

경사판위를 흐르는 자연대류의 전기화학적 방법에 의한 실험적 연구

전영호 · 최창균

서울대학교 공과대학 화학공학과
(1991년 8월 2일 접수, 1991년 10월 16일 채택)

Experimental Study of Natural Convection over Inclined Plates by Electrochemical Technique

Young Ho Chun and Chang Kyun Choi

Dept. of Chem. Eng., College of Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

(Received 2 August 1991; accepted 16 October 1991)

요 약

경사판위의 자연대류 물질전달 실험을 전기화학적 방법으로 수행하였다. 본 목적을 위하여 한계전류하에서 구리전극 및 황산구리-황산 전해액을 사용하였다. 실험결과 층류 자연대류 유동에서 2차적인 정규와동의 발생 조건을 나타내는 임계 Rayleigh 수는 수직으로부터의 경사각이 증가함에 따라서 현저히 감소되고, 정규와동의 파장은 경사각에 거의 무관함을 알 수 있었다.

Abstract—Experiments on natural convection mass transfer adjacent to upward-facing inclined plates were performed by employing an electrochemical technique. For this purpose copper electrodes and an aqueous solution of cupric sulfate and sulphuric acid were used under limiting currents. Experiments showed that the Rayleigh number marking the onset of secondary flow in the form of vortex rolls in the primary natural convection varies markedly with the angle of inclination, decreasing with increasing departures from vertical, and that the vortex wavelength is almost independent of the surface inclination.

1. 서 론

전극 근처에 존재하는 밀도구배로부터 야기되는 자연대류는 물질전달에 있어 아주 효과적인 전달형태이다. 물질이동과 전기분해가 상호 밀접하게 연관된 전기화학 속도론, 전기분석화학, 전기화학공학 등의 전해물질전달 (electrolytic mass transfer) 분야 뿐만 아니라, 반도체 프로세싱, 막을 통한 물질이동, 이온교환기, 생화학 분야에서도 자연대류의 역할은 매우 중요하다. 특히 전기야금 분야에서의 자연대류의 영향은 제품의 고순도 및 미세화에 절대적인 영향을 미친다.

자연대류의 영향을 고려한 전극반응에 대한 연구는 최초로 Wagner[1]에 의하여 정성적으로 수행되었으며, Eisenberg 등[2]은 자연대류 조건하에서 한계전류에 대한 유체역학적 인자들의 영향을 실험적으로 조사하였다. 또한, Fouad와 Ahmad[3]는 한계전류하에서 경사진 평행 전극사이의 자연대류 물질전달 실험을 수행하여 난류 영역에서의 물질전달 상관식을 제시하였다. Lloyd와 Sparrow 및 Eckert[4]는 동일한 실험방법으로 경사각의 변화에 따른 국지 물질전달계수를 측정하여 층류 자연대류가 전이되는 임계조건 및 난류 현상을 규명하였다.

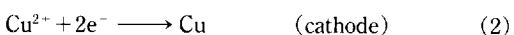
한편, 물질전달 실험의 물리적 수치들은 열전달과 물질전달의 유사성에 비추어 열전달계로 전환될 수 있다. 물질전달계에서 중요한 매개인자로 작용하는 농도차와 물질확산은 각각 온도차 및 열전도로 전환되며, 전극면에서 균일농도의 경계조건은 열전달 문제의 등온 조건에 상응한다. 또한 Schmidt 수는 약 2,000 정도로 아주 큰 Prandtl 수에 관계된다. 그러나, 이러한 상호 호환성 문제에서 Prandtl 수가 아주 큰 유체에 대한 열전달 실험에서는 온도 변화에 따른 물성치의 변화가 상당히 크다는 점에 주의하여야 한다.

본 연구의 목적은 한계전류하에서 전기도금 실험을 수행하여 계를 불안정화시키는 부력의 수직성분으로부터 야기되는 주 흐름방향 정규와동(longitudinal vortex roll)의 존재와 특성을 규명하며, 이러한 2차유동 발생의 임계조건에 대한 경사각의 영향을 검토하고, 전파이론에 의한 이론결과 및 기존의 열전달 실험결과와의 비교로 본 연구의 타당성을 보이는데 있다.

2. 이론적 고찰

2-1. 물질전달 구조

황산구리-황산 용액이 채워진 전해조 내에서 두 전극사이에 전위차가 부여되면 산화반응으로 양극에서 녹아 나온 구리이온이 이동하여 음극에서 환원반응으로 석출된다. 이 때 양극 및 음극에서의 전극반응은 다음과 같다.



일반적으로 전해질 용액 내에서 이온 물질전달 구조는 확산, 대류, 전기이동(electric migration)으로 구성되며 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다[5].

$$N_i = N_d + N_c + N_m \quad (3)$$

$$N_d = -D \frac{\partial c}{\partial z}, \quad N_c = wc, \quad N_m = Uc \frac{\partial \phi}{\partial z} \quad (4)$$

여기서 N_i , N_d , N_c , N_m 은 각각 전체 질량플럭스(total mass flux) 및 확산, 대류, 전기이동에 의한 질량플럭스이며 D , U , ϕ , w , c 는 확산계수, 이동도(mobility), 전위차(potential), 링류속도, 농도를 나타낸다. 그런데, 정상상태에서의 전기이동에 의한 질량플럭스는 다음과 같이 전류밀도만의 함수로 간단히 표시될 수 있다[5].

$$N_m = \frac{ti}{nF} \quad (5)$$

여기서 i , n , F 는 각각 전류밀도(current density), 구리이온의 원자가(valence), Faraday상수(96500 coulomb/mol)이며, t 는 구리이온에 의하여 이동되는 전류의 분율을 나타내는 전달수(transference number)이다.

정상상태 자연대류에서 물질전달에 대한 주된 저항은 확산층(diffusion layer)이라 불리는 전극-용액 계면 근처의 좁은 지역에 존재하므로 물질전달 속도는 모액과 계면의 농도차에 대한 국지 물질전달계수 k_x 에 의해서 정의될 수 있다. 일반적으로 k_x 는 전극 선단(leading edge)으로부터의 주 흐름방향 거리 x 의 1/4승에 반비례한다[6].

$$N - N_m = \frac{(1-t)i}{nF} = k_x(c_s - c_i) \quad (6)$$

윗 식에서 c_s 는 모액농도를, c_i 는 계면농도를 나타낸다. 만약 물질전달 구조 중에서 전기이동을 억제할 수 있다면, 열전달계와 상호 호환성을 갖는 확산과 대류만의 전달 구조가 구성될 수 있다. 전기이동을 억제하는 방법은 과량의 고정전해액(supporting electrolyte)를 사용하여 구리이온에 의하여 이동되는 전류의 분율을 줄여주는 것($t \ll 1$)이 일반적이다[7].

2-2. 한계전류 기법

전해조 내에 부여되는 전위차가 증가되면, 전해액을 통하여 흐르는 전류밀도가 증가되어 구리의 석출속도가 점점 커지게 된다. 그러나, 전기이동에 의한 물질전달 기여도는 일정하기 때문에 전극 근처에서 확산에 의한 물질전달이 가속되어야 한다. 따라서 모액과 계면사이의 농도차이가 더욱 커지게 되며, 모액농도는 일정하므로 궁극적으로 계면농도가 0이 된다. 이 때의 전류를 한계전류라 하며 전위차가 증가하여도 전류밀도는 변하지 않는 영역에 존재한다. 이 영역이상으로 전위차를 증가시키면 음극에서 수소가 발생하는 새로운 반응이 일어난다. 그러므로 한계전류는 주어진 조건하에서 구리이온의 반응속도가 최대인 경우이며, 본 실험에서의 한계전류 영역은 전압범위 0.35-0.6 V 이다. 한계전류 기법을 사용함으로써 국지 물질전달계수 k_x 는 모액농도 c_s 및 전류밀도 i 만으로 결정될 수 있다.

$$k_x = \frac{(1-t)i_s}{nFc_s} \quad (7)$$

일반적으로 한계전류는 반응물질의 모액농도에 비례하므로 한계전류의 측정은 전기분석화학 분야 등에서 모액농도를 결정하는 방법이 되곤 한다. 실제 전기분해 공정에서는 전류의 효율성때문에 한계전류보다 다소 낮은 값에서 조업하나, 한계전류는 전해전지(electrolyt-

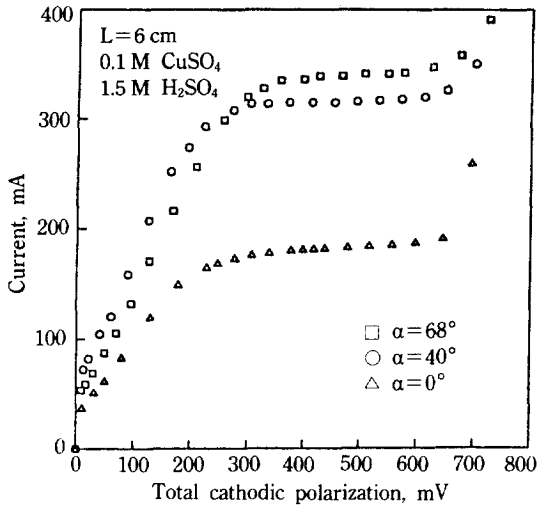


Fig. 1. Typical current/potential curve.

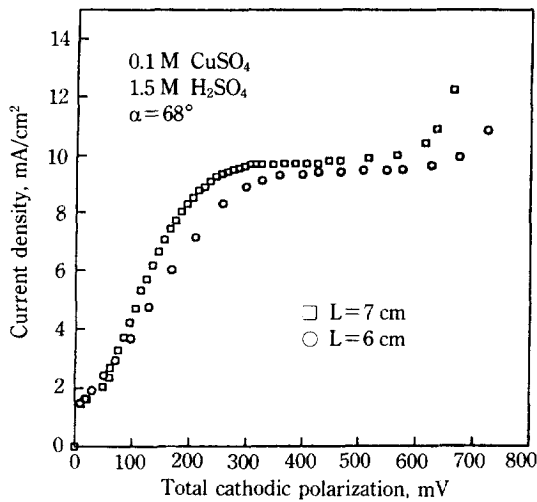


Fig. 2. Effect of electrode height on limiting current density.

ic cell)를 최대한 이용할 수 있으므로 산업적인 최소 투자 비용을 결정할 수 있다는데 큰 의의가 있다. Fig. 1에는 본 실험의 경우 경사각 0°, 40°, 68°에 대한 전형적인 전류/전압 곡선이 도시되어 있다. 음극판의 경사가 수직에 가까워짐에 따라서 한계전류가 점점 작아지므로 수평판을 사용하는 경우가 도금속도가 가장 빠르다고 할 수 있다. 전류밀도의 전극 길이 변화에 따른 영향은 Fig. 2에 나타나 있는데 한계전류밀도는 전극 길이에 거의 무관하였다.

2-3. 전기이동 효과

자연대류 물질전달에서 정규와동 형태를 갖는 2차 유동의 발생조건을 결정하는 중요한 매개변수는 Rayleigh 수이며 아래와 같이 정의된다.

$$Ra_x = \frac{g(\rho_o - \rho_i)x^3}{\rho_o \nu D} \tag{8}$$

황산구리-황산 전해액을 사용하면 황산구리 용액만을 사용하는 경우보다 대류 구동력이 작아지는데, 이것은 H⁺ 이온이 전기이동에 의하여 음극으로 이동하여 축적되기 때문이다. 따라서 밀도차(ρ_o-ρ_i)를 정확하게 계산하는 것이 한계전류방법 사용시에 필수적이다[1, 8, 9]. Selman과 Newman[10]은 전극에 축적되는 황산의 정도를 오차범위 0.3% 내의 다항식 형태로 제시하였다.

$$\frac{\Delta C_{H_2SO_4}}{\Delta C_{CuSO_4}} = -0.000215 + 0.113075r^{1/3} + 0.85576r^{2/3} - 0.50496r \tag{9}$$

$$r = \frac{C_{CuSO_4}}{C_{CuSO_4} + C_{H_2SO_4}}$$

윗 식으로부터 H⁺ 이온의 전기이동 효과를 고려한 밀도차이는 다음식으로 구할 수 있다[3, 5].

$$\begin{aligned} \frac{\rho_o - \rho_i}{\rho_o} &= c_o \alpha_{CuSO_4} - \Delta C_{H_2SO_4} \alpha_{H_2SO_4} \\ &= c_o \left[\alpha_{CuSO_4} - t_H \cdot \alpha_{H_2SO_4} \left(\frac{D_{CuSO_4}}{D_{H_2SO_4}} \right)^{3/4} \right] \end{aligned} \tag{11}$$

$$\alpha_i = \frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial \rho}{\partial c_i} \right)_{T, c_j \neq i} \tag{12}$$

여기서 α_{CuSO₄}, α_{H₂SO₄}는 황산구리 및 황산의 밀도계수(densification coefficient)이다.

2-4. 전파이론

경사진 평판위의 층류 자연대류 유동에서 2차적인 정규 와동의 발생조건을 이론적으로 조사하기 위하여 선형 안정성 이론과 크기위수 해석을 근거로 교란량들의 주 흐름방향의 변화를 고려하는 전파이론이 적용되었다. Prandtl 수가 매우 큰 경우(Pr→∞)에 전파이론을 적용한 해석과정은 0° < α < 60°의 범위에서 Chun과 Choi [11]의 논문에 자세히 기술되어 있다.

한편, 경사각이 수평에 가까워지는 경우에는 흐름은 전적으로 부력의 수직성분에 기인한 압력 구배에 의해서 구동되므로 기존의 경계층 흐름 대신에 주 흐름방향의 압력 구배를 고려한 식을 사용하여 안정성 해석을 수행하였는데, 두 경우의 안정성 조건에 대한 전이 각도는 α ≈ 80°이다. 주 흐름방향의 압력 구배를 고려한 경우의

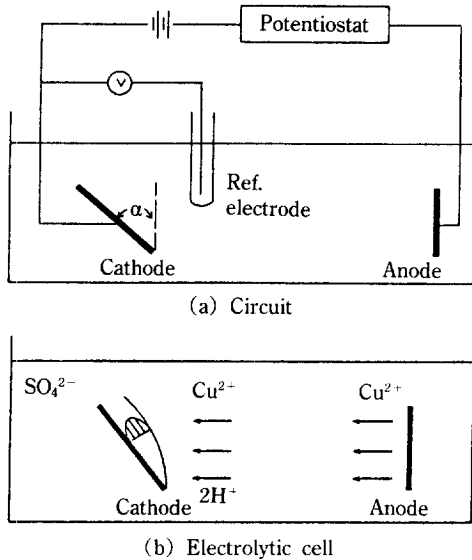


Fig. 3. Experimental devices.

해석 과정 및 결과는 추후에 발표할 예정이다.

3. 실험

3-1. 실험계

본 연구에서는 자연대류 유동에서 주로 많이 사용되는 황산구리-황산계를 선택하였다. 황산구리계는 물리적 특성이 잘 알려져 있고, 용해도가 좋으며, 화학적으로 안정하고, 전극표면에서 가용성 산물을 생성하지 않는 장점이 있으나, 도금이 진행됨에 따라 표면거칠기효과(surface roughness)로 전극면적을 정확히 결정할 수 없다는 단점이 있다. 실험장치에 대한 개요는 Fig. 3에 간략히 도시하였다. 전해액이 채워지는 전해조는 $30 \times 10 \times 10$ cm(가로×세로×높이)로 구성되며 투명한 아크릴 수지로 제작하였다. 전원 공급과 전류 측정을 위하여 Bank 회사의 Potentiostat를 사용하였으며, 전해액과 음극사이의 비교전압을 측정하기 위한 표준전극으로 Calomel 전극을 사용하였다. 양극은 10×7 cm(높이×폭)로, 음극은 폭 6 cm의 구리판의 높이를 5-9 cm로 변화시키며 실험하였다. 음극판의 경사를 조정하기 위하여, 구리판을 아크릴판에 고정시킨 후, 이 아크릴판을 전해조 바닥에서 이동하는 홈이 파인 아크릴판과 연결시키고 각 도기를 이용하여 경사각을 측정하였다. 본 실험에서 두 전극사이의 거리는 음극판에서의 물질전달에 거의 영향을 주지 않는 것으로 알려져 있지만[7], 10-20 cm로 최대한 길게 유지하였다.

3-2. 실험절차

본 연구에 사용된 실험절차를 요약하면 다음과 같다.

(1) 구리판을 폭 방향으로 가는 사포(no. 1500)로 연마하고 아세톤으로 유기물을 제거한 후, 증류수로 세척하였다. 음극표면의 균질성을 위하여 세심한 주의를 기울였으며 뒷면은 락카를 칠하여 도금되는 것을 방지하였다.

(2) 전해조를 설치한 후, 전해액을 기포가 생기지 않도록 전극높이 2-3 cm 위까지 주입하였다.

(3) 비교전극을 설치한 후 평형 전위차에 도달할 때까지 기다린다. 이 때 비교전극의 위치는 음극의 중심점에 위치시켰다.

(4) 한계전류를 측정하기 위하여 전위차를 증가시키면서 정상상태의 전류를 기록하였으며 음극표면에서 수소가 발생하면 실험을 종료하였다.

(5) 전극간의 전위차를 한계전류 영역의 전압으로 고정된 후, 경사각과 음극판의 높이를 변화시키면서 약 10-15분간 도금실험을 수행하였다. 도금실험 중 수시로 음극판의 도금형태를 관찰하였다.

3-3. 시료의 물리적 특성

본 실험에서 전해질 용액은 0.1 M의 황산구리와 1.5 M의 황산으로 구성되며 전해액의 온도는 $18-23^\circ\text{C}$ 였다. 밀도, 점도, 물질확산도 등의 물리적 특성치의 변화는 Fench와 Tobias[7]가 제시한 먹굽수 형태를 사용하였는데 각 식들의 오차범위는 22°C 에서 0.5%로 알려져 있다.

4. 결과 및 토의

물질전달 경계층 내의 유동형태의 변화는 도금형태에 상당한 영향을 줄 것이므로 도금형태의 조사는 자연대류 유동의 불안정성에 관한 연구에 매우 중요한 정보를 제공하게 될 것이다. 경사각의 변화에 따른 도금형태는 Fig. 4에 나타나 있다. 경사판 선단으로부터의 임계거리 x_c 에서 시작되는 폭 방향으로 규칙적인 구조를 갖는 가늘고 긴 선의 존재는 Sparrow와 Husar[12]의 실험에서 관찰된 정규와동의 형태를 갖는 2차적인 대류효과가 존재함을 보여준다. 규칙적인 나선이 시작되는 임계거리 x_c 는 도금시간 및 도금판의 길이에 관계없이 동일하였으므로 경사판 뿐 아니라 수평판에서도 거리의존성인 2차유동이 도입됨을 확인할 수 있었다. 또한, 경사판이 수직에 가까워짐에 따라서 임계거리가 점점 커지므로 계가 2차유동의 발생에 대하여 보다 안정화되어 있다. 한편, 경사각 α 가 10° 보다 작은 경우에는

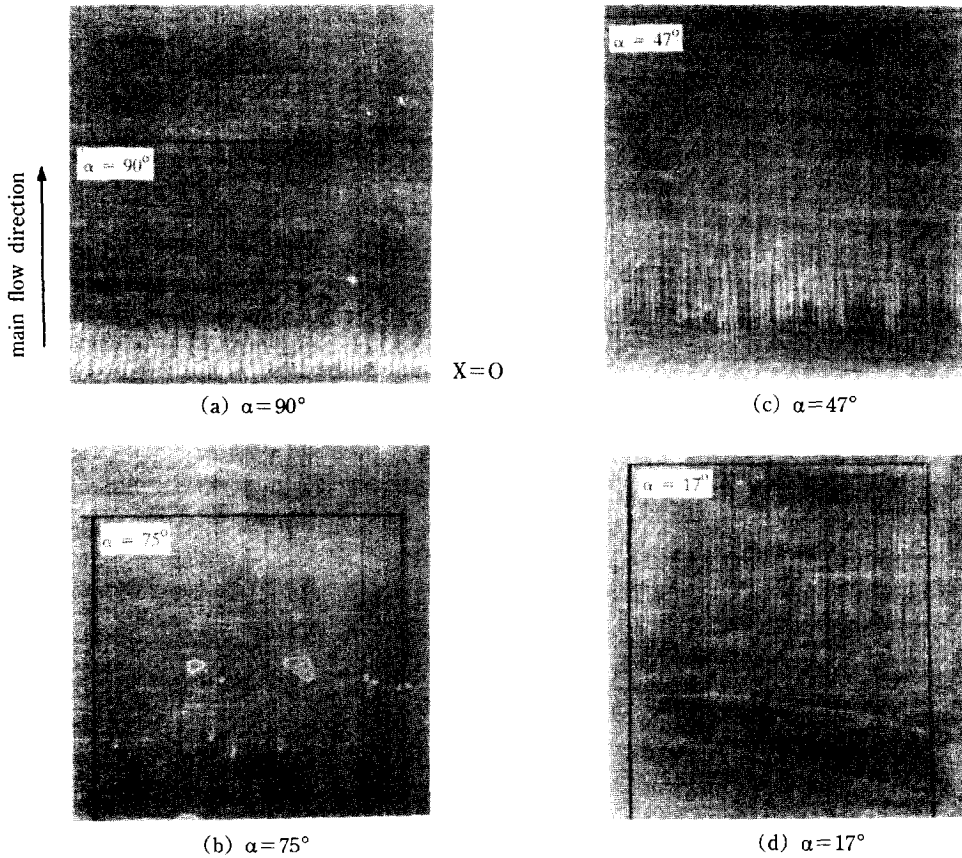


Fig. 4. Typical electrode deposit on an inclined cathode plate.

Table 1. Critical Rayleigh number and standard deviation

α	$Ra_{c,c}$	σ	$Ra_{c,l}$	σ
20	1.9×10^8	3.35×10^7	—	—
30	4.8×10^7	5.05×10^6	1.02×10^{10}	1.44×10^9
35	2.95×10^7	3.0×10^6	1.02×10^{10}	1.44×10^9
47	1.26×10^7	2.5×10^6	3.34×10^9	3.4×10^8
50	8.24×10^6	2.95×10^6	1.32×10^9	1.4×10^8
60	3.84×10^6	1.07×10^6	5.02×10^8	1.12×10^8
75	1.2×10^6	2.32×10^5	1.96×10^8	2.85×10^7
85	7.9×10^5	1.77×10^5	8.16×10^7	2.85×10^7
90	1.81×10^5	3.1×10^4	4.34×10^7	7.55×10^6

가는 획선을 확인할 수 없었는데 이것은 Lloyd와 Sparrow[13]의 실험에서 관찰된 바와 같이 와동형식에 의한 불안정성보다는 파동형식에 의한 불안정성이 먼저 발생하였기 때문이다.

