

기-액-고 3상계 교반조내의 고-액간 물질이동

이영세[†] · 加藤禎人* · 鈴木純一郎*

상주대학교 응용화학공학부, *일본 나고야공업대학 생명물질공학과
(2006년 7월 20일 접수, 2006년 9월 6일 채택)

Solid-Liquid Mass Transfer in Gas-Solid-Liquid 3-Phase System Agitated Vessel

Young Sei Lee[†], Yoshihito Kato*, and Junichiro Suzuki*

School of Applied Chemical Engineering, Sangju National University, Sangju 742-711, Korea
*Department of Life & Material Engineering, Nagoya Institute of Technology, Nagoya 466-8555, Japan
(Received July 20, 2006; accepted September 6, 2006)

Rushton turbine, paddle and propeller 임펠러 등 표준적인 임펠러가 부착된 기-액-고 3상교반조에서 고-액간 물질이동계수 k_L 를 측정하였다. 표준적인 임펠러들에 대한 부유화한계회전수 N_{js} 는 임펠러 높이와 가스유속에 따라 변했다. 입자부유가 통기에 의존한 Rushton turbine 임펠러의 물질이동계수는 P_{gv} 에만 상관하였다. Rushton turbine, paddle and propeller 임펠러에 대한 물질이동계수 k_L 는 임펠러의 종류에 의하지 않고 임펠러 위치에 영향을 받았다.

The solid-liquid mass transfer coefficients k_L in a gas-liquid-solid three phases agitated vessel were measured with conventional impellers (e.g. Rushton turbine, paddle, and propeller). For the conventional impellers the rotational speed for the complete suspension N_{js} changes with the impeller height and gas flow rate. Mass transfer coefficient of the Rushton turbine impeller, for which the particle suspension was independent of the aeration, is correlated only with P_{gv} . Mass transfer coefficients k_L for the Rushton turbine, paddle and propeller impellers were affected by the impeller position.

Keywords: mass transfer coefficients, rotational speed for complete suspension, aeration power consumption, agitation power consumption, conventional impellers

1. 서 론

교반조작은 화학공업에서 화학제품, 의약품, 식품 등의 제조나 혼합에 오래전부터 중요한 단위조작의 하나로 이용되어 왔다. 그 중에서 기-액-고 3상계의 교반조작은 널리 이용되어 왔고 이러한 조작에서는 기-액 및 고-액간의 물질이동을 촉진시킬 필요가 있고 가스의 분산과 입자의 부유분산이 동시에 요구된다.

보통의 조건하에서는 입자의 부유화가 달성된 시점에서 가스분산이 충분하게 되므로 완전부유화한계속도의 추산이 중요하게 요구되며 이에 관한 연구도 많이 이루어져 왔다[1-4]. 고-액 2상계에서의 완전부유화한계속도는 Zwietering의 정의[5] 「입자가 용기바닥에서 1~2초 이상 하나도 머무르지 않는 상태」에 따라서 눈으로 관찰하여 측정할 수 있다.

또한 상관식도 차원해석으로부터 도출된 Zwietering의 식[5]이 가장 일반적으로 이용되고 있다.

$$N_{JS} = \frac{S_\nu^{0.1} d_p^{0.2} (g \Delta\rho/\rho_L)^{0.45} X^{0.13}}{d_{imp}^{0.85}} \quad (1)$$

여기서 S 는 장치정수, ν 는 동점도, d_p 는 입자직경, X 는 고체입자 농도이다.

2상계의 상관식에 대해서는 많은 보고[6-9]가 있지만 기-액-고 3상계에서의 고-액간 물질이동에 관한 연구는 미미한 편이다. 기-액-고 3상계에서의 고-액간 물질이동계수의 상관식은 Grisafi 등[10]이 보고한 식 (2) 및 3상계의 기포탑 및 유동층에서 얻은 Kikuchi 등[11]의 식 (3)이 있다.

$$Sh = 2 + 0.30 \left\{ \frac{d_p^{4/3} \epsilon^{1/3}}{\nu} \right\}^{0.75} Sc^{1/3} \quad (2)$$

$$Sh = 2 + 0.47 \left\{ \frac{d_p^{4/3} \epsilon^{1/3}}{\nu} \right\}^{0.63} Sc^{1/3} \quad (3)$$

많은 생물반응기는 통기하에서 조작되고 있고 그 효율을 결정하는 것은 기포로부터 배양액으로의 산소이동속도, 배양액으로부터 균체 혹은 각종 세포로의 산소나 영양분의 이동속도 및 전단속도에 의해서 결정되어진다. 여기서 통기 교반조에서 기포로부터 배양액으로의 산소이동속도, 전단속도에 관해서는 많은 보고가 있지만 배양액으로부터 균체 혹은 각종 세포로의 산소 및 영양분의 이동속도에 관한 연구

[†] 주 저자 (e-mail: yslee@sangju.ac.kr)

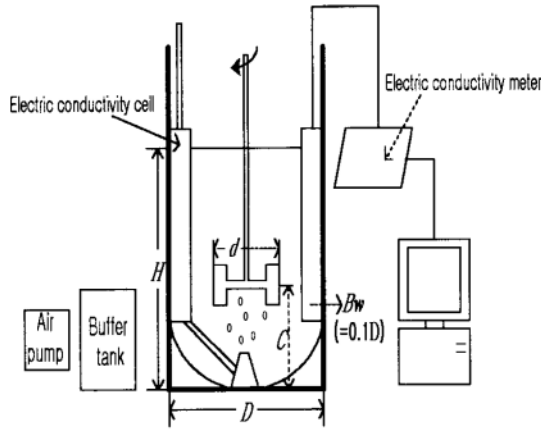


Figure 1. Schematic diagram of experimental apparatus.

