

垂直上昇及び垂直下降管内の気液固系混相流 に関する流体力学的研究

幡手泰雄・野村 博*・碓 醇

(受理 昭和 58 年 5 月 31 日)

VERTICAL FLOW OF GAS—LIQUID—SOLID PARTICLES SYSTEM

Yasuo HATATE, Hiroshi NOMURA and Atsushi IKARI

It is significant to know the hydrodynamic characteristics of the system in the design and scale-up of reactors containing gas-liquid-solid particles system.

As a fundamental study of such a three-phase flow, the gas holdup and the pressure drop were measured in the vertical tubes, through which various mixtures of air, water, and fine glass-sphere, particles were passed. Three kinds of glass particles were used the average sizes of which were 30, 60 and 90 μm . Two kinds of tubes, 15 and 26 mm in diameter, were used for the examination into vertical upward and down-ward flows. The measurements were carried out under the following conditions:

gas velocity = 0~800cm/s,

liquid or slurry velocities = 15~100cm/s,

and the concentration of particles = 0~60wt%.

For most experimental conditions, the behavior of the three-phase vertical flow of the gas-liquid-fine particles system has proven to show a close similarity to that of the gas-liquid two-phase vertical flow.

緒 言

近年、気・液・固系装置の大型化に伴い、気・スラリー系の流体力学に関する基礎的研究の重要性が増してきている。しかしながら、気・スラリー系に関するデータのほとんどは、懸濁固体を含む気泡塔（懸濁気泡塔）や、三相流動層の様な垂直上昇流で、しかも、ガス及びスラリー流速共に比較的小さい気泡流領域に限られている。垂直流で、上述の領域外の上昇流や下降流については、ほとんど研究がなされておらず、これらの流れについては、不明な点が多い。また、気・液・固系混相流において、固体粒子濃度がゼロに相当すると考えられる気液系混相流に関しては、すでに今日まで数多くの研究がなされており、流体力学に関する種々の相関式が提案されている。その中で、Lockhart と Martinelli¹⁾の方法は古くから使用されており、今日でも依然として有用な方法である。その他の代表

的研究として、ガスホールドアップについては、Nicklin ら²⁾、Hughmark ら³⁾及び Orkiszewski⁴⁾のもの等があり、圧力損失については、Sasaki⁵⁾及び Orkiszewski⁴⁾の研究等が認められる。しかしながら、気液二相流についても、全ての条件に適合する相関式及び整理方法は見あたらないのが現状である。

そこで、本研究では、気・液・微小固体粒子系混相流につき、ガス及びスラリー共に比較的速い流速における流動特性を明らかにする為に、以下の実験的検討を行なった。即ち、気体として空気、液体として水、微小固体粒子としては、平均径がおよそ 30, 60 及び 90 μm の 3 種類の微小ガラス球を用い、垂直管としては、内径がおよそ 15 及び 26 mm の 2 種類の透明なアクリル管を使用して、ガスホールドアップ及び圧力損失の測定を行ない、固体粒子径、管径及び固体粒子濃度のこれらに及ぼす影響について検討した。

*徳山ソーダ(株)

1. 気・液二相垂直流に関する代表的推算式の概略

気・スラリー系混相流に関しては、ガスホールドアップ及び圧力損失についての推算法は確立されていない。最も実際的な方法として、流動特性が類似している気・液二相流に対して提案されている推算式を用いて推算する方法が考えられる。以下、気・液二相流に対して提案された代表的な相関式について概説する。

1) Lockhart - Martinelli ¹⁾ (1949)

気・液二相流の圧力損失やガスホールドアップは、気体を無視し、ガスのみ単一流としたガス側基準の圧力損失との比 X によって相関づけられる。気・液二相流の圧力損失 $(\Delta P_f/L)_{TP}$ と単一流基準の圧力損失との比 Φ は上述のパラメータ X で表わすことができる。(相関図省略) X 及び Φ の定義は以下の通りである。

$$X = \left\{ \left(\frac{\Delta P_f}{L} \right)_L / \left(\frac{\Delta P_f}{L} \right)_G \right\}^{0.5} \quad \text{--- (1)}$$

ただし、

$$\left(\frac{\Delta P_f}{L} \right)_G = 2f_c \frac{\rho_G \cdot V_G^2}{D_G \cdot g} \quad \text{--- (2)}$$

$$\left(\frac{\Delta P_f}{L} \right)_L = 2f_c \frac{\rho_L \cdot V_L^2}{D_L \cdot g} \quad \text{--- (3)}$$

