

Etude de l'empoussièremement des poudres par un test de fluidisation

Marie-Thérèse Moufarej Abou Jaoude, Emmanuel Lefrancois, Olivier Le Bihan, Jacques Bouillard, Martin Morgeneyer, Khashayar Saleh

► **To cite this version:**

Marie-Thérèse Moufarej Abou Jaoude, Emmanuel Lefrancois, Olivier Le Bihan, Jacques Bouillard, Martin Morgeneyer, et al.. Etude de l'empoussièremement des poudres par un test de fluidisation. 13. Congrès de la Société Française de Génie des Procédés "Des procédés au service du produit au coeur de l'Europe" (SFGP 2011), Nov 2011, Lille, France. pp.NC. ineris-00973635

HAL Id: ineris-00973635

<https://hal-ineris.archives-ouvertes.fr/ineris-00973635>

Submitted on 4 Apr 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Etude de l'empoussièrement des poudres par un test de fluidisation

Study of dustiness of powders by a fluidized bed test

MOUFAREJ ABOU JAOUDE Marie-Thérèse^a, LEFRANCOIS Emmanuel^b, LE BIHAN Olivier^c, BOUILLARD Jacques^c, MORGENEYER Martin^a et SALEH Khashayar^{a*}

^a Transformation intégrée de la matière renouvelable (TIMR - EA 4297), groupe interface et milieux divisés (IMID) – Université de Technologie de Compiègne BP 20529 - 60205 Compiègne cedex-France

^b Laboratoire Roberval – UMR 6253 – Université de Technologie de Compiègne-France

^c Institut National de l'Environnement industriel et Risques – INERIS – Verneuil en Halatte-France

Résumé

L'objectif de ce travail est d'utiliