



Title	蒸気-液間の物質移動 (2) : 水平流による吸収操作
Author(s)	柴田, 俊春; Shibata, Toshiharu; 久郷, 昌夫 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 57, 163-172
Issue Date	1970-10-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41008
Type	departmental bulletin paper
File Information	57_163-172.pdf



蒸気-液間の物質移動 (2)

— 水平流による吸収操作 —

柴田俊春* 久郷昌夫*

(昭和45年5月6日受理)

Vapor-Liquid Mass Transfer

— Absorption in Horizontal Flow —

Toshiharu SHIBATA Masao KUGO

(Received May, 1970)

Abstract

Absorptions of gases (CO_2 , NH_3) and vapors (Ethylether, Ethylformate) by water were studied experimentally with a horizontal flow apparatus to detect idiosyncrasies, if any, of the transfer mechanism of vapors.

At a constant liquid depth in a tray, the vapor transfer to the liquid seems to be similar to the diffusion rate-controlled mechanism in a range of $Re > 20 \sim 30$, but in another small region a rather peculiar result was observed. Hence the experiments were carried out in the former region.

The results reconfirmed that a HTU correlation based on liquid-liquid equilibrium concentration is more reasonable than HTU due to vapor-liquid equilibrium, as shown in the previous paper.

The H_L-Re relation was obtained as

$$(H_L/z) = 0.1 (Re \cdot Sc)^{1/2}$$

The nearer the absorption temperature to the boiling point of vapor, the higher the transfer-rate became. This may be attributed to the higher equilibrium concentration. Discussions were led forth and a noteworthy simple relation was revealed.

1. 緒 言

前報において、濡壁塔を用いての蒸気と非凝縮性気体の吸収のあいだの相違点について検討し、その結果蒸気の場合液側界面濃度として気液平衡からの値ではなく液々平衡濃度の値を用いる事が通常広く研究されている非凝縮性気体の移動速度係数、並びに HTU との相関において適当と考えられる事を示した。この結果を更に多くの場合について検討する事を目的として、今回は矩形開水路内の水平流気液接触様式を利用した。この濡壁塔から矩形開水路への装置形式の変更理由は、前者が流下液の波立現象の存在、および吸収物質による複雑な濡れ特性の問題によって壁面に不安定ではあるが乾いた部分が出来るなどの結果、接触面積の正確さが期し難くなるこ

* 応用化学科 応用化学第一講座

と(特に有機物質について)のおそれが生じたためである。

従来開水路内における水平流の問題は水理学上の重要性から多くの研究があるが⁶⁾, 運動流体と壁面間の運動量交換の複雑さから円管での問題のようには流速分布関係が知られておらず, みかけ上単純にみえる矩形開水路の流れについてもある程度系統的な研究は, わずかに Nikuradse の流速分布に関する研究^{6),7)}, Lane によりまとめられている aspect ratio と流速分布の変化状態の関係など⁶⁾, 図式的に表わされているにすぎないもののようにみえる。

従って水平流物質移動に関する実験的研究は, 複雑な流速分布の影響を受けると考えられるためかあまり多くはみあらず, 稲積ら⁵⁾による酸素, 炭酸ガスの水への吸収, Fortescue ら³⁾の乱流条件下の炭酸ガス吸収, 藤縄ら⁴⁾による液面汚れの研究があるだけのようである。

この研究では先にも述べたように基本的には蒸気-非凝縮性気体間での移動現象の比較を目的とし, 開水路流れの限られた範囲での物質移動結果について報告する。ここで取り扱った系は蒸気として沸点 34.6°C のエチルエーテル, 沸点 54.1°C の蟻酸エチル, および比較物質となる非凝縮性気体としてのアンモニア, 炭酸ガスの水への吸収の場合である。

2. 実験装置および方法

実験装置の系統図は Fig. 1 に示す。

この系統は先の濡壁塔を用いた報告の場合と比較して大略同一のものであり詳細については省略するが, 濡壁本体部分が透明アクリル板製の矩形水路に置きかえられている。

この矩形水路は断面が 4×4 cm², 試験区間の長さが 40 cm のものに給液整流部分を取りつけたものであり, 液出口ではガスの巻込みを防ぐように工夫されている。

実験は温度と吸収液(水)ならびに気相流速が一定となって, 水路内の液面が安定した状態から始め, 条件設定後移動量の時間的変動に一定の傾向がみられなくなったものをデータとした。

