

진동교반조의 기하형상에 따른 유동상태와 혼합한계회전수 Flow Patterns and Critical Circulation Frequency for Mixing in Shaking Vessels with Various Geometry

이영세*, 김문갑, 김종식*, 植孝文**, 加藤禎人**
Young-Sei Lee*, Moon-Gab Kim, Jong-Shik Kim*, Takafumi Ue**,
Yoshihito Kato**

<Abstract>

Based on the flow patterns of cylindrical vessel, the flow patterns of conical vessel, spherical vessel, rectangular vessel and cylindrical vessel with baffles were visualized by a trace method using aluminum powder. In addition, the correlations of the critical circulating frequency for mixing were derived from the experimental results. The conical and spherical vessels which have circular cross sections were same effective as cylindrical vessel for the shake mixing due to developing the rotational flow. Both a rectangular vessel and a cylindrical vessel with baffles should not be adapted for shake mixing because of not developing rotational flows in these type of vessels.

Key words: flow patterns, shaking vessel, visualization, baffle

1. 서론

액체 및 미세입자를 균일하게 혼합하기 위해서 교반조내에 다양한 임펠러를 이용하여 교반하는데 이러한 임펠러를 이용한 교반조작에 관한 검토¹⁻¹⁴⁾는 지금까지 많이 발표되어 왔으나 임펠러를 사용하지 않는 교반조작은 static mixer, jet식 혼합조¹⁵⁻¹⁹⁾ 등의 정량적 보고가 일부 있을 뿐이다. 실험실에서 잘 이용되고 있는

진동교반 조작에 관한 정량적 보고는 Kato 등의²⁰⁻²³⁾ 보고 및 배양을 목적으로 한 오래된 문헌²⁴⁻²⁵⁾ 외에는 거의 없는 실정이다. 진동교반은 교반 임펠러를 이용하지 않음으로서 몇 가지의 특징이 있다. 첫째로 국소적인 강한 전단 영역이 발생하지 않아 역학적인 스트레스에 약한 물질을 교반하는데 많이 쓰인다. 예를들면 생물공학 분야에서의 동·식물 세포의 배양에 이용되고 있다. 둘째로 교반 임펠러나 샤프트가 없

* 상주대학교 물질시스템공학과 부교수, 工博

* 계명대학교 공학부 화학공학 교수, 工博

** 일본 나고야공업대학 응용화학과

* Associate Prof., Dept. of Chem. Eng., Sangju National University

E-mail : yslee@sangju.ac.kr

어 교반조의 기하 형상이 단순하므로 교반조의 세정이 간단하고 교반액을 모두 회수할 수 있으므로 고부가가치 제품의 생산이나 다품종 소량생산을 목적으로 한 파이프레스 플랜트의 교반에 적용이 가능하다. 진동 교반은 이와 같은 여러 가지 이점이 있음에도 불구하고 지금까지 배양을 목적으로 한 정량적인 평가를 한 일부 문헌이 있을 뿐이다. 최근에는 혼합시간 및 혼합과정에 대한 Gardner, J.와 Tatterson, G.³⁾의 보고가 있다. 이러한 점에 비추어 진동 교반의 기초적인 교반특성을 정량적으로 평가하는 것은 공학적으로 상당히 의미가 깊다고 할 수 있다. 교반특성 중 유동상태의 가시화는 교반조내 유체의 교반시 dead zone의 유무 등을 확인하는데 상당히 중요할 뿐만 아니라 혼합특성 및 동력특성을 설명하는데도 필수 불가결하다.

유동상태의 판정 방법에는 여러 가지가 있는데 그 중 가시화법은 눈으로 보아서 쉽게 유동상태를 이해할 수 있고 비교적 용이하게 행할 수 있어 상당히 유용한 방법이라 할 수 있다. 수류에 대해 일반적으로 이용되고 있는 가시화법은 유체의 흐름 속에 입자나 표적이 되는 물질을 넣어 이것이 흘러가는 상태를 관찰하는 추적자 주입법, 유체와 주입한 다른 유체 사이에 일어나는 화학반응을 이용한 화학반응법, 제어된 전류를 유체에 흘려 보냄으로서 발생하는 기포 등을 추적자로서 이용하는 전기제어법 등이 있는데 본 연구에서는 교반조의 흐름에 대해 일반적으로 잘 이용하고 있는 추적자 주입법^{2, 12, 18, 26, 27)}에 의한 유동상태를 관찰하였다. 본 연구에서는 원통조에서의 유동상태에 대한 데이터^{20, 23)}를 기초로 실험실에서 자주 사용되고 있는 삼각 플라스크 교반조, 구형 교반조, 각형 교반조 및 방해판이 부착된 원통 교반조 등 여러 가지 기하형상을 가진 교반조에서의 유동상태를 가시화하고 그 결과로부터 각각의 혼합한계회전수의 상관식을 도출하였다.

2. 실험장치 및 방법

완만하게 수평원운동을 하는 진동교반조의 그림을 Fig. 1에 나타내었으며 유동상태의 가시화를 관찰하기 위한 실험장치를 Fig. 2에 나타내

었다. 실험은 추적자 주입법을 이용한 가시화 방법으로 추적자는 실험의 스케일이 비교적 작고, 사진 촬영시 slit 빛에 대한 감도가 높은 알루미늄가루를 이용하였다.

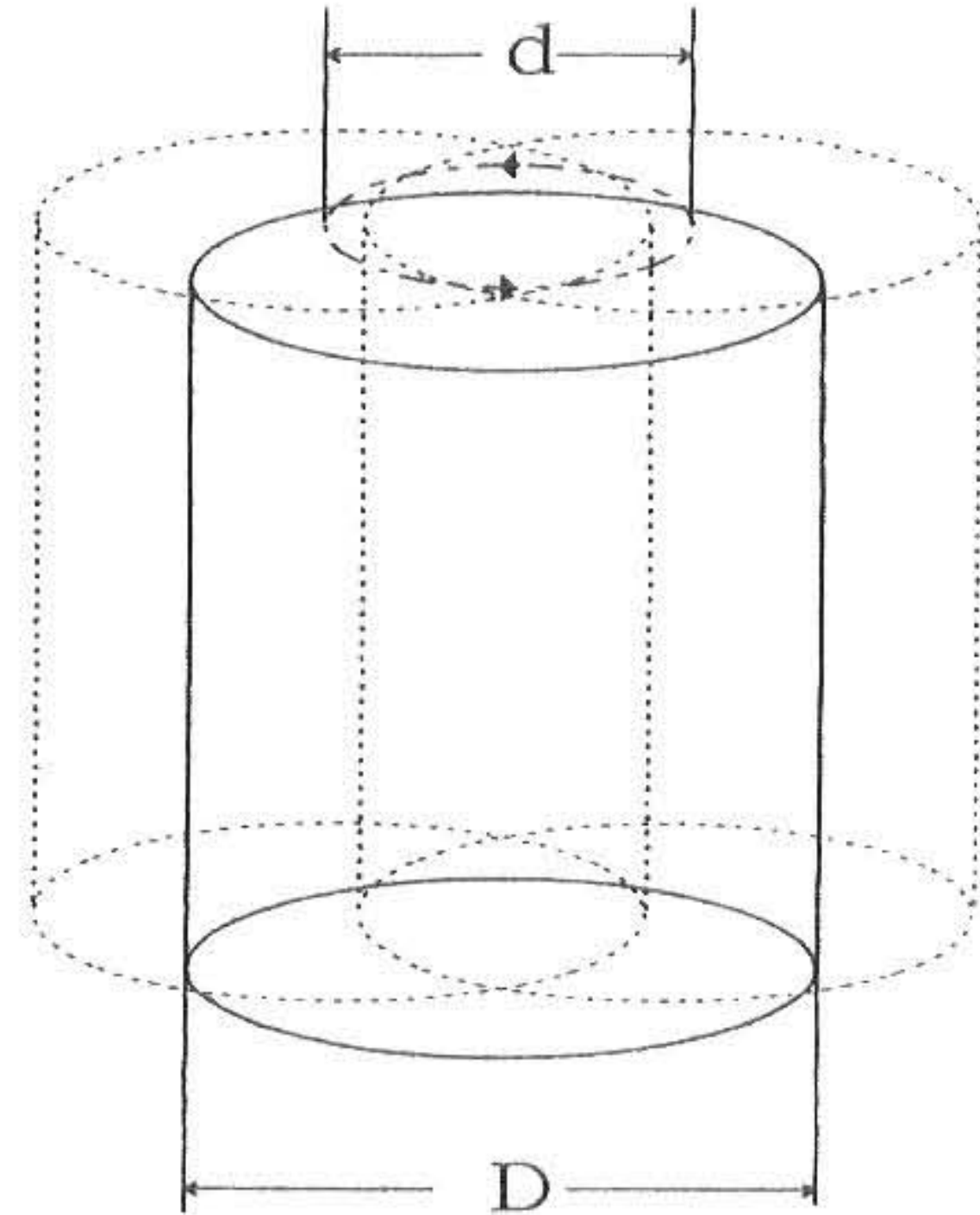


Fig. 1. Schema of horizontally shaking vessel with circulating motion.

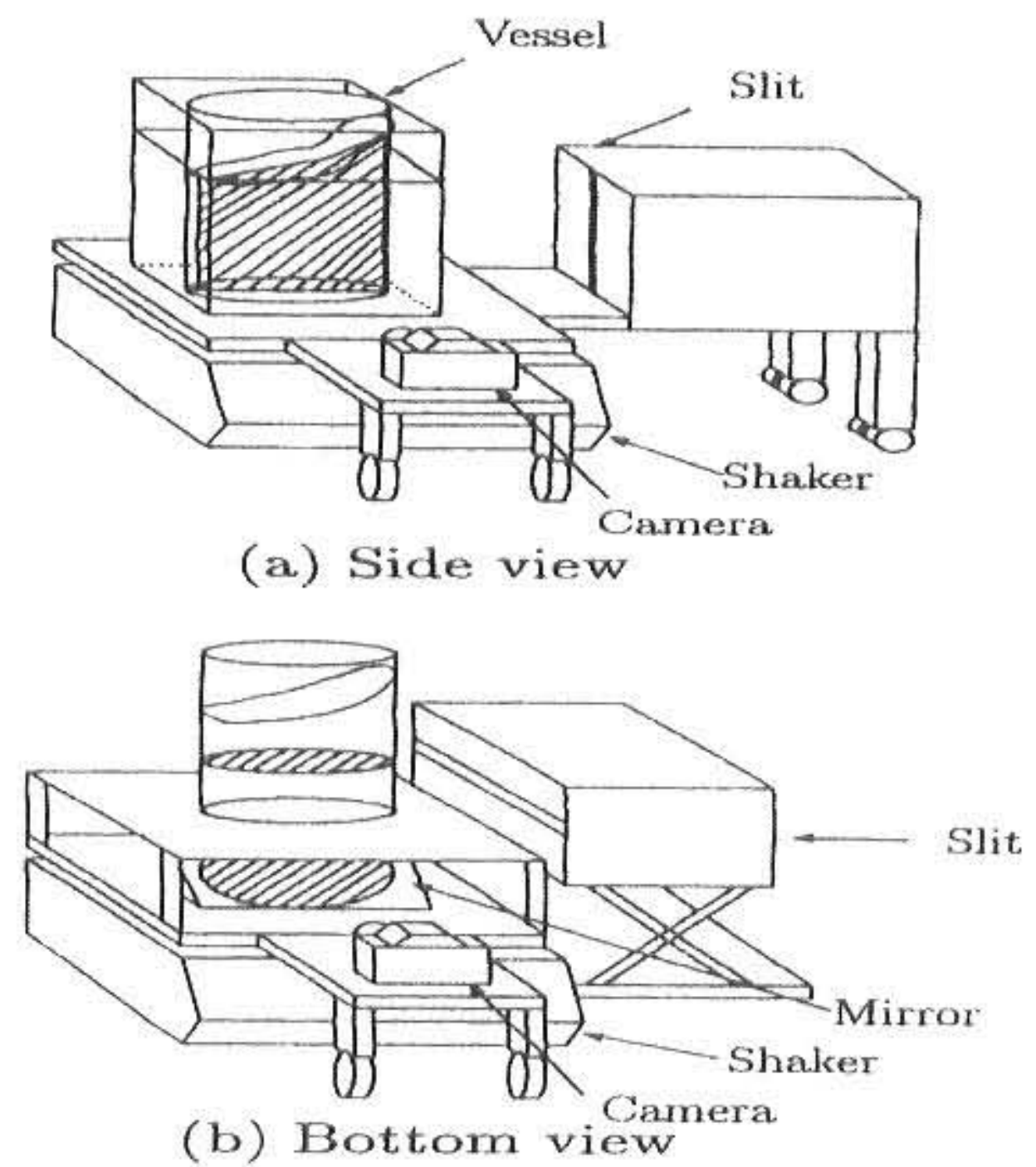


Fig. 2. Schematic diagram of experimental apparatus for flow visualization.

그리고 카메라는 교반조와 동시에 회전시킴으

로서 초점을 교반조에 대해 상대적으로 정지시키도록 했다. 또한 Fig. 2(a)에서 보는 바와 같이 교반조의 수직단면을 촬영할 때 slit 빛의 굴절을 방지하기 위해 교반조를 투명 아크릴수지로 만든 물이 들어 있는 용기 속에 설치하여 촬영했으며 교반조의 수평단면의 촬영 시 액자유표면의 변동에 의한 굴절을 방지하기 위해 Fig. 2(b)와 같이 교반조의 밑면 아래에 거울을 설치하여 촬영했다. 교반액은 수돗물, 24wt%, 35wt% 및 75wt%의 글리세린 수용액을 이용하였으며 교반조로는 원통조, 삼각플라스크, 구형조, 각조 및 방해판이 부착된 원통조를 이용하여 실험을 했으며 각 교반조의 직경을 표시한 그림을 Fig. 3에 나타내었다. 또한 이들의 실험조건을 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Experimental condition

Cylindrical	D[m]	0.120, 0.172
Conical	D _{co} [m]	0.172
Spherical	D _{sp} [m]	0.135, 0.160, 0.200
Rectangular	D _{re} [m]	0.105
Circulating diameter	d[m]	0.02, 0.03, 0.04
Circulating frequency	N[s ⁻¹]	1.0~3.0
Kinematic viscosity	ν[m ² ·s ⁻¹]	0.88×10 ⁻⁶ ~ 4.0×10 ⁻⁵

