共沸混合物のデータについては、Horsley⁸⁾が第2巻をだしている。また「物性定数」のソ連文献のなかには多数まとめられているので参照されたい。その他新しい文献としては n -ヘプタン $\sim n$ -ブタノール系の共沸点が圧力の変化でどのように移動するかを調べたもの¹⁹⁾があることをつげ加えておく。

抽出蒸留の研究としては Kyle ら¹¹⁾の Solvent Selec-

tion for Extractive Distillation という論文は重要なものであり、またデータとしては van Winkle¹⁶⁾の n -ヘキサンとヘキサン1の系への溶剤の影響を調べたものが興味深い。また設計算法としては Nagel ら¹²⁾、山田²²⁾、田中¹⁸⁾の研究があり、この方面の研究者にとって見のがすことのできない論文である。

文 献

- 1) 平沼, 久郷: 化学工学, 29, 681 (1965); 30, 311 (1966); 31, 94 (1967)
- 2) 平田, 小松: 同誌, 30, 129, 989 (1966)
- 3) 平田, 中原: 同誌, 28, 2 (1964); 29, 746 (1965)
- 4) 平田, 須田: 同誌, 31, 759 (1967)
- 5) 平田, 頼実: 「蒸留工学ハンドブック」朝倉 (1966)
- 6) 広瀬: 化学工学, 30, 315 (1966)
- 7) Hoffman, D. S. et al.: A. I. Ch. E. Journal, 8, 508 (1962); 10, 901 (1964)
- 8) Horsley: "Azeotropic Data II", Am. Chem. Soc., (1967)
- 9) 化学工学協会編「物性定数」I, II, III, IV, 丸善
- 10) 小島, 越智: 化学工学, 28, 26 (1964)
- 11) Kyle, B. G. & D. E. Leng: Ind. Eng. Chem., 57, 43 (1965)
- 12) Nagel, O. & R. Sinn: Chem. Ing. Tech., 39, 275 (1967)
- 13) 大江, 平田: 化学工学, 29, 94 (1965)
- 14) Orye, R. V. & J. M. Prausnitz: Ind. Eng. Chem., 57, 18 (1965)
- 15) 須田, 化学工学, 28, 397 (1964)
- 16) Sunyanarayana, Y. S. & M. van Winkle: J. Chem. Eng. Data, 11, 7 (1966)
- 17) 田中, 山田: 化学工学, 29, 118 (1965)
- 18) 田中, 山田: 同誌, 28, 661 (1964)
- 19) Vijayaraghavan, S. V. et al.: J. Chem. Eng. Data, 12, 13 (1967)
- 20) Wilson, G. M.: J. Am. Chem. Soc., 86, 127 (1964)
- 21) 山田, 杉江: 同誌, 31, 395 (1967)
- 22) 山田, 杉江: 同誌, 31, 994, 1001 (1967)
- 23) 頼実, 吉村: 化学工学, 30, 1093 (1966)
- 24) 頼実, 吉村: 同誌, 29, 229 (1965)

XXIV-2 蒸 留 計 算*

山 田 幾 穂**

物質収支, エンタルピ収支および気液平衡関係が基礎となって組立てられた蒸留計算法は, 理想塔に関するかぎり一応の完成をみたとされているにもかかわらず, かなり多くの報告がある。以下, 解析的方法, Matrix および逐次段法, 最小還流比, 図式解法, 回分蒸留, 充填塔による蒸留の順序にしたがって最近の文献を紹介したい。なお, 共沸蒸留と抽出蒸留については気液平衡の項にゆずった。

1. 解析的方法

2成分系では, Smoker⁴⁵⁾の方法に属した Ramalho⁴³⁾の報告, よく知られた Fenske の式に基礎をおき, 沸点差による最小理論段数の推算に関する Bitar⁴²⁾の報告がある。また, 段階接触を微分接触に近似し, しばしば超分留計算に適用されている Lewis³²⁾の方法は Holland ら³⁰⁾および Wilcox⁶¹⁾によって受けつがれている。し