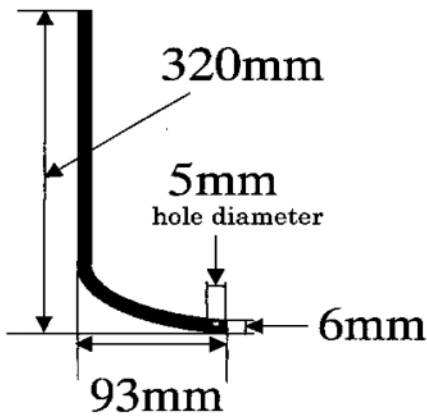


Figure 2. Type of sparger used.

는 Marrone 등[12], Sato 등[13] 및 Grisafi 등[10]의 연구보고가 있을 뿐 거의 예를 볼 수 없다. Marrone 등은 입자농도가 낮은 경우 종래의 고-액 2상계의 상관식에서 입자 레이놀즈수를 정의하는 홀어져 사라지는 난류에너지를 산출할 때 단위체적당 동력 P_v 대신에 전공급동력 (통기 동력, P_{av} + 통기 시 교반동력, P_{gv})을 이용하면 고-액 2상계의 물질이동계수의 상관식을 사용할 수 있다고 보고하고 있다. Sato 등 [13]은 $P_{av} + P_{gv}$ 가 아니고 P_{gv} 만을 이용하는 방법이 양호한 상관을 얻을 수 있다고 보고하고 있다. 고-액 2상계에 대해서 부유화한계회전 수 N_{js} 이상의 난류영역에서 조작되는 교반조 내에서는 임펠러의 기하 형상에 기인하지 않고 종래의 2상계의 상관식을 사용할 수 있다고 Oishi 등[14]이 보고했다.

따라서 본 연구에서는 기-액-고 3상계 교반조에서의 고-액 물질이동 속도를 측정하여 여러 가지 임펠러에서의 통기 시 입자부유화한계 교반동력과 통기 조건과의 관계, 즉 횡축을 교반소요동력 P_{gv} 만으로 나타내는 것이 좋은가 아니면 통기동력을 더한 $P_{av} + P_{gv}$ 로 나타내는 것이 좋은가를 물질이동계수 k_L 과의 상관으로부터 비교검토 하고, 대표적인 임펠러 형상 선택 및 최적 조작조건을 얻고자 연구하였다.

2. 실험장치 및 방법

2.1. 실험장치

실험장치의 개략도를 Figure 1에 나타내었다. 교반조는 내경 $D =$

Table 1. Experimental Condition for Impeller Used

Impeller	blade number	d/D
Rushton turbine	6	0.32
Paddle	4	0.38
Propeller (up-pumping)	3	0.38
Propeller (down-pumping)	3	0.38

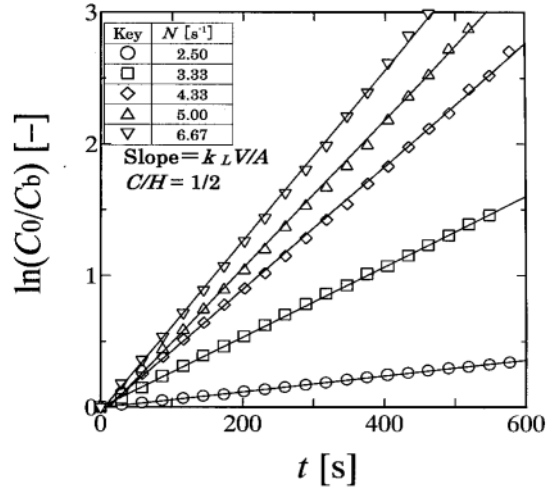


Figure 3. Plot of $\ln(C_0/C_b)$ against time for Rushton turbine.

18.5 cm의 아크릴제 원통조에 교반조 직경의 1/10인 방해판을 4매 부착한 교반조를 사용하였다. 교반액은 이온교환수를 이용했으며 액의 온도는 25 °C로 했다. 또한 액의 높이 H는 교반조 직경(D)과 같게 하였으며 가스는 교반조 바닥에 설치한 single sparger로부터 공기를 교반조 내에 공급했다.

Figure 2에 실험에 이용한 single sparger의 형태를 나타내었다. 고체 입자는 이온교환수지(양이온교환수지, 밀도 = 1210 kg/m³, 입자경 = 750 μm)를 이용했으며 교반액 중의 고체 입자량은 1.0 wt%로 했다. 또한 실험에 이용한 교반임펠러와 그 기하조건을 Table 1에 나타내었다.

2.2. 실험방법

고-액간 물질이동계수는 보통 이온교환에서의 물질이동속도 혹은 유기산이나 전해질의 용해속도를 측정함으로써 결정된다. 여기서 용해실험법[11]은 측정 중에 입자 직경이 변화하기 때문에 입자 직경이 물질이동계수에 미치는 영향을 평가하기 어려운 문제점이 있다. 한편 이온교환 실험법에서는 표면적을 아는 구형입자를 구할 수 있고 입자 직경에 대한 영향을 알 수 있기 때문에 본 실험에서는 이온교환법[14]에 의해서 물질이동계수 k_L 을 측정했다.