ここで、 f は管摩擦係数であり、ガス及び液についてのそれぞれの空塔基準レイノルズ数を求め、次式により求められる。

・層流の場合 $f = 16/Re$ --- (4)

・乱流の場合 $f = 0.046 Re^{-0.20}$ --- (5)

$$(\Delta P_f/L)_{TP} = \Phi_G^2 \times (\Delta P_f/L)_G \quad \text{--- (6)}$$

$$(\Delta P_f/L)_{TP} = \Phi_L^2 \times (\Delta P_f/L)_L$$

ガスホールドアップも上と同様に、パラメータ X と相関づけられている。(相関図省略)

Lockhart と Martinelli の相関式は、管径が 0.149~2.58 cmの全ての流動様式が適用範囲である。

2) Nicklin et al ²⁾ (1962)

管径が 1.6~6.4 cm, 液流速が 0~76cm/s, ガス流速が 3~900cm/s の垂直上昇スラグ流領域において、ガスホールドアップは次式で示される。

$$\epsilon_G = \frac{U_G/U_T}{1.20 + 0.35/\sqrt{F_{rT}}} \quad \text{--- (7)}$$

ただし、 $F_{rT} = U_T^2/gD$, $U_T = U_G + U_L$

3) Hughmark et al³⁾ (1961)

管径 1.0~5.9 cm, 液流速 0.5~70cm/s, ガス流速

0.2~4000cm/s の垂直上昇流の全ての流動様式についてのガスホールドアップは、

$$\left(\frac{W_L}{W_G} \right)^{0.9} \frac{\mu^{0.19} \cdot \sigma^{0.205} \cdot \rho_G^{0.70}}{G_T^{0.435} \cdot \rho_L^{0.72}}$$

によって相関づけられる。(相関図省略)

4) Govier et al ⁶⁾ (1960)

管径 1.27~7.62cm, 液流速 2~224cm/s, ガス流速 0~2200cm/s の垂直上昇流の全ての流動様式についての Holdup ratio は、 $R_v D^{1/3}$, R_v 及び U_L で相関づけられる。

5) Oshinowo et al ⁷⁾ (1974)

管径が 1.6~6.4 cm, 液流速が 0~76cm/s, ガス流速が 3~900cm/s の垂直下降スラグ流領域において、ガスホールドアップは、次式で示される。

$$\epsilon_G = \frac{U_G/U_T}{1.10 - 0.33/\sqrt{F_{rT}}} \quad \text{--- (8)}$$

ただし、 $F_{rT} = U_T^2/gD_T$, $U_T = U_G + U_L$

2. 実験装置および実験方法

Fig.1 に実験装置の概略を示す。空気はコンプレッ

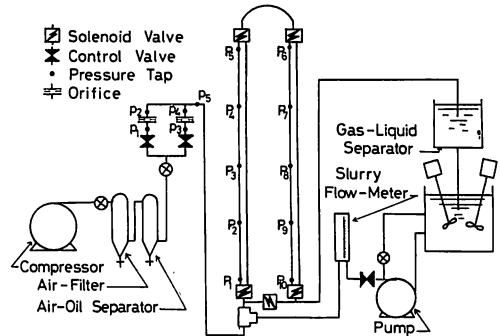


Fig.1 Schematic diagram of experimental equipment

サーにより供給され、エアフィルター、エアオイルセパレーターにより塵芥、水分及び油分等の不純物を除去した後、塔内へ送り込まれる。攪拌槽内の微小ガラス球・水スラリーはポンプを用いて塔内へ供給される。空気及び所定濃度の固体粒子を含むスラリーは、垂直上昇管の底部にある T 字管で混合された後に、垂直上昇管から垂直下降管を通り、気・液分離タンクへ排出され、再び攪拌槽内へ戻る。垂直上昇及び下降管の両端には、ガスホールドアップを測定する為に、電磁弁が取り付けられている。各部の差圧を測定する為に

60 cm間隔でマンメータ用の孔が設けてある。その際、ガス及び微小ガラス球がマンメータ内へ侵入するのを防ぐ為に、圧力タップ直後に小さなタンクを取り付けている。

測定法 差圧の測定は空気及び所定濃度の固体粒子を含むスラリーをそれぞれ所定の流速で5分間以上運転し、定常状態に達せしめた後、マンメータにより行なった。ガスホールドアップの測定は、定常状態達成後、塔両端の電磁弁を瞬間的に閉じ、気体とスラリーを分離し、気体容積分率を求める事により行なった。同一の条件の下で、このような操作を圧力損失については2回、ガスホールドアップについては7~10回繰り返し、それらの平均値をそれぞれの測定値とした。固体粒子濃度は、気・液分離タンクから、スラリーを2~3回採取し、それらの平均の乾燥固体粒子重量分率を求め、決定した。

