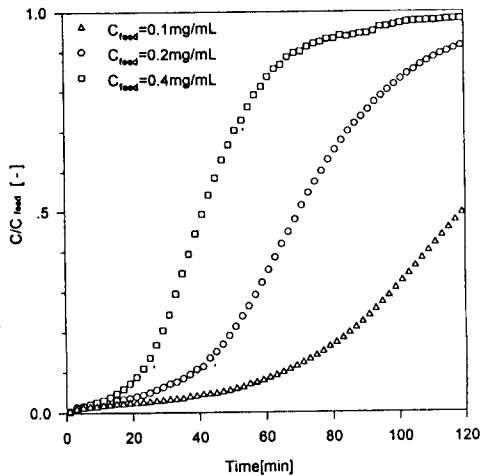


Fig. 8. Breakthrough curves for different feed concentrations. ($M_{PAC}=1.2g$, $d_p=114.64\mu m$, $V'=0.19mL/s$, $V_{holdup}=70mL$, $N=600rpm$).

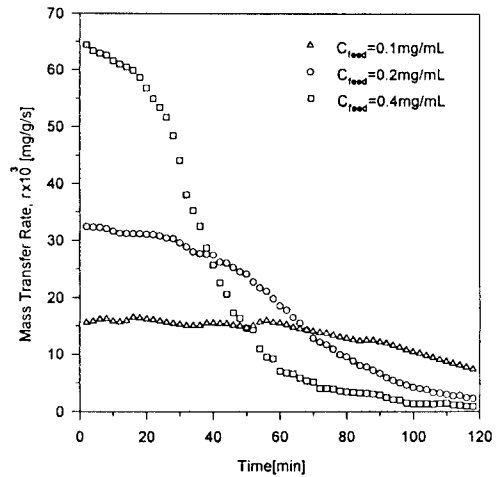


Fig. 10. Mass transfer rate for different feed concentrations. ($M_{PAC}=1.2g$, $d_p=114.64\mu m$, $V'=0.19mL/s$, $V_{holdup}=70mL$, $N=600rpm$).

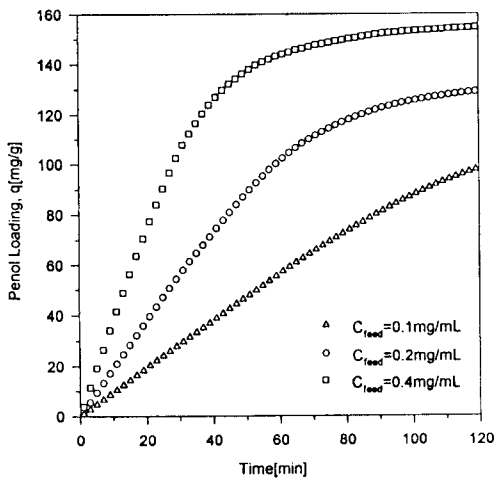


Fig. 9. Phenol loading for different feed concentrations. ($M_{PAC}=1.2g$, $d_p=114.64\mu m$, $V'=0.19mL/s$, $V_{holdup}=70mL$, $N=600rpm$).

증가율이 감소함을 Fig. 7에서 보여주고 있는데, 이 순간이 파과가 시작되는 시간임을 Fig. 6으로 알 수 있다. 또한 단절점 이전의 투과농도는 활성탄 입자크기가 감소함에 따라 감소함을 알 수 있는 바, 이러한 결과는 활성탄 입자크기에 따른 활성탄 단위 질량당 외표면적과 경막 물질전달 계수의 차이로서 설명될 수 있다. 활성탄 단위 질량당 외표면적은 입자 직경에 반비례하며, 경막 물질전달 계수는 식 (10)~식

(14)로부터 예측할 수 있다. 평균 입자직경이 $8.46\mu m$, $54.63\mu m$, $114.64\mu m$ 및 $512.50\mu m$ 인 활성탄을 사용한 경우 식 (10)~식 (14)로부터 계산된 경막 물질전달 계수는 각각 $4.96 \times 10^{-2} cm/s$, $2.26 \times 10^{-2} cm/s$, $1.64 \times 10^{-2} cm/s$ 및 $0.92 \times 10^{-2} cm/s$ 이었다. 이때 동력 수(power number), N_p 값은 본 시스템에 적합한 1.2[11, 12]를 사용하였으며, 분자 확산계수, D_m 값은 Wilke and Chang[13] 식으로부터 추산한 $1.11 \times 10^{-5} cm^2/s$ 를 사용하였다. 입자 크기가 작아질수록 활성탄 단위 질량당 외표면적과 경막 물질전달 계수가 증가하며, 이로 인해 조업 초기의 투과 농도가 낮아짐을 알 수 있다.

시간 경과에 따른 파과 거동과 폐놀 부하에 대한 도입 농도 변화의 영향을 Fig. 8과 Fig. 9에 나타내었다. Fig. 8은 도입 농도가 높을수록 파과 거동은 빠르고 급격하게 일어남을 보여주고 있는 데, 그 이유는 Fig. 9에 나타난 바와 같이 폐놀 부하량의 차이에 기인한다. 또한 Fig. 9에 나타난 폐놀 부하량 곡선의 기울기로부터 물질전달 속도를 계산할 수 있는 바, 그 결과를 Fig. 10에 나타내었다. 도입 폐놀 농도가 0.1mg/mL인 경우, 물질전달 속도는 약 $16 \times 10^3 mg/g/s$ 에서 $7 \times 10^3 mg/g/s$ 로 서서히 감소하나, 도입 농도가 높아질수록 급속히 감소함을 알 수 있다.