また物質移動速度, および流れの状態に大きな効果を及ぼす水路内の液深は流速により変動するが, これは水位調節器(10)で一定に調節し 3 mm とした。この液深は液の気体との接触比表面積が小さくならないこと, および Nikuradse-松尾⁶⁾などの aspect ratio と最高流速を示す場所との関係* より最高流速を水面上に存在させたことからきめられた。

実験結果の分析はエチルエーテル, 蟻

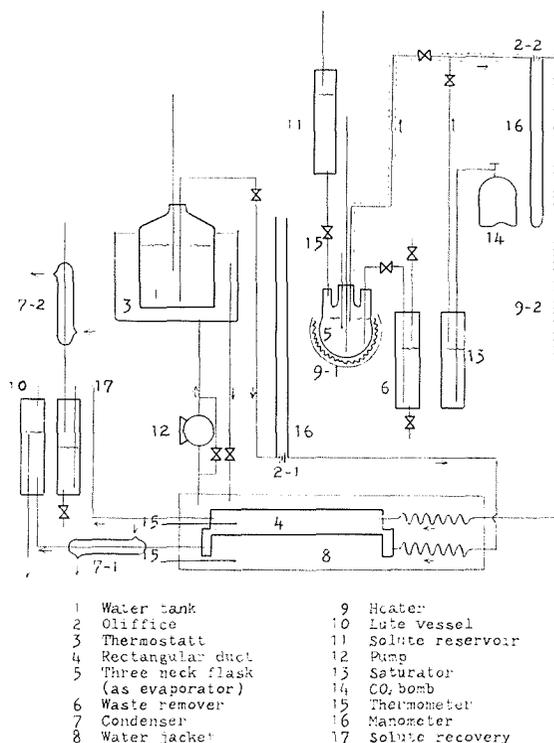


Fig. 1. Folw sheet

* この実験結果によれば, 液深が水路幅の 1/10 以下になった場合, 液流速の最高速度が水面上に存在するが, 1/10 以上になると最高速度は水路側壁の効果をうけ次第に水面下に移動する。この結果流速分布もさらに複雑になると考えられている。

酸エチルの場合は水素をキャリアーとし PEG を充填剤としたガスクロマトグラフで、炭酸ガス、アンモニアは化学分析で行なった。

3. 吸収理論

先の報告と同様液側移動抵抗のみに興味を払われ、気相抵抗省略可能の条件設定であるので液相についてのみ考える。

移動速度は入口、出口の定常操作条件下では、装置形式のいかんにかかわらず総括的に次式で定義される。

$$N = k_L(\Delta C) \ln \quad (1)$$

浸辺長にもとづく液質量速度 Γ を用いての物質収支により無次元化された関係は、後述記号欄における定義の無次元数 Sh , Re , Sc を導入し次のようになる。

$$Sc \cdot Re \ln \frac{C^* - C_1}{C^* - C_2} = 4Sh_0 \left(\frac{z}{a} \right) L_{as} \quad (2)$$

また、 $z = H_L \ln \{(C^* - C_1)/(C^* - C_2)\}$ の定義による H_L は物質移動係数と類似の尺度を示すものであり、 Sh_0 がわかれば (2) 式の関係から換算出来る量である。

$$\frac{H_L}{z} = 0.25 \frac{Re \cdot Sc}{Sh_0 \cdot L_{as}} \left(\frac{a}{z} \right) \quad (3)$$

ここで Re は定義により

$$Re = \frac{\bar{u} a \rho}{\mu} = \left(\frac{4a\delta}{a+2\delta} \right) \left(\frac{W}{a\delta} \right) \cdot \frac{1}{\mu} = \frac{4\Gamma}{\mu} \quad (4)$$

さらに Sh 数あるいはこれに含まれる物質移動係数は、矩形水路内の物質収支による拡散式と運動量収支の Navier-Stokes の方程式の連立式を解けば意味づけられる訳であるが、緒言でも述べたように後者の一般的な解は求めることが出来ないで、単純化されたものになってしまうことは止むを得ないと考えられる。

実験結果解析基準のために近似的な取扱いを導入する。すなわち、矩形水路における流れの特徴は側壁による fetch effect であるが、aspect ratio が大きくこの効果が省略出来るものと仮定すれば Fig. 2 に示した傾斜平板上の流れ問題と同一視することが出来る。