3. 実験結果及び考察

table 1 に、本実験で使用した3種類の微小ガラス球 A, B 及び C の密度及び平均径を示す。table 2 に

Table 1 Properties of glass spheres

Glass spheres	Density [g/cm ³]	Average Size [μm]	
		dp ₃₂	dp ₅₀
A	2.52	29	28
B	2.52	63	63
C	2.52	98	94

Table 2 Experimental conditions

Flow	Upward	Downward
Tube diameter [mm]	26, 15	26, 15
Tube length [mm]	2785	2797
Air flow rate U _G [cm/sec]	0 ~ 800	0 ~ 800
Slurry flow rate U _L [cm/sec]	0 ~ 80	0 ~ 80
Solids conc. in slurry C _s [wt%]	0 ~ 65	0 ~ 65

上昇流及び下降流につき、管径、管長、ガス速度、スラリー速度及び固体粒子濃度に関する実験条件を示す。

3.1 垂直上昇流のガスホールドアップ

3.1.1 管径の影響

Fig. 2 に、管径が 1.55 cm 及び 2.59 cm の 2 種類に

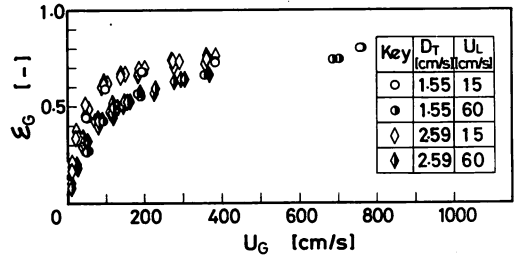


Fig. 2 Effect of tube diameter on gas holdup in vertical two-phase upflow

ついて行なった気液二相流でのガスホールドアップの実験値を示す。同一流速で、両者を比較すると、管径の小さい方がガスホールドアップは幾分小さくなっている。この原因を探る為、高速ビデオカメラによる目視観察を行なった。ガス流速が 200cm/s、液流速が 15cm/s の場合、管径が 1.55 cm の方は激しいフロス流であるが、フロス通過後の管内では液が管壁を伝って降下し、管の下部に液溜りが生ずる場合があるが、管径が 2.59 cm の方は、フロス通過後、液が管を降下するものの、液溜りはほとんど生じない事がわかった。これより、管径が 1.55 cm の場合、液溜りが生じている分だけガスホールドアップが幾分小さくなったと考えられる。

3.1.2 粒子径の影響

Fig. 3 に、管径が 2.59cm、液流速が 15cm/s、

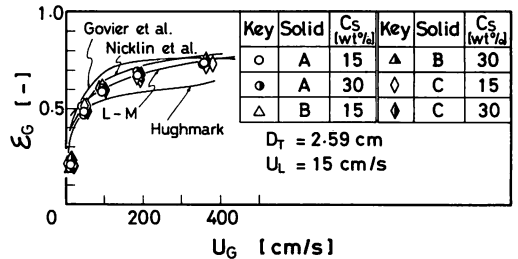


Fig. 3 Effect of average size of solid particles on gas holdup in vertical upflow

C_s=15~30wt% で一定とし、粒子径が異なる A, B 及び C の 3 種類の粒子を用いた場合のガスホールドアップの実験値を示す。図より、本実験で取り扱った粒子径範囲(平均径: 30~90 μm)では、粒子径を変えてもガスホールドアップには全く変化が現われず、ガスホールドアップに及ぼす粒子径の影響は無視できることがわかる。

3.1.3 粒子濃度の影響

Fig.4 及び 5 に, A 粒子を使用して管径が 2.59 cm

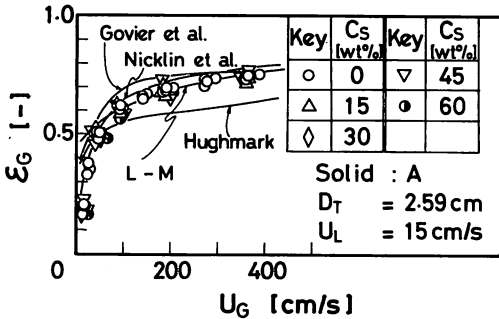


Fig.4 Effect of solid particles concentration in slurry on gas holdup in vertical upflow