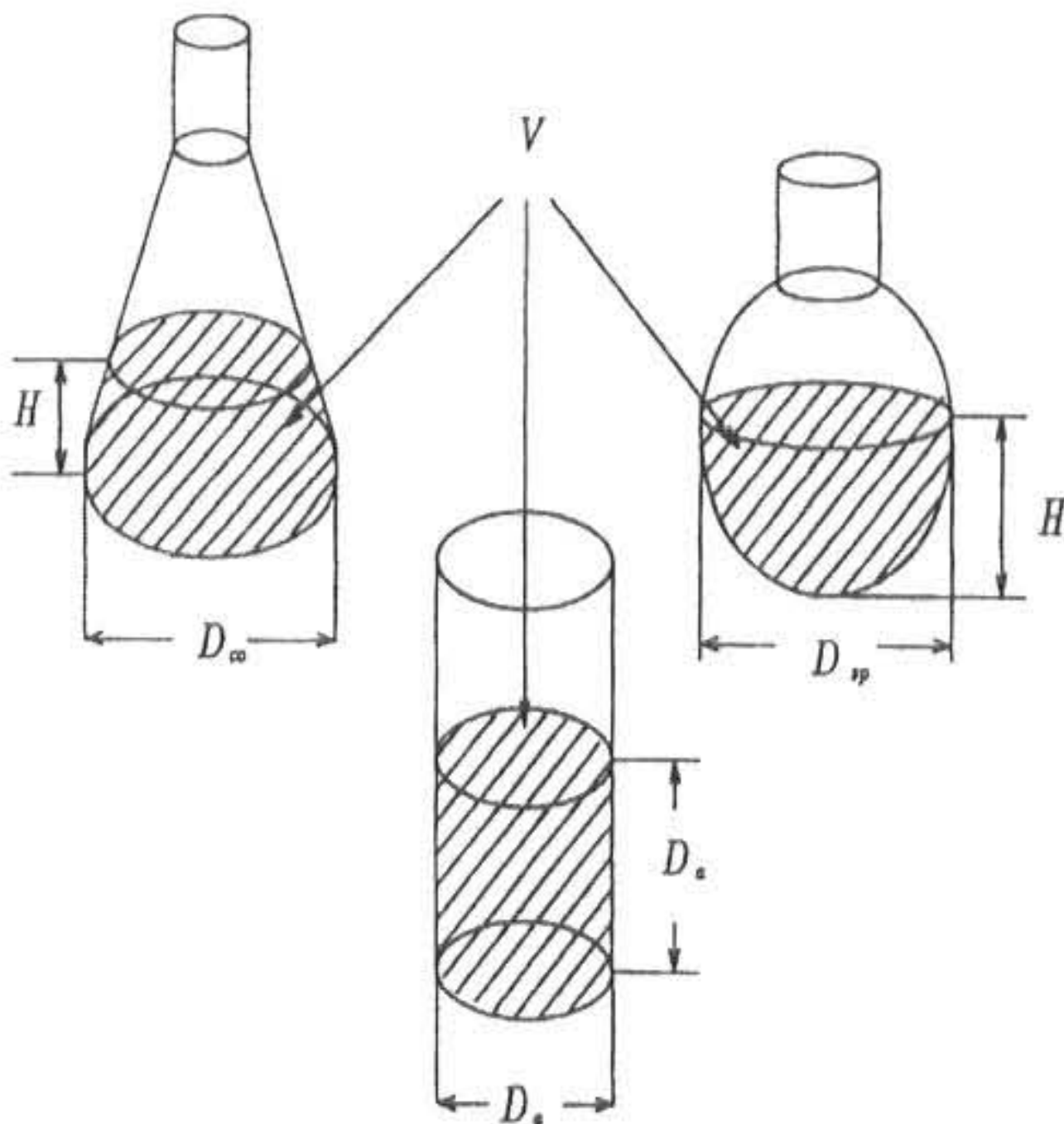


Fig. 3 Apparent vessel diameters of various vessels.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 원통 교반조에서의 유동상태

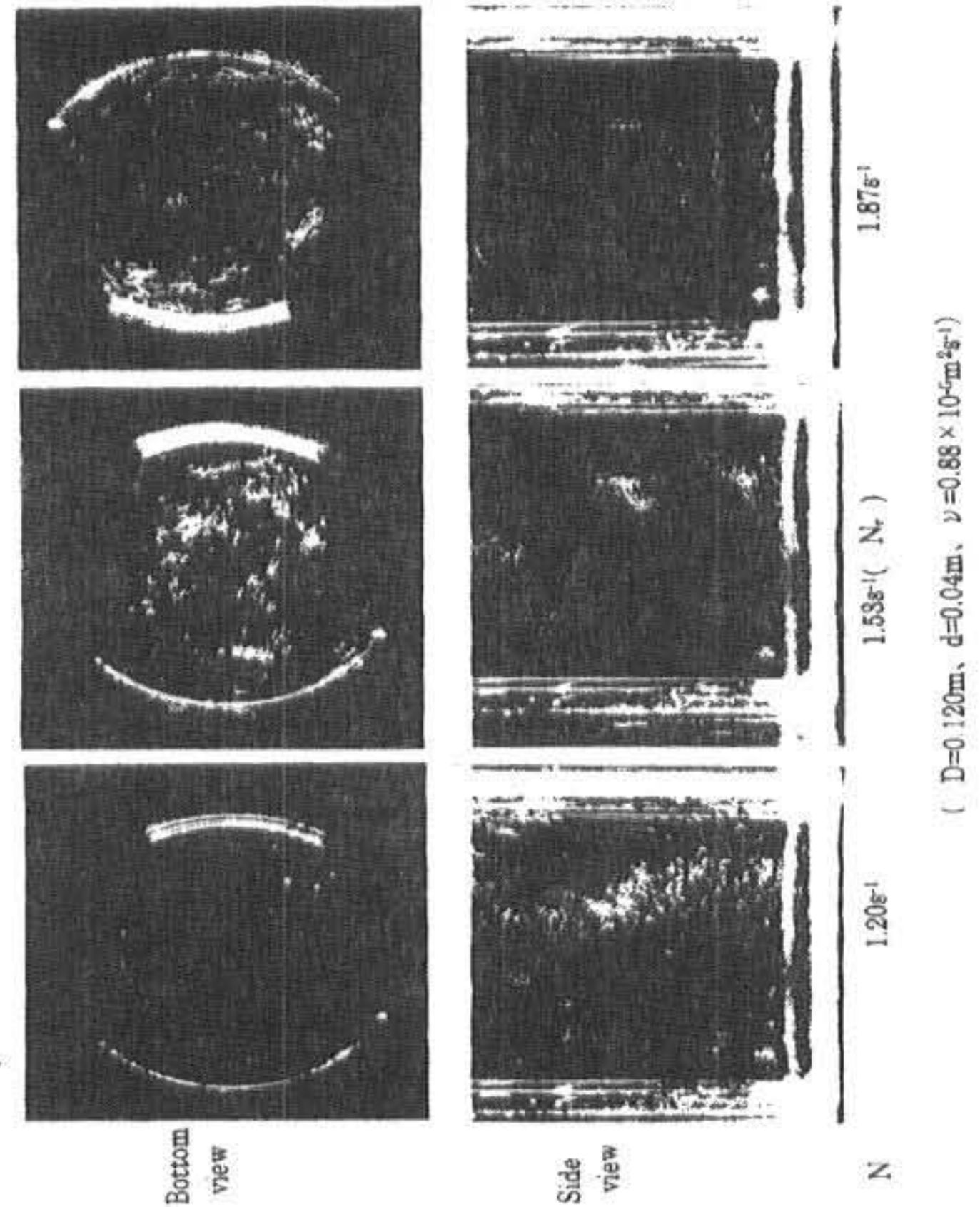


Fig. 4. Typical flow patterns of liquid in a horizontally shaking cylindrical vessel with circulating motion.

원통 교반조에서의 유동상태를 촬영한 사진을 Fig. 4에 나타내었다. 상단이 수평단면을 촬영한 것이고 하단이 수직단면을 촬영한 것이다. 이 사진으로부터 원통 교반조에서의 유동상태는 3종류로 분류되는 것을 알 수 있었다. 회전수 $N=1.20s^{-1}$ 에서의 유동상태를 보면 추적자는 큰 운동을 하지 않고 같은 장소를 돌고만 있을 뿐 거시적인 혼합은 되지 않아 이때의 유동상태에서는 완전혼합이 달성되지 않는다. 이때의 유동상태를 진행과형이라 정의했다. $N=1.87s^{-1}$ 에서의 교반조내 유동상태는 선회류가 발달하여 주위와 거시적 혼합이 되기 때문에 빠르게 완전혼합이 달성된다. 이때의 유동상태를 선회류형으로 정의했다. $N=1.53s^{-1}$ 에서는 진행과형과 선회류형이 합쳐진 유동상태를 나타내어 이 유동상태가 될 때 처음으로 완전혼합이 달성된다. 이때의 유동상태를 천이상태라 하고 이 완

전혼합이 달성되는 최저 조작 회전수를 혼합한계회전수 N_c 라 정의했다. 그러나 천이상태에서는 완전혼합을 달성하는데 상당한 시간이 소요된다[17]. 따라서 빠른 혼합을 위해서는 선회류형의 유동상태가 필요하다.

