

気液間物質移動におよぼす液流れの影響

熊谷 剛彦*・井口 学*

Effects of Liquid Flow on Gas-Liquid Mass Transfer

Takehiko KUMAGAI and Manabu IGUCHI

Synopsis : As a fundamental study on the dissolution process of gas into molten metal, a model experiment was done to reveal the effects of liquid flow velocity and turbulence intensity near a gas-liquid interface on the mass transfer coefficient from gas phase. To obtain the mass transfer coefficient, the dissolution rate of CO₂ gas into water was measured by using a lance under several flow conditions of different flow velocities and different turbulence intensities. On the basis of the present experimental results, an empirical correlation for the mass transfer coefficient was proposed as a function of the turbulence intensity in addition to the usually used Reynolds number and Schmidt number. Another correlation for the mass transfer coefficient under stagnant conditions was proposed as a function of the diffusion coefficient of CO₂ gas into water.

Key words : mass transfer coefficient; gas-liquid interface; Sherwood number; turbulence intensity; Reynolds number.

1. 緒言

気相を液相中に噴射する気相溶解法は鉄鋼精錬をはじめ、様々な材料製造プロセスで広く用いられる方法である。この場合の気液間物質移動現象を解析するには、気液界面積と物質移動係数をそれぞれ評価すべきであるが、液相中の気相は気泡群あるいはジェットの状態¹⁻³⁾を有しており、気液界面積を求めるのは非常に困難である。一方、物質移動係数に関しては、単一気泡を液相中で上昇⁴⁻¹¹⁾させた場合、あるいは静止^{12,13)}させた場合について数多くの報告があり、物質移動係数はシャーウッド数の形で無次元化され、レイノルズ数とシュミット数の関数として提案されている。レイノルズ数とシュミット数が物質移動係数に影響を及ぼすことは明らかであるが、従来の固液間物質移動に関する研究によれば、これらの無次元数のほかに、乱れ強さの関与が考えられる¹⁴⁻¹⁶⁾。しかしながら従来、気液間物質移動に関してこの影響を評価した例は見られない。

本研究ではランスを用いて気液界面の面積を一定に保つとともに、多様な流れ場に固定し、レイノルズ数と乱れ強さが物質移動係数に及ぼす影響について調べた。

2. 実験装置および方法

2.1 実験装置

装置のうち水槽部分の概略を Fig. 1 に示す。槽は幅 240 mm、奥行 290 mm、高さ 240 mm の透明アクリル製で、液相の容量は $17 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ である。気相に CO₂ ガス、液相に

はイオン交換処理を施した純水を使用した。水温は 294K から 300K の範囲のある一定値に保った。面積が一定で、位置が固定された気液界面を得るためにランス（気相導入管）を用いた。これは透明ガラス製で上端をシリンジと接続してあり、送り込んだ CO₂ ガスでガラス管内を満ちし、下端が水面から 100 mm の位置にくるように浸漬する。CO₂ ガスは管下端開口部でのみ純水と接触する構造なので、管直径を様々に設定することにより、所定の界面積を保持できる。本実験では管直径を $5.60 \times 10^{-3} \text{ m} \sim 30.8 \times 10^{-3} \text{ m}$ の間で 4 段階に設定した。この構造では気液界面が管の内側に拘束されるので、強制対流に起因する気液界面の揺れはかなり抑えられる。また、気液界面は溶解の進行に伴い上昇するので、常にランス下端に位置するように CO₂ ガスを連続的に供給した。なお、気液界面は、水流と

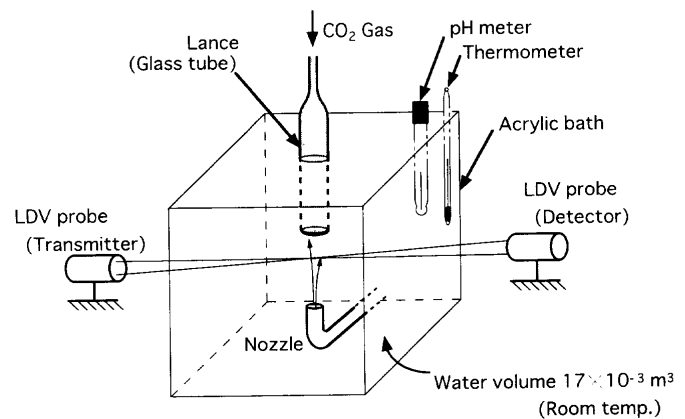


Fig. 1. Experimental apparatus.

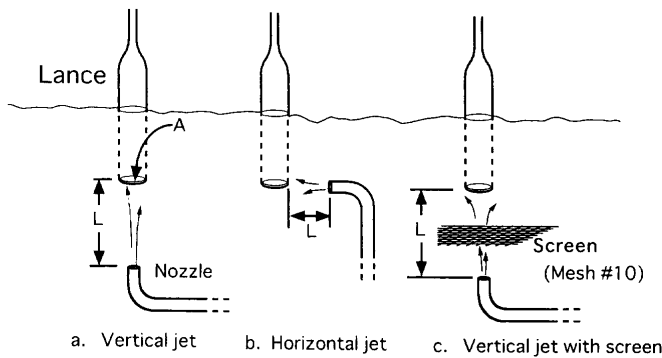


Fig. 2. Three types of approaching jets.

