研究報告

連続式粉粒体混合機の混合特性*

Mixing Characteristic of Continuous Solid Mixer

矢野 武夫** 新井 親夫**
Takeo Yano Tikao Arai
佐藤 宗武**
Munetake Satō

1. 緒 言

粉粒体の混合操作は従来から回分式で行なわれる場合が多かったが、取り扱う粉粒体により、あるいは混合目的によっては連続混合操作の方が処理能力、品質管理、制御、所要動力などの面から考えて有効になる場合が多い。

これまで回分式混合機の混合性能については、すでにより多くの研究者らによって論ぜられてきたのに対し連続混合機についてはその性能評価の基準とか、混合状態を表わす指標などに対する研究例は少ないようである。

最近、粉粒体を連続的にかくはんする操作を伴った装置についての研究として大竹らの移動粒子層についての混合と熱移動機構¹⁾、佐納らの連続式横型リボン混合機による移動距離と混合時間についての実験的検討²⁾、同じく、リボン型を用いた Taylor らの連続式と回分式との比較³⁾ などがある。

ここでは、連続式混合機の混合性能に及ぼす操作条件の影響を検討するために、垂直円筒内に平板二枚羽根を取り付けた原理的なかくはん槽を用いて豊浦標準砂とトレーサーとして炭酸ソーダを使用したステップ応答実験を行なった。そして、得られた応答曲線に対して流体の混合などで使用される組合せモデルの適用を試み、本装置内の混合状態を「側容量モデル」でほぼ表現できた。そこでこのモデルのパラメーターである側容量係数、循環係数および完全混合状態からの分離度を、混合状態を示す指標として使用し、各種操作条件との関係を求め、槽内の混合状態を推定することによって、連続式混合機および操作に対するいくつかの知見を得た。

2. 実験装置および実験方法

図 1 実験装置 図 2 かくはん羽根

表 1 かくはん羽根代表寸法

W_o [mm]	D_i [mm]	D_i/D	取付け角度 θ
80	134	0.96	90, 60, 45, 30
67	134	0.96	90
	126	0.90	90
	105	0.75	90
	85	0.60	90
60	134	0.96	60, 45, 30
52.3	134	0.96	90
40	134	0.96	60, 45, 30
27	134	0.96	90
20	134	0.96	45, 30

昭和46年10月13日受理
* 化学工学協会第31年会にて発表 (1966年 4 月 東京)
" 第 2 回秋季大会にて発表 (1968年10月名古屋)
** 大阪府立大学工学部化学工学科 (〒591 堺市百舌鳥梅町 4 - 804)
TEL 0722-52-1161

図3 粒径分布

表2 粉体物性値

物性 粉体	粒径範囲 (mesh)	真密度 (g/cm ³)	見掛け密度		安息角 (deg)
			最大	最小	
豊浦砂	-42/+150	2.67	1.50	1.34	34.9
Na ₂ CO ₃	-42/+150	2.61	0.97	0.82	37.6

連続粉粒体混合機の原理的なものとして型式の簡単な垂直円筒内に平板二枚羽根粉取り付けたかくはん槽を使用してステップ応答法により実験を行なった。

実験装置の概略は図1に示したように、かくはん槽本体は内径140mm (D)、高さ270mmのアクリル樹脂製円筒④で、かくはん羽根⑤を槽底面から2~3mm上に設定した。かくはんは、電動機⑥、無段変速ブリー⑦により10.9~100rpmに変速できるようにした。

試料粉体は貯槽⑧または⑨からオリフィス①、②を経てかくはん槽上部から供給管⑩を通して内部に導入され、槽底部中心の出口オリフィス③で流量を調節して排出した。ホールドアップ高さ H は供給管の長さを変えることにより設定した。かくはん槽からの流出粉体は、サンプリングコレクター⑪で定時間間隔で2~6g採取できるようにした。

使用したかくはん羽根は図2-aに示したような平板2枚羽根および図2-bのような取り付け角度(θ)を有する型のもので、それぞれについての代表寸法を表1に示した。

実験に使用した粉体系は、豊浦標準砂および粒状炭酸ソーダで、-42/+150メッシュに篩分けしたもので、両粉体の代表的物性値として図3に粒径分布、表2に密度および安息角を示した。