2차유동 발생후의 도금형태는 물질전달 경계층이 증가함에 따라서 하류 구역에서 가는 획선이 소멸되므로 유동형태가 난류로 전이됨을 짐작할 수 있다. Table 1

에는 정규와동의 발생조건($Ra_{c,c}$) 및 난류 전이조건($Ra_{c,l}$) 이 요약되어 있다. 여기서 σ 는 표준편차를 나타낸다.

경사판의 도금형태를 보다 자세히 살펴보기 위하여 경사각 $\alpha=40^\circ$ 일 때 구리판을 약 1시간 정도 도금시킨 후 전자주사현미경 사진(SEM)으로 15배, 60배로 확대시킨 결과가 Fig. 5에 나타나 있다. 규칙적인 좁고 하얀 지역은 Fig. 6과 같은 속도장을 갖는 2차유동에서 정규 와동의 상승유동때문에 도금이 덜 진행된 부분이다. 한편 Schmidt 수가 2192인 본 실험결과와 Prandtl 수가 매우 큰($Pr \rightarrow \infty$) 경우의 전파이론에 의한 이론결과 및 기존의 열전달 실험결과와의 비교는 Fig. 7에 도시되어 있다. 본 실험결과와 전파이론에 의한 결과는 약 1-2 크기위수의 차이가 생긴다. 이것은 이론은 무한소의 교란량들을 가정하였으나 실험결과는 감지될 수 있는 유한한 크기로의 증폭을 필요로 하기 때문으로 생각된다. 그러나 불안정성 발생이후의 교란량들의 주 흐름방향에 대한 변화를 무시하는 국지 안정성 이론을 적용한 Hwang과 Cheng[14]의 결과와 비교하면 전파이론에

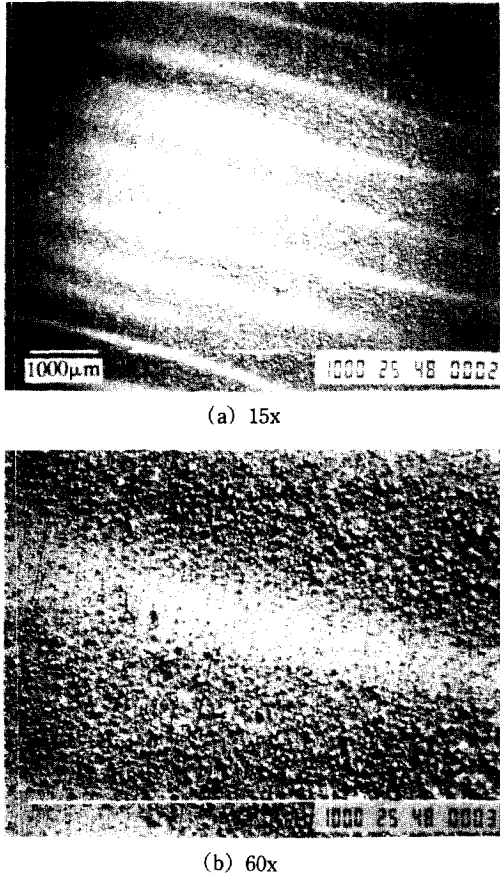


Fig. 5. Scanning electron micrograph of an deposited copper plate.

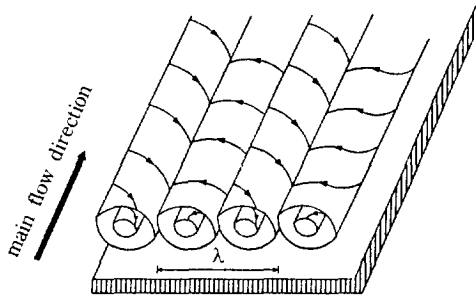


Fig. 6. Roll cell profile.

의한 결과가 실험결과에 보다 접근하는 우수한 결과라 할 수 있다.