表面張力との影響により完全に平面とは見なし得ないため、高速度ビデオカメラで撮影した画像をもとにして、実際の界面積を評価した。得られた界面積はランス開口面積の1.2倍を超えることはなかった。

気液界面近傍に流れを与えるため、槽底に単孔ノズルを設け、上向きに水噴流を生成させた。ノズルの内径は4mm、高さ40mmで、中心軸をランスの中心と一致するよう槽底中央に配置した。水流量を $10.1 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ とした。水の供給は槽上の供給タンクから行い、水頭差が一定となる構造とした。槽からのオーバーフローを槽の下に設けた貯水槽で捕集し、揚水ポンプで給水タンクに戻す循環構造となっている。系全体の純水使用量は約 $35 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ である。この流れ場（垂直噴流）の詳細をFig. 2-aに示す。本実験ではこの他に、Fig. 2-bに示すように、水平横向きに衝突させる実験（水平噴流実験）を行った。さらに、Fig. 2-cに示すように流れの乱れ強さを変化させるために、ノズルの先端から40mmの位置にメッシュ#10のスクリーン（金網）を置く構造（スクリーン噴流実験）も採用している。すべての場合について、ノズル-界面間距離を変化させることができる。

2.2 実験方法

2.2.1 静止条件

まず液相に水噴流を生成させない条件（以降、静止条件と記す）で実験を行った。槽内に純水を満たし、CO₂ガス濃度が室内の値と平衡になるよう約1日放置した後、実験を行った。槽上部に設置したランス内部の空気をCO₂ガスで置換した後、その下端を水中に浸漬して実験を開始した。ランス内部の気液界面を常に監視しながら、シリンジからCO₂ガスを連続的に供給し、界面位置をランス下端に保持した。また、この時供給したガスの体積に気液界面深さの静圧による補正を加えて溶解量とし、所定時間測定を行った後実験を終了した。

2.2.2 噴流条件

液相内に水噴流を生成させ溶解実験を行った。溶解量の測定方法は静止条件と同じである。垂直噴流、水平噴流、スクリーン噴流による流れ場において、気液界面とノズル

間の距離L、および開口部面積Aを様々に変化させ、その時々CO₂ガス溶解量を記録した。また、開口部へ近寄って来る流れを定量的に記述するために用いられるレイノルズ数(Re)や、乱れ強さ(Tu)の評価には、代表速度が必要になる。そこで、ランスを取り外した状態で、水噴流の平均速度 \bar{u} 、乱れ強さTuをレーザードップラー流速計(LDV)で測定した。なお、乱れ強さTuは次式で与えられる。

$$Tu = u'_{\text{rms}} / \bar{u} \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 u'_{rms} は水の主流方向速度uの乱れ成分u'の自乗平均の平方根値（rms値）、 \bar{u} はuの時間平均値である。なお、レイノルズ数の定義は後で述べる。槽内には温度計のほかにpHメータを設置して溶解CO₂濃度の変化を監視した。実験前のpH値は6.14、実験後の値は6.11であり、一度溶解したCO₂が気液界面での物質移動に影響を及ぼすことはほとんどないと考えられる。

3. 結果および考察

3.1 静止条件

静止条件で3.6ksにわたりCO₂ガスの溶解実験を行い、その間0.6ksごとに溶解量を測定した。結果をFig. 3に示す。図中の界面積はランスの開口面積を表している。このプロットにおいて縦軸に、単位時間に単位面積より気液界面を通過して溶解したCO₂ガスの質量を求め、物質移動流束として示した。溶解開始直後の流束は相対的に高い値(0.3ksにおいて $1.5 \times 10^{-2} \text{ g} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$)を示すが、0.6ks以降は低い値($0.83 \times 10^{-2} \text{ g} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$)で定常的な状態に移行した。定常に至るまでの初期段階では拡散層が薄く、CO₂分子の拡散抵抗は小さいため、移動流束は高い値を示したと考えられる。しかし、拡散層が徐々に厚くなるに従い移動流束は低下し続け、拡散層の形成が完了し定常状態となった段階では拡散抵抗が大きく、移動流束は低い値を示したと考えられる。また、0.6ks以降、移動流束の顕著な減少傾向は認められない。気相側に拡散した水蒸気がランス内でほぼ飽和に達するまでの時間を概算すると、どのランス径においても3ks弱であることから、この実験時間範囲内では気相に拡散した水蒸気がCO₂分子の移動に関して大きな妨げにはなっていないと推測される。

この定常状態における物質移動量を、既知の物性値から推算することを試みた。式(2)、(3)は、液相内の静止した平板からの熱伝達を評価した式¹⁷⁾を参考に、熱伝達と物質移動のアナロジーから物質移動量をシャーウッド数(Sh)の形で示したものである。

$$Sh = 0.54 \cdot \left(\frac{d^3 g \cdot \rho_w - \rho_\infty}{\nu \cdot \rho_\infty} \cdot \frac{1}{D} \right)^{1/4} \dots \dots \dots (2)$$