Fig. 4에 원통 교반조에서의 유동상태를 측면과 바닥에서 촬영한 사진을 나타내었다. 이 사진을 보면 선회류는 액 자유표면 부근에서 발달하여 서서히 교반조 벽 쪽을 거쳐 교반조 바닥으로 향해 발달되 가는 것으로 판명되었다. 따라서 진동교반에서는 액 자유표면은 매우 중요한 인자라고 할 수 있으므로 이에 대한 연구도 반드시 필요하다. 원통조에서 진동교반의 혼합한계회전수 N_c 는 다음 식으로 나타난다.

$$Fr_c = 0.135Re_c^{-0.176} \quad (3.0 < Re_c < 3100) \quad (1)$$

식(1)을 N_c 에 관해 전개하면 다음 식이 얻어진다.

$$N_c = 1.137D^{-0.46}d^{-0.16}v^{0.08} \quad (2)$$

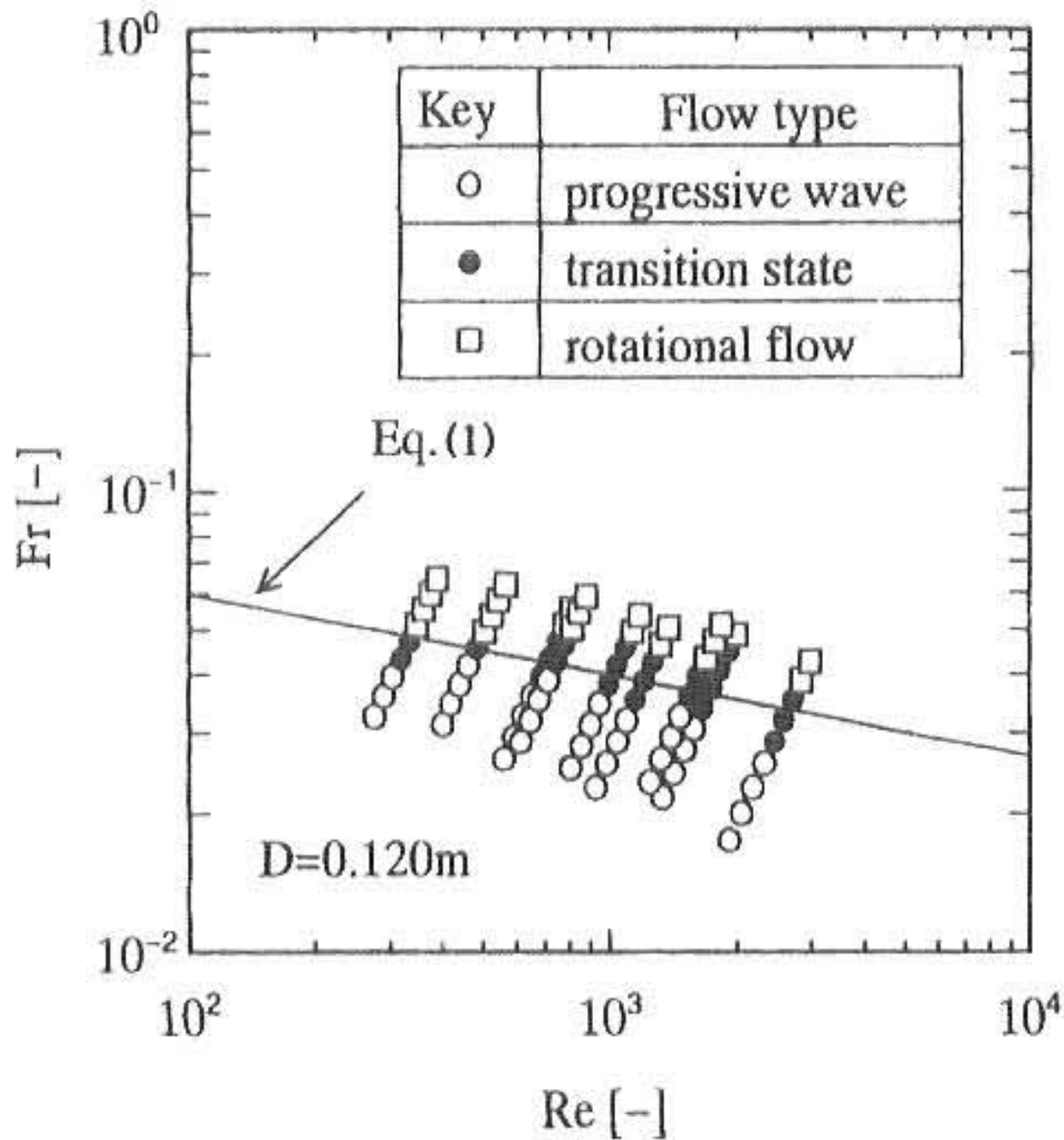


Fig. 5. Relationship between flow pattern and critical circulating frequency for complete mixing.

여기서 일반적으로 임펠러를 이용한 교반조작에서는 Fr수, Re수의 대표길이는 임펠러 직경을 이

용하여 정의되고 있는데 진동교반에서는 교반 임펠러가 없으므로 임펠러 직경에 해당하는 회전직경 d 를 고려하여 $Fr_c = N_c^2 D/g$, $Re_c = N_c d^2/v$ 로 정의했다. 유동상태가 어떤 조건에서 변화하는가를 알아보기 위해서 Fr수와 Re수의 관계를 Fig. 5에 나타내었다. 그림중의 실선은 식(1)에 나타낸 혼합한계회전수 N_c 의 상관식이다. 그림에서 검은 점을 한 키는 사진촬영에서 천이상태를 나타낸 것으로 사진 판정에 의해서 거의 정확히 혼합한계회전수를 추산할 수 있다는 것을 알았다.

3.2 삼각플라스크 교반조에서의 유동상태

삼각플라스크 교반조에서의 유동상태를 Fig. 6에 나타내었다. 삼각플라스크 교반조는 최대직경을 Fig. 3에 나타낸바와 같이 D_{co} 로 했다. 상단은 액 높이가 플라스크의 최대직경의 1/2, 즉 $H/D_{co} = 0.5$, 하단은 액 높이가 플라스크의 최대직경의 3/4, 즉 $H/D_{co} = 0.75$ 의 높이에서의 유동상태를 촬영한 것이다. 상단에서는 회전수를 증가시키면 원통조에서의 유동상태와 같은 진행파형에서 선회류형으로 천이해 가는데 반해 하단에서는 선회류형으로 천이 하기는 하지만 상단보다 높은 회전수가 필요하다는 것을 알 수 있다. 이것은 삼각플라스크의 기하형상 때문이라 사료된다. 즉, 삼각플라스크에서는 액면이 상승하면 액 자유표면이 감소하기 때문에 선회류가 발달되기 어렵다. 따라서 삼각플라스크 교반조를 이용하여 진동교반을 할 때는 액 자유표면이 작아지지 않는 범위에서 교반해야 한다. 이 사실로부터 앞 절에서도 이야기한바 있는 진동교반에서는 액 자유표면이 상당히 중요하다는 것을 알 수 있다.

또 액위가 $H > 0.8D$ 보다 높고 교반조의 회전수가 작은 경우에는 진행파형도 되지 않고 거의 모든 유체입자들이 운동을 하지 않은 상태로 관찰되었다. 삼각플라스크의 혼합한계회전수 N_c 의 상관식을 도출하기 위해 식(1)을 확장했다. 이 때 Fr수에 이용되는 교반조 직경 D_{co} 의 대신에 Fig. 3에 나타낸바와 같이 삼각플라스크의 체적 V 와 같은 체적의 원통 교반조의 직경인 길보기 원통조 직경 D_a 를 이용했다. 삼각플라스크의 혼합한계회전수의 상관식은 식(1)에 액의

높이 H와 교반조 바닥의 직경 D_{co} 의 비를 보정함으로써 다음과 같이 상관되었다.