実験は、まず図1に示した⑩の供給管の長さを適当に選ぶことによってホールドアップ V (粉体重量 g 、高さ H)を定め、貯槽⑧から豊浦砂のみを槽内に導き、オリ

フィス③によって流量 F (g/sec)を、変速ブリー⑦によって羽根回転速度 N (rpm)を設定した。槽内が定常状態になってから、あらかじめ砂と炭酸ソーダを重量比で9:1に混合しておいたものを貯槽⑨からある瞬間($t=0$)にオリフィス①を閉じて②を開くことによって槽内に導入し、この時点で炭酸ソーダの濃度ステップ入力に加えられたとみなした。また、この逆の入力の加え方も用いた。

かくはん槽出口から流出する粉体のサンプリングは、1実験について平均滞留時間(V/F)の約4~5倍の時間まで行なった。採取したサンプルは秤量した後、温湯で炭酸ソーダを溶解し、メチルオレンジを指示薬として塩酸滴定で重量分率を求めた。

3. 実験応答曲線と混合モデル

かくはん槽出口での炭酸ソーダ濃度を入口の濃度を1として相対値の $F(\tau)$ を求めて無次元時間 $\tau=t/(V/F)$ に対してプロットして応答曲線 $F(\tau)-\tau$ を得た。

3.1 応答曲線の特徴

実験で得られる応答曲線は、流量 F 、かくはん速度 N 、ホールドアップ V 、 H/W などの操作条件で種々の形になるが、応答曲線の開始部に着目すると図4に示したような3つの型に大別された。すなわち、入力を加えるとほとんど同時に $F(\tau)$ は1次遅れの曲線 $1-e^{-\tau}$ に従って立ち上るタイプA、同様に $\tau=0$ から立ち上り、 $1-e^{-\tau}$ の上方に偏倚して応答の後方でこれと交叉するタイプB、さらに $\tau=0$ から τ_d だけ経過した後急速に上方に偏倚するタイプCなどであった。

これらの応答曲線は、流体混合で用いられる組合せモデルで説明できるとして、次のようなモデルを考えた。

3.2 かくはん槽内の混合モデル

かくはん槽内は図5に模型的に示したように、供給管から入った粉体は押し流れを形成して羽根の上端部に

図4 応答曲線例

図5 混合モデル

至り、ついで粉体層上部と下部の異なった混合領域に別れると考えた。これらをブロック線図として図中に示した。

この図中、破線で囲んだ部分が側容量モデルで、応答曲線が完全混合槽の応答曲線の上方に偏倚する場合についての説明に有効である⁴⁾。

このモデルの基礎式は、各部分の物質収支より次のように与えられる。

$$\frac{\partial c_1}{\partial t} + u \cdot \frac{\partial c_1}{\partial x} = 0 \quad (u: \text{線流速}) \quad \text{.....(1)}$$

$$x=0 \quad c_1=c^i, \quad x=l \quad c_1=c_0$$

$$V\beta \cdot \frac{dc_2^0}{dt} = F(c_1^0 - c_2^0) \quad \text{.....(2)}$$

$$V\gamma \cdot \frac{dc_3^0}{dt} = kF(c^0 - c_3^0) \quad \text{.....(3)}$$

$$V\delta \cdot \frac{dc^0}{dt} = F(c_2^0 - c^0) + kF(c_3^0 - c^0) \quad \text{.....(4)}$$

$$\alpha, \beta, \gamma, \delta: \text{容量係数}, \quad k: \text{循環係数}$$

$$\alpha + \beta + \gamma + \delta = 1$$

ここで $\tau = t \cdot F/V$, $\xi = x/l$, ($l \equiv u \cdot V \alpha / F$) を用いて(1)~(4)式を無次元化し、伝達関数 $G(s)$ を求めると次のようになる。

$$G(s) = \frac{\tau s + k}{\{\gamma \delta s^2 + (k + \gamma - k\alpha - k\beta)s + k\}(\beta s + 1)} \cdot e^{-\alpha s}$$

$$\text{.....(5)}$$

したがって、このモデルのステップ応答曲線は次式のようにになる。

$$F(\tau) = L^{-1}\{G(s)/s\}$$

$$= \left[1 - \frac{1}{2(1-p_1\beta)} \left\{ 1 + \frac{k(1-\alpha-\beta)-\gamma}{\sqrt{p}} \right\} e^{-p_1(\tau-\alpha)} \right. \\ \left. - \frac{1}{2(1-p_2\beta)} \left\{ 1 - \frac{k(1-\alpha-\beta)-\gamma}{\sqrt{p}} \right\} e^{-p_2(\tau-\alpha)} \right. \\ \left. - \beta \frac{\gamma - k\beta}{\gamma^2 - (\gamma - k\beta)(1-\alpha-2\beta)} \right\} e^{-(\tau-\alpha)/\beta}] \\ \cdot u(\tau-\alpha) \quad \text{.....(6)}$$

ここで

$$p_1, p_2 = \{(k + \gamma - k\alpha - k\beta) \mp \sqrt{p}\} / 2\gamma\delta$$

$$p = (k - \gamma - k\alpha - k\beta)^2 + 4k\gamma^2$$

3.3 モデルパラメーターの求め方

応答曲線からモデルパラメーターを求める方法は種々考えられるが、ここでは、応答曲線上の特定値の特性値を読み取ることによってパラメーターを決定する方法をとった。

まず、図5における押し流れに相当する部分は濃度ステップ入力を加えた時点 ($\tau=0$) から応答曲線の立ち上るところまでの時間、すなわち無駄時間 τ_d として求める。また、2次遅れ要素である β は図6のようにして求めた。 β の値は本実験においては小さく(後述図10) α および β を総括して押し流れ部と考えたとモデルは図7のような押し流れと側容量部となり、さらに時間軸の原点を α だけ移動させて無次元時間軸を τ' とし $\tau' = 0$ から応答が開始されたものとする。この場合の側容量

図6 無駄時間および2次遅れ要素

図7 側容量モデル

図8 実験応答曲線とモデルの数値解

係数を γ' とすると γ との関係は次式で与えられる。

$$\gamma = \gamma'(1 - \alpha) \quad \dots\dots(7)$$

時間軸 (τ) を α だけ移動して $\tau' = (t - \bar{t}\alpha) / \bar{t}(1 - \alpha)$ に変換すると側容量モデル部のみの応答曲線は次式のように求まる。

$$F(\tau') = 1 - \frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{k - \gamma'}{\sqrt{p}} \right\} e^{-p_1 \tau'} - \frac{1}{2} \left\{ 1 - \frac{k - \gamma'}{\sqrt{p}} \right\} e^{-p_2 \tau'} \quad \dots\dots(8)$$

ここで

$$p_1, p_2 = \frac{1}{2\gamma'(1 - \gamma')} \left\{ (k + \gamma') \mp \sqrt{p} \right\} \\ p = (k - \gamma') + 4k\gamma'^2$$

k および γ' については実験応答曲線から直接算出する方法をとり、次式から求めた。

$$\gamma' = 1 - \frac{1}{\left\{ \frac{dF(\tau')}{d\tau'} \right\}_{\tau'=0}} \quad \dots\dots(9)$$

$$k = \frac{\gamma'}{Q} \left\{ e^{-\tau_p'} - (1 - \gamma') \left(\frac{dF(\tau')}{d\tau'} \right)_{\tau'=\tau_p'} \right\} \quad \dots\dots(10)$$

ここで τ_p' は図7に示したように実験応答曲線と $1 - e^{-\tau'}$ との交点であり、また Q は $\tau' = 0 \sim \tau_p'$ 間の両曲線に囲まれる面積で、完全混合状態から偏倚している度合いを

表わす分離度を示す。

Q は Simpson 法により、また $\tau' = 0$, τ_p' における微係数は5点近似によって応答曲線から直接算出した。

4. 実験結果および混合状態に及ぼす操作条件の影響に対する考察

4.1 実験応答曲線とモデルとの比較

図8に実験結果の例を○印および△印で τ' に関してプロットして示した。前述のように応答は立ち上りの部分の勾配が大きく完全混合の場合より上方に偏倚し、応答の後半で交叉した。上述の応答曲線の特性値 τ_p' , Q を実験応答曲線から算出し、これを(9),(10)式に代入し k と γ' を求め、(8)式で示される側容量モデルの応答曲線を計算して図8中にモデルの応答曲線として実線および鎖線で示した。

図から明らかなように実験結果とモデルの応答曲線は良好に一致した。なお、同図中には有限系の1次元拡散モデルとの比較のために H. Brenner の計算結果⁵⁾の一部を P_e (ペクレ数) をパラメーターとして示したが、 P_e をどのように選んでも実験値とは一致しなかった。

このように本実験の応答は側容量モデルで説明できることが明らかになったので、これらの応答曲線の特性値およびモデルパラメーターを用いて混合状態に及ぼすかくはん操作条件ならびに羽根形状などの影響を検討した。

4.2 かくはん速度 N の影響

槽内の粉体の流動状態および混合状態はかくはん速度によって異なると考えられるので、まず、羽根幅 $W = 67$ mm, 回転径 $D_i = 134$ mm ($D_i/D = 0.96$) を用いて流量を $F = 20$ g/sec と一定にし、 N を10.9~100rpm の範囲で10rpm 間隔で変化させて実験を行なった。また粉体層高は羽根幅との比 (H/W) が1.14~2.39の間、4種類に変化させた。

これらの結果を組合せモデルのパラメーターに対応する無駄時間 τ_a , 2次遅れ要素 β , 側容量係数 γ , 循環係数 k について図9~図12に示した。

無駄時間 τ_a は図9に示したように H/W によってそれぞれ異なった値を示し、 H/W が大きいほど、すなわち、粉体層高が高いほど τ_a は大きくなった。また、回転速度 N が大きくなるに従って τ_a は減少し、各 H/W の値に依りてある回転速度 N_r 以上では一定値 τ_{ar} になった。 τ_{ar} になる N の範囲は次式の直線の右側で示され

た。

$$\tau_d = 1.16 \times 10^{-3} N \quad \cdots \cdots (11)$$

図 9 無駄時間 τ_d と回転速度 N との関係

図 10 2 次遅れ要素 β と回転速度 N との関係

図 11 側容量係数 γ と回転速度 N との関係

また、 τ_d が一定となる N_r と H/W については近似的に次の関係が得られた。

$$N_r = 50(H/W) - 30 \quad (H/W \geq 1) \quad \cdots \cdots (12)$$

これらのことから H が大きいと τ_d は大きくなりかくはん効果は少なく、またかくはん効果の及ぶ範囲は N とともに増大するが、ある速度からは N に無関係に一定の値になることがわかった。

つぎに、応答の立ち上り部に観察される 2 次遅れ要素 β については図 10 に示したように H/W にはあまり影響されず N の増加とともに次式のような傾向で減少し、70 rpm 以上では観察されなかった。

$$\beta = -1.3 \times 10^{-3} N + 9.7 \times 10^{-2} \quad \cdots \cdots (13)$$

側容量係数 γ は図 11 に示したように $N = 50$ rpm 近くまでは N の増加とともに増大し、それ以上の N では急激に減少した。 $N = 50$ rpm までについて図 13 のホールドアップ V 対回転速度 N の関係と合せて考えると、羽根の回転につれて槽内の粉体は徐々に増加し、供給管よりわずかに上の部分にまで粉体が入るため側容量部が増加してくるものと思われる。

さらに N を増大させると、槽内がほとんど一様の混合状態すなわち一つの完全混合槽としてみなし得るようになると思われる。

なお、ホールドアップ V と回転速度 N との関係は次のようになった。

$$V = 3.35 \times 10^{-3} N + V_0 \quad \cdots \cdots (14)$$

ただし

$$V_0 = 1.04(H/W) + 0.37$$

つぎに循環係数 k を図 12 に示した。 k の値は N とともに増加し、 $H/W = 1.14$ を除くと H/W が小さくなるほど k は大きい。すなわち、粉体層高が低く、かつ、かくはん速度が大きければ槽全体が一つの混合槽としてみなせ、逆に、羽根の上層により多くの粉体層が存在すると羽根面の通過する部分とそうでない部分とで異なった混合機構の領域が形成され、しかも低回転速度のときほどその異なった領域間の循環量は少ないと判断できた。また、 $H/W = 1.14$ の場合には、粉体層全体が羽根とともに回転する傾向となり、したがって k の値は小さくなる

図 12 循環係数 k と回転速度 N との関係

図 13 ホールドアップ V と回転速度 N との関係

ものと考えられる。

4.3 粉体層高(H)とかくはん羽根幅(W)の影響

前節において羽根幅 W を一定とした場合の実験結果を示した。ここでは $H/W=1.88$ と一定に保ち、羽根幅を $W=27, 52, 67, 80\text{mm}$ の 4 種類に変化させた場合の γ', k, Q を図 14-a, b, c に示した。

