レーザフォーカス変位計による鉛直流下液膜の測定* (第1報, 測定原理と液膜厚さ)

賞 雅 寛 而*¹, 波津久 達也*²

Measuring a Film Flowing Down a Vertical Wall Using Laser Focus Displacement Meters (1st Report, Measuring Principle and Film Thickness)

Tomoji TAKAMASA and Tatuya HAZUKU

A film flowing down a vertical wall exhibit as many distinct wave features. The produced interfacial waves show fascinating non linear phenomena, including solitary waves and complex disordered patterns. Abundant measurements have been made of these phenomena using electrical resistance, electrical capacitance, optical, and laser beam methods. In this paper, we present a new way of measuring the thickness of a film flowing down a vertical wall in an entry region using two laser focus displacement meters. With this method, we achieved accurate measurements of film thickness in real time with a sensitivity of 0.2 micron and 1 kilohertz. We also clarified errors caused by the refraction of laser beam passing through the wall and liquid. In the entry region, the wave amplitude decreased as the flow rate increased, which was contrary to results obtained in the past in a fully development region. The average measured film thickness agreed with that calculated using Nusselt's Law, indicating the flow to be laminar in the entry region even at a high flow rate.

Key Words: Lazer-aided Diagnostics, Refraction, Flow Measurement, Vertical Flow, Free Surface Flow, Film

1. は じ め に

壁面に沿って流れる液膜の界面にはつねに表面張力やせん断応力、気液成分内の圧力および乱流速度成分等に起因する振動や複雑な波動を生じるため、運動量変化を伴わない等温系、また界面にせん断応力が働かない流下液膜においてもかなり複雑な流動形態になり、その物理値のすべてを知ることは難しい。液膜流の研究はその流路における液膜厚さや熱伝達率を知ることが目的に、時空間的平均値としてマクロに整理することから始まっている。特に平均液膜厚さと流量の関係については数多くの解析結果が示されており、実験値との比較も行われている。測定はほとんどが締切法(実験区間への流体の出入りを同時に停止し実験区間に残留した量を測定する)か写真法(液膜の輪郭写真によって厚さを求める)によって行われており、各研究者のこれらのデータはよく一致している。

ここで諸プラントの機器性能および安全解析正確度のより一層の向上のためには液膜厚さの時空間的な変

動や分布というミクロな物理量より詳しく知ることが必要になり、近年、光線吸収法、光線反射法、電気抵抗法、静電容量法、触針法などによる測定が活発に行われてきている。しかしながらこれらの手法にはそれぞれに電極を流動部に挿入するため流れを乱す、液膜の厚さを電極間の空間平均値としてとらえるために実界面の諸情報を正確に測定することができないなどのいくつかの問題がある。これらの問題を解決するために、三角測量方式のレーザ変位計を用いた液膜の測定が試みられている⁽¹⁾。この方法は対象物からのレーザの反射光をレンズで集光し、レンズ背後のスポット位置を検出することにより集光レンズから対象物までの距離を測定している。基本的にこの三角測量方式のレーザ変位計方法は表面が平滑でないと反射光をレンズに集光できないために、曲率の大きい波など測定できにくい領域も多い。近ごろ、ICなどの表面の細かな傷などを検出するためにレーザフォーカス変位計(キーエンス社、ロングレンジレーザフォーカス変位計LT-8100:以下LFDという)が開発されている。LFDは、その原理上、大きな曲率をもった細かな波を測定できる可能性がある。

本研究では鉛直壁面に沿って発達しながら流下する液膜の厚さを、LFDによって測定した。この研究の

* 原稿受付 1997年4月22日。

*¹ 正員、東京商船大学商船学部 (〒135 東京都江東区越中島2-1-6)。

*² 東京商船大学大学院 [現:(株)パプコック日立]。

目的は、LFDの液膜表面波形の高時空間測定方法としての可能性を検討しその有効性を確認すること、また助走区間における流下液膜の流動特性を調べることである。流下液膜の研究は、主として液膜生成部から2～4 m離れた発達領域を対象として行われており、生成部に比較的近い、波の未発達領域の研究は少ない。これは助走区間では、厚さが薄くかつ波長の短い波になるために、従来の測定方法では測定が困難であったためでもある。