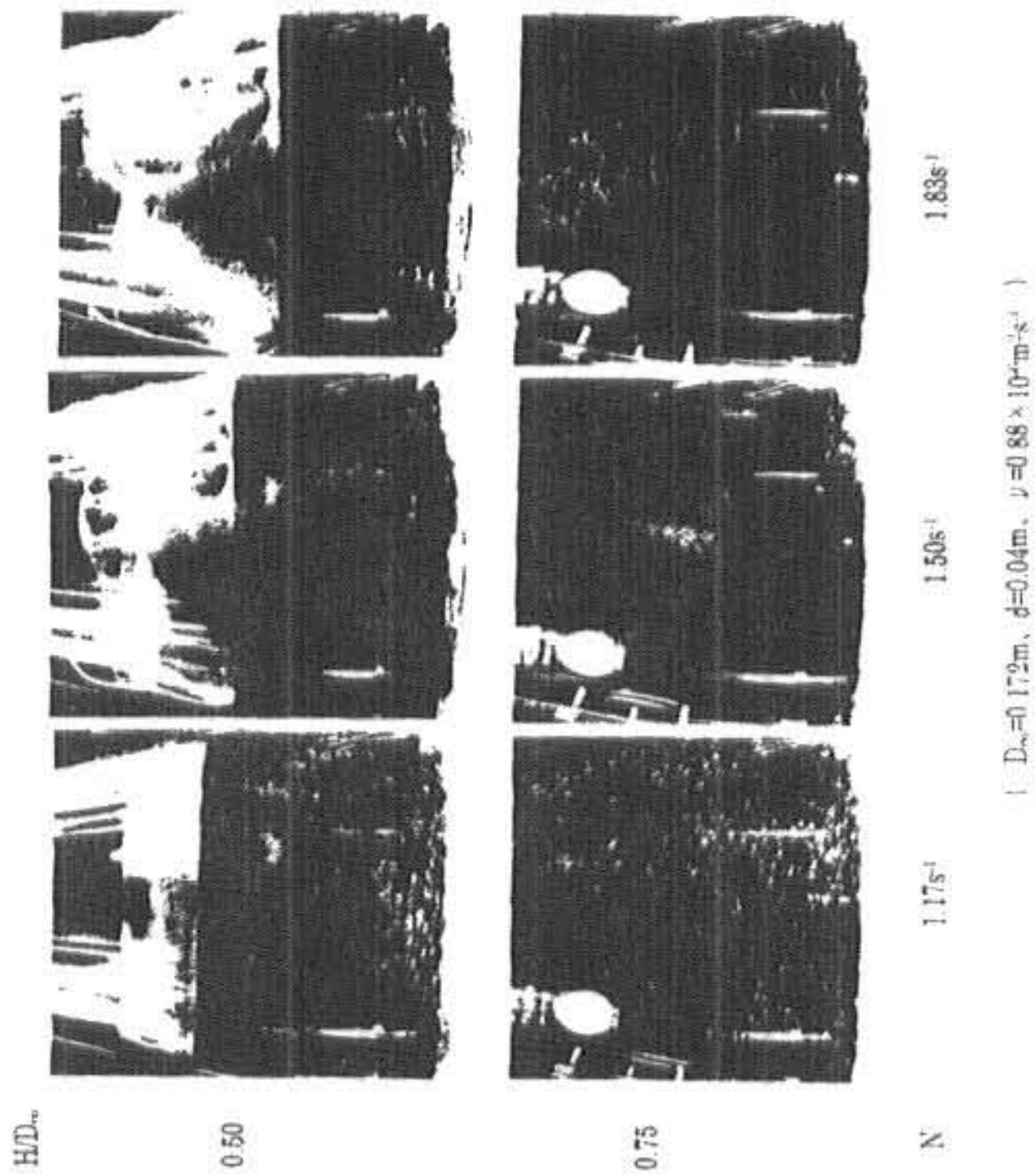


Fig. 6. Typical flow patterns of liquid in a horizontally shaking conical vessel with circulating motion.

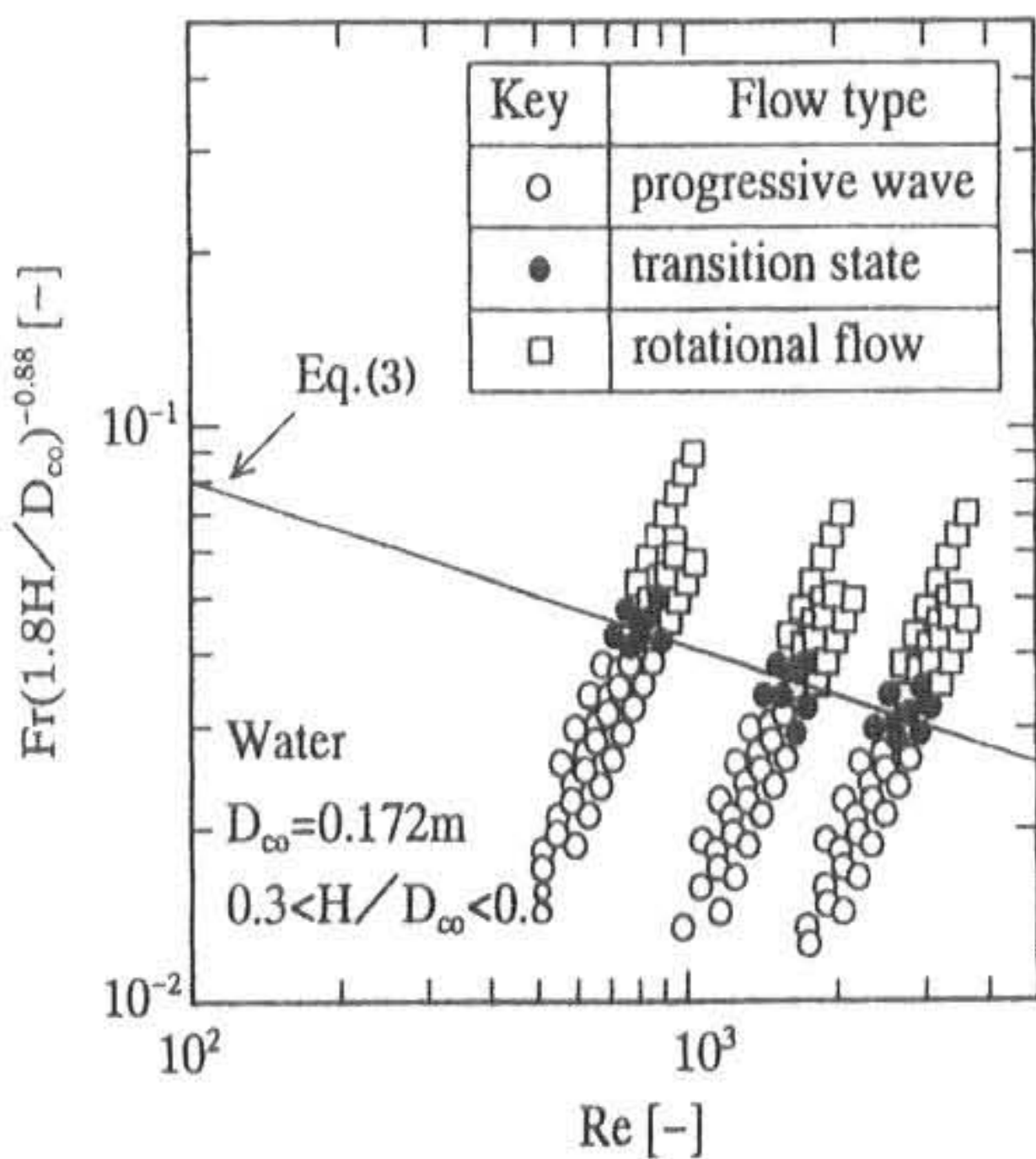


Fig. 7. Relationship between flow pattern and critical circulating frequency for complete mixing in a conical vessel.

$$Fr_c = 0.135Re_c^{-0.176}(1.8H/D_{co})^{0.88} \quad (0.3 < H/D_{co} < 0.8) \quad (3)$$

여기서 $Fr_c = N_c^2 D_a / g$, $Re_c = N_c d^2 / \nu$ 으로 정의했다. 보정항 H/D_{co} 의 계수 1.8은 0.55의 역수이다. 즉, $H/D_{co} = 0.55$ 일 때 식(3)은 식(1)과 같게된다. 식(3)의 상관관계를 Fig. 7에 나타내었다.

이 그림으로부터 천이상태를 나타내는 검은 칠을 한 키는 식(3)에 잘 상관되었다.

3.3 구형 교반조의 유동상태

구형 교반조에서의 유동상태를 Fig. 8에 나타내었다. 구형 교반조는 최대직경을 D_{sp} 로 했다. 상단은 액의 높이가 구형조의 최대직경의 1/2정도를 채운 상태이고($H/D_{sp} = 0.5$), 하단의 액의 높이는 구형조의 목 부분까지 채운 상태($H/D_{sp} = 0.75$)에서 실험을 한 결과이다. 이 그림에서 보면 회전수가 증가함에 따라 교반조내의 유동상태는 삼각플라스크에서와 같이 진행과형에서 선회류형으로 천이해감을 알 수 있다. 따라서 구형 교반조도 진동교반에 의한 혼합조작이 가능하다. 그러나 액위가 상승하면 자유표면이 감소하여 유체가 선회하기 어렵게 되는 것을 알 수 있었다.

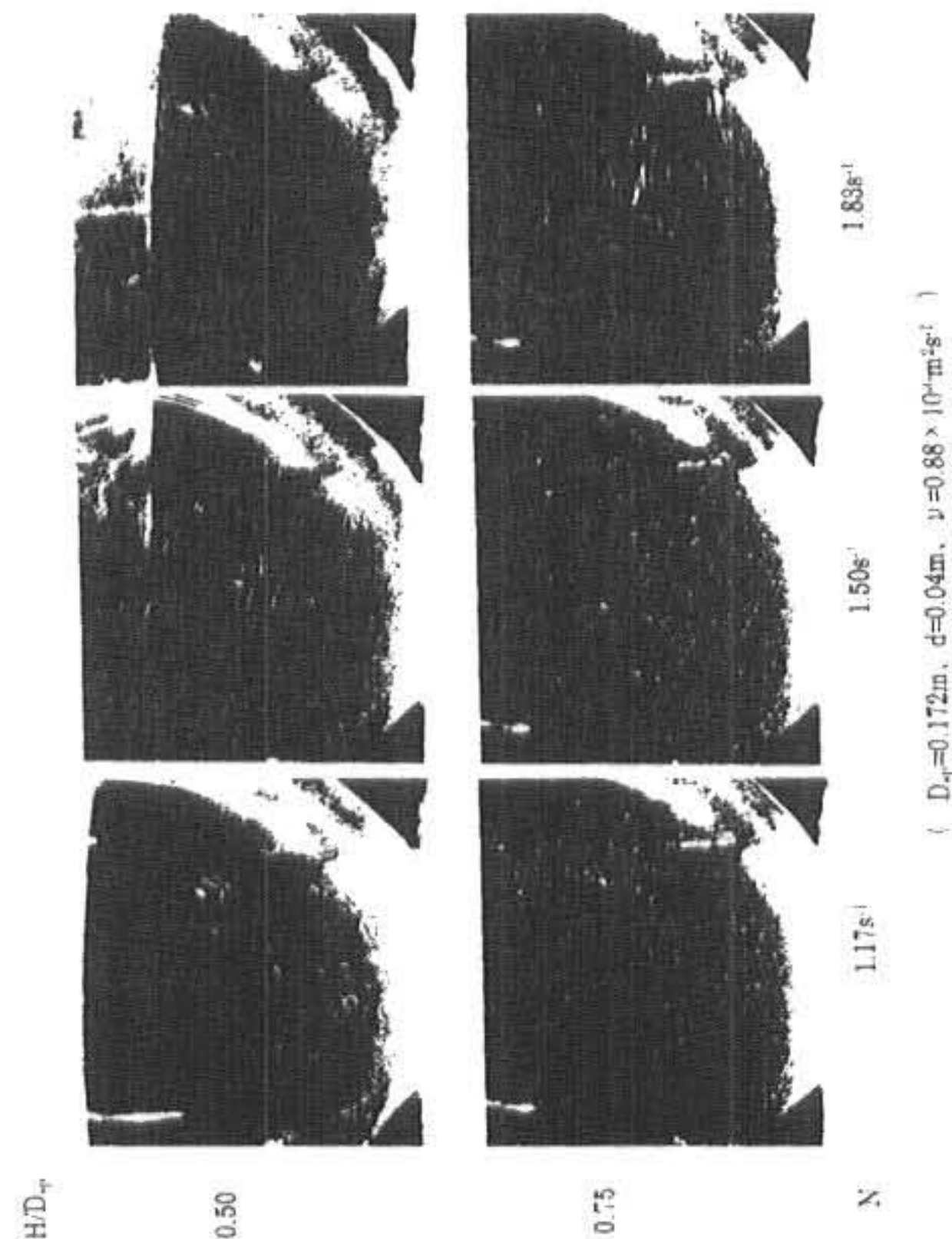


Fig. 8. Typical flow patterns of liquid in a horizontally shaking spherical vessel with circulating motion.

구형 교반조에서의 혼합한계회전수 N_c 의 상관식을 도출하기 위해 앞의 삼각플라스크 교반조에서와 마찬가지로 식(1)을 확장했다. Fr수에 이용되는 교반조의 직경 D_{sp} 는 Fig.3에 나타낸 바와 같이 구형조의 체적 V 와 같은 체적의 원통조의 직경인 겉보기 원통조의 직경 D_a 를 이용했다. 구형 교반조에서의 혼합한계회전수 N_c 의 상관식은 식(1)에 액의 깊이 H 와 조경 D_{sp} 의 비를 보정항으로 넣어줌으로서 다음 식과 같이 상관되었다.

$$Fr_c = 0.135Re_c^{0.176}(H/D_{sp})^{0.82} \quad (0.3 < H/D_{sp} < 0.8) \quad (4)$$

이거서 $Fr_c = N_c^2 D_a / g$, $Re_c = N_c d^2 / \nu$ 으로 정의했다. 식(4)의 상관관계를 Fig. 9에 나타내었다. 이 그림에서 약간의 흠이짐이 있으나 검은 점을 한키는 식(4)에 잘 상관됨을 알 수 있다.

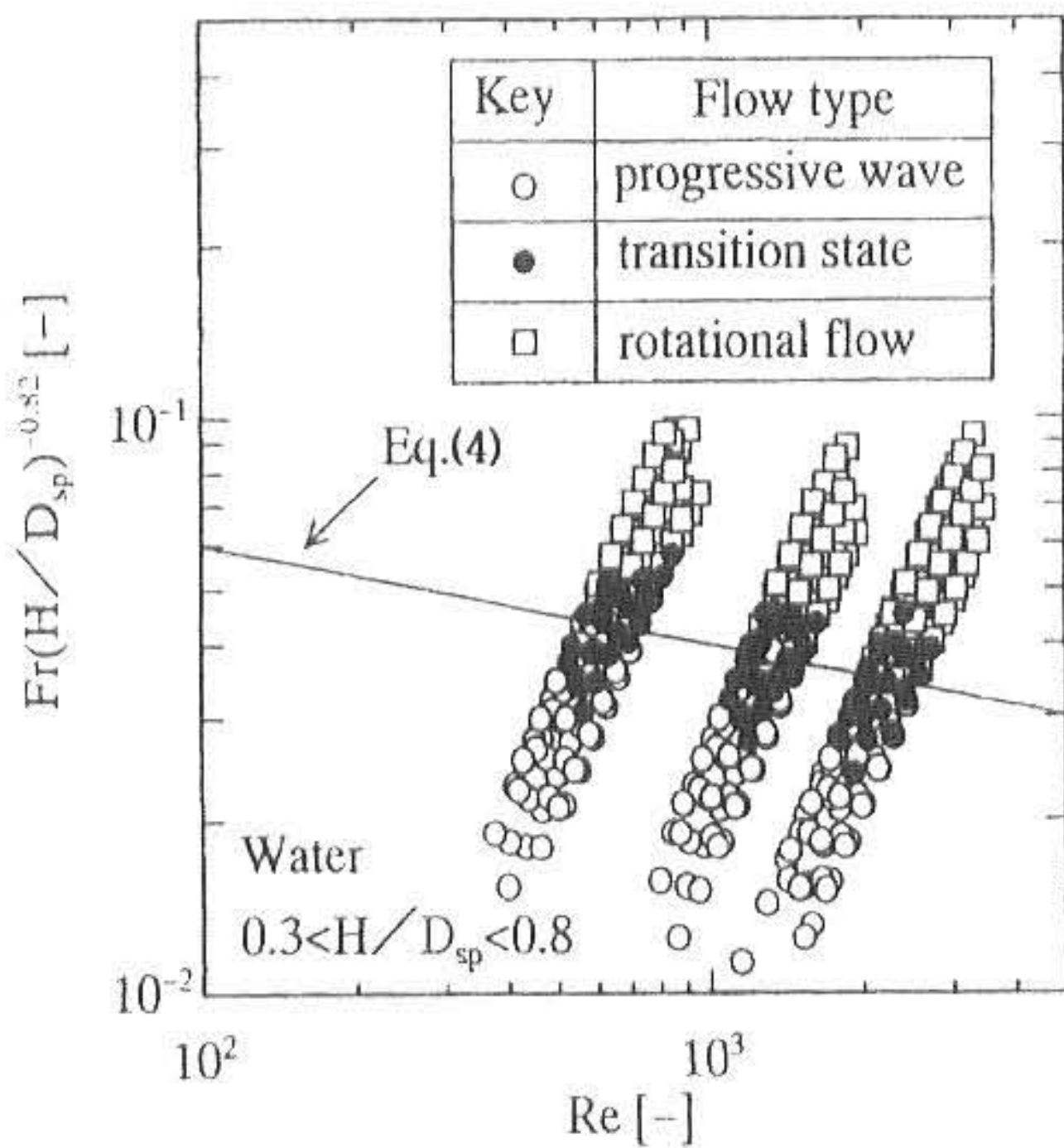


Fig. 9. Relationship between flow pattern and critical circulating frequency for complete mixing in a spherical vessel.