6. 결 론

분말활성탄에 의한 흡착과 정밀여과의 혼성공정에 의한 페놀 제거에 관한 실험 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 같은 양의 분말활성탄을 사용한 경우 입자 크기가 증가할수록 여과저항은 감소하였다.

2. 가장 작은 활성탄 입자($d_p = 8.46 \mu\text{m}$)의 경우 입자 농도가 증가할수록 여과저항은 증가하였으나, 입자크기가 증가할수록 여과저항에 대한 입자농도의 영향은 감소하였다.

3. 흡착 속도는 분말활성탄의 페놀 부하 정도에 크게 의존하였다.

4. 분말활성탄의 양이 적고 도입 페놀 농도가 높을수록 단절점 이전의 투과 농도 변화율과 페놀 농도 변화율은 증가하였다.

5. 분말활성탄 입자크기가 감소할수록 활성탄 외표면적과 경막 끝질전달 계수의 증가로 인해 단절점 이전의 투과 농도는 감소하였다.

감 사

이 논문은 한국과학재단에서 지원한 '94년도 후반 기 해외 Post-Doc. 연수 내용 중의 일부로서 이에 감사드립니다.

기호 설명

A_m : membrane surface area [cm^2]
 C : phenol concentration in bulk liquid [mg/mL]
 C_{feed} : feed concentration [mg/mL]
 C_i : phenol concentration of sample i [mg/mL]
 d_i : impeller diameter [cm]
 d_p : average particle diameter [cm]
 D_m : molecular diffusivity of phenol in water [cm^2/s]
 E_D : energy dissipation rate in slurry per unit mass of particle-free liquid [ergs/cm^3]
 k_f : film mass transfer coefficient [cm/s]
 $m_{ph, feed, i}$: amount of phenol that has entered the cell up to time t_i [g]

$m_{ph, perm, i}$: amount of phenol that has left the cell up to time t_i [g]
 $m_{ph, PAC, i}$: amount of phenol that has been adsorbed by the activated carbon to time t_i [g]
 $m_{i, tare}$: weight of sample container i [g]
 $m_{i, tot}$: weight of sample i and sample container i [g]
 M_{PAC} : amount of activated carbon in suspension [g]
 N : stirring speed of impeller [rpm]
 N_p : power number [-]
 P : power consumption of the slurry due to agitation [ergs/s]
 ΔP : pressure difference [Pa]
 q : phenol loading [mg/g]
 r : mass transfer rate [mg/g/s]
 R : total filtration resistance [cm^{-1}]
 R_m : membrane resistance [$\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$]
 Re_p : Reynolds number, defined by eq.(12) or (13) [-]
 Sc : Schmidt number [-]
 Sh_p : Sherwood number [-]
 $t_{e, i}$: time at which sampling of sample i was stopped [s]
 t_i : midpoint of sampling interval for sample i , $0.5(t_{e, i} + t_{s, i})$ [s]
 $t_{s, i}$: time at which sampling of sample i was started [s]
 u_r : relative velocity between particle and fluid [cm/s]
 V' : permeate rate or feed flow [mL/s]
 V_i : accumulated permeate volume collected up to midpoint of sampling interval i [mL]
 W : mass of particle-free liquid in stirred cell [g]

그리스 문자

ε : volume fraction of liquid [-]
 ν : kinematic viscosity [cm^2/s]
 η : eddy size, defined by eq. (11) [cm]
 ρ_{perm} : density of permeate [g/mL]
 μ : viscosity [g/cm/s]

참고문헌

1. F. F. Zha, A. G. Fane and C. J. D. Fell, *Sep. Sci.*

- Technol.*, **29**(17), 2317(1984).
2. A. G. Fane and C. J. D. Fell, *Desalination*, **62**, 117(1987).
 3. Y. I. Dytnerky, K. A. Volcheck and N. B. Polyanskaya, *Desalination*, **81**, 273(1991).
 4. V. Mavrov, I. Petrova, K. Davarsky and S. Manolov, *Desalination*, **83**, 289(1991).
 5. O. Eichstadt, Diplomarbeit Thesis, Univ. of New South Wales, Sydney(1992).
 6. M. Mavrov, I. Petrova, K. Davarsky and J. Sarrazin, *J. Memb., Sci.*, **73**, 313(1992).
 7. W. E. Ranz and W. R. Marshall, *Chem. Eng. Prog.*, **48**, 141(1952).
 8. R. Shinnar and J. M. Church, *Ind. Eng. Chem.*, **52**(3), 253(1960).
 9. D. M. Levins and J. R. Glastonbury, *Chem. Eng. Sci.*, **27**, 537(1972).
 10. W. L. McCabe, J. C. Smith and P. Harriot, "Unit Operations of Chemical Engineering", 5th ed., McGraw-Hill, New York, NY(1993).
 11. J. H. Rushton and J. Y. Oldshue, *Chem. Eng. Prog.*, **49**(4), 161(1953).
 12. J. H. Rushton, E. W. Costich and H. J. Everett, *Chem. Eng. Prog.*, **46**(8), 395(1950).
 13. C. R. Wilke and P. Chang, *AIChE J.*, **1**, 264 (1955).