かし以上の報告は, いづれも理想系に関するものであったが, Martin³³⁾は非理想系の蒸留計算法および抽出計算法を提出した。すなわち, 操作線および気液平衡関係の一般形を (1) 式, (2) 式で表わした。

$$y_n = ax_{n+1} + bx_{n+1}y_n + c \quad (1)$$

$$y_n = a'x_n + b'x_ny_n + c' \quad (2)$$

(1) 式, (2) 式からえられる Riccati の差分方程式

$$y_{n+1}y_n + Ay_{n+1} + By_n + C = 0 \quad (3)$$

$$\text{ただし, } A \equiv (a+b'c)(b'-b)^{-1} \quad (4)$$

$$B \equiv (a'+bc')(b'-b)^{-1} \quad (5)$$

$$C \equiv (ac'-a'c)(b'-b)^{-1} \quad (6)$$

の解を次のように与えた。

Case 1. $(A+B)^2 - 4C > 0$

$$h = \frac{-(A+B) \pm \sqrt{(A+B)^2 - 4C}}{2} \quad (7)$$

のいずれか1つの h の値を用い, e_1, e_2 を

$$e_1 \equiv A + h \quad (8)$$

$$e_2 \equiv B + h \quad (9)$$

とそれぞれ定義し, 与えられた気相組成 y_0 から y_N ま

* 昭和42年10月30日 受理

** Ikuho Yamada 名古屋工業大学 工業化学科教室

での所要理論段数を次のように導いた。

$$N = \left[\log \frac{(y_N + A - e_2)(y_0 + A - e_1)}{(y_N + A - e_1)(y_0 + A - e_2)} \right] \left[\log \frac{e_1}{e_2} \right]^{-1} \quad (10)$$

通常の蒸留計算における操作線は、塔頂および塔底、つまり末端より $n=1, 2, \dots, N$ としており、 x, y をそれぞれ液および気相組成とした場合、以上の諸式は回収部についてそのままではまるものであるが、濃縮部では逆に、 x を気相、 y を液相組成にとらねばならない。

Case 2. $(A+B)^2 - 4C = 0$

$$N = \frac{e(y_0 - y_N)}{(y_N + A - e)(y_0 + A - e)} \quad (11)$$

ただし、
$$e \equiv \frac{A-B}{2} \quad (12)$$

Case 3. $(A+B)^2 - 4C < 0$

$$N = \frac{\theta_2 - \theta_1}{\theta} \quad (13)$$

ただし、

$$\theta_2 \equiv \tan^{-1} \frac{2p'}{2y_0 + A + B} \quad (14)$$

$$\theta_1 \equiv \tan^{-1} \frac{2p'}{2y_0 + A + B} \quad (15)$$

$$\theta \equiv \tan^{-1} \frac{2p'}{A+B} \quad (16)$$

$$ip' \equiv \sqrt{\left(\frac{A+B}{2} \right)^2 - C} \quad (17)$$

Martin はエタノール～水系の蒸留計算および抽出計算の実例を示した。

Serafimov ら⁴⁴⁾ は、たとえばブタノール～水系のように部分的に不均一相を作る系の成分分離に関し、最小還流比および理論段数の決定法を示した。

なお、蒸留塔の最適化に関する研究の手始めとしておこなわれたものではあるが、2成分系の分離を電気回路に相似させた King⁴¹⁾ の報告は興味深い。

今日の解析的多成分系蒸留計算法のはしりとなった Harbert²⁵⁾ の方法は Murdoch³⁵⁾ によって受けつがれ、非分配成分すなわち原料中には存在するが、計算の精度上塔頂または塔底のいつれかに存在しないものとして取扱われる成分に対する漸近表現式が導かれ、みかけ上 0 とみなされる成分の末端組成を求めることができるようになったことは注目に値する。その後、Acrivos¹⁾ によってこれらの結果が数学的に明確な手法で導かれた。さらに、Bowman^{9,10)} の方法に基礎をおき連続成分の蒸留計算法に拡張された。また、塔内モル流量、比揮発度および段効率が各段で変化する非理想系に対して、