側容量係数 γ' は羽根幅が小さいほど大きく、しかも図 14-a に示したようにかくはん速度を大きくしても変化しなかった。一方、 W が 67, 80mm の場合にはかくはん速度の影響があり、 N の増大とともに γ' は減少した。このことと図 11 の H/W の小さい場合の結果を総合して考えると、粉体層高が低い場合には流入した粉体は直ぐに出口に向う短絡現象が起り、したがって羽根の周辺付近がかなり大きな側容量部を形成するものと推定した。このことから良混合状態を得るにはある程度以上の羽根幅と粉体層高が必要であり、ここでは $W=67\text{mm}$ 以上で有効なかくはんを期待できた。

図 14-a 側容量係数 γ' と回転速度 N との関係

図 14-b, c 循環係数 k および分離度 Q と回転速度 N との関係

つぎに循環係数 k について図 14-b に示したように W によってあまり差はなく、 W が大きいとき k は大きくなる傾向があり、また N の影響は顕著でなかった。

さらに完全混合モデルからの差を示す一つの尺度である分離度 Q については図 14-c に示したように W および N の増大とともに Q が減少し、完全混合状態に近づくことを示した。

4.4 かくはん槽直径(D)とかくはん羽根径(D_i)との比の影響

前節でかくはん羽根の幅および羽根上部の粉体層の高さが槽内の混合状態に影響を及ぼすことがわかった。さらにかくはん羽根の径 D_i の効果について検討するために、羽根幅 W を一定として D_i とかくはん槽内径 D ($D=140\text{mm}$) の比を 0.96, 0.90, 0.75, 0.60 に変えて実験を行なった。

$H/W=1.64$, $N=50, 80\text{rpm}$ とした場合の結果を図 15-a, b に示した。図から明らかなように γ' は D_i/D が

図 15—a 側容量係数 γ' と羽根径比 D_i/D との関係 図 15—b 循環係数 k と羽根径比 D_i/D との関係

小さい場合には N に関係なく大きく、さらに k も小さい値を示した。 $D_i/D=0.6, 0.75$ の場合、槽の上面および壁面からの観察によると槽壁に近い部分は完全に静止した不動部を形成していることがわかった。すなわちかくはん羽根の回転径はできるだけ槽径に近い($D_i/D>0.9$)ようにすると有効な混合効果を期待できた。

4.5 かくはん羽根取り付け角度(θ)の影響

かくはん羽根の形状の影響を調べるために図2—bに示したような羽根の取り付け角度を $\theta=30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$ と変えたものを使用して実験を行なった。上述してきた羽根は $\theta=90^\circ$ として表現した。羽根幅 W は、羽根の垂直高さ、すなわち $W=W_0 \sin \theta$ とし、 $H/W=1.47$ 一定にして $W=14.1 \sim 52\text{mm}$ に変化させた。

図16—a, b, cに $N=30\text{rpm}$, $F=20\text{g/sec}$ の場合の γ' , k , Q を示した。

γ' は W が小さい場合($W=14.1 \sim 34.6\text{mm}$)には θ に無関係にはほぼ一定値0.8を示し、一方 W が大きい場合には θ の増加に伴って γ' は減少した。これは W がある程度以上の大きさにならないと θ は槽内の混合領域にあまり影響を与えず4.2節で述べた W と N の関係と同様であった。しかし図16—bに示した k については θ が 45° 以上で循環が良くなることを示し、図16—cの分離度 Q の変化と合せて考えると θ が大きいほど混合状態は良好になっていると推定した。

これらのことから、 θ の影響は W が小さい場合にはあまり現われないが、 W が大きいときには、 θ が大きいほど混合状態が良好になると推測した。

4.6 流量(F)の影響

これまで述べてきた実験結果は流量 $F=20\text{g/sec}$ につ

図 16—a 側容量係数 γ' と羽根角度 θ との関係

図 16—b, c 循環係数 k および分離度 Q と羽根角度 θ との関係

いてであった。粉体流量 F は、槽内の平均滞留時間および、槽内の循環流、混合領域などに影響するので $D_i/D=0.96$, $H/W=1.64$, $N=50, 70\text{rpm}$ として $F=10, 15, 20, 25, 30, 35\text{g/sec}$ に変化させて γ' および k に及ぼす F の影響を調べた。その結果を図17—a, bに示した。