その結果良く知られているように¹⁾、流速分布は放物線的になり次式で表わされる。

$$u_z = \frac{\rho g \delta^2 \cos \theta}{2\mu} \left[1 - \left(\frac{x}{\delta} \right)^2 \right] \equiv u_{zs} \left\{ 1 - \left(\frac{x}{\delta} \right)^2 \right\} \quad (5)$$

ここで u_z は流れ方向速度、 u_{zs} は傾斜平板上の流れの表面における最高流速を示す。

これを利用して定常問題の拡散式を書き直すと、

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = u_{zs} \left\{ 1 - \left(\frac{x}{\delta} \right)^2 \right\} \frac{\partial C}{\partial z} \quad (6)$$

となり Emmert-Pigford の導いた解²⁾ に帰着する。そしてさらに平均濃度の形で表わして

$$\frac{C^* - C_2}{C^* - C_1} = 0.7857 \exp\left(-5.121 \frac{Dt}{\delta^2}\right) + 0.1001 \exp\left(-39.31 \frac{Dt}{\delta^2}\right) + \dots \quad (7)$$

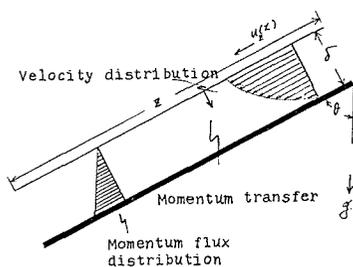


Fig. 2. Liquid flow over an inclined plate

とし、気液接触時間のあまり長くない場合には次のように書ける。

$$\frac{C_2 - C_1}{C^* - C_1} = 3\sqrt{\frac{Dz}{\pi\delta^2 u_{zs}}} \tag{8}$$

ここではこの関係から得られる $Sh-Re$ の相関を利用し H_L への展開を計った。 $Sh-Re$ の関係および先の結果を利用した H_L-Re の相関は、それぞれ次のように求められる。

$$Sh_\delta = \sqrt{Re \cdot Sc} \left(\frac{6}{4} \cdot \frac{\delta}{\pi z} \right)^{1/2} \tag{9}$$

$$\frac{H_L}{z} = 0.25\sqrt{Re \cdot Sc} \sqrt{\frac{4\pi\delta}{6z}} \tag{10}$$

ここで δ は通常は Galileo 数, Reynolds 数および傾斜板の傾きの関数であり理論的に次式で決められる。

$$\delta = Re^{1/3} \left(\frac{3}{4} \sec \theta \right)^{1/3} Ga^{-1/3} a \tag{11}$$

(Ga : 代表長さとして水路幅 a をとった場合)

しかし実験は先にも述べたように液膜を一定になるように設定しているので H_L-Re 相関において、 δ の含まれた項はその変動が極めて少ないか省略可能と考えられる。

4. 関連物性値

データの整理に必要な主要物性値は、拡散係数, 粘度, 密度であり, これらは主に, 化学便覧, 物性値記載のハンドブックを利用して求めた。次表に用いた Sc 数の値を整理しておく。

実験系	実験温度 (°C)	Sc 数
炭酸ガス-水	11	1034
	23	478.6
	30	386.6
アンモニア-水	40	232.0
	50	158.1
エチルエーテル-水	40	475.5
	45	383.9
蟻酸エチル-水	60	192.5
	65	158.5

なお文献には見あたらなかったエーテル, 蟻酸エチルの水溶液の粘度, 密度は実験温度よりは低い温度数点にわたり実測検討したが蒸溜水の場合の温度変化と同一傾向を示し, かつ数値的にもほとんど相違がなかったので一部蒸溜水の値を利用した。

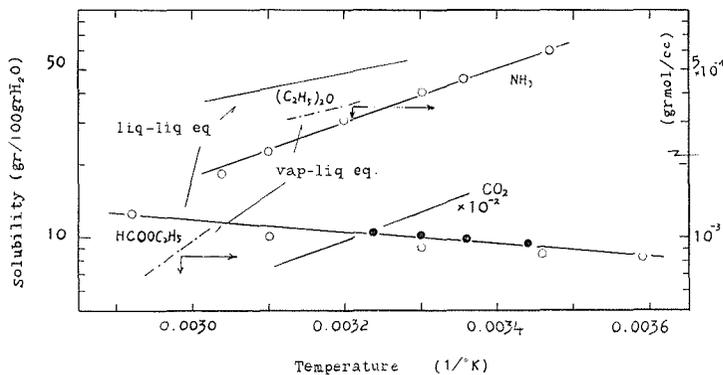


Fig. 3. Solubility-temperature correlation (● measurement)