摂動理論を適用し理想系の場合を基準または非摂動状態とする近似解を導出し、非理想系蒸留計算の解析的方法の可能性がはじめて示された⁵⁾。これらの研究は、山田^{63,64,66)}、杉江⁵⁰⁾ らによって引きつがれていった。すなわち、理想系に対して塔内組成から末端組成の計算法を示し、側流を伴う系に対する解析的計算法を明らかにした。また、非理想系に関しては、高次摂動項に対する一般形を誘導して計算法を実用化した。そして、逐次段計算式の単純さを導入した逐次反復法を提出した。これら一連の報告の中に Acrivos の方法は紹介されているので、ここでは式その他の記述をあえて省略した。

なお、平沼²⁸⁾ によって多成分非理想系蒸留の一計算法が示されたが、非分配成分の取り扱いがなされていなかった。

2. Matrix および逐次段による方法

Matrix による蒸留計算法は、すでに Amundson⁶⁾ によって示されているが、その後 Wang ら⁶⁰⁾ によって若

図1 Wang らによる側流を伴う蒸留塔のダイアグラム

干の改良がなされた。すでに述べたように、蒸留計算法は次の基礎式から組み立てられている。

物質収支 (M Equation)

$$M_j(i) = L_{j-1}x_{j-1}(i) - (V_j + W_j)y_j(i) - (L_j + U_j)x_j(i) + V_{j+1}y_{j+1}(i) + F_{j2}z_j(i) = 0 \quad (18)$$

平衡関係 (E Equation, S Equation)

$$E_j(i) = y_j(i) - K_j(i)x_j(i) = 0 \quad (19)$$

$$S_j = \sum y_j(i) - 1 = \sum K_j x_j(i) - 1 = 0 \quad (20)$$

$$S_j = \sum x_j(i) - 1 = 0 \quad (21)$$

熱収支 (H Equation)

$$H_j = L_{j-1}h_{j-1} - (V_j + W_j)H_j - (L_j + U_j)h_j + V_{j+1}H_{j+1} + F_{j2}H_{F2} - Q_j = 0 \quad (22)$$

(18)~(22) 式に示した諸式中の記号は、図 1 を参照していただければおわかりのことと思うが、要するに原料、ガスおよび液の側流と非断熱系の一般形を表現している。

(18) および (19) 式より物質収支に関する Matrix 表現は次のようになる。

$$\begin{bmatrix} B_1 & C_1 \\ A_2 & B_2 & C_2 \\ \dots & \dots & \dots \\ A_j & B_j & C_j \\ \dots & \dots & \dots \\ A_{n-1} & B_{n-1} & C_{n-1} \\ A_n & B_n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x_1(i) \\ x_2(i) \\ \dots \\ x_j(i) \\ \dots \\ x_{n-1}(i) \\ x_n(i) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ F_{22}(i) \\ \dots \\ F_{j2}(i) \\ \dots \\ F_{n-12}(i) \\ 0 \end{bmatrix} \quad (23)$$