γ' は $N=50$ の場合に F とともに増加し、一方 k は減少の傾向を示し混合状態は悪くなった。また、 $N=70$ では γ' は F によって変化しないが k は F の増加に従って減少し混合状態は悪くなる傾向を示した。このことは、 F を大きくすると槽内の粉体の流れは押し出し流れに近づき、混合されることなく出口に向うと推測した。

5. 結 言

連続式粉粒体混合機の基礎的研究として、型式の比較的単純な平板二枚羽根付きの堅型かくはん槽を用いて、

図 17— a, b 側容量係数 γ' および循環係数 k と流量 F との関係

豊浦標準砂-炭酸ソーダ系によるステップ 応答実験を行ない、操作条件と混合状態について検討して次のような結果を得た。

(1) かくはん槽出口での応答曲線は、流体混合モデルの一種である側容量モデルでほぼ良好に説明できた。

(2) この側容量モデルのモデルパラメーターである側容量係数 γ' 、循環係数 k および完全混合からの分離度 Q を算出して、これらと操作条件であるかくはん速度 N 、

ホールドアップ比 H/W 、かくはん羽根径 D_i 、羽根取付角度 θ 、粉体流量 F などの関係を求めた。その結果を検討し、槽内の混合状態ならびにこれに及ぼす操作変数の影響について次のような結果を得た。

(2-1) 粉体層高が低く、かつ、回転速度が大の場合には槽全体が完全混合槽に近づいた。しかし、粉体層高が極端に低く、羽根幅以下になった場合、および逆に羽根の上方に極端に多くの粉体層が存在する場合には、混合機構の異なった領域が形成され、いずれの場合にも混合状態は悪くなった。

(2-2) このことから、良混合状態を得るには或る程度以上の羽根幅と粉体層高が必要であり、ここでは $W = 67\text{mm}$, $H/W = 1.47 \sim 1.64$ 付近が良好であった。

(2-3) かくはん羽根径はできるだけ槽径に近い値の場合に有効な混合効果を期待できた。

(2-4) かくはん羽根取り付け角の影響は $W = 36\text{mm}$ 以下の小さい場合には差がなく $W = 42\text{mm}$ 以上では角度の大きい羽根ほどかくはん効果が期待できた。

(2-5) 粉体流量は小さいほど混合状態は良好だった。

〔付記〕 本研究に熱心に御協力いただいた、勝間健彦、福井嘉興、吉田康一、梶川喜久司の諸氏に厚く感謝いたします。

記号

c^i	: 槽入口のトレーサー濃度	[wt%]
c^0	: 槽出口のトレーサー濃度	[wt%]
D	: かくはん槽直径	[mm]
D_i	: 羽根回転径	[mm]
F	: 流量	[g/sec]
H	: ホールドアップ高さ	[mm]
k	: 循環係数	[-]
l	: 押し出し流れ部距離	[cm]
N	: 回転速度	[rpm]
Q	: 分離度	[-]
t	: 時間	[sec]

$\bar{t}$	: 平均滞留時間 ($=V/F$)	[sec]
u	: 線流速	[cm/sec]
V	: ホールドアップ量	[g]
W	: 羽根垂直直高さ ($W_0 \sin \theta$)	[mm]
W_0	: 羽根幅	[mm]
x	: 距離	[mm]
$\alpha, \beta, \gamma, \gamma', \delta$	: 容量係数	[-]
θ	: 羽根取付け角度	[°]
τ	: 無次元時間 ($t/\bar{t}$)	[-]
τ_d	: 無駄時間	[-]

引用文献

- 1) 大竹, 東稔: 化学工学, 30, 495 (1966)
- 2) 佐納: 粉体工学研究会誌, 5, 965 (1968)
- 3) Taylor, R. F., Poole, K. R., Wall, G. P.: *Trans.*

- Instn. Chem. Engrs.*, 43, T261 (1965)
- 4) 矢野, 和田, 荒谷: 制御工学, 8, 71 (1964)
- 5) Brenner, H.: *Chem. Eng. Sci.*, 17, 229 (1962)