조작은 소정의 회전수로 교반개시 후 교반조내가 정상상태가 되었다고 판단되었을 때 NaOH 농도가 1 mol/m³가 되도록 사전에 제조한 NaOH 수용액(100 mL의 이온교환수에 19.88 mg의 NaOH를 용해한 수용액 1 cc)을 액자유표면의 샤프트 근처에서 단시간에 투입하면 곧바로 이온교환 반응이 진행되어 NaOH 용액의 농도가 변화한다. 이 교반조내 액의 농도 변화를 전기전도도계를 이용하여 측정하여 산출했다. NaOH 용액 첨가 후 25 °C에서의 용액의 밀도와 점도는 25 °C에서의 물과 같다고 보고 수중에서의 NaOH 확산계수는 2.13×10^{-9} m²/s로 했다[16]. Figure 3에 NaOH 농도 변화의 측정결과를 나타내었

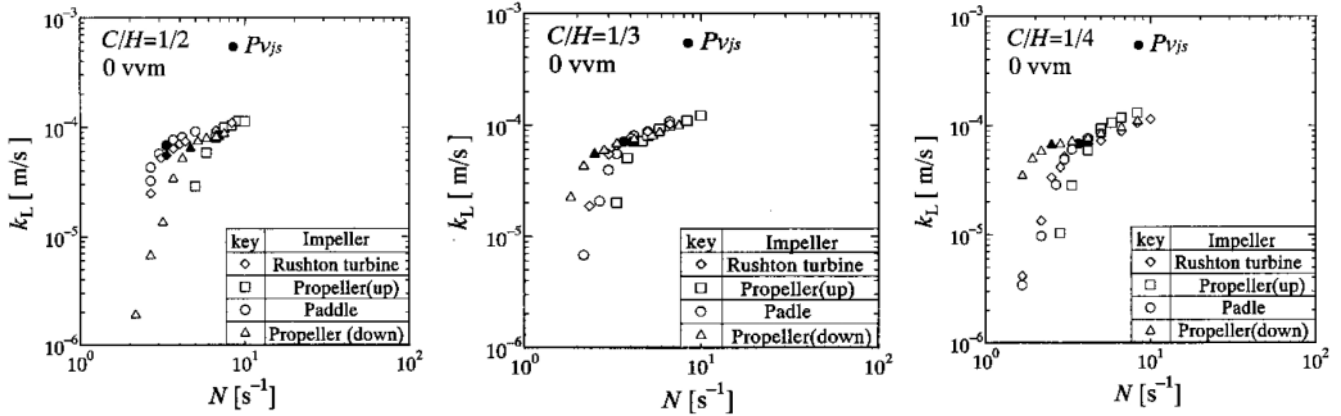


Figure 4. Effect of impeller speed N on k_L at various clearances for impellers under ungasged conditions.

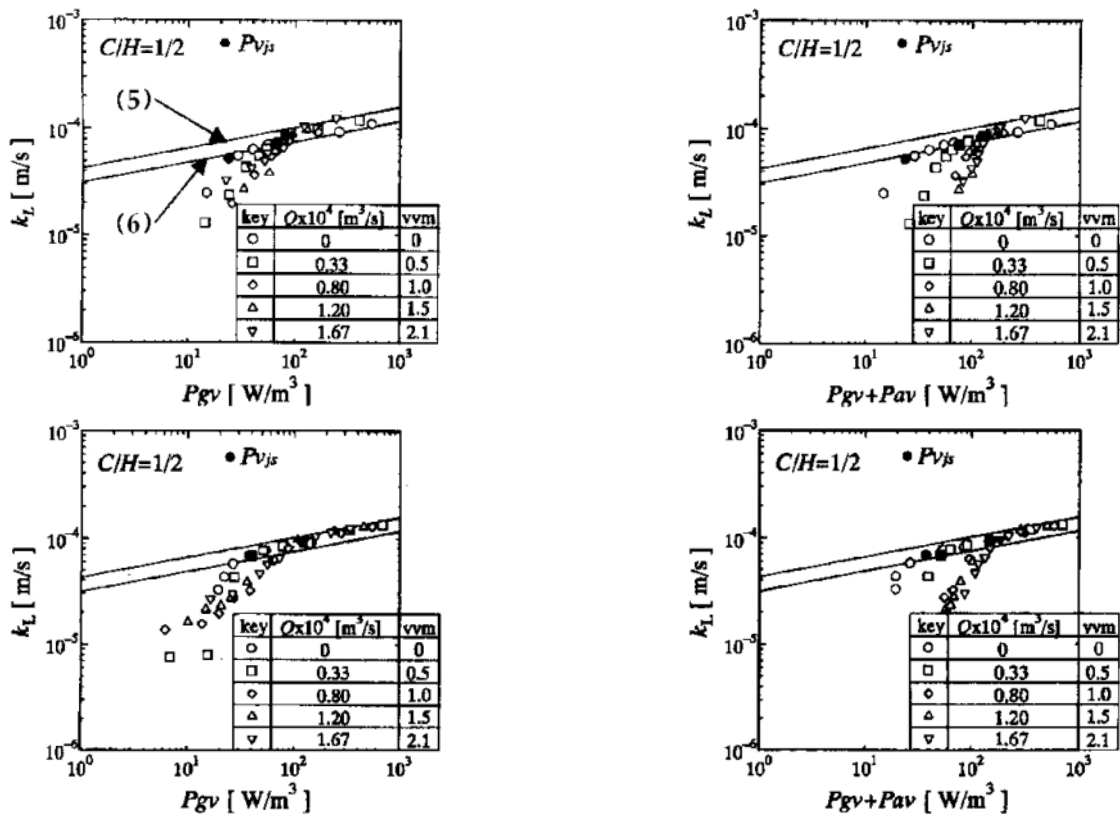


Figure 5. Effect of power consumption per unit volume on mass transfer coefficient at various flow rates with sparger ($C/H=1/2$, Rushton turbine and Paddle).