ただし、 $B_1 \equiv V_1 K_1(i) + U_1 + L_1$ $C_1 \equiv V_1 K_1(i)$

$A_j \equiv L_{j-1}$ $B_j \equiv -(L_j + U_j + K_j(i)(V_j + W_j))$

$C_j \equiv K_{j+1}(i)V_{j+1}$

$A_n \equiv L_{n-1}$ $B_n \equiv -(V_n K_n(i) + B)$

j 段目への単段供給の場合は、 $F_{j2}(i) = F_{2F}(i)$ となり、残りのすべは $F_{j2}(i) = 0$ となる。

さて、(23) 式は次のような手順で解かれていく。まず塔内温度分布を適当に仮定する。この結果、各段の平衡係数およびモル流量がきまる。したがって (23) 式は線形となり、よく知られた Gauss の消去法あるいは Thomas 法によって $x_j(i)$ が計算され、これを成分の数だけくり返せば各段の組成分布はひとまず求められる。この場合、各段の温度は適当な仮定値であったので (20) 式を満足しない。いま、 $K_j(i)$ が温度のべき級数の和 $K_j(i) = a_1(i) + a_2(i)T_j + a_3(i)T_j^2 + a_4(i)T_j^3$ (24) で与えられたとすれば、 m 成分系に対して (20) 式は

$$S_j = \sum_{i=1}^m \left(\sum_{k=1}^4 a_k(i) T_j^{k-1} \right) x_j(i) - 1 = 0 \quad (25)$$

となる。ひとまず計算された $x_j(i)$ より各段の温度を修正するのに、Wang は Newton-Raphson 法の代りに、Müller 法を適用した。すなわち、図 2 に示すように、

図 2 Müller 法による収束状況

T_j^1, T_j^2, T_j^3 の初期値を与えて (25) 式により S_j^1, S_j^2, S_j^3 を求め、これを 2 次曲線……に近似して T_j^4 の第 1 次近似値を求める。そして、 T_j^1, T_j^2, T_j^3 の値をもってふたたび 2 次近似をおこない第 2 次の近似値 T_j^5 を求めようという方法である。以上の手順を交互に所定の精度となるまで繰返せば解がえられる。実際には、(25) 式は T_j に対して単調な関数であり図 2 のようには複雑ではないこともある。しかし、Müller 法というのは一種の Regula-falsi 法であり、Newton-Raphson 法より収束が速い場合もありうるのである。

この種の蒸留計算法は、温度の収束法よりもむしろ段効率を蒸留計算にどのようにして取り入れるかということの方が興味深い。すなわち、Taylor ら⁵¹⁾ は段効率 (原報には Vaporization efficiency となっている) を成分と段の関数として次のように与えた。

$$E_j(i) = \frac{y_j(i)}{K_j(i)x_j(i)} \quad (26)$$

(26) 式を用いれば (20) 式の S Equation は

$$S_j = \sum E_j(i) K_j(i) x_j(i) - 1 = 0 \quad (27)$$

によって表現されることになる。Taylor らは、 $E_j(i)$ を段および成分のそれぞれによってきまる値 β_j および $E^0(i)$ の積

$$E_j(i) = \beta_j E^0(i) \quad (28)$$

として与え、エタンから n -ブタンまでの炭化水素 8 成分系に対する実測値から β_j および $E^0(i)$ を求めた。この場合、 β_j の値は、0.96~1.04 の範囲にあり、数段をまとめて一定の β_j の値をもっているとして簡略化できることを示し、この考え方は側流を伴う系に拡張された⁵⁰⁾。

一方、Billingsley⁷⁾ は、たとえば j 段上を通過する蒸

気および液のそれぞれが、 ev_j および eL_j だけ接触せずに素通りし、 $(1-ev_j)$ 、 $(1-eL_j)$ が十分に接触しているものとして物質収支式を組立てて、一つの蒸留計算法を提出した。

Standart⁴⁶⁾ は Nord⁴⁰⁾、Hausen²⁷⁾ らの提出した段効率とよく知られた Murphree 効率との関係を論じているが、多成分系蒸留計算への実用化には程遠いようである。

高見ら⁵⁶⁾ は、逐次段計算法によって多成分系精留塔の定常的操作特性を論じているが、どちらかといえばこの種の計算法の興味は、操作問題に対する収束法に集り、Bonner¹²⁾、Friday²⁴⁾、Srygley⁴⁷⁾ および Holland²⁹⁾ によって集録されている。しかし、逐次段法による収束法は一般に煩雑であり、さきに示した山田ら⁶⁴⁾ の方法によれば、単に末端組成が原料組成に等しいという仮定から出発した解析的方法による収束法の方がより秀れており、各種収束法に関する比較は杉江ら⁴⁹⁾ によっておこなわれた。