平衡関係については前報⁸⁾と同じ手法, 手続きをもって決定した。

蟻酸エチルー水系の溶解関係については, 蟻酸エチルへの水の溶解データはないのでエチルアルコールを併用して実験的に求めた。その結果 60, 65°C で温度効果はほとんどなくとも蟻酸エチル量で 84.67 mol % と決定された。これら溶解, 平衡関係を Fig. 3 に整理してある。

5. 実験結果および考察

a) Re 数の H_L におよぼす影響

水路の傾斜が極めて小さく事実上水平流とみなせるこの実験においては, 先の理論で H_L におよぼす Re 数の効果は推定可能であるが, fetch effect の省略, 流速分布の問題など, 色々の不明要素が実際の場合に入ってくるのが考えられる。

これを実験的に検討し気液接触装置としての適用性の可否を明らかにする目的で, 非凝縮性気体である炭酸ガス, アンモニアの吸収を種々流量条件下で行なった。その結果を Fig. 4 に示す。液深を一定とした場合であること, および水路があまり長くないことを考慮すると, $H_L \propto Re^{1/2}$ の関係が予想されるので $(H_L/z)/Re^{1/2}$ と Re 数の関係で点綴を試みた。

この結果 Re 数が 20~30 以上 200 近辺までは予想される Re 数依存の傾向を示しているが, 理論直線 ($\delta=3$ mm とした時) よりは同一 Re 数で 23°C 炭酸ガスの場合 3 倍程度の大きな H_L 実験値を示している。さらに Re 数が小さな領域では予想に反した別の一様の傾向をもつ相関のあることが明らかとなった。

これら H_L の傾向は例えば先の稲積ら, Emmert らの報告にある界面抵抗の問題としてとらえることも出来ると考えられるが, ここで示された温度変化, および移動化学種の変化にもかかわらず同様の結果を得ることから, aspect ratio など装置条件の変更による流れの効果と考える方が妥当のように思われる。すなわち aspect ratio が 10 以上と大きくなって最高流速が水面上に存在する場合でも本実験の条件下では表面に二次元的な最高流速の分布が存在し, 厳密には表面年齢 (物質移動に際しての) 分布が存在することが大きな原因と推定している。

しかし移動の本質的な機構は別として, Re 数が 20~30 以上になった場合, みかけ上 H_L に及ぼす効果の単純化と化学種変化による特異性が表われていないことから, 流速条件の設定に問題は少ないとして, 気液接触装置としては有効であると考えた。

b) Sc 数の H_L におよぼす影響

次に H_L に Re 数について大きな影響をおよぼすと考えられる Sc 数の効果について Fig. 5 に炭酸ガス系 (11, 23, 30°C), アンモニア系 (40, 50°C), 蒸気の場合のエチルエーテル系 (40, 45°C), 蟻酸エチル系 (60, 65°C) の Re 数 20~30 以上での領域での H_L 実験値- Sc 数値の相関を示した。ここで H_L に効果をおよぼす

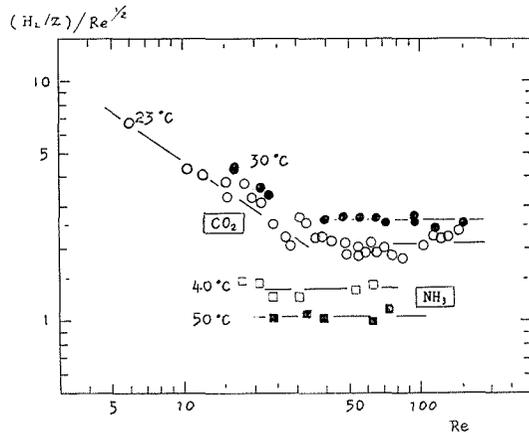


Fig. 4. Re dependence on H_L/z

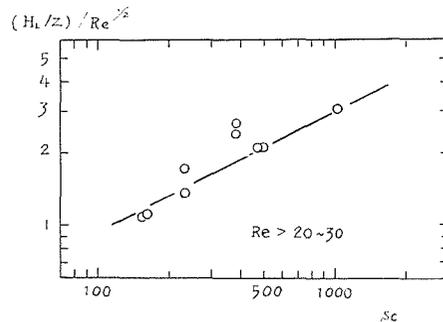


Fig. 5. Sc dependence on H_L/z

変数は他に Ga 数, 流れが常流か射流かを区別する Froude 数の導入* が一般には考えられるが, Ga 数効果のないこと (Ga 数効果が H_L に存在する場合は $H_L \propto Re^{1/2-1/6}$ の関係が示される), および液流速が小さく常流であり化学種の影響が Fr 数中に含まれないことよりこれらの効果は省略した。