おもな記号

g : 重力の加速度 m/s^2

$h, \bar{h}$: 波高, 平均波高 mm

L : 助走距離 mm

N : 屈折率

Re : レイノルズ数 $= \Gamma/\nu$

Γ : 単位幅あたりの液流量 m^2/s

$\delta, \bar{\delta}$: 液膜厚さ, 平均液膜厚さ mm

κ : 入射角 $^\circ$

ν : 液膜粘性係数 m^2/s

添字

A, F, W : 空気, 液, 透明壁

max, min: 最大, 最小

r, m : 真値, 測定値

2. LFDの原理と測定誤差

2.1 LFDの原理 図1にLFDの測定原理の概念を示す。LFDから照射された円すい状のレーザ光は音さにより高速で往復運動する対物レンズを通り、対象物上で焦点を結ぶ。対象物より散乱反射した光はハーフミラー、ピンホールに到達する。共焦点原理に

Fig. 1 Laser focus displacement meter

よりレーザ光が対象物で焦点を結んだときにその反射光はピンホールの位置で一点に集光され、ピンホール背後の受光素子に入光する。そのときのレンズと同期して動く音さの位置をセンサで知ることにより対象物までの距離が測定される。またLFDの象物焦点のスポット径は $2\mu\text{m}$ 、空間分解能も $0.2\mu\text{m}$ と非常に小さい。焦点の移動範囲は $28\text{mm} \pm 1\text{mm}$ である。LFDの時間分解能は音さの周波数 1.4kHz によって決められるが、ここでは測定誤差を少なくするために2回の測定値の平均値を出力値としており、したがってサンプリング周期は 0.7kHz になる。これらの作動原理と特徴により、LFDはこれまで測定が難しかった大きな曲率をもった波、すなわち細かい波でもロールウェーブのような多価関数にならなければその曲率に影響されず、その界面位置や波の周期を正確に測定することができる。

2.2 屈折の補正 壁面上に形成される液膜の厚さのLFDによる測定は、液膜界面側からあるいは透明壁裏面側から行うことができる。透明壁裏面側から測定する場合、壁面両表面での屈折による誤差を評価し、その補正を行う必要がある。

まず、屈折の法則より理論的にこれを求める。LFDは1周期の対物レンズの往復運動により図2に示されるように液界面および壁面の位置を検出でき、見掛けの液膜厚さをこれらの差として出力することができる。LFDで測定された液膜界面での焦点位置出力値を x_1 、透明壁面の出力値を x_2 とすると実際の液膜厚さ δ は

$$\delta = (x_1 - x_2) \frac{\tan \kappa_A}{\tan \kappa_F} \dots\dots\dots (1)$$

で与えることができる。さらにスネルの法則より

$$N_A \sin \kappa_A = N_W \sin \kappa_W = N_F \sin \kappa_F \dots\dots\dots (2)$$

Fig. 2 Laser beam paths

整理して,

$$\kappa_F = \sin^{-1} \left[\frac{N_A}{N_F} (\sin \kappa_A) \right] \dots \dots \dots (3)$$

ここで常温大気圧下の空気の屈折率 $N_A=1$, 液体(水)の屈折率 $N_F=1.32$, またLFDのレーザ入射角 $\kappa_A=11.5^\circ$ を式(1), (3)にそれぞれ代入し, 両者を連立させて解くと, 実際の液膜厚さ δ は

$$\delta = 1.332(x_1 - x_2) \dots \dots \dots (4)$$

で表すことができる. この簡単な式は液膜が液界面および壁面の位置の差から計算されるとき, 屈折の補正係数は透明壁の厚さ, 屈折率およびLFD-透明壁間の距離等にはよらず空気と液体の屈折率のみに依存し, 1.332 となることを示している.

次に二つの予備実験によって屈折誤差を評価した. 図3はシリンダと底面に観測窓をもった水槽からなる1番めの予備実験装置である. シリンダはコンピュータからの信号により, $1\mu\text{m}$ の精度で上下にトラバースすることができる. 液膜厚さに相当する, シリンダ底面と観測窓上面との距離 δ_r は, 窓の下に置かれたLFDにより測定される. また測定値 δ_m へのLFDから窓下面までの距離 d の影響を確認するために, LFDはマイクロメータによって上下に移動できる. 図4は, δ_r と δ_m の関係を示している. LFDと窓表面の異なる距離を示す図4中のマークは完全に重なっており, このことからこの距離が測定値 δ_m にほとんど影響を与えていないことがわかる. 黒丸は式(4)から計算される補正された測定値である. 図4でわかるように補正值は, 直線で示されている真値と1.5%以

Fig. 3 Apparatus for the preliminary test

内の精度で合っている.