본 실험결과는 Lloyd와 Sparrow[13]의 물($Pr=7$)에 대한 실험결과 및 수평면에 가까워질 때는 Cheng과 Kim[15]의 공기($Pr=0.7$)에 대한 실험결과와 비슷한 크기위수에 있지만, 임계 Rayleigh 수에 대한 Prandtl

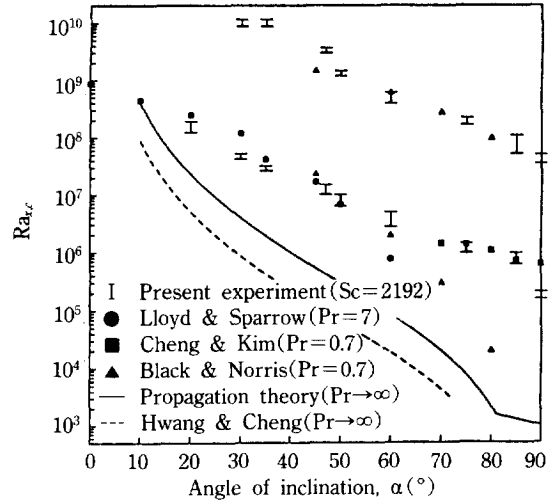


Fig. 7. Comparison of present experimental prediction with propagation theory and available experimental data.

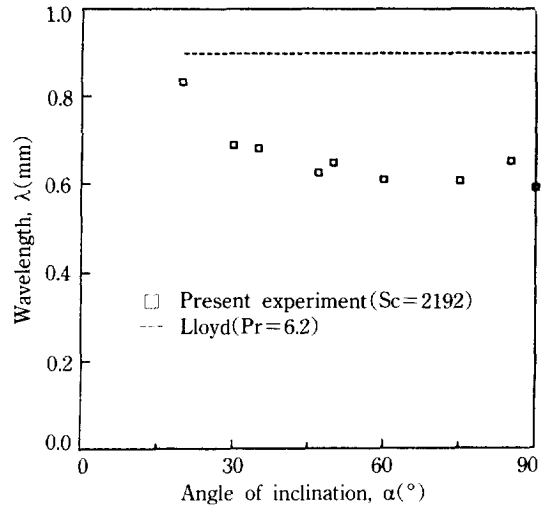


Fig. 8. Longitudinal vortex wavelength as a function of the angle of inclination.

수의 영향을 고려한다면 물질전달 실험은 열전달 실험보다 더 낮은 임계값에서 불안정성의 발생조건을 예측하게 된다고 할 수 있다. 본 실험에서 난류 전이 조건은 2차유동 발생조건보다 약 10^2 - 10^3 배가 크다. 따라서 정규와동은 발생지점 x 로부터 약 (5-7) x 동안 증폭되다가 난류로 전이되며, 난류 전이조건은 Black과 Norris[16]의 공기에 대한 실험결과와 일치하였다.

한편, 정규와동의 파장(vortex wavelength)에 대한 경사각의 영향은 Fig. 8에 나타나 있다. 실험결과가 다소

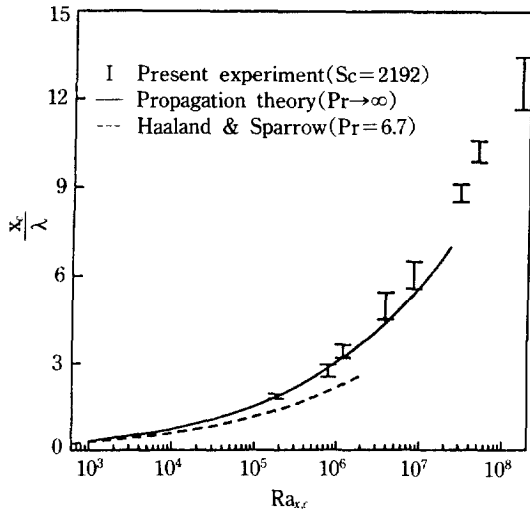


Fig. 9. $\frac{x_c}{\lambda}$ vs. $Ra_{x,c}$.

홀어져 있지만 Lloyd[17]의 실험결과 및 Sparrow와 Husar[12]의 실험에서 관찰된 바와 같이 정규와동의 파장은 경사각에 거의 무관하다고 할 수 있으며, 본 실험에서는 Lloyd의 실험보다 약 1.5배 정도 크기가 작은 정규와동으로 임계조건을 결정하였다. 앞에서도 언급하였듯이 실험에서 관찰되는 정규와동은 어느정도 성장된 교란에 의하여 나타나므로 정규와동의 파장에 대한 임계거리의 비(x_c/λ)를 검토하면 교란의 성장정도를 간접적으로 설명할 수 있다. 따라서 Fig. 9는 이 관계를 도시하였으며 실험치와 이론치가 거의 일치하였다. 즉, 이론에 의한 임계조건은 실험치보다 더 작으므로 이론에 의한 정규와동의 파장은 그만큼 더 작아진다.