以上示した Matrix および逐次段による計算法は、一般に非分配成分の処理が困難であること、電子計算機による演算実行の際にかなり多くの記憶容量が要求されることなど、解析的方法より数段劣るといわねばならない。なお、蒸留塔群の操作問題に対する解法が Nartker³⁹⁾ によって報告されていることをつけ加えておく。

3. 最小還流比

理想系の設計問題に対する最小還流比の決定法は、すでに Underwood⁵⁷⁾、Murdoch²⁷⁾ らによって示されているが、その後 Acrivos⁵⁸⁾ によって厳密な数学的手法によって彼らの方法が立証された²⁾。

Müller³⁸⁾ は最小還流計算すなわち濃縮部および回収部を無限大とした操作問題に対する計算法を示し、非分配成分が現われる還流比を論じている。

山田ら⁶⁵⁾ は、さきに示した塔内組成から末端組成の計算法を最小還流計算に拡張して最小還流比の一決定法を示し、ピンチポイントの挙動を明らかにした。そして、これら理想系の考察結果を基礎にして非理想系に対する最小還流比の決定法を論じ、非分配成分が現われない場合、ピンチポイントの組成の比揮発度を用いれば Underwood の式がそのまま適用できることを示した⁴⁸⁾。これは、数多い蒸留関係の研究成果の中でも重要なものの一つであるといえよう。

なお、Butcher¹⁸⁾ は理想系の最小還流比の決定に関して図式解法を示しているが、詳細は別冊化学工業11巻6号(1967)を参照されたい。彼の計算例によれば、Underwood の方法と同じ結果を与えているが手続きは

図 3 3成分系における Ponchon-Savarit 法の原理

かなり煩雑で前に示した諸解析的方法より、実用面で劣るようである。

4. 図式解法

Eduljee²²⁾ は2成分系の多段供給の図式解法に対してよく知られた Ponchon-Savarit 法を適用したが、図式解法の興味もやはり多成分系に向けられており、Butcher^{14,15,16)} の一連報告および Doig²¹⁾、Oliver⁴²⁾ らの Ponchon-Savarit 法の3成分系への拡張に関する報告がある。その原理は、図3によればおよそ理解されるところであろうが、組成-エンタルピー曲面を平面的にグラフ化する作業に相当な煩雑を伴うのである。一方、大島⁴¹⁾ は簡単な3成分系気液平衡関係のグラフ化を提出し、Butcher よりもはるかに簡明な図式解法を示したことは注目に値する。

なお、共沸蒸留の最小還流比に関して田中ら⁵²⁾、頼実ら⁶⁷⁾、抽出蒸留の操作範囲に関して田中ら⁵³⁾ の図式解法があることをつけ加えておく。

5. 回分蒸留

実用面からして当然のことではあろうが、連続蒸留に較べて回分蒸留の報告は数少ない。

2成分系では、Bowman¹¹⁾ のアナログ計算機を用いたシミュレーション、Converse¹⁹⁾ の最適化におよぼすホールドアップの影響、Haring²⁶⁾ の Mc Cabe-

Thiele 法にもとづく計算機のプログラミングなどの報告があった。

多成分系では、Meadows³⁴⁾ が段上のホールドアップを考慮した計算法を提示し、 n -ブタン $\sim$ iso-ペンタン $\sim$ n -ペンタン $\sim$ n -ヘキサン系の計算例を示した。また山田ら⁶²⁾ はホールドアップを無視し、定還流回分蒸留操作における段数と還流比の相関を示した。