Table 2. Gas Flow Rates with Sparger

key	$Q \times 10^4$ [m³/s]	vvm
○	0	0
□	0.33	0.4
◇	0.80	1.0
△	1.20	1.5
▽	1.67	2.1

다. 이 그림에서 기울기와 길보기 표면적인 입자 전표면적 A 및 용액 전체적 V를 식 (4)에 대입하여 물질이동계수 k_L 을 구하였다. 또한 입자의

부유, 분산을 평가하는 지표로는 Zwietering[5]의 판정기준을 이용했다.

$$k_L = \frac{V}{At} \ln(C_o/C_i) \tag{4}$$

검토한 통기량을 Table 2에 나타내었다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1. 회전수에 따른 물질이동계수

무통기시 회전수 N에 따른 물질이동계수 k_L 의 측정결과를 Figure 4

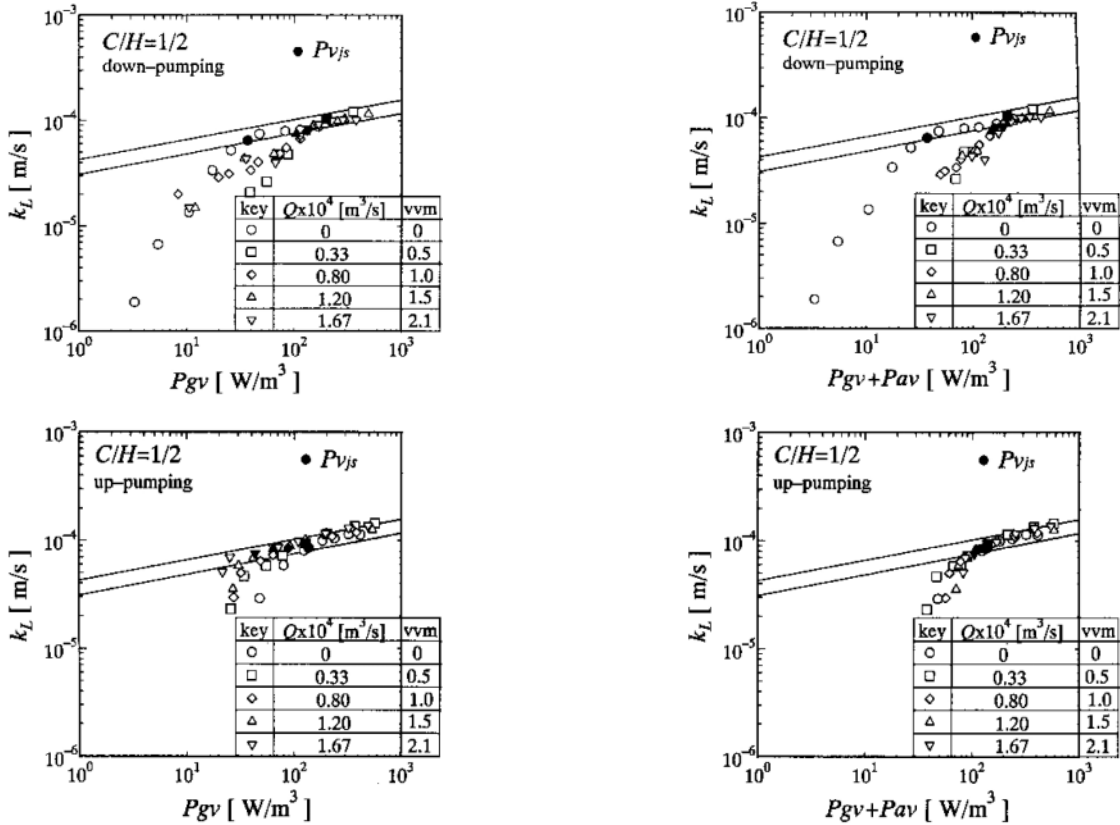


Figure 6. Effect of power consumption per unit volume on mass transfer coefficient at various flow rates with sparger (C/H=1/2, Propeller down-pumping and Propeller up-pumping).

에 각 C/H비에 따라 나타내었다.

교반조내를 부유하고 있는 입자분산계에 대해서 어떤 임펠러도 부유화한계회전수 $[3,4,15-19]$ N_{js} 를 경계로 물질이동계수는 회전수에 대한 의존성이 급격하게 변화하였다. 또 임펠러 부착높이 C/H에 따라서 임펠러의 차이가 명확히 나타났다. Figure 4에서 C/H = 1/2을 제외하면 가장 낮은 회전수에서 N_{js} 에 도달하는 것은 프로펠러의 down-pumping이다. 역으로 가장 높은 회전수에서 N_{js} 에 도달하는 것은 모든 C/H 조건에서 프로펠러의 up-pumping이다. 이 사실로부터 공기유통이 없는 경우 아래로 향하는 축류흐름을 발생시키는 교반임펠러가 보다 고효율적인 동력을 액에 전할 수 있다는 것을 알았다.

3.2. 물질이동계수와 P_v 의 관계

Figure 5 및 Figure 6에 각 임펠러에 대해서 단위체적당 소비동력 P_v 가 고-액간 물질이동계수 k_L 에 미치는 영향을 나타내었다. 여기서 P_{av} 와 P_{gv} 는 각각 단위체적당 통기(공기유통시) 동력과 교반소요동력이다. 각 임펠러에 대해서 물질이동계수 k_L 을 교반소요동력 P_{gv} 안으로 나타낸 것과 교반소요동력 P_{gv} 에 통기동력 P_{av} 를 더한 2종류로 나타내었다.

그림에서 검게 칠한 점은 각 통기량에서 입자부유화한계회전수 N_{js} 에서의 소요동력, 즉 입자부유화한계동력 P_{Vjs} 을 나타낸 것이다. 이들 그림으로부터 물질이동계수 k_L 은 이 입자부유화한계동력 P_{Vjs} 이상의 동력범위에서는 임펠러의 종류에 의하지 않고 모든 조건에서 P_v 만에 의존한다는 것을 알 수 있다. 횡축을 $P_{av} + P_{gv}$ 로 나타낸 경우에, 특히 통기량이 크면 P_{Vjs} 와 k_L 의 상관성이 잘 이루어지지 않음을 알 수 있

다. 그림중의 실선 (5), (6)은 각각 Sh 수와 Sc 수를 이용하여 상관한 Levins and Glastonbury[8]식 및 Hiraoka 등[9]의 식을 나타낸 것이다.

$$Sh = 2 + 0.50 \left\{ \frac{d_p^4 P_v}{\rho v^3} \right\}^{0.206} Sc^{1/3} \tag{5}$$

$$Sh = 0.45 \left\{ \frac{d_p^4 P_v}{\rho v^3} \right\}^{0.193} Sc^{1/3} \tag{6}$$