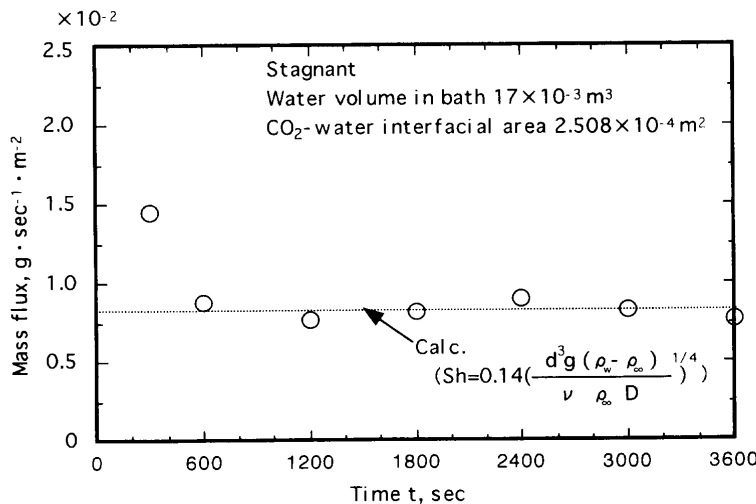


Fig. 3. Mass flux under stagnant condition.

Table 1. Diameter of lance and physical properties at 298K.

Quantity	Value	Reference
d	Diameter of lance $(\frac{5.60, 7.90, 17.7, 30.8}{17.7, 30.8}) \times 10^{-3}$ m	-
ν	Kinematic viscosity 0.91×10^{-6} m ² /s	(17)
D	Diffusion coefficient 1.85×10^{-6} m ² /s	(18)
ρ_{∞}	Density of water 0.99704×10^6 g/m ³	(19)
ρ_w	Density of water saturated with CO ₂ 0.99873×10^6 g/m ³ ($\rho_w - \rho_{\infty} = 1.69 \times 10^3$ g/m ³)	(19)

$$10^5 < \left(\frac{d^3 g}{\nu} \cdot \frac{\rho_w - \rho_{\infty}}{\rho_{\infty}} \cdot \frac{1}{D} \right) < 2 \times 10^7$$

$$Sh = 0.14 \cdot \left(\frac{d^3 g}{\nu} \cdot \frac{\rho_w - \rho_{\infty}}{\rho_{\infty}} \cdot \frac{1}{D} \right)^{1/3} \dots \dots \dots (3)$$

$$2 \times 10^7 < \left(\frac{d^3 g}{\nu} \cdot \frac{\rho_w - \rho_{\infty}}{\rho_{\infty}} \cdot \frac{1}{D} \right) < 3 \times 10^{10}$$

ここで、 d は代表長さ（ランスの管径）、 g は重力加速度、 ν は液体の動粘度、 D はCO₂の拡散係数、 ρ は液相密度である。なお ρ の添字 ∞ 、 w はバルク層、界面近傍を意味する。これらの物性値をまとめてTable 1に示す^{18,19)}。

本実験条件範囲では、実験条件ごとに式(2)、(3)の小括弧内の値を求め、場合により適宜、式(2)あるいは式(3)を用いて気液界面の単位面積あたり単位時間に移動した質量すなわち、物質移動流束 \dot{m} を次の式より求めた。

$$\dot{m} = m / (t \cdot A) = \frac{D}{d} \cdot Sh \cdot (\rho_w - \rho_{\infty}) \dots \dots \dots (4)$$

ここで、 m は全移動質量(g)、 t は時間(s)、 A は気液界面の面積(m²)である。

式(4)を用いてランスの出口における平板状気液界面からの物質移動流束の推算値と実測値とを比較してFig. 4に示す。管径が大きく、Shの算出に式(3)を用いたランス3

($d=17.7 \times 10^{-3}$ m)、および、より大きな管径のランス2 ($d=31.0 \times 10^{-3}$ m)では推算値と実測値はよい一致を示した。しかし、管径が小さく算出に式(2)を用いたランス4 ($d=7.90 \times 10^{-3}$ m)からの推算値は、実測値との間に大きな差を生じ、さらに径の小さなランス5 ($d=5.60 \times 10^{-3}$ m)では、その差はさらに広がった。

この差に関しては、用いた推算式が平板モデルに関して導かれたものであり、(管径の大きなランスはそのモデルに近い形状を持つが、)管径の小さなランスでは、界面張力により生成する湾曲部分(メニスカス)の全気液界面積にしめる割合が大きくなり、その形状が、仮定したモデルと大きく相違したためであると考えられる。詳細については今後の課題としたい。また、本装置を用いることで、気液界面の面積を固定しながら、この界面を通じて溶解する気相の量を精度良く測定できることが確認された。

上述のように、平板からの熱伝達に対する式によって物質移動も精度良く予測されることから、本研究で対象とした気液界面は十分に汚染されているとみなしてよい。これに関しては後で詳しく触れる。

3.2 噴流条件

3.2.1 垂直噴流実験

気液界面に垂直に噴流を与えた場合の実験結果をFig. 5に示す。物質移動流束は初期段階から一定値を保持しており、静止条件とは異なり拡散層は水噴流に曝されるため薄く、その形成に要する時間は短いものと考えられる。

また、物質移動流束の顕著な減少傾向は認められないので、静止条件と同様に、気相における水蒸気による拡散抵抗はほとんど増大しなかったものと推測される。さらに、液相中のpH値がほとんど変化しなかったことから、液相中のCO₂濃度上昇はごく僅かであり、これに伴う溶解速度の低下も小さかったと考えられる。物質移動流束は静止条件と比較して4~7倍(ノズル-界面間距離により変化する)で、界面近傍の液相流動特性は溶解現象に大きな影響を持