もう一つの予備実験として, 鉛直壁面を流下する液膜を液膜界面側からと透明壁裏面からの2台のLFDを用いて同時に測定した. この際2台の計測位置を同一点にするとおのおのから照射されるレーザ光同士が干渉して測定誤差を生じるので, 照射スポットは流下方向に1.5 mm 離して設置されている. 図5は, 界面側と透明壁裏面側からの液膜厚さの測定例である. 式(4)によって補正された裏面側からの測定膜波形(図5中一点鎖線)は, 界面側から測定された波形(実線)によく合っていることがわかった. この二つの予備実験の結果により, 透明壁を通過する際に生じる屈折の影響は式(4)によって評価でき, 観測窓外側からでも正しい液膜厚さが測定できることが確認された.

また液膜測定予備実験において, 液膜界面側から測定する場合, 薄い液膜ではところどころ波形データが欠落し, 正しい波形が得られなかった. 図6は, 低液流量すなわち薄い厚さの液膜波形を界面側と透明壁裏面側から測定した波形例である. ここで裏面側の波形は式(4)によって補正されている. 図6からわかるよう

Fig. 4 Refraction error and corrected film thickness

Fig. 5 Measured and corrected interfacial wave data

に、液膜界面側から測定した波形は液膜の薄くなるところでデータが欠落している部分(図6中○印)がある。前述のように、透明壁裏面側からの測定による液膜厚さは、見掛けの液膜厚さを液界面および壁面の位置信号の差から求め、式(4)によって補正して得ることができるが、液膜界面側からの測定では、液膜界面位置信号と液膜が流れていない状態での壁面出力値との差から液膜厚さを求めている。これは、界面側からの測定では、液膜表面におけるレンズ効果により壁面位置に誤差を生じるために、壁面位置の測定を液膜界面位置の測定と同時に行うことができないためである。このような処理によりある程度厚い液膜の測定は問題なくできるが、薄い液膜では液膜界面の位置信号がレンズ効果のために見掛け上移動してしまう。このような場合壁面信号の識別がつかなくなり、波形データに欠落が生じるのである。この現象は、レンズ効果とその焦点距離に依存するので液膜界面の曲率にも依存するが、本予備実験では厚さ約0.6 mm以下の液膜を測定する際に生じた。したがって、このような薄い液膜の波形を測定する場合は、透明壁裏面側からのほうが精度よく測定できるということになる。

3. 鉛直壁面を流下する液膜の表面波

3・1 実験装置 図7に本研究で使用した実験装置の概略を示す。水は、純水器で電気伝導度 $1\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下の純水になった後にタンクへ送られる。このタン

Fig. 6 Wave phenomena on thin-liquid-film

クの水面位置はオーバーフロー出口によって一定に保たれている。タンクからの水は、流量調節バルブ、水平のテフロン円管およびテスト部を経て外部に排出される。テスト部は幅210 mm、長さ460 mmの片面大気解放の亚克力板からなっている。直径約1 mmの多数の穴のあいたテフロン円管とテスト部上部のスリット(間隙1 mm)により、幅方向に均一な厚さの液膜が生成される。実験は、流下液膜の単位幅あたりの流量 Γ で計算される液膜レイノルズ数 $Re=32\sim706$ の範囲で行われた。流量は、流出水量をメスシリンダで測定している。水温は水タンクと排出管内の温度計によって測定され、 $15.0\pm0.5^\circ\text{C}$ に設定した。液膜厚さは、液膜生成部からの下流位置 $L=133.5, 166.5, 233.5, 266.5, 333.5, 366.5$ mmの6箇所のLFDによって測定される。また薄い液膜における測定誤差をさけるために、透明壁裏面側から測定されている。LFDからの膜圧信号は、パーソナルコンピュータに送られ、統計処理される。このときデータのサンプリング周期は1.4 kHz、1実験条件あたりの測定時間は20 sである。