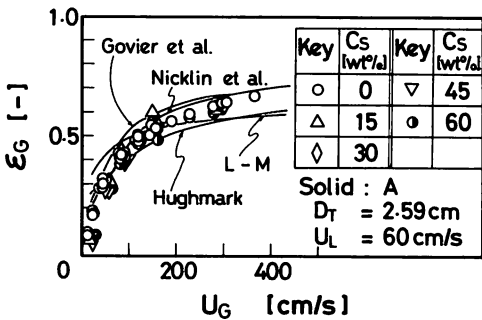


Fig.5 Effect of solid particles concentration in slurry on gas holdup in vertical upflow

で液流速がそれぞれ 15cm/s 及び 60cm/s の場合について、固体粒子濃度を变化させた時のガスホールドアップの実測値を示す。ただし、図中においては、固体粒子濃度が 9~21wt % のものを 15wt %, 24~36wt % のものを 30wt %, 39~51wt % のものを 45wt %, 54wt % 以上のものを 60wt % として示した。他の粒子を使用した場合もこれらの図と同様、ガスホールドアップに及ぼす粒子濃度の影響は全く見られず、本実験範囲では粒子濃度はガスホールドアップに影響を全く与えない事がわかる。したがって、垂直上昇流では気・液・固系混相流のガスホールドアップは気液二相流のものと全く一致することが明らかになった。

3.1.4 計算値との比較

Figs. 3~5 に, 気液二相流について提案された Govier ら⁶⁾, Lockhart と Martinelli (L-M)¹⁾, Nicklin ら²⁾ 及び Hughmark ら³⁾ の 4 通りの方法によ

る計算値を示す。これらの計算値と実験値を比較すると、本実験範囲がほとんどスラグ流領域であるために、この領域について提案された Nicklin らによる計算値と最もよく一致している。

3.2 垂直下降流のガスホールドアップ

3.2.1 管径の影響

Fig.6 に, 気液二相流で管径が 1.55 及び 2.59cm,

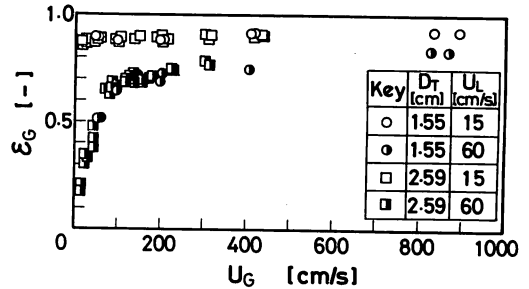


Fig.6 Effect of tube diameter on gas holdup in vertical two-phase downflow

また、液流速が 15 及び 60cm/s でガス流速を变化させた場合のガスホールドアップの実測値を示す。液流速が 15cm/s と小さい場合には、ガスホールドアップは管径によらないことがわかる。しかしながら、液流速が 60cm/s より大きい場合、ガス流速が 100cm/s より大きい領域については、管径の小さい方がガスホールドアップは幾分か小さくなっている。この場合、高速ビデオによる状態の観察によると、管径の小さい場合には管径の大きい場合に比べ、管下部により多く液溜りが生じており、この為に管径が小さい方がガスホールドアップが小さくなったと考えられる。

3.2.2 粒子径の影響

Fig.7 に, 管径が 2.59cm, 液流速が 15cm/s, 固体

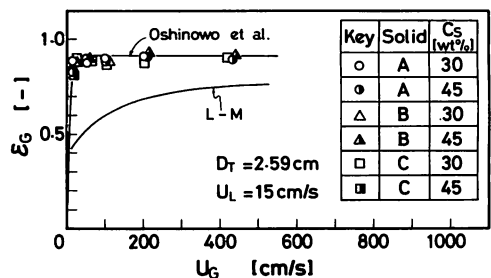


Fig.7 Effect of average size of solid particles on gas holdup in vertical downflow

粒子濃度 30~45wt %で粒子径が異なる A, B 及び C の 3 種類の粒子を用いた場合のホールドアップの実測値を示す。本実験で取り扱った粒子径範囲では、ガス流速が 50cm/s 以下の領域について、やや実測値にばらつきが見られるものの粒子径の違いによる傾向は見あたらない。他の管径、液流速においても同様の結果が得られており、本実験で取り扱った粒子径範囲ではガスホールドアップに及ぼす影響はないといえる。