3.3. 임펠러 부착높이(C/H)와 P_{Vjs} 의 관계에 미치는 통기량의 영향

각 임펠러부착 위치와 P_{Vjs} 의 관계에 미치는 통기량의 영향에 관한 그림을 Figure 7~Figure 10에 나타내었다. Figure 7 및 Figure 8로부터 Rushton turbine, Paddle 임펠러는 무통기하에서 P_{Vjs} 는 C/H의 영향을 거의 받지 않지만 통기시에는 C/H의 영향을 크게 받는 것을 알 수 있다. 또한 Figure 9의 Propeller (down-pumping) 임펠러는 통기, 무통기에 상관하지 않고 C/H의 영향은 크게 나타났다. 그러나 Figure 10의 Propeller (up-pumping) 임펠러에서는 Rushton turbine, Paddle 임펠러 등과는 거꾸로 무통기시에 C/H의 P_{Vjs} 에 대한 영향이 크고 통기시에 C/H의 P_{Vjs} 에 대한 영향이 작다는 것을 알았다.

각 임펠러에서의 통기시 P_{Vjs} ($P_{Vjs,air}$ 로 표기)를 무통기시 P_{Vjs} 로 나눈 값을 Table 3에 나타내었다.

Table 3에서 통기시 $P_{Vjs,air}/P_{Vjs}$ 가 1 이하가 된 임펠러는 C/H=1/4에서는 Paddle과 Propeller (down-pumping), C/H=1/3에서는 Paddle, C/H=1/2에서는 Propeller (up-pumping)이다. 이 중에서 C/H=1/2에서

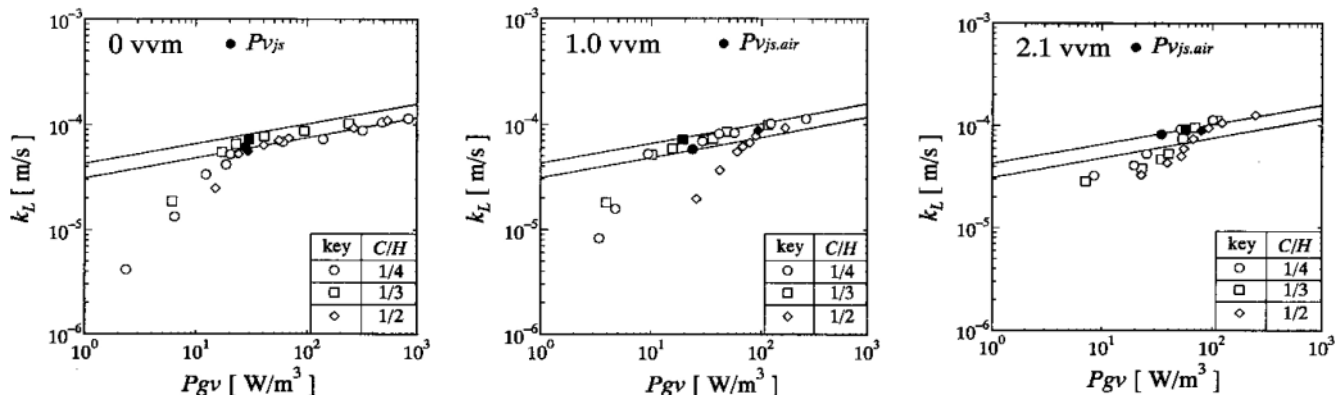


Figure 7. Effect of impeller clearances on Pv_{js} for Rushton turbine under ungassed and gassed conditions with sparger.

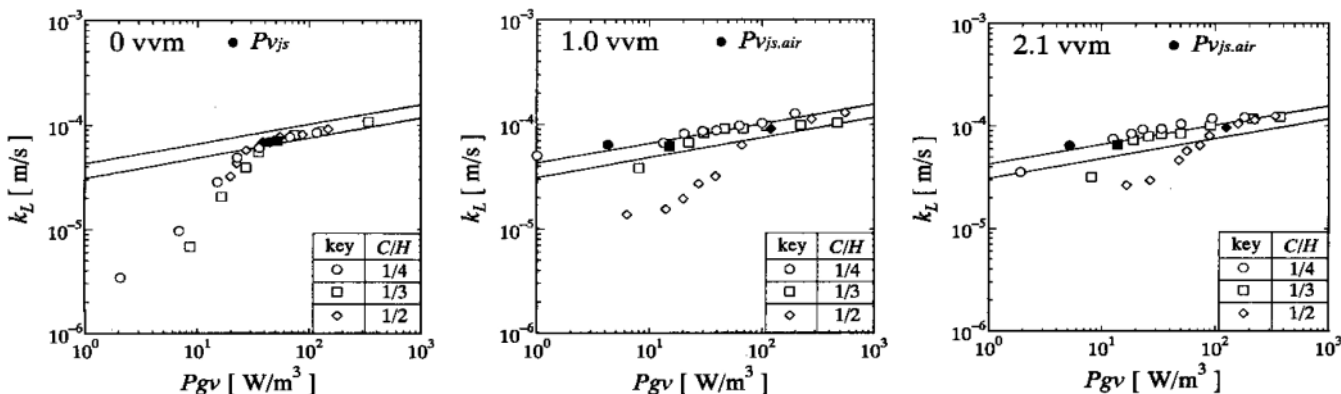


Figure 8. Effect of impeller clearances on Pv_{js} for Paddle under ungassed and gassed conditions with sparger.