3・2 実験結果および考察 図8に、液膜表面波形に及ぼす助走距離の影響を示す。図8に示されるように、液膜生成部に近い $L=133.5$ mm点においては振幅0.1 mm以下の比較的そろったリップル波になっている。目視観察によれば界面はほぼ鏡面とみなしうるものであり、LFD以外の測定方法ではこのような細かい波形をとらえることは難しい。助走距離が増えたとこのリップル波形は孤立波に成長し、振幅は0.5 mmほどになる。孤立波の間には不規則なリップ

Fig. 7 Apparatus for the experiment on film flowing down a vertical wall

ル的波形が存在し、 $L=333.5\text{ mm}$ の助走距離の大きい領域では、発達域で観測されるようないわゆる2波動系(two-wave system)⁽²⁾へと移行する傾向を示している。図9に助走距離の液膜厚さに及ぼす影響を、液膜厚さの確率密度関数を用いて整理した。 $L=133.5\text{ mm}$ における分布の形状は鋭いピークをもつ三角形状をしており、そのピークを中心にほぼ対称的に分布している。助走距離の増加につれて、鋭いピークが徐々に鈍化するとともに液膜厚さの大なる側に長いすそ野をもち非対称性を示すようになる。これらの結果から、液膜は助走距離の増加に伴って、流速が増加して液膜厚さが減少すること、また大きな振幅を有する波へと成長していくことがわかる。

図10に、液膜表面波形に及ぼす液膜流量の影響を示す。図10から液膜流量の低いすなわち Re の低い領域では、振幅が 0.8 mm に達する孤立波がほぼ等間

隔にあり、それらの波間にリップル波を有する2波動系波形となっていることがわかる。目視では、これらの孤立波は二次元波(幅方向に対してほぼ一様)となっていることが観察された。 Re の増加に従って、振幅は 0.2 mm 程度にまで小さくなり、波数は増加する。また孤立波は消え、不規則なリップルの波形になる。図11に表面波形に及ぼす液流量の影響について液膜厚さの確率密度関数を整理する。 $Re=79$ の低い領域では確率密度が広い液膜厚さに分布し、波の振幅が大きいことを示しているが、 Re が300以上になると一定の分散の鋭いピークをもつようになり、波の振幅が小さくなりかつ液流量にあまり影響されなくなることを示している。完全な発達域における流下液膜の波形は、 Re の増加とともに振幅が増大し複雑な2波動系波形を呈すると報告⁽³⁾されているが、本実験の助走区間においては逆の傾向を示す結果となった。これは、液膜生成部から十分な距離をおいた発達域と異なり、本実験のような液膜生成部に近く助走距離が短い条件では、液膜が生成されてから測定部に達する時間も短く、波の成長に十分な時間が与えられないためである。液膜流量すなわち流下速度が大きければ測定部までの到達時間も短くなり、波の振幅は小さくなる。一方液膜流量が小さくなれば到達時間は長くなり、よって波は互いに合体し孤立波を形成できるのである。

このように流下液膜は波すなわち液膜厚さの変動を伴うが、平均した液膜厚さを基本的物理量として、流動現象を解明する手がかりを得ようとする試みが多く、研究者によってなされている。ここではLFDで測定される全膜厚サンプル値 n の算術平均として平均液膜厚さ $\bar{\delta}$ を求めた。

Fig. 8 Effect of entry length on a typical film thickness trace

Fig. 9 Effect of entry length on probability density function of film thickness

Fig. 10 Effect of flow rate on a typical film thickness trace

Fig. 11 Effect of flow rate on probability density function of film thickness

Fig. 12 Average film thickness

$$\bar{\delta} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \delta_i \quad (5)$$