3.2.3 粒子濃度の影響

Figs. 8~9 に、固体粒子として B 粒子、管径

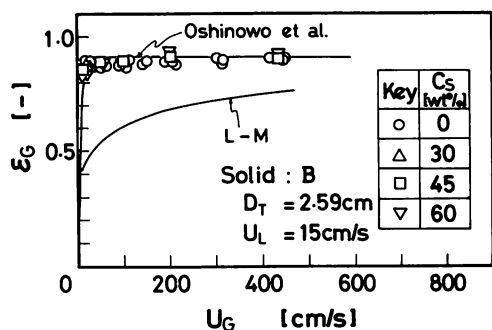


Fig. 8 Effect of solid particles concentration on gas holdup in vertical downflow

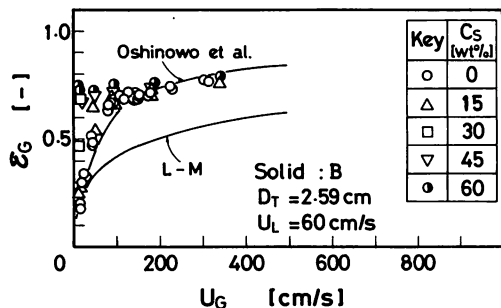


Fig. 9 Effect of solid particles concentration on gas holdup in vertical downflow

2.59cmの場合に液流速がそれぞれ 15cm/s 及び 60cm/s について、固体粒子濃度を変化させた時のガスホールドアップの実測値を示す。液流速が 15cm/s の時は、ガスホールドアップに及ぼす粒子濃度の影響はほとんど認められない。しかしながら、液流速が 60cm/s と比較的大きい時には、ガス流速が 200cm/s 以下の領域において、非常に大きな影響があらわれてくることわかる。固体粒子濃度が大きい程、ガスホールドアップの値は大きくなっている。これは、他

の固体粒子 A 及び C を使用した場合も同様に観測された。管径が 1.55cm の場合には、すべての条件でガスホールドアップに及ぼす固体粒子濃度の影響は観測されなかった。

3.2.4 計算値との比較

Figs. 7~9 に示されている曲線は、気液二相流についての Lockhart と Martinelli¹⁾の相関式による計算値及び Oshinowo らの相関式を若干修正した式による計算値である。Lockhart と Martinelli の相関式は、主に水平流についてなされたものである為、垂直下降流の実測値と大きくずれている。Oshinowo らの相関式は、実測値よりもわずか大きくなる傾向はあるが、ほぼよい一致を示している。Oshinowo らの相関式は管径 2.59cm、液流速 60cm/s、ガス流速 200cm/s 以下の 30wt % 以上の固体粒子を含む系を除き、本実験結果を良く表わしているといえる。

3.3 垂直上昇流の摩擦による圧力損失

3.3.1 管径の影響

Figs. 10~11 に、液流速がそれぞれ 15 及び 60cm

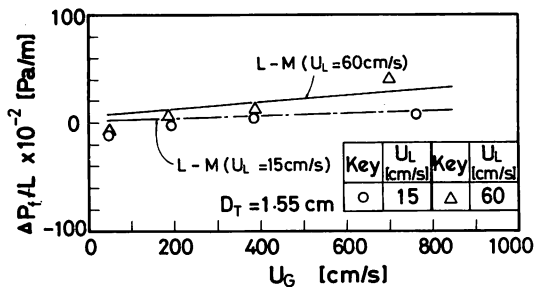


Fig. 10 Relation between frictional pressure drop and gas velocity in vertical two-phase upflow

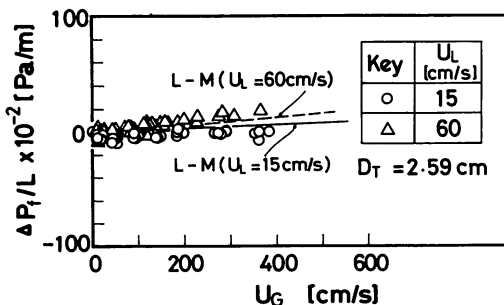


Fig. 11 Relation between frictional pressure drop and gas velocity in vertical two-phase upflow