Fig. 5 よりデータとして離れたものも存在するが測定点は直線上に乗り, その勾配は $1/2$ としてよいと思われる。

c) 蒸気系—非凝縮性気体の比較

a), b) の結果に基づいて先の結果とエチルエーテル, 蟻酸エチル蒸気の吸収結果をまとめて Fig. 6 に示した。

同図中蒸気に関しては先の報告⁸⁾と同様, 気液平衡関係 (vap-liq eq) および液々平衡関係 (liq-liq eq) の二つの値を用いて算出した H_L を Re, Sc 数依存が非凝縮性気体と同一であるとして点綴してある。

この結果蒸気系に着目した場合も移動機構に対して基本的な要素である Re 数の寄与は, 非凝縮性気体と同様, $H_L \propto Re^{1/2}$ の形で示され, 相違のないのは明らかである。また蒸気系においても液々平衡相関を利用した結果では, 全系の値は必ずしも良好な一致とは言い難いが, 次の同一相関式で整理出来る。(ただし蟻酸エチル 60°C の場合については明らかな不一致をみせているので後にその原因について考察する)

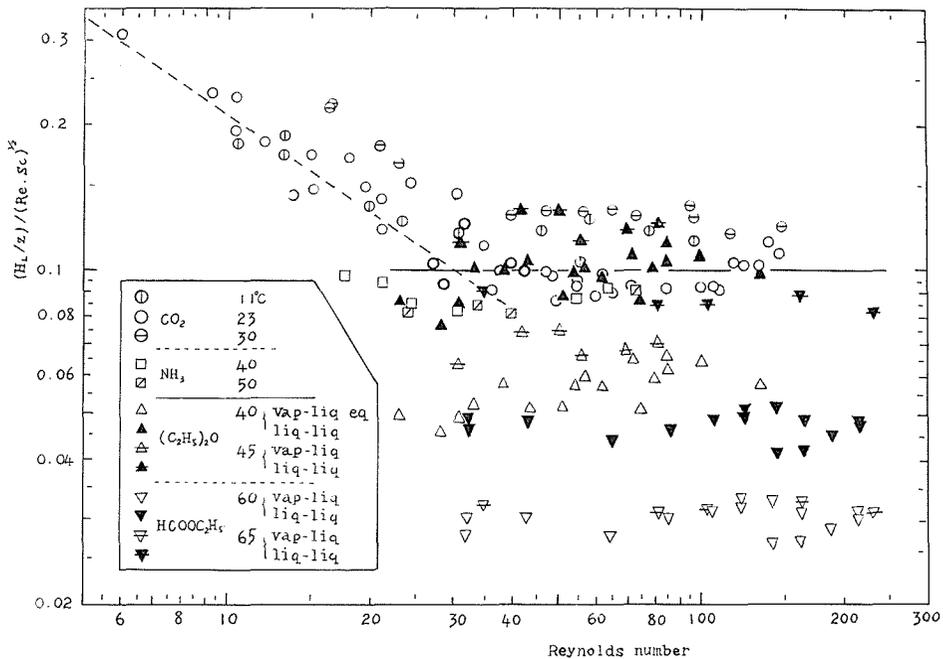


Fig. 6. Correlation between $H_L-Re-Sc$

* 水面を持った流れでは, ある位置で水面にゆるやかな変化を与えると, この変化は長波の伝播速度 $\sqrt{g\delta}$ で伝わって行く。従って流れの速度 u がこの伝播速度よりも速いような場合 ($Fr > 1$) には上流に向っては波は伝わる事が出来ない。このような流れでは下流の方で起った水深の変化は上流に伝わる事が出来ないから, 流れは下流からの影響を受けることがない。この種の流れを射流, これに対して $Fr < 1$ の流れを常流と呼ぶ。