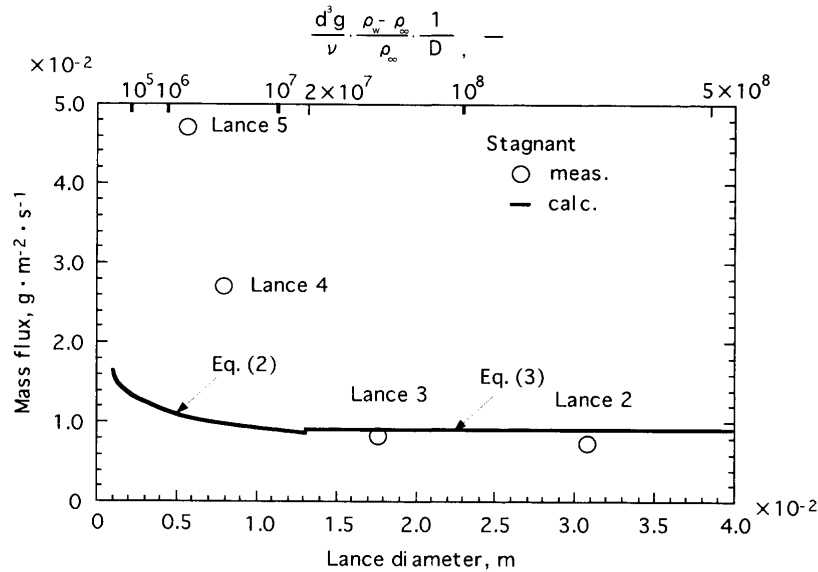


Fig. 4. Mass flux as a function of lance diameter.

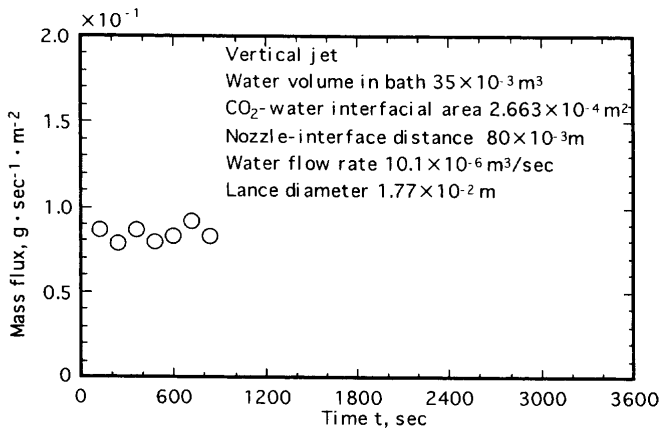


Fig. 5. Mass flux under vertical jet condition.

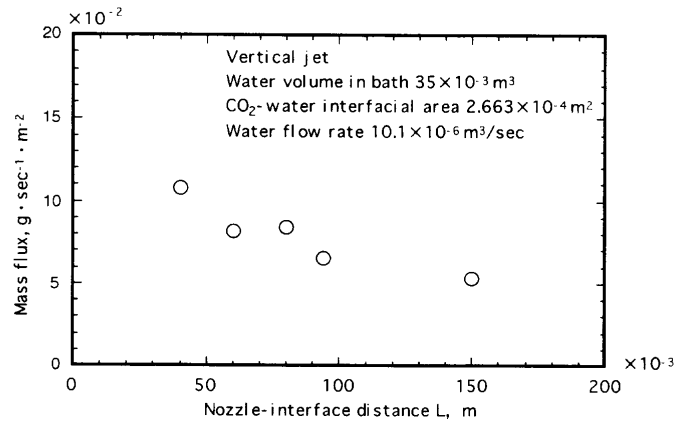


Fig. 6. Mass flux under vertical jet condition.

つことがわかる。

つぎに、ノズル-界面間距離のみ5段階に変化させ、それぞれの物質移動流束の経時変化を測定したところ、Fig. 5に見られる傾向と同じく、変化はわずかなことが判った。そこで各距離ごとに、時間間隔をおいて測定した移動流束の平均値を求め、ノズル-界面間距離に対し Fig. 6にプロットした。これによると、ノズル-界面間距離が短いほど物質移動流束は大きくなる傾向を示した。これはノズル-界面間距離が小さいほど界面に衝突する平均速度が大きいためと考えられる。すなわち界面に衝突する速度が高いほど拡散層厚さは薄くなり、溶解-拡散の駆動力がより大きくなったためと考えられる。このときのノズル-界面間距離と噴流の速度ならびに乱れ強さの関係を明らかにするために、LDV (レーザードップラー流速計) を用いて平均速度、乱れ強さを測定した。それを後述のスクリーン噴流実験の結果とともに Fig. 7, 8に示す。予想通り、ノズルとの距離が小さいほど、噴流の平均速度は大きくなっている。しかし、乱れ強さはこの距離に依存せずほぼ一定であ

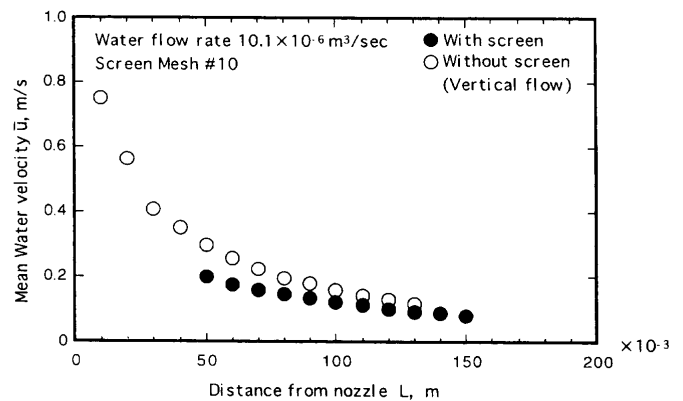


Fig. 7. Relation between mean water velocity and distance from nozzle.