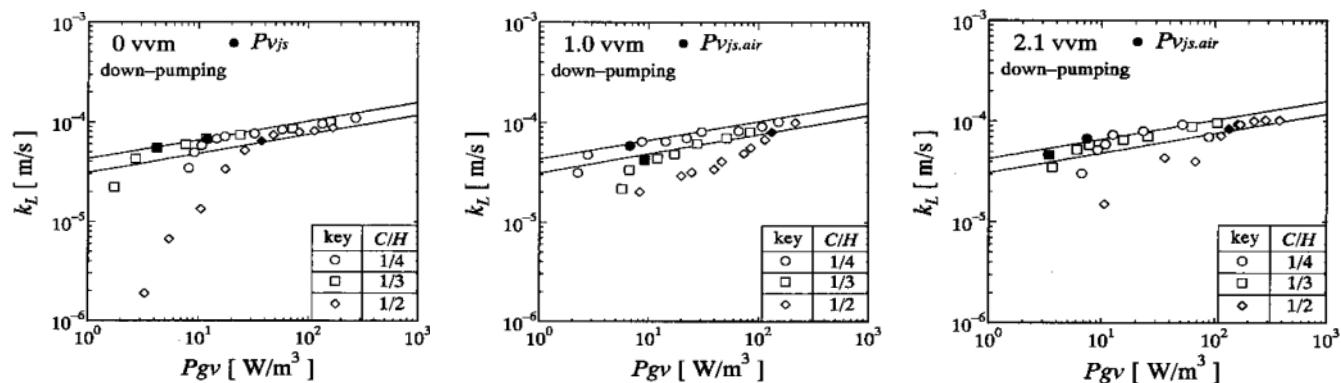


Figure 9. Effect of impeller clearances on Pv_{js} for Propeller (down-pumping) under ungassed and gassed conditions with sparger.

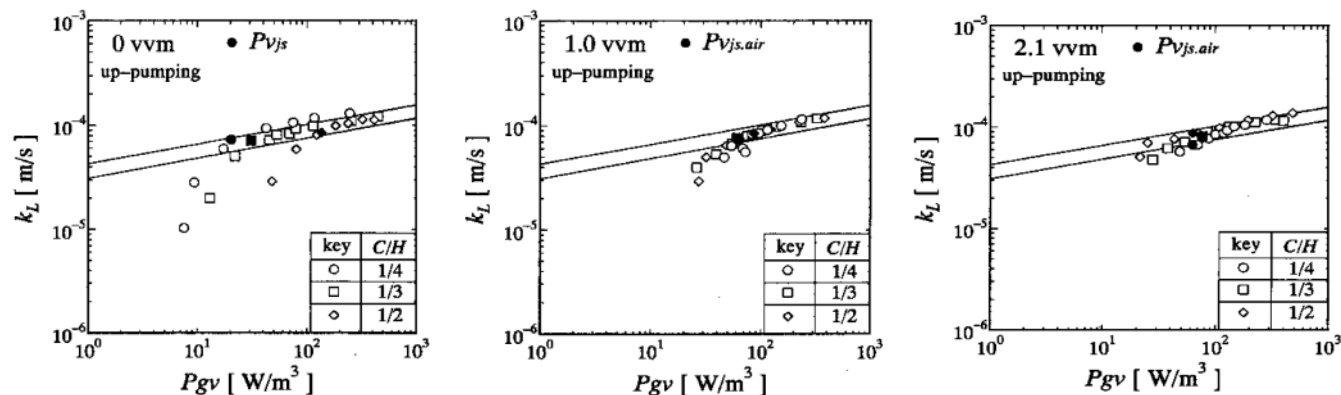


Figure 10. Effect of impeller clearances on Pv_{js} for Propeller (up-pumping) under ungassed and gassed conditions with sparger.

Table 3. Values of Pv_{js} and $Pv_{js,air}/Pv_{js}$ for the Impellers at Various Clearance

Impeller	key	C/H	Pv_{js} [W/m ³]	$Pv_{js,air}/Pv_{js}$ [-]			
				0.5 vvm	1.0 vvm	1.5 vvm	2.1 vvm
Rushton turbine	○	1/4	27.65	0.61	0.85	2.35	1.25
		1/3	22.78	0.60	0.84	2.02	2.49
		1/2	29.16	2.23	3.18	2.72	2.72
Paddle	□	1/4	44.17	0.33	0.10	0.12	0.12
		1/3	52.17	0.31	0.29	0.23	0.26
Propeller (down-pumping)	◇	1/4	11.99	0.53	0.56	0.57	0.62
		1/3	4.18	1.53	2.21	0.78	0.82
Propeller (up-pumping)	△	1/2	37.15	5.36	3.54	2.82	3.60
		1/4	20.35	3.44	3.13	2.59	3.12
		1/3	31.19	3.22	2.43	2.18	2.47
		1/2	135.47	0.94	0.64	0.47	0.32

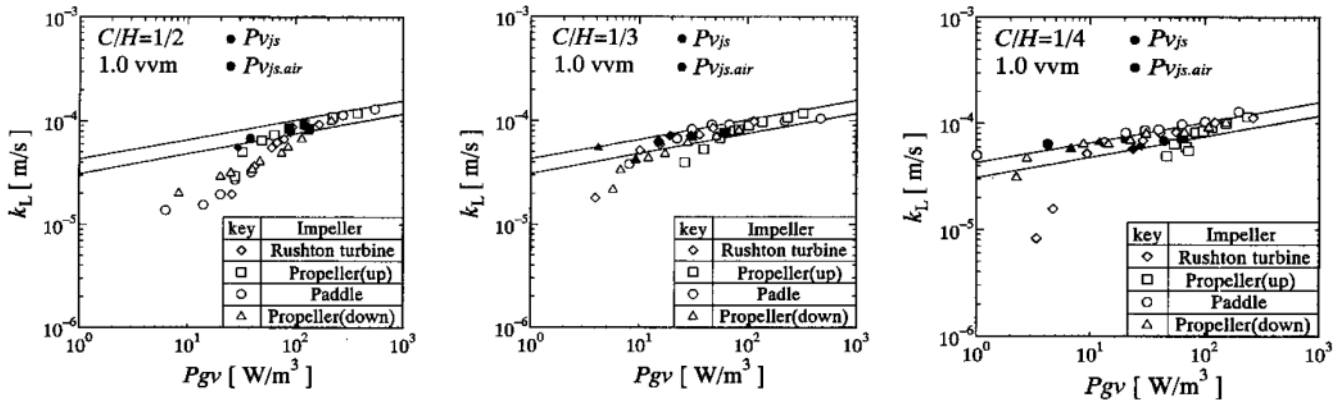


Figure 11. Comparison of Pv_{js} for impellers between under ungassed and gassed condition with sparger (1.0 vvm).

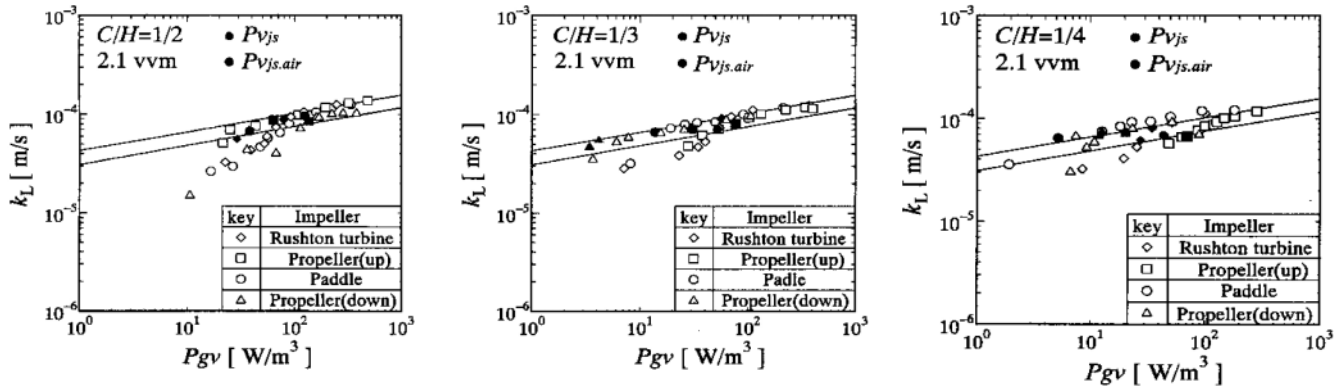


Figure 12. Comparison of Pv_{js} for impellers between under ungassed and gassed condition with sparger (2.1 vvm).

의 Propeller (up-pumping) 만이 $Pv_{js,air}/Pv_{js}$ 는 통기량에 의존하고 있다. 즉, 통기량이 크면 클수록 $Pv_{js,air}/Pv_{js}$ 가 작아짐을 알 수 있다.

Table 3으로부터 통기에 의해 Pv_{js} 가 저동력측으로 이동하는가 고통력측으로 이동하는가는 Rushton turbine은 통기량의 크기에 영향을 받고, Paddle은 임펠러 부착높이 C/H에 의존함을 알 수 있다. 또한 Propeller (down-pumping)은 임펠러 부착 높이가 교반조 바닥 부근일 때(C/H=1/4) $Pv_{js,air}/Pv_{js}$ 가 1 보다 작게 되고 C/H=1/3일 때는 통기량에

따라 달라짐을 알 수 있고 Propeller (up-pumping)은 C/H가 클 때 (C/H=1/2) $Pv_{js,air}/Pv_{js}$ 가 1 보다 작게 됨을 알 수 있다. 이들 4가지 임펠러에서 통기조건하에서 C/H가 크게 되면 될수록 입자부유가 양호하게 되는 것은 Propeller (up-pumping) 뿐이다. C/H에 의한 $Pv_{js,air}/Pv_{js}$ 의 영향이 통기량에 따라서 변하지 않는 것은 Paddle과 Propeller (up-pumping)으로 Rushton turbine, Propeller (down-pumping)은 C/H= 1/3 일 때 통기량에 따라 크게 다르게 나타난다는 점을 알았다.

Table 4. Impellers with the Highest P_{Vjs} and the Lowest P_{Vjs} in Various Conditions

C/H	Q[vvm]	The impellers with the lowest P_{Vjs}	The impellers with the highest P_{Vjs}
1/2	0	Rushton turbine	Propeller (up)
1/3	0	Propeller (down)	Paddle
1/4	0	Propeller (down)	Paddle
1/2	1.0	Propeller (up)	Propeller (down)
1/3	1.0	Propeller (down)	Propeller (up)
1/4	1.0	Paddle	Propeller (up)
1/2	2.1	Propeller (up)	Propeller (down)
1/3	2.1	Propeller (down)	Propeller (up)
1/4	2.1	Paddle	Propeller (up)

3.4. 무통기시 P_{Vjs} 와 통기시 P_{Vjs} 의 관계

임펠러 부착위치와 통기와 무통기 조건에서 k_L 과 P_{gv} 의 관계를 임펠러 종류에 따라 나타낸 그림을 Figure 11 및 Figure 12에 나타내었다. 이들 그림으로부터 각 조건에서 어떤 임펠러가 가장 저동력에서 P_{Vjs} 에 도달하는가를 알 수 있었다. 이로부터 각 조건에서 P_{Vjs} 에 도달하기 위한 가장 동력이 낮은 것과 동력이 높은 것을 Table 4에 나타내었다.

이들의 그림과 표로부터 원통조를 이용한 교반 조작 시 무통기하에서 임펠러 부착위치가 교반조 바닥에 가까운(C/H=1/4, 1/3) 경우에는 Propeller (down-pumping)가 적당하고 통기조건하에서 임펠러 부착위치가 교반조 바닥에 가까운(C/H=1/4, 1/3) 경우에는 Paddle이 적당하였다. 또한 통기조건하에서 임펠러 부착위치가 교반조 바닥에서 먼(C/H=1/2) 경우에는 Propeller (up-pumping) 임펠러를 선택하면 좋은 것으로 나타났다.