図12に上式によって得られた平均液膜厚さを整理する。ここでは層流域の理論式としてヌッセルトの式

$$\bar{\delta} = (3\nu^2 Re/g)^{1/3} \quad (6)$$

を、また乱流域に対しては Karman の速度分布から得られる理論式⁽⁴⁾を図12中に示した。

$$(3.0 + 2.5 \ln \bar{\delta}^+) \bar{\delta}^+ = Re + 64 \quad (7)$$

ここで、

$$\bar{\delta}^+ = u^* \bar{\delta} / \nu \quad (8)$$

であり、摩擦速度 u^* は壁面摩擦と重力の平衡式から、

$$u^* = \sqrt{g \bar{\delta}} \quad (9)$$

となる。

乱流域の実験式としては、Brauerの実験式⁽⁵⁾、

$$\bar{\delta} = 0.302(3\nu^2/g)^{1/3} Re^{8/15} \quad (10)$$

高浜らの実験式⁽³⁾、

$$\bar{\delta} = 0.473(\nu^2/g)^{1/3} Re^{0.526} \quad (11)$$

がある。また、Hanrattyらの式⁽⁶⁾(Patankar-Spaldingモデルによる解)に液膜表面波動の影響を考慮した補正係数を導入した新垣らの式⁽⁷⁾

$$\bar{\delta} = (\nu^2/g)^{1/3} [8.92 Re^{5/2} + 4.04 \times 10^{-5} Re^{9/2}]^{2/15} \quad (12)$$

を図12中に示した。

本実験で得られた平均液膜厚さは、 $Re=50$ 付近の低液膜流量条件を除いてはヌッセルトの理論式と比較的よく一致していることがわかる。 $Re=200 \sim 400$ の乱流遷移点を超えた比較的高い Re 条件下においてもこのようにヌッセルトの理論式とよく合うことは、助走区間 $150 \sim 400$ mm においては流れの乱れがまだ発達せず層流性を保っていることを示している。 $Re=50$ 付近の目視結果から二次元波とみなせる低液膜流量条件においてはヌッセルトの層流式から離れ、新垣らの補正式へと近づく傾向を示している。図9に示したように低流量では波の振幅が大きくなっている。し

たがって低流量域では液膜表面波動の影響を考慮しなければならないことがわかる。

また $Re < 200$ では、助走距離の影響は見られないが、 $Re = 200 \sim 400$ の乱流遷移点を境に影響が現れ始める。助走距離の増加に伴って平均液膜厚さは減少する傾向を示すようになり、これは流れが発達中であることを示している。

図13～15に、最大液膜厚さ $\delta_{\max}$ 、最小液膜厚さ $\delta_{\min}$ および平均波高 $\bar{h}$ の測定結果をそれぞれ示す。本実験において $\delta_{\max}$ と $\delta_{\min}$ は液膜厚さの存在確率分が99%と1%となる値として、また平均波高 $\bar{h}$ は、 $\delta_{\min}$ からそれぞれの波の波頭までの距離 h の算術平均値として、それぞれ定義される⁽⁸⁾⁽⁹⁾。最大・最小液膜厚さ、平均波高については多くの実験式が提唱されているが、ここでは、助走距離1600 mmの位置で触針法によって得られた伊藤・佐々木の実験式⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾

$$h_{\max} = 1.78 \times 10^{-5} Re^{0.68} \dots \dots \dots (13)$$

$$\delta_{\min} = 4.54 (g/v^2)^{-1/3} \dots \dots \dots (14)$$

$$\delta_{\max} = h_{\max} + \delta_{\min} \dots \dots \dots (15)$$

$$\bar{h} = 2.12 \times 10^{-5} Re^{0.53} \dots \dots \dots (16)$$

を図13～15中に示す。

最大液膜厚さ $\delta_{\max}$ は、 $Re < 200$ おいて助走距離の影響が見られず、ばらつきはあるものの伊藤・佐々木の式と一致している。 $Re > 200$ では全体的に伊藤・佐々木の式よりも小さいが、助走距離の増加に従って液膜厚さは増加することがわかる。最小液膜厚さは、液流量の増加とともに大きくなっている。しかしながら $Re < 200$ では助走距離が大きくなるにつれ大きくなり、また $Re > 200$ では助走距離が大きくなるにつれ小さくなり、それぞれ伊藤・佐々木の式から求められる最小液膜厚さの値に近づいていくことがわかる。また平均波高は、最大液膜厚さと同様に、 $Re < 200$ において助走距離の影響が見られず、ばらつきはあるものの伊藤・佐々木の式と一致している。 $Re > 200$ では全体的に伊藤・佐々木の式よりも小さいが、助走距離の増加に従って大きくなり本実験で助走距離の長い $L = 366.5$ mm では、伊藤・佐々木の式とよく合っていることがわかる。

これらの最大液膜厚さ、最小液膜厚さ、平均波高の測定結果より、 $Re > 200$ の領域では、助走距離が大きくなるに従って波が発達し、その振幅が大きくなることがわかる。また $Re < 200$ の低液流領域では、波はすでに本実験のような $L < 400$ mm の短い助走距離で発達し、助走距離の大きい発達域で得られた実験式とよく合うことがわかった。