る。

水噴流の平均速度ならびに乱れ強さから物質移動流束の推算を目的として、推算式の導出を試みた。前節の静止条件の結果から判断して、気液界面は十分に汚染されていると見なせる。そこで、水噴流が固体表面に衝突する際の固

液間物質移動を評価した次式^{15,16,20)}を適用してみた。

$$Sh = 0.664 Sc^{1/3} Re^{0.5+0.1Tu} \dots\dots\dots (5)$$

$$Sc = \frac{\nu}{D} \dots\dots\dots (6)$$

$$Re = \frac{\bar{u}d}{\nu} \dots\dots\dots (7)$$

ここでShはシャーウッド数, Scはシュミット数, Reはレイノルズ数, Tuは乱れ強さ, \bar{u} は噴流の平均速度を示す。なお, 噴流中からランスを取り除き, ランスの前縁すなわち噴流が最初にランスに衝突する位置で測定した平均速度の値を代表速度としている。この推算式から算出した物質移動流束と実測値とを比較してFig. 9に示す。界面積が $2.663 \times 10^{-4} \text{m}^2$ の場合だけでなく 0.558×10^{-4} , $0.329 \times 10^{-4} \text{m}^2$ と変化した場合にも良好な一致を示した。実測値と推算値とを比較した両対数プロット(Fig. 10)でも実測値が推算値に等しいことを示す直線に $\pm 15\%$ の偏差で一致しており, 導出した推算式の妥当性が確かめられた。

さらに, 様々な平均速度, 乱れ強さの条件下において, 式(5)の妥当性を検討するために, 水平噴流条件, スクリーン噴流条件において溶解実験を行った。

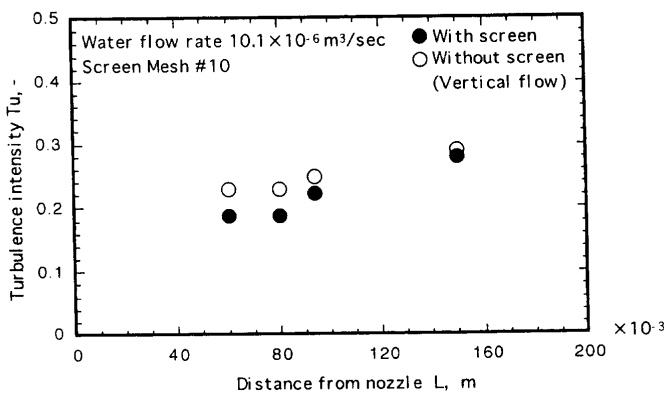


Fig. 8. Relation between turbulence intensity and distance from nozzle.

水平噴流条件下の実測の物質移動流束をノズル-界面間距離に対してFig.11に示す。ノズル-界面間距離すなわち, Fig. 2に示したノズル出口からランス前縁までの距離Lが小さいほど物質移動流束が大きくなる傾向は垂直噴流と同じであり, 絶対値ではスクリーン噴流と同程度の物質移動流束を示す。また, 平均速度は垂直噴流条件とほぼ等しく, 乱れ強さはわずかに低いことが判った($Tu=0.14-0.26$)。これらの値から推算した物質移動流束値と実測値とは, 界面積が $2.508 \times 10^{-4} \text{m}^2$ の場合だけでなく $0.498 \times 10^{-4} \text{m}^2$ の場合にも良好な一致を示した。垂直噴流と水平噴流の様に流れの向きが異なる場合でも, 気液間物質移動に同じ式(5)が適用できるのは興味深い。本実験のように乱れ強さが0.14以上と十分に大きくなると, 物質移動への寄与は平均流よりも乱れの方が顕著になって, このような結果が得られたと考えられる。

スクリーン噴流実験で得られた実測の物質移動流束をノズル-界面間距離に対してFig.12に示す。ノズル-界面間

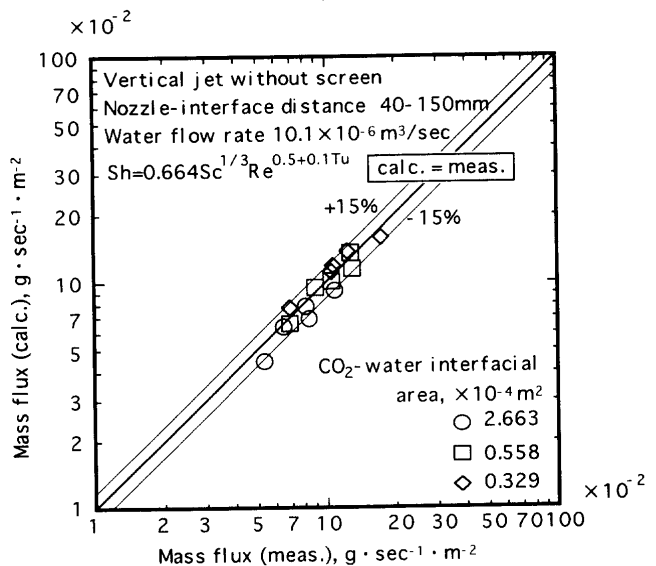


Fig. 10. Comparison of mass flux estimated from Eq. (4) with experimental data.