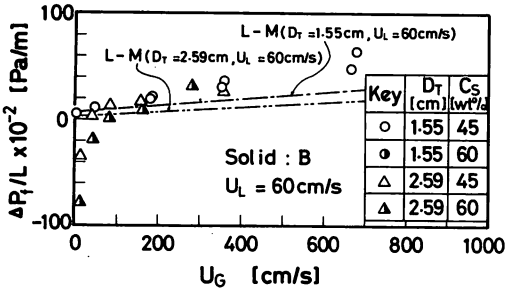


Fig. 12 Relation between frictional pressure drop and gas velocity at various solid particles concentrations in vertical upflow

/s で、気液二相流の場合、また Fig. 12 に、スラリー流速 60cm/s で B 粒子を用い、固体粒子濃度 40~60wt % の場合について、2 種類の管を使用した時の摩擦による圧力損失の実測値を示す。これらの図より単一流体の流れの傾向と同様に、管径が 1.55cm と小さい場合の方が、ガス流速の増加に伴う摩擦による圧力損失の増加が著しい事がわかる。

3.3.2 粒子径の影響

Fig. 13 に、管径が 1.55cm、液流速が 60cm/s で、

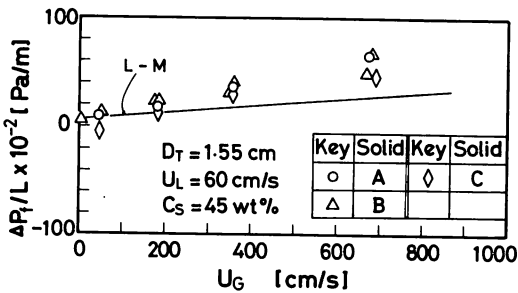


Fig. 13 Relation between frictional pressure drop and gas velocity under various solid particles A, B and C in vertical upflow

A, B 及び C の 3 種類の粒子を使用した場合の摩擦による圧力損失の実測値を示す。この図から、粒子径は、本実験範囲では、摩擦による圧力損失にほとんど影響を及ぼさないことがわかる。

3.3.3 粒子濃度の影響

Fig. 14 にスラリー流速が 15cm/s、管径が 1.55cm で B 粒子を使用した場合の種々の固体粒子濃度に対する摩擦による圧力損失の実測値を示す。この場合、

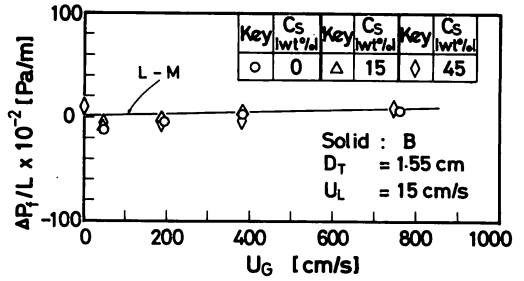


Fig. 14 Relation between frictional pressure drop and gas velocity in vertical upflow

固体粒子濃度の影響はほとんどないことがわかる。スラリー流速がこのように小さい場合は、管径、固体粒子の種類にかかわらず、本図と同様の傾向が認められ、摩擦による圧力損失に及ぼす固体粒子濃度の影響は無視できる。しかしながら、Fig. 15 に示すように、液

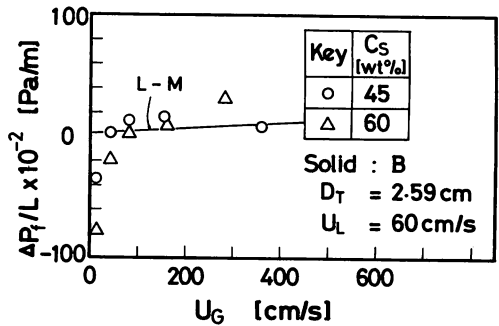


Fig. 15 Relation between frictional pressure drop and gas velocity in vertical upflow

流速が 60cm/s と比較的大きい場合には、固体粒子濃度の違いによる影響が認められる。粒子濃度が大きい場合 (C_s=45~60wt %) には、摩擦による圧力損失の増加が著しいことがわかる。また、粒子濃度が大きく、ガス流速が小さい場合には、負圧が得られることがある。この現象は植田⁸⁾や今野⁹⁾によって、すでに指摘されている。この場合の流動状態を高速ビデオによって観察すると、流れはスラグ流であるが、たびたびかなりの量のスラリーが管壁に沿って降下しているのが認められ、液の降下が支配的である為に、このような負圧現象が生じたと考えられる。

3.3.4 計算値との比較

Fig. 10~15 中の曲線は、Lockhart と Martinelli の相関式による計算値である。この計算値と、気液二相流に対する実測値とを比較すると、摩擦による圧力