Fig. 13 Maximum film thickness

Fig. 14 Minimum film thickness

Fig. 15 Average wave height

4. 結 論

鉛直壁面に沿って発達しながら流下する液膜の厚さを、レーザフォーカス変位計 LFD によって測定した。この研究の目的は、LFD の液膜表面波形の高時空間測定方法としての可能性を検討しその有効性を確認すること、また助走区間における流下液膜波形の特性を調べることである。得られた結果は以下のようにまとめられる。

(1) 透明壁裏面側から測定する場合の壁面両表面での屈折による誤差を評価し、その補正を行う式を得た。液膜が液界面および壁面の位置の差から計算されるとき、屈折の補正係数は透明壁の厚さ、屈折率およびLFD-透明壁間の距離等にはよらず空気と液体の屈折率のみに依存し、式(4)で表されることが示された。予備実験により、透明壁を通過する際に生じる屈折の影響は式(4)によって評価でき、観測窓外側からでも正しい液膜厚さが測定できることが確認された。

(2) 液膜界面側から測定する場合、薄い液膜では液膜界面の位置信号とレンズ効果のために見掛け上移動してしまう壁面信号の識別がつかなくなり、波形データに欠落が生じることがあることがわかった。このような現象は、本予備実験では厚さ約0.6 mm以下の液膜を測定する際に生じた。このような薄い液膜の波形を測定する場合は、透明壁裏面側からのほうが精度よく測定できる。

(3) 完全な発達域における流下液膜の波形は、 Re の増加とともに振幅が増大し複雑な2波動系波形を呈すると報告されているが、本実験においては逆の傾向を示した。これは、液膜生成部から十分な距離をおいた発達域と異なり、本実験のような液膜生成部に近く助走距離が短い条件では、液膜が生成されてから測定部に達する時間も短く、波の成長に十分な時間が与えられないためであると考えられる。液膜流量すなわち流下速度が大きければ測定部までの到達時間も短くなり、波の振幅は小さくなる。一方液膜流量が小さくなれば到達時間は長くなり、よって波は互いに合体し孤立波を形成できる。

(4) 平均液膜厚さは、 $Re=50$ 付近の低液膜流量条件を除いてはヌッセルトの理論式と比較的よく一致した。 $Re=200\sim 400$ の乱流遷移点を越えた比較的高い Re 条件下においてもこのようにヌッセルトの理論式とよく合うことは、助走区間150~400 mmにおいては波がまだ発達せず層流性を保っていることを示している。

(5) 最大液膜厚さ、最小液膜厚さおよび平均波高の測定結果からも、 $Re>200$ の領域では助走距離が大きくなるに従って波が発達し、その振幅が大きくなることがわかった。また $Re<200$ の低液流領域では、波はすでに $L<400$ mmの短い助走距離で発達し、助走距離の大きい発達域で得られた伊藤・佐々木の実験式とよく合うことがわかった。

文 献

- (1) Nasr-Esfahany, M. and Kawaji, M., Proc. 31st Nat. Heat Transf. Conf., *AIChE*, **92**(1996), 203-210.
- (2) 高浜平七郎・ほか4名, 機論, **39**-327(1973), 3409-3413.
- (3) 高浜平七郎・ほか2名, 機論(第2部), **44**-386(1978), 3514-3518.
- (4) Dukler, A. E. and Bergelin, O. P., *Chem. Eng. Prog., Symp. Ser.*, **48**-11(1952), 557-563.
- (5) Brauer, H., *VDI-Forschungs-h.*, **22**-451(1956), 5-40.
- (6) Henstock, W. H. and T. J. Hanratty., *AIChEJ.*, **22**(1976), 990, **25**(1979), 122-132.
- (7) 新垣勉・ほか3名, 化学工学論文集, **11**-3(1985), 286-292.
- (8) 深野徹・ほか5名, 機論, **46**-409, B(1980), 1617-1621.
- (9) Chu, K. J. and Dukler, A. E., *AIChEJ.*, **20**-4(1974), 695-706.
- (10) 伊藤昭彦・佐々木雅夫, 機講論, No. 840-12(1984), 149-151.
- (11) 伊藤昭彦・佐々木雅夫, 機論, **52**-475, B(1986), 1261-1265.