$$H_L/z = 0.1 (Re \cdot Sc)^{1/2}$$

この様に液々平衡の存在が考えられる蒸気系では、先の濡壁塔、気泡塔、今回の水平流の場合といずれも気液接触の様式にもかかわらず、同一の傾向が存在する。

この気液平衡、液々平衡の間の違いは熱力学的にはないので、界面に仮想薄液膜を考え、物質移動抵抗となる境界濃度値を後者の平衡関係に基づき一般に大きくしたものを採用することとなる。換言すれば蒸気系では非凝縮性気体に比較し移動速度が大きく求められ（従って k_L は大、またはこれに反比例する H_L は小さすぎることになる）、それを統一的に説明するため、平衡濃度を大きくみつもり大きな移動推進力を導入し理論展開を行なった方が良くと推定したのである。

さらに前に Fig. 6 の整理で明らかに不一致性を示した蟻酸エチル 60°C の系についても、気液、液々平衡値の比較を行なえば前者が H_L の低すぎる値を与えていることから、上述のことと矛盾するものではない。ただ蟻酸エチルの吸収実験温度とその沸点の面からみると 5°C 程度の差であり、エーテルの実験温度 40°C の場合の温度差と同一であるにもかかわらず、前者のみに特殊性を示すのは、化学種の蒸発潜熱の効果とも考えられる。したがってここでみられる現象は、エーテル蒸気の吸収において実験温度を沸点に近づけたときに表われた移動速度の急激な上昇に対応するものであると考えられる⁸⁾。

この様に蒸気の場合顕著な凝縮の可能性なども考えられるので、次に蒸気物質について充填塔吸収を行ない実験的に溶解性を検討した。

d) 充填塔による溶解性の検討

実験は温度調節された容積 50cc ガラス管にガラスラシヒリング（代表径 5 mm）を充填し、下部より蒸気を 100~200cc/min で吹込み水への吸収をみたものである。

その結果を時間的に追跡したものを Fig. 7, Fig. 8 に示す。

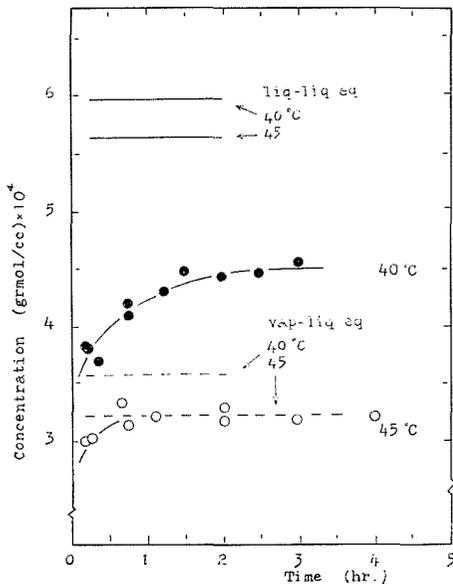


Fig. 7. Concentration change in packed bed experiment

—Case of Ethyl ether absorption into water at 40, and 45°C—

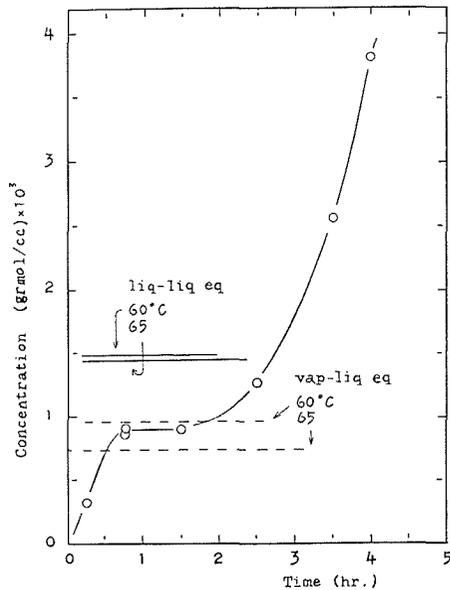


Fig. 8. Concentration change in packed bed experiment

—Case of Ethyl formate absorption into water at 60°C—

エーテル系について示した Fig. 7 において 45°C の場合は充填塔内の溶質分布状態が、1 時間程度で通常の気液平衡濃度になっていることは実測値と計算された平衡濃度の一致で示される。また 40°C の結果は一致をみるにいたっていないが、水平流蟻酸エチル吸収の場合程でないにしても温度差が沸点に近づいた効果を示したものと考えられ、液々平衡濃度への近接を示すものであろう。ただし両温度条件の場合とも液々平衡状態の値を示すにはいたっていないが、これは気液接触の際の液の流動状態に差異があるため水平流の場合に表れた効果と異なった結果となったと考えられる。すなわち水平流では接触面が二次元的であり、あまり安定とは考えられない仮想液膜が保存される程度の流れであるが、充填塔では吹込みガスのかなり激しい攪拌効果によって、エーテル液相の再蒸発が顕著になったものと考えられる。

一方蟻酸エチルについては先に吸収実験で著しい差を生じていた 60°C の場合についてのみ実験結果を示したが (Fig. 8), 非常に特徴のある曲線を示した。すなわち同図でみられる接触時間 45 分～1 時間程度のところでは大体計算気液平衡濃度値との一致を示す値が得られたが、さらに蒸気の供給を続けると液中の蟻酸エチル量が急増する。これは蟻酸エチルの液相化と液体状態のままの水相への分散懸濁化を示すものであり、肉眼的には温度条件が変化していない状態で部分的な薄濁化と明澄化の繰り返しとして観察された。エーテルの場合とは異なり濃度が漸増するのは、蟻酸エチル-水混合物にあっては、部分的な一時的薄濁化 (不完全分散状態を示すと考えられ白濁化状態程には顕著ではない) が両物質間の比重差の極めて少ないこと、前者が蟻酸とエチルアルコールのエステルであり、水の存在で本質的には加水分解を起こし得る程の親和性もっていることなどのため、分散状態が安定化され広い全領域へと拡がって行き易いためと考えられる。ただし、この接触操作において濃度決定はガスクロマトグラフを用いておこなっているが、顕著な分解はみあらず、従って濃度の急激な増加は加水分解のために表れたものではないと考えられる。

e) 界面濃度と H_L の関連性

充填塔での蒸気溶解性の検討からも気液平衡濃度から液々平衡濃度への近接の可能性が推定された。特に水平流において極めて異なった効果を示した 60°C 蟻酸エチル吸収の場合についてその原因が明らかにされた。

それで上述の如く物質移動に大きな作用をなす界面濃度の効果について以下総括的に蒸気の場合の解析結果を示す。

先に水平流蒸気吸収実験で得られた溶液濃度を任意界面濃度を設定することにより H_L 値に直し $(H_L/z)/(Re \cdot Sc)^{1/2}$ 対界面濃度 (平衡濃度) の形で点綴すると Fig. 9 の結果を得る。

図上各点は $Re > 30$ 以上の流速効果が同一状態のところの各実測点平均値を示したものであり、平均値を算出するために用いた個々の H_L 値, $H_L/Re^{1/2}$ 値に

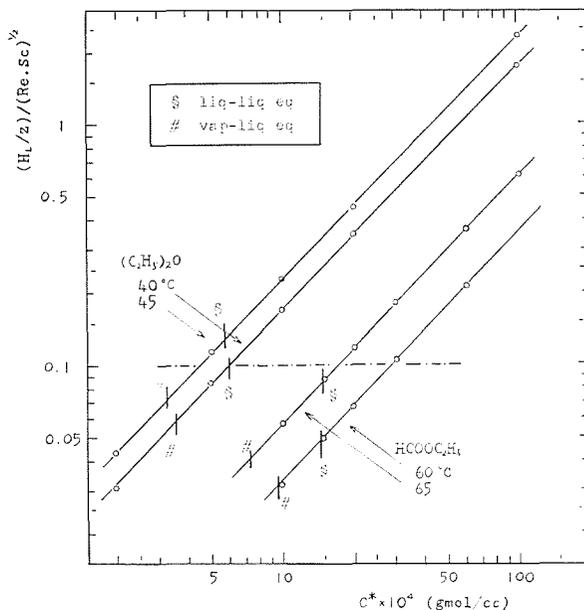


Fig. 9. Effect of equilibrium concentration scale on H_L ($Re > 20 \sim 30$)

は濃度値を変えたことによる傾向の変化は見られなかった。

これら H_L 値, $H_L/Re^{1/2}$ 値の計算過程および Fig. 9 に示された非常に良好な直線性から平衡濃度の大きさの H_L 値に与える効果は比較的単純なものであると考えられる。