損失が負になる様なガスの低流速領域を除いては、比較的よい一致を示している。また、気液固系混相流の場合には、液流速が大きく、ガス流速が小さい場合を除いて、この相関式が適用できる。

3.4. 垂直下降流の摩擦による圧力損失

3.4.1. 管径の影響

Fig. 16 及び 17 に、それぞれ液流速が 15cm/s 及び

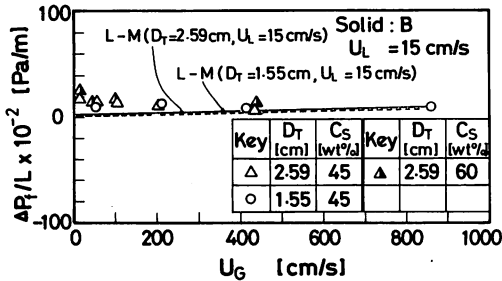


Fig. 16 Relation between frictional pressure drop and gas velocity at U_L = 15 cm/s in vertical downflow

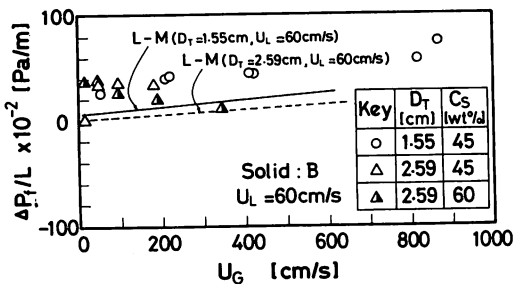


Fig. 17 Relation between frictional pressure drop and gas velocity at U_L = 60 cm/s in vertical downflow

60cm/s で B 粒子を使用し、固体粒子濃度 45~60wt % の場合の摩擦による圧力損失の実測値を示す。スラリー流速が 15cm/s の場合には、いずれの管においても、ガス流速と共に摩擦による圧力損失が減少する傾向にある。この場合、摩擦による圧力損失に及ばず管径の影響はほとんど認められない。しかしながら、スラリー流速が 60cm/s の条件では、管径が小さい場合にはガス流速と共に増加するのに対し、管径が大きい場合は減少するという、見掛け上かなり異なった傾向を示している。これらは管壁付近のスラリーの流速分布の違いによると考えられるが、この点については、

今後、検討を重ねる必要がある。

3.4.2 粒子径及び粒子濃度の影響

Fig. 18 及び 19 に、それぞれ B 粒子及び C 粒子を

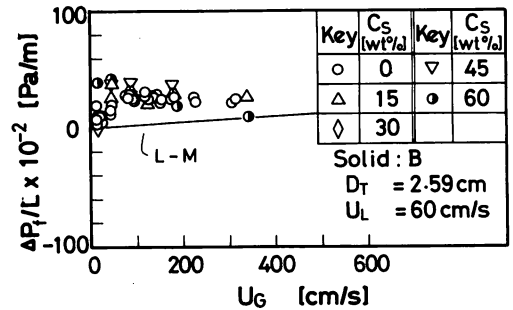


Fig. 18 Relation between frictional pressure drop and gas velocity at various solid particles concentrations of solid particles B in vertical downflow

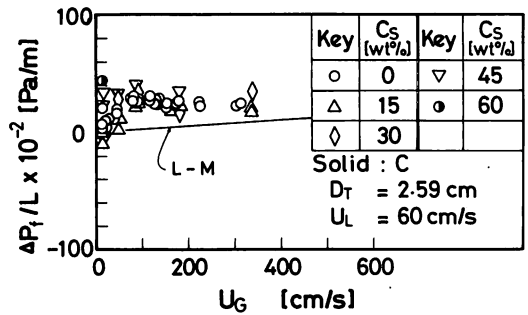


Fig. 19 Relation between frictional pressure drop and gas velocity at various solid particles concentrations of solid particles C in vertical downflow

使用して、管径が 2.59cm、スラリー流速が 60cm/s の場合の種々の固体粒子濃度における摩擦による圧力損失の測定結果を示す。これらの図から、実測値にややばらつきがあるが、摩擦による圧力損失とガス流速の関係は、粒子径及び粒子濃度によってほとんど影響を受けない事がわかる。上記以外の管径やスラリー流速の場合も同様の結果が得られた。