3.4 각형 교반조 및 방해판이 부착된 원통 교반조에서의 유동상태

일반적으로 임펠러를 이용한 교반에서는 선회류에 의한 고체적 회전부분을 해소하고 흐름을 혼합하기 좋은 상하 순환류로 하기 위해 보통

방해판을 설치하여 교반한다. 또 원통 교반조가 아닌 각이진 교반조를 이용함으로써 방해판의 효과를 얻기도 한다.

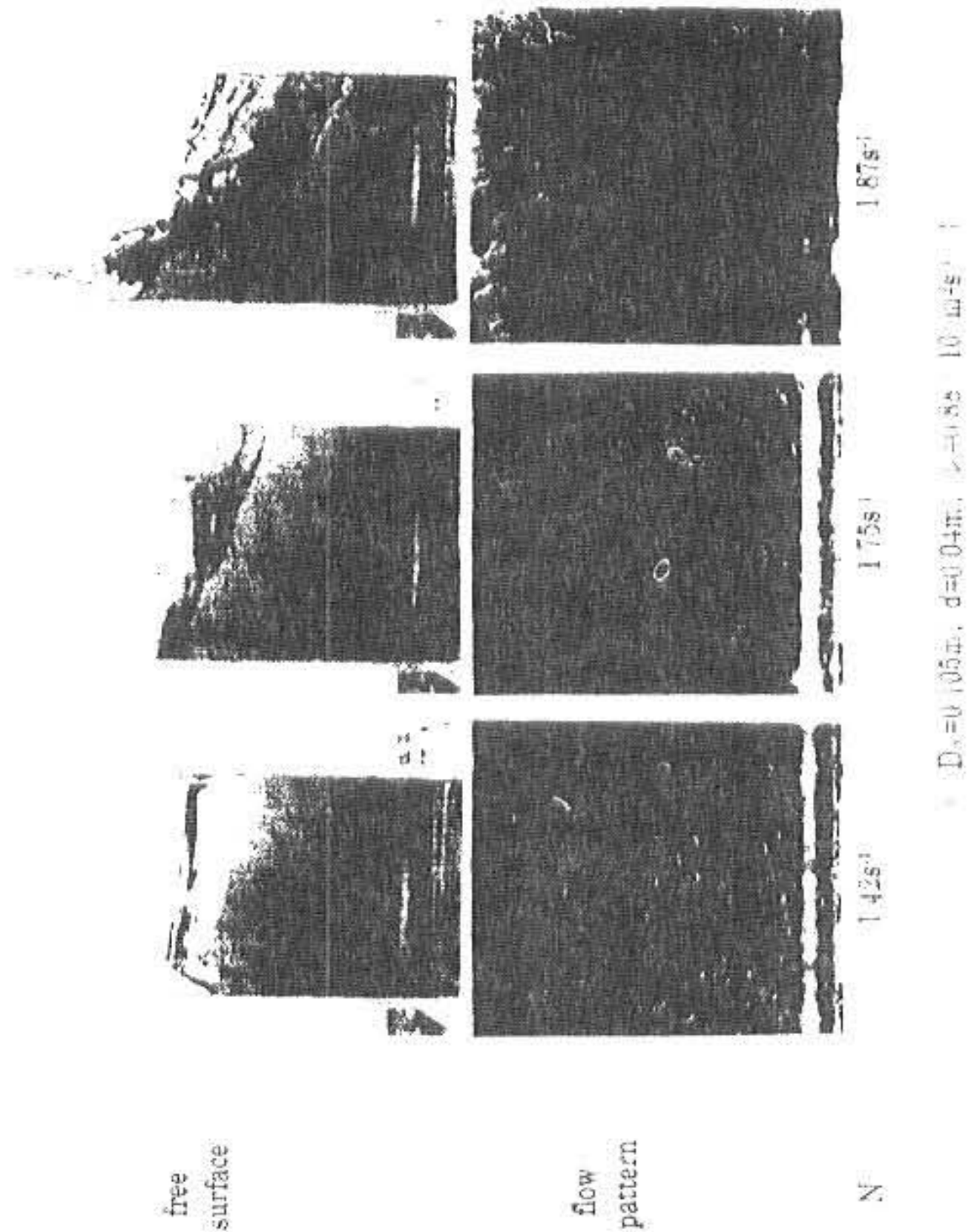


Fig. 10. Flow patterns and free surface motion in a horizontally shaking spherical rectangular vessel with circulating motion.

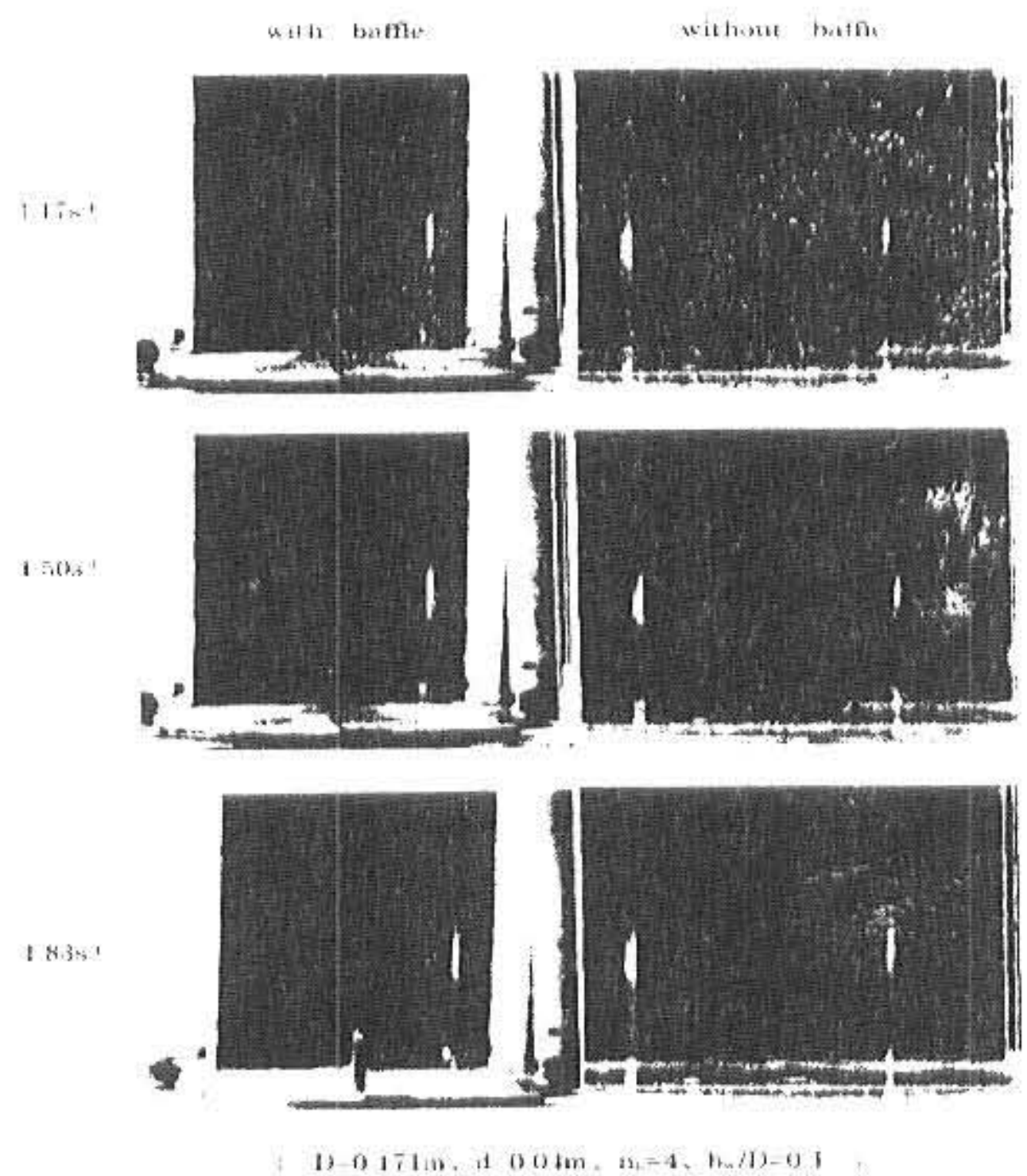


Fig. 11. Typical flow patterns of liquid in a shaking vessel with baffle.