4. 결 론

기-액-고 3상계 교반조내에 고-액간 물질이동 특성에 대해 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

통기에 따라 통기동력이 직접 입자부유에 작용하고 있다고 생각되는 임펠러, 통기동력이 액체의 유동에 작용하고 있다고 생각하는 임펠러 및 통기동력이 교반소요동력을 낮추는 작용을 하고 있다고 생각하는 임펠러 등의 3가지 패턴이 있다는 것을 알았다. 이는 cavity의 유무에 관계가 있다고 사료된다.

1) 실험에 이용한 표준적인 임펠러들의 경우 임펠러 부착위치에 상관하지 않고 횡축을 P_{gv} 만으로 나타낸 것이 N_{js} 에서의 동력 즉, P_{Vjs} 와 k_L 과의 상관을 잘 나타내었다.

2) 부유화한계회전수 이상의 조작 영역에서 입자분산계에 대한 물질이동계수는 임펠러의 기하형상에 의하지 않고 오직 단위체적당 교반소요동력에 의존했다.

3) 같은 임펠러의 조작에도 임펠러의 부착 높이 C/H가 다르면 P_{Vjs} 에 대한 통기 영향은 다르다는 것을 알았다. 즉, 무통기하에서 임펠러 부착위치가 교반조 바닥에 가까운(C/H=1/4, 1/3) 경우에는 Propeller (down-pumping)가 적당하고 통기조건하에서 임펠러 부착위치가 교반조 바닥에 가까운(C/H=1/4, 1/3) 경우에는 Paddle이 적당하였다. 또한 통기조건하에서 임펠러 부착위치가 교반조 바닥에서 먼(C/H=1/2) 경우에는 Propeller (up-pumping) 임펠러를 선택하면 좋음을 알았다.

4) 실험에 이용한 임펠러 중에서 C/H가 크면 클수록 통기가 부유에

유리하게 작용하는 것은 Propeller (up-pumping) 뿐 이었다. 이는 통기가 입자를 부유시키는데 도움을 주기 때문이다. 그 외 임펠러는 C/H가 작은 쪽이 통기가 입자부유에 유리하게 나타났다.

5) P_{Vjs} 가 공기유통의 영향을 받는 임펠러는 P_{Vjs} 가 달성되는 점식 식 (1), (2)에 대해 평행으로 이동함을 알았다.

감 사

본 연구는 상주대학교의 지원에 의해 수행되었으며 이에 깊은 감사를 드립니다.

사 용 기 호

- A : total surface area of particles [m²]
- C₀ : initial concentration [mol/m³]
- C_b : bulk concentration [mol/m³]
- C : clearance between impeller center and vessel bottom [m]
- D : vessel diameter [m]
- d : impeller diameter [m]
- d_p : particle diameter [m]
- H : liquid height [m]
- k_L : mass transfer coefficient [m/s]
- N : rotational speed [s⁻¹]
- N_{js} : rotational speed for complete suspension [s⁻¹]
- N_p : power number [-]
- P : power consumption [W/m³]
- P_v : power consumption per unit volume [W/m³]
- P_{gv} : agitation power consumption per unit volume [W/m³]
- P_{av} : agitation power consumption per unit volume [W/m³]
- P_{Vjs}: P_v at N_{js} [W/m³]
- Sh : Sherwood number [-]
- Sc : Schmidt number [-]
- t : time [s]
- V : liquid volume [m³]
- ε : energy dissipation rate [W/kg]
- ρ : density [kg/m³]
- ν : kinematic viscosity of liquid [m²/s]

참 고 문 헌

1. R. C. Chapman, A. W. Nienow, M. Cooke, and J. C. Middleton, *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, **59**, 134 (1981).
2. Y. Kato, S. Hiraoka, Y. Tada, T. Shiota, S. T. Koh, Y. S. Lee, and T. Yamaguchi, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **21**, 5, 948 (1995).
3. T. N. Zwitering, *Chem. Eng. Sci.*, **8**, 244 (1958).
4. A. W. Nienow, *Chem. Eng. Sci.*, **23**, 1453 (1968).
5. P. H. Calderbank and M. B. Moo-Young, *Chem. Eng. Sci.*, **16**, 39 (1961).
6. D. N. Miller, *Ind. Eng. Chem. Process Des. Develop.*, **10**, 365 (1971).
7. Y. Sano, N. Yamaguchi, and T. Adachi, *J. Chem. Eng. Japan*, **7**, 255(1974).
8. D. M. Levins and J. R. Glastonbuly, *Trans. IChemE*, **50**, 132 (1972).
9. S. Hiraoka, Y. Tada, H. Suzuki, H. Mori, T. Aragaki, and I. Yamada, *J. Chem. Eng. Japan*, **23**, 468 (1990).
10. F. Grisafi, B. Alberto, and R. Lucio, *Can. J. Chem. Eng.*, **76**, 446 (1998).
11. K. Kikuchi, Y. Tadakuma, T. Sugawar, *et al.*, *J. Chem. Eng. Japan*, **20**, 134 (1987b).
12. G. M. Marrone and D. J. Kirwan, *AIChE J.*, **32**, 523 (1986).
13. K. Sato, T. Menju, M. Mochizuki, and A. Shono, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **21**, 137 (1995).
14. T. Oishi, S. Hiraoka, Y. Kato, Y. Tada, J. Yano, and T. Yamaguchi, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **24**, 392 (1998).
15. J. S. Newman, *Electrochemical system -Second Edition*, 241-264, Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs, New Jersey, USA (1991).
16. G. Baldi, R. Conti, and E. Alaria, *Chem. Eng. Sci.*, **33**, 21 (1978).
17. M. W. Chudacek, *Chem. Eng. Sci.*, **40**, 385 (1985).
18. A. W. Nienow, *Can. J. Chem. Eng.*, **47**, 248 (1969).
19. Y. Ohyama and K. Endo, *Kagaku Kogaku*, **20**, 576 (1956).