3.4.3 計算値との比較

Figs. 16~19 の中の曲線は Lockhart と Martinelli¹⁾ の相関式による計算値である。この相関式は、主として気液二相水平流に対して提案されたものである。この相関式は垂直上昇流に対してはかなり有効であったが、本

図にみられるように垂直下降流に対してはほとんど無力である。垂直下降流に関する研究は、その必要性が少ないためか非常に少なく、現在のところ、実測値とよい一致を示す相関式は見あたらない。

結 言

気体、液体及び微小固体粒によりなる混相流の流動特性を明らかにする為に、垂直上昇管及び下降管の空気・水・微小ガラス球系混相流の種々の条件下におけるガスホールドアップ及び圧力損失の測定を行なった。これらの流れ方向のおのにおけるガスホールドアップ及び圧力損失に及ぼす管径、固体粒子及び固体粒子濃度の影響について考察し、更に気液二相流の代表的な相関式による計算値との比較を行なった。以下、本研究より得られた結果を示す。

ガスホールドアップ 本実験範囲の気液固系混相流は、次に述べる下降流の極く限られた操作条件下を除けば、気液二相流と全く同様に取り扱いえる事がわかった。

- ③管径の影響は、極くわずかであるが認められる。
- ④粒子径の影響は、全く認められない。
- ⑤ガスホールドアップに及ぼす固体粒子濃度の影響は、ほとんどの場合認められないが、垂直下降流で、液流速が大きく、しかもガス流速が小さい場合にのみ認められる。この場合、固体粒子濃度が大きい程、ガスホールドアップの値は大きくなる。
- ⑥垂直上昇流の場合は、Nicklin らの相関式、垂直下降流の場合は、上記の⑤の固体粒子濃度の影響が認められる領域以外は Oshinowo らの相関式で予測することができる。

摩擦による圧力損失 本実験範囲における気液固系混相流は、以下述べるように気液二相流とほぼ同様に取り扱いえる。

- ①単一流の場合と同様、管径の影響が認められる。
- ②粒子径の影響は認められない。
- ③粒子濃度の影響は、垂直上昇流で液流速が大きい場合に存在し、固体粒子濃度が大きい程、ガス流速の増加に伴う摩擦による圧力損失の増加が著しい。垂直上昇流で、固体粒子濃度が大きく、ガス流速が小さい場合には、摩擦による圧力損失の値が大きな負の値になることがある。
- ④垂直上昇流は、スラリー流速、固体粒子濃度共に大きい領域を除いて Lockhart と Martinelli の相関式

によって予測できる。しかしながら、垂直下降流については、適用可能な相関式が現在のところ見あたらない。

Nomenclature

C_s	= solid particles concentration in slurry	[wt%]
D_T	= tube diameter	[mm]
\bar{d}_{P32}	= Sauter average size	[μm]
\bar{d}_{P50}	= 50 % particle size	[μm]
Fr_T	= Froude number	[-]
f	= friction factor	[-]
g	= gravitational acceleration	[cm/s^2]
L	= length	[cm]
ΔP_f	= frictional pressure drop	[Pa]
Re	= Reynolds number	[-]
R_v	= U_c/U_L	[-]
U	= superficial velocity	[cm/s]
W	= mass flow rate	[g/s]
ϵ	= holdup	[-]
μ	= viscosity	[c. p.]
ρ	= density	[g/cm^3]
σ	= surface tension	[dyn/cm]

<Subscripts>

G	= gas
L	= liquid or slurry
TP	= two phase

Literature cited

- 1) R. W. Lockhart and R. C. Martinelli, *Chem. Eng. Prog.*, **45** 39 (1949)
- 2) D. J. Nicklin, J. O. Wilkes and J. F. Davidson, *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **40** 61 (1962)
- 3) G. A. Hughmark and B. S. Pressburh, *AIChE Journal*, **7** 677 (1961)
- 4) J. Orkiszewski, *J. Pet. Tech.*, (June, 1967) 829
- 5) T. Sasaki, *Kagaku kogaku*, **28** 110 (1964), 28

- 117 (1964)
- 6) G. W. Govier, B. A. S. Brown and G. A. Sullivan, *Can. J. Chem. Eng.*, **38** 62 (1960)
- 7) T. Oshinowo and M. E. Charles, *Can. J. Chem. Eng.*, **52** 25 (1974)
- 8) T. Ueda, *Trans. J. S. M. E.*, **33** 601 (1967)
- 9) H. Konno, M. Toda, E. Harada, M. Kuriyama and S. Saluta, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **8** 380 (1982)
-