따라서 진동교반에서도 이들 교반조를 이용

할 수 있는가에 대한 검토를 했다. 각형 교반조에서의 자유표면과 유동상태를 Fig. 10에 나타내었다. 액의 높이는 조경 D_{re} 와 같은 높이 ($H=D_{re}$)로 했다. 이 그림으로부터 원통 교반조나 삼각플라스크 교반조에서 완전혼합이 달성되는 회전수에서도 각형 교반조는 완전혼합이 되지 않음을 알 수 있다. 또한 자유표면에서는 회전수를 증가시켜도 각이진 부분에서 자유표면이 상하로 격렬하게 물결칠 뿐 선회류는 발달하지 않았다.

또 원통 교반조에 방해판을 설치한 경우의 유동상태를 Fig. 11에 나타내었다. 액의 높이는 조경과 같은 높이로 하여 실험했다. 이경우도 각형 교반조에서와 마찬가지로 회전수를 증가시켜도 선회류가 관찰되지 않았다.

이상의 결과로부터 각형 교반조나 방해판이 설치된 원통 교반조, 즉 단면이 비원형으로 선회류를 일으키지 않는 교반조의 기하형상은 진동교반에서는 부적당하다고 사료된다.

4. 결론

진동교반시 원통 교반조에서의 유동상태를 기초로 삼각플라스크 교반조, 구형 교반조, 각형 교반조 및 방해판이 부착된 원통교반조에서의 유동상태를 가시화하고 그 결과로부터 각 교반조에서의 혼합한계회전수의 상관식을 도출한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 원통 교반조에서의 유동상태는 혼합한계회전수 이하에서는 진행과형으로, 혼합한계회전수에서는 천이상태로 진행되고 혼합한계회전수 이상에서는 선회류형의 흐름으로 진행되었으며 혼합한계회전수 N_c 의 상관식은 다음식으로 상관되었다.

$$Fr_c = 0.135Re_c^{-0.176} \quad (3.0 < Re_c < 3100)$$

2. 삼각플라스크 교반조와 구형 교반조의 유동상태는 선회류로 발달하므로 진동교반에 의한 혼합조작이 가능하다. 또 원통 교반조에서의 혼합한계회전수의 상관식에 보정항을 가한 상관식은 각각 다음과 같은 식으로 나타내었다.

$$Fr_c = 0.135Re_c^{-0.176}(1.8H/D_{co})^{0.88} \quad (0.3 < H/D_{co} < 0.8)$$

$$Fr_c = 0.135Re_c^{-0.176}(H/D_{sp})^{0.82} \quad (0.3 < H/D_{sp} < 0.8)$$

3. 진동교반에서 선회류는 액 자유표면에서 벽 쪽으로 진행되어 교반조 바닥에서 발달한다.

4. 각형 교반조나 방해판이 부착된 원통교반조는 각이진 부분에서 자유표면이 상하로 격렬하게 물결칠 뿐 선회류는 발달하지 않고 완전혼합이 달성되지 않기 때문에 진동교반에는 적절하지 않다.

감사

본 연구는 상주대학교의 지원에 의해 수행되었으며 이에 깊은 감사를 드립니다.

사용기호

D	: diameter of cylindrical vessel	[m]
D_a	: apparent vessel diameter	[m]
D_{co}	: diameter of conical vessel	[m]
D_{re}	: diameter of rectangular vessel	[m]
D_{sp}	: diameter of spherical vessel	[m]
d	: circulating diameter	[m]
Fr	: Froude number(= N^2D/g)	[-]
Fr_c	: Froude number for N_c (= N_c^2D/g)	[-]
H	: liquid height	[m]
N	: circulating frequency	[s ⁻¹]
N_c	: critical circulating frequency for mixing	[s ⁻¹]
Re	: Reynold number(= Nd^2/v)	[-]
Re_c	: Reynold number for N_c (= $N_c d^2/v$)	[-]
v	: kinematic viscosity	[m ² -s ⁻¹]

참고문헌

- 1) Biggs, R. D.: AIChE J., **9**, 636-640(1963).
- 2) Metzner A. B. and Taylor, J. S.: AIChE J., **6**, 109-114(1960).
- 3) Gardner, J. and Tatterson, G.: Biotech.

- Bioeng., **39**, 794-797(1992).
- 4) Rhodes, R. P. and Garden, Jr., R. P.: Ind. Eng. Chem., **49**, 1233-1236(1957).
 - 5) Kamiwano, M., Yamamoto, K. and Nagata, S.: Kagaku Kogaku, **31**, 365-372 (1967).
 - 6) Sano, Y. and Usui, H.: J. Chem. Eng. Japan, **18**, 47-52(1985).
 - 7) Lee, Y.S., Kim, M.G. and Kato, Y.: HWAHAK KONGHAK, **39**, 5, 536-544 (2001).
 - 8) Lee, Y.S., Lee, S.G. and Kim, J.S.: HWAHAK KONGHAK, **33**, 1, 46-55 (1995).
 - 9) Kamei, N., Hiraoka, S., Kato, Y., Tada, Y., Shida, H., Lee, Y. S., Yamaguchi, T. and Koh, S. T.: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **21**, 1, 41-48(1995).
 - 10) Kamei, N., Hiraoka, S., Kato, Y., Tada, Y., Ishizuka, H., Iwata, K., Lee, Y. S., Yamaguchi, T. and Koh, S. T.: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **21**, 4, 696-702(1995).
 - 11) Kamei, N., Hiraoka, S., Kato, Y., Tada, Y., Kuwabara, S., Lee, Y. S., Yamaguchi, T. and Koh, S. T.: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **20**, 5, 595-603(1994).
 - 12) Bae, D. H., Ryu, H. J., Shun, D. W., Jin, G. T., Lee, D. K and Choi, J. H.: HWAHAK KONGHAK, **40**, 2, 237-245 (2002).
 - 13) Huh, Y.J., Choi, C.S. and Lee, W.H.: HWAHAK KONGHAK, **31**, 2, 169-177 (1993).
 - 14) Park, S.W., Lee, J.W. and Park, M.G.: HWAHAK KONGHAK, **29**, 2, 168-175 (1991).
 - 15) Koh, S. T., Hiraoka, S., Tada, Y., Aragaki, T., Hijikata, T. and Yamaguchi, T.: J. Chem. Eng. Japan, **24**, 760-766 (1991).
 - 16) Koh, S. T., Hiraoka, S., Tada, Y., Takahasi, T. and Yamaguchi, T.: J. Chem. Eng. Japan, **24**, 506-511(1991)
 - 17) Koh, S. T., Hiraoka, S., Yamada, I., Tada, Y., Aragaki, T.,S. and Takahasi, T.: J. Chem. Eng. Japan, **22**, 611-615 (1989).
 - 18) Maruyama, T., Kamishima, N. and Mizushima, T.: J. Chem. Eng. Japan, **17**, 120-126(1982).
 - 19) Maruyama, T., Ban, T. and Mizushima T., J. Chem. Eng. Japan, **15**, 342-348 (1980)
 - 20) Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, Y., Mori, T., Shirai, S., Ue, T. and Koh, S. T.: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **20**, 3, 437-444 (1994).
 - 21) Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, T., Shirai, S., Ue, T. Koh, S. T. and Yamaguchi, T.: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **21**, 3, 365-371 (1995).
 - 22) Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, Y., Ue, T., Koh, S. T. and Lee, Y. S.: Kagaku Kogaku Ronbunshu, **22**, 1, 134-139(1996).
 - 23) Kato, Y., Hiraoka, S., Tada, Y., Koh, S. T. and Lee, Y. S.: Trans IChemE, **74**, Part A, 451-455(1996).
 - 24) Rhodes Richard, P. and L. Garden, Jr. Elmer: Industrial and Engineering Chemistry, **49**, 8, 1233-1234(1957).
 - 25) Michael, A. A., Howard, M. H. and Norman, G. R.: Industrial and Engineering Chemistry, **49**, 8, 1237-1238 (1957).
 - 26) Ruston, J. H., Gallagher, J. B. and Oldshue, J. Y.: Chem. Eng. Prog., **52**, 319-323 (1956).
 - 27) Takahashi, K., Sasaki, M., Arai, K. and Saito, S.: J. Chem. Eng. Japan, **15**, 217-224 (1982).

(2002년 10월 17일 접수, 2003년 1월 20일 채택)