6. 充填塔による蒸留³⁾

充填塔の解析的蒸留計算法は、Underwood⁵⁸⁾ および Acrivos⁴⁾ によっていわばそのはしりを示されたが、その後、高松ら⁵⁴⁾ は理想系で Acrivos が単に示したパラメータ $f(z)$, $f^*(z)$ の関数的性質が濃縮部および回収部の段数に対応していることを見出し、たとえ充填塔であろうとも、Murdoch³⁵⁾, Acrivos¹⁾ の段塔の手法がそのまま適用できることを示した。そして、山田ら⁶³⁾ によって、 $F(z) \equiv f(z) + f^*(z)$ と還流比との相関は Gilliland の相関と完全に一致することが確かめられ、段数との

対応関係が実証された。高松ら⁵⁵⁾ は非理想系の蒸留計算法を論じた。

一方、Brown¹³⁾ はアナログ計算機を用いて、設計問題および操作問題の解法を論じたが、たとえば充填塔による吸収でしばしば述べられているような混合の影響などは考慮されていなかった。もともとのこの種の計算機は非線形の微分方程式の解法には有用で、将来の成果が期待される。

数年間の文献を以上の分類にしたがって一通りレビューしてきたが、それぞれの研究が分類された枠内で独立に進められたわけではなく、相互に関連して蒸留計算法を発展させてきたのである。したがってこの種の分類法は無論完全ではなく、便宜的なものと了解されたい。なお、現状では直ちに蒸留計算には結びついていないにしても、蒸留操作の熱力学的考察に関する報告^{23, 59)} は他の物質移動操作にも関連して新しい研究分野を指針しているように思われる。