5. 결 론

경사진 평판위의 자연대류 물질전달에 대한 실험을 전기화학적 방법으로 수행하였다. 경사판 선단으로부터의 임계거리 x_c 에서 시작되는 규칙적인 가늘고 긴 선의 존재는 정규와동 형태의 2차적인 대류효과를 보여준다. 경사판이 수직에 가까워지면 임계거리가 증가되어 계가 보다 안정화되며 수평판에서도 거리 의존성 2차유동이 도입됨을 확인하였다. 또한, 본 실험에서 정규와동의 파장은 경사각에 무관하였다.

감 사

본 연구를 지원하여 준 한국과학재단과 주식회사 유

공에 감사드립니다.

NOMENCLATURE

c_i	: concentration of transferred ion at the electrode-solution interface [mol/l]
c_o	: concentration of transferred ion in the fluid bulk [mol/l]
D	: diffusion coefficient [cm^2/s]
F	: Faraday constant [Coulomb/mol]
i	: current density [mA/cm^2]
i_l	: limiting current density [mA/cm^2]
k_x	: local mass transfer coefficient [cm/s]
n	: valence or charged number
N_c, N_d, N_m	: mass flux due to convection, diffusion and migration [$\text{mol}/\text{cm}^2 \text{ s}$]
N_t	: total mass flux [$\text{mol}/\text{cm}^2 \text{ s}$]
Ra_x	: local Rayleigh number, $\frac{g(\rho_o - \rho_i)x^3}{\rho_o \nu D}$
$Ra_{x,c}$: critical Rayleigh number for the longitudinal vortex roll
$Ra_{x,t}$: critical Rayleigh number for turbulent flow
Sc	: Schmidt number, ν/D
t	: transference number of cupric ion
U	: mobility [$\text{cm}^2/\text{mol} \cdot \text{J} \cdot \text{s}$]
w	: transverse velocity [cm/s]
x	: location on electrode from the leading edge [cm]

Greek Letters

α	: inclination angle from vertical plate
α_i	: densification coefficient of species i [l/mol]
λ	: vortex wavelength [mm]
ν	: kinematic viscosity [cm^2/s]
ϕ	: electrostatic potential [mV]
ρ_i	: density at the interface [g/cm^3]
ρ_o	: density in the fluid bulk [g/cm^3]
σ	: standard deviation

Subscripts

c	: critical state
i	: interface
o	: fluid bulk
x	: local quantity

REFERENCES

1. Wagner, C.: *J. Electrochem. Soc.*, **95**, 161(1949).
2. Eisenberg, M., Tobias, C. W. and Wilke, C. R.: *J. Electrochem. Soc.*, **100**, 513(1953).
3. Fouad, M. G. and Ahamed, A. M.: *Electrochimica Acta.*, **14**, 651(1969).
4. Lloyd, J. R., Sparrow, E. M. and Eckert, E. R. G.: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **15**, 457(1972).
5. Wilke, C. R., Tobias, C. W. and Eisenberg, M.: *Chem. Eng. Progress*, **49**, 457(1953).
6. Selman, J. R. and Tarakoli-Attar, J.: *J. Electrochem. Soc.*, **127**, 1049(1980).
7. Fenech, E. J. and Tobias, C. W.: *Electrochimica Acta.*, **2**, 311(1960).
8. Wilke, C. R., Eisenberg, M. and Tobias, C. W.: *J. Electrochem. Soc.*, **100**, 513(1953).
9. Ibl, N. and Braun, U.: *Chimia*, **21**, 404(1967).
10. Selman, J. R. and Newman, J.: *J. Electrochem. Soc.*, **118**, 1070(1971).
11. Chun, Y. H. and Choi, C. K.: *Hwahak Konghak*, **29**, 381(1991).
12. Sparrow, E. M. and Husar, R. B.: *J. Fluid Mech.*, **37**, 251(1969).
13. Lloyd, J. R. and Sparrow, E. M.: *J. Fluid Mech.*, **42**, 465(1970).
14. Hwang, G. J. and Cheng, K. C.: *Can. J. Chem. Eng.*, **51**, 659(1973).
15. Cheng, K. C. and Kim, Y. W.: *J. of Heat Transfer*, **110**, 608(1988).
16. Black, W. C. and Norris, J. K.: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **18**, 43(1975).
17. Lloyd, J. R.: Proc. 5th Int. Heat Transfer Conf., Tokyo, **3**, 34(1974).