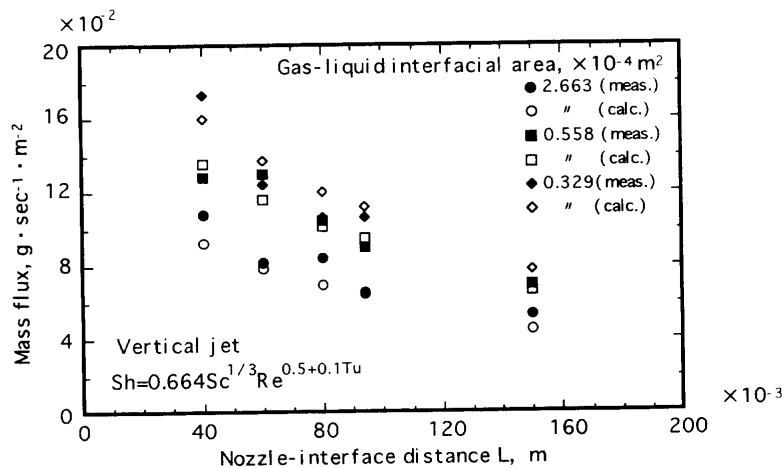


Fig. 9. Mass flux as a function of nozzle-interface distance.

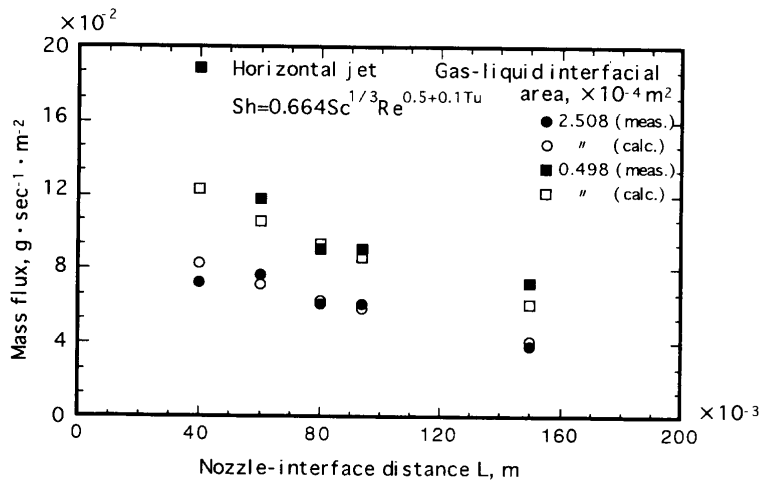


Fig. 11. Mass flux as a function of nozzle-interface distance.

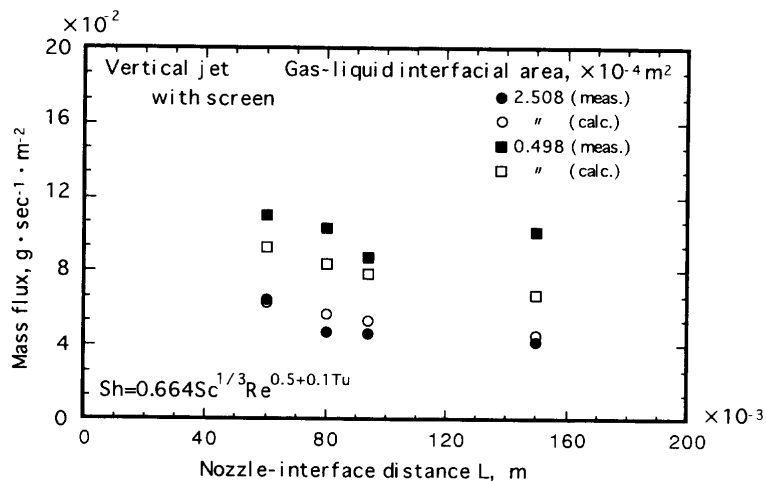


Fig. 12. Mass flux as a function of nozzle-interface distance.

距離が小さいほど物質移動流束が大きくなる傾向は垂直噴流条件と同じであるが、絶対値ではスクリーン噴流のほうが低い。平均速度、乱れ強さともに垂直噴流条件に比較して小さいので、このような結果が得られたと考えられる。推算値は、界面積が $2.508 \times 10^{-4} \text{ m}^2$ の場合だけでなく $0.498 \times 10^{-4} \text{ m}^2$ の場合も実測値に良く一致している。

水平噴流、スクリーン噴流のいずれの条件でも、実測値と推算値は両対数プロットした Fig.13, 14 において、両者の一致を示す直線の近傍 $\pm 30\%$ の範囲内に存在し、導出した推算式が妥当であることを示している。以上のことから、気液界面における気相物質の物質移動流束は、液相側の平均速度ならびに乱れ強さがわかれば、 $\pm 30\%$ の偏差で推算できる。