引用文献

- 1) Acrivos, A., et al.: *Chem. Eng. Sci.*, **4**, 29 (1955)
- 2) Acrivos, A., et al.: *ibid.*, **4**, 68 (1955)
- 3) Acrivos, A., et al.: *ibid.*, **4**, 159 (1955)
- 4) Acrivos, A., et al.: *ibid.*, **4**, 206 (1955)
- 5) Acrivos, A., et al.: *ibid.*, **4**, 249 (1955)
- 6) Amundson, N.R., et al.: *A. I. Ch. E. Journal*, **5**, 295 (1959)
- 7) Billingsley, D.S.: *A. I. Ch. E. Journal*, **12**, 1134 (1966)
- 8) Bitar, L.S.: *Chem. Eng. August*, **5**, 126 (1963)
- 9) Bowman, H.: *Ind. Eng. Chem.*, **41**, 1985 (1949)
- 10) Bowman, H.: *ibid.*, **41**, 2004 (1949)
- 11) Bowman, H., et al.: *Chem. Eng. Progr.*, **59**, No. 5, 54 (1963)
- 12) Bonner, J.S.: *Am. Petrol. Institute Quarterly*, **38**, 238 (1956)
- 13) Brown, E. C., et al.: *Chem. Eng. Progr.*, **59**, No. 10, 75 (1968)
- 14) Butcher, K.L.: *British Chem. Eng.*, **7**, 816 (1962)
- 15) Butcher, K.L.: *ibid.*, **7**, 906 (1962)
- 16) Butcher, K.L.: *ibid.*, **8**, 106 (1963)
- 17) Butcher, K.L.: *ibid.*, **8**, 220 (1964)
- 18) Butcher, K.L.: *Hydrocarbon Processing*, **45**, 173 (1966)
- 19) Convers, A.O.: *I. E. C. Fundamentals*, **4**, 475 (1965)
- 20) Davis, D.: *A. I. Ch. E. Journal*, **11**, 678 (1965)
- 21) Doig, D.: *British Chem. Eng.*, **8**, 688 (1963)
- 22) Eduljee, H.E.: *British Chem. Eng.*, **8**, 668 (1964)
- 23) Flower, J.R.: *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, **42**, T 249 (1964)
- 24) Friday, J.R., et al.: *A. I. Ch. E. Journal*, **10**, 698 (1964)
- 25) Harbert, W.D.: *Ind. Eng. Chem.*, **37**, 1162 (1945)
- 26) Haring, H.G., et al.: *Chem. Eng. March*, **18**, 159 (1964)
- 27) Hausen, H.: *Chem. Ing. Tech.*, **25**, 595 (1953)
- 28) 平沼ら: *化学工学*, **31**, 140 (1967)
- 29) Holland, C.D., et al.: "Multicomponent Distillation"
- 30) Holland, F.A.: *Chem. Eng. Feb.*, **18**, 154 (1963)
- 31) King, R.E.: *Control*, **93**, May (1963)
- 32) Lewis, W.K.: *Ind. Eng. Chem.*, **14**, 492 (1922)
- 33) Martin, J.J.: *A. I. Ch. E. Journal*, **9**, 646 (1963)
- 34) Meadows, E. L.: *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, **59**, 48 (1963)
- 35) Murdoch, P.G.: *Chem. Eng. Progr.*, **44**, 547 (1948)
- 36) Murdoch, P.G.: *ibid.*, **46**, 36 (1950)
- 37) Murdoch, P.G., et al.: *ibid.*, **47**, 287 (1952)
- 38) Müller, W.: *Chem. Ing. Tech.*, **35**, 642 (1963)
- 39) Nartker, T. A., et al.: *Can. Jour. Chem. Eng.*, **44**, 217 (1966)
- 40) Nord, M.: *Ind. Eng. Chem.*, **38**, 657 (1946)
- 41) 大島: *化学工学*, **31**, 766 (1967)
- 42) Oliver, E.D.: *Chem. Eng. Progr.*, **61**, No. 9, 91 (1965)
- 43) Ramolho, R.S.: *A. I. Ch. E. Journal*, **8**, 559 (1962)
- 44) Serafimov, L. A., et al.: *International Chem. Eng.*, **4**, 47 (1964)
- 45) Smoker, E.H.: *Trans. Am. Inst. Chem. Engrs.*, **34**, 456 (1938)
- 46) Standart, G.: *Chem. Eng. Sci.*, **20**, 611 (1965)
- 47) Srygley, J.M., et al.: *A. I. Ch. E. Journal*, **11**, 695 (1965)
- 48) 杉江ら: *化学工学*, **31**, 1001 (1967)
- 49) 杉江ら: *同誌*, **31**, 1020 (1967)
- 50) 杉江ら: *同誌*, **31**, 1190 (1967)
- 51) Taylor, D.L., et al.: *A. I. Ch. E. Journal*, **10**, 864 (1964)
- 52) 田中ら: *化学工学*, **28**, 661 (1964)
- 53) 田中ら: *同誌*, **28**, 118 (1965)
- 54) 高松ら: *同誌*, **30**, 230 (1966)
- 55) 高松ら: *同誌*, (1968年2月号 掲載予定)
- 56) 高見ら: *同誌*, **28**, 570 (1964)
- 57) Underwood, A.J.V.: *Trans. Inst. Chem. Eng.*, **10**, 112 (1932)
- 58) Underwood, A.J.V.: *Ind. Eng. Chem.*, **41**, 2844 (1949)
- 59) 浦口: *化学工学*, **27**, 227 (1963)
- 60) Wang, J.C., et al.: *Hydrocarbon Process Petrol Refiner*, **45**, 155 (1966)
- 61) Wilcox, W.R.: *I. E. C. Fundamentals*, **3**, 81 (1964)
- 62) 山田ら: *化学工学*, **28**, 1009 (1964)
- 63) 山田ら: *同誌*, **30**, 513 (1966)
- 64) 山田ら: *同誌*, **31**, 134 (1967)
- 65) 山田ら: *同誌*, **31**, 565 (1967)
- 66) 山田ら: *同誌*, **31**, 994 (1967)
- 67) 額来ら: *同誌*, **28**, 229 (1965)