同図中には先の Fig. 6 より求められた関係を破線で示すとともに、測定値相関検討に利用した平衡濃度を示した。また $C^* \times 10^4 = 100$ 近辺の値は実際の移動操作には表れ得ない濃度値であるが、これは蒸気が完全凝縮し純相になったと考えた値に対応する。

この結果からわかることは、いずれの直線においても液々平衡に近い関係で物質移動が起っていることが再確認されたが、それぞれの系の値と非凝縮系を示す破線との値の誤差は、主に吸収実験値の精度 (蒸気の部分凝縮の可能性などの関与が皆無でない) に問題があると考えられる。

今後さらにここで取り扱った様な限定溶解性物質でない一般的な蒸気の場合についても、ここで利用した様な手法で界面濃度状態の検討を詳細に行なう必要があると思われる。

6. 総括

1) 気液接触操作に多用される濡壁塔は場合によって濡れ特性の点から正確な接触面積を推定し難いことがあり、特に有機性蒸気の場合に多いこの様な欠点をおぎなうため、ここでは矩形開水路内の水平流を利用する吸収実験を行なった。

2) 液膜を一定に調節した条件下で通常非凝縮性気体 (炭酸ガス, アンモニア) 吸収では, Re 数の大小により層流範囲で機構の異なる二領域から成り, $20 \sim 30 < Re < 250$ では $H_L \propto Re^{1/2}$ なる一定の相関を示すことがわかった。なお移動の理論解析との一致は、水路流れの複雑さから良いものではなく、 H_L にして理論値の 3 倍程度の効率の悪さを示している。今本実験では気液接触における気体巻込みなどの端効果を除くため、液膜を一定におさえた実験のため他の研究者の結果との比較は出来ない欠点があった。

3) 非凝縮性気体の実験から H_L-Re 相関について一様性の得られる条件 $Re > 20 \sim 30$ のもとで蒸気 (エーテル, 蟻酸エチル) の吸収実験を行ない、非凝縮性気体と比較検討し、液々平衡関係による界面濃度の有用性を再確認した。

4) H_L におよぼす界面濃度の効果について調べ、簡単な相関の存在を明らかにした。

最後にこの実験に尽力していただいた市原庸延氏に深く感謝の意を表します。

Notation

a	width of tray	(cm)
C	concentration 1, inlet 2, exit *, equilibrium	(gmol/cc or g/cc)
D	diffusion coefficient	(cm ² /sec)
Fr	Froude number ($u_z/\sqrt{g\delta}$)	
Ga	Galiley number ($a^3g\theta^2/\mu^2$)	
g	gravitation constant	(cm/sec ²)
H_L	height of transfer unit (liquid) based on log-mean driving force	(cm)
k_L	mass transfer coefficient	(cm/sec)
L_{as}	aspect ratio (a/δ)	
N	mass transfer flux	(gmol/cm ² ·sec)
Re	Reynolds number ($4\Gamma/\mu$)	
Sc	Schmidt number (ν/D)	

Sh_s	Sherwood number ($\delta k_L/D$)	
u	velocity z_s , maximum -, average	(cm/sec)
W	flow rate	(gr/sec)
z	length of tray or height of wetted wall	(cm)
Γ	mass flow rate per tray width	(gr/cm·sec)
δ	solvent layer thickness in tray or wetted wall	(cm)
θ	angle of inclination of tray	
μ	viscosity	(gr/cm·sec)
ν	kinematic viscosity (μ/ρ)	(cm ² /sec)
ρ	density	(gr/cc)

Literature

- 1) Bird R. B., W. E. Stewart, E. N. Lightfoot: "Transport Phenomena" John Wiley and Sons, Inc. (1960).
- 2) Emmert R. E., R. L. Pigford: Chem. Eng. Prog. **50**, 87 (1954).
- 3) Fortescue T. G. E., J. R. A. Pearson: Chem. Eng. Sci. **22**, 1163 (1967).
- 4) 藤繩勝彦, 塚越輝忠, 阿部秀臣: 化学工学, **31**, 577 (1967).
- 5) 稲積彦二, 内田重男, 国眼孝雄: 化学工学協会第一回秋期大会前刷, p. 245 (1967).
- 6) 本間 仁, 安芸俊一: "物部水理学". 岩波書店 (1967).
- 7) Schlichting H.: "Boundary Layer Theory". McGraw Hill. (1968).
- 8) 柴田俊春, 久郷昌夫: 北大工学部研究報告, **55**, 85 (1970).