垂直、水平、スクリーンの各噴流条件において得られた Sh と Re との関係従来測定値と比較して Fig.15 に示す。また、細い実線と太い実線は本研究で得た推算式(4)にもとづき、乱れ強さ(Tu)が最小値(0.14)と最大値(0.28)の場合の Sh と Re との関係を示したものである。垂直、水平、スクリーン噴流それぞれの条件下の実測値は、これらの実線

の周りに分布しているが、他の研究における実測値^{21,22)}(図中、白い三角印)と比較すると、同じ Re における Sh の値は 1/20 から 1/10 となっている。本測定値は Re とともに徐々に増大し、剛体球からの物質移動に関する文献の実測値(図中、白い菱形印)とほぼ等しい値に達する²³⁾。

これは、従来の測定値が単一気泡が清浄な水中を上昇する場合に対して得られたものであり、気液界面は清浄であったと考えられる。しかし、本研究では気液界面の更新が上昇気泡のそれほど活発でないため、長時間の測定で溶液内不純物が気液界面を汚染していたと考えられる。富山²⁴⁾は汚染の度合いを高純度、中程度の汚れ、十分に汚れている場合の3段階に分類し、それぞれの場合において気泡上昇速度を測定し、実験式を導いている。ここには示していないが、本実験において気泡上昇速度の測定値は十分に汚れている場合の式に良く一致した。したがって気液界面の清浄度がこのような相違の主たる原因と考えられる。汚染が進み、十分に汚れた気液界面での物質移動は固液界面でのそれと同じ挙動であるという非常に興味深い事実が本実験結果から導かれた。

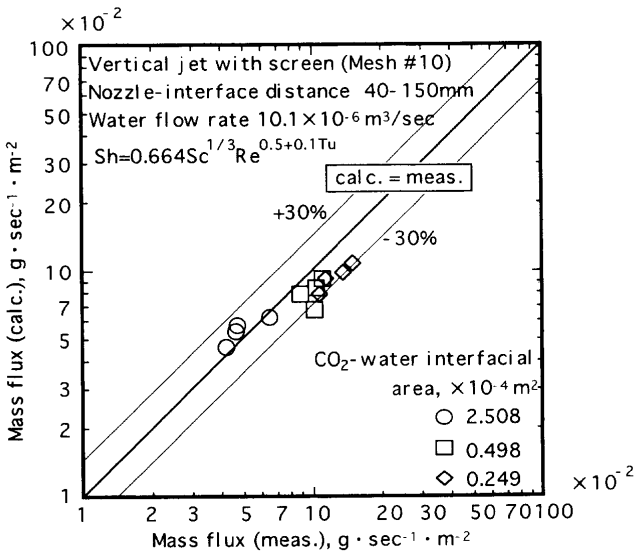


Fig. 13. Comparison of mass flux estimated from Eq. (4) with experimental data.

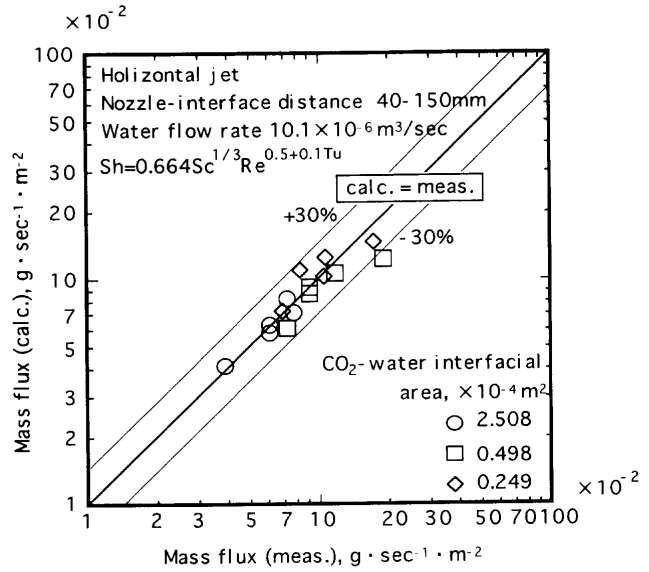


Fig. 14. Comparison of mass flux estimated from Eq. (4) with experimental data.

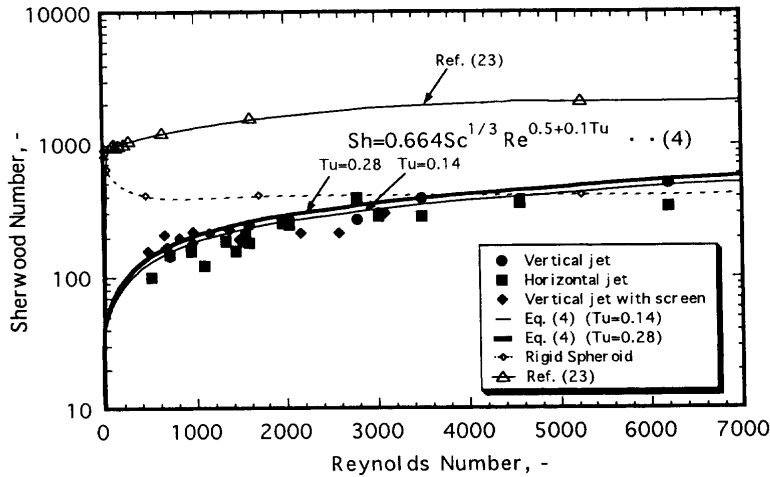


Fig. 15. Relation between Sherwood number and Reynolds number.

4. 結論

静止状態ならびに、3種類の水噴流場において、気液間物質移動量を実験的に求めた。気液界面が汚染されていると見なせる条件下において得られた主な成果は以下のよう

にまとめられる。
 (1) 気液界面の液側に強制対流が存在せず、液体の流れが、溶解したCO₂ガスに起因する密度変化によって誘起される場合のCO₂に対するシャーウッド数は、気液界面に働く界面張力の影響が無視でき、気液界面が平面と見なせる

$$Sh = 0.14 \cdot \left(\frac{d^3 g \cdot \rho_w - \rho_\infty}{v \cdot \rho_\infty} \cdot \frac{1}{D} \right)^{1/3}$$

$$\text{ただし, } 2 \times 10^7 < \left(\frac{d^3 g \cdot \rho_w - \rho_\infty}{v \cdot \rho_\infty} \cdot \frac{1}{D} \right) < 3 \times 10^{10}$$

(2) 気液界面の液側に強制対流が存在する場合、CO₂ガスの移動係数は強制対流の流動特性、特にレイノルズ数ならびに乱れ強さの影響を受ける。気液界面の汚染が十分進行している場合、シャーウッド数の測定値はレイノルズ数(Re)と乱れ強さ(Tu)が以下に示す範囲において固液間物質移動とまったく同じ次式で近似できる。

$$Sh = 0.664 Sc^{1/3} Re^{0.5+0.1Tu}$$

$$\text{ただし, } 5 \times 10^2 < Re < 6.5 \times 10^3$$

$$0.14 < Tu < 0.28$$

主な記号

- D : 拡散係数 (m²/s)
- g : 重力加速度 (m/s²)
- d : 代表長さ (ランス径) (m)
- Sh : シャーウッド数 (—)
- Re : レイノルズ数 (—)

Sc : シュミット数 (—)
 Tu : 乱れ強さ (—)
 ν : 動粘度 (m^2/s)
 ρ_w : 界面近傍の液相密度 (g/m^3)
 ρ_z : 沖合いの液相密度 (g/m^3)

文 献

- 1) S.Inada and T.Watanabe: *Tetsu-to-Hagané*, **62** (1976), 807.
- 2) S.Inada and T.Watanabe: *Tetsu-to-Hagané*, **63** (1977), 37.
- 3) M.Kawakami, S.Douwaki, T.Hiroe and K.Ito: *Tetsu-to-Hagané*, **78** (1992), 745.
- 4) M.H.I.Baird and J.F.Davidson: *Chem. Eng. Sci.*, **17** (1962), 87.
- 5) J.H.Leonard and G.Houghton: *Chem. Eng. Sci.*, **18** (1963), 133.
- 6) P.H.Calderbank and A.C.Loehel: *Chem. Eng. Sci.*, **19** (1964), 485.
- 7) J.A.Redfield and G.Houghton: *Chem. Eng. Sci.*, **20** (1965), 131.
- 8) A.I.Johnson, F.Besic and A.E.Hamielec: *Can. J. Chem. Eng.*, **47** (1969), 559.
- 9) P.H.Calderbank, D.S.L.Johnson and J.Loudon: *Chem. Eng. Sci.*, **25** (1970), 235.
- 10) F.Takemura and A.Yabe: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng., B*, **64** (1998), 447.
- 11) F.Takemura and A.Yabe: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng., B*, **64** (1998), 2168.
- 12) F.Takemura, Q.Liu, A.Yabe and K.Kontani: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng., B*, **62** (1996), 1467.
- 13) D.L.Wise and G.Houghton: *Chem. Eng. Sci.*, **21** (1966), 999.
- 14) M.Iguchi, J.Tani and T.Uemura: *Tetsu-to-Hagané*, **74** (1988), 2106.
- 15) M.Iguchi, H.Takeuchi, H.Kawabata, T.Uemura and Z.Morita: *Tetsu-to-Hagané*, **75** (1989), 2031.
- 16) M.Iguchi, H.Tomida, K.Nakajima and Z.Morita: *Tetsu-to-Hagané*, **78** (1992), 1786.
- 17) Handbook of Heat Transfer, ed. by Jpn. Soc. Mech. Eng., Tokyo, (1962), 21.
- 18) Physical Properties, 4th ed., ed. by Chem. Eng. Assoc., Maruzen, Tokyo, (1966), 254.
- 19) Handbook of Chemistry, Fundamentals, 3rd ed., ed. by Jpn. Chem. Soc. Eng., Maruzen, Tokyo, (1984), 3, 158.
- 20) M.Iguchi, J.Tani, T.Uemura, H.Kawabata and H.Takeuchi: *Tetsu-to-Hagané*, **74** (1988), 1785.
- 21) J.A.Wesselingh and A.M.Bollen: *Chem. Eng. Res. Des., Trans. IChemE*, **77A** (1999), 89.
- 22) D.Azbel: Two-phase Flows in Chemical Engineering, Cambridge University Press, Cambridge, (1981), 187.
- 23) R.Clift, J.R.Grace and M.E.Weber: Bubbles, Drops and Particles, Academic Press, New York, (1978), 195.
- 24) A.Tomiyama, I.Kataoka and T.Sakaguchi: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng., B*, **61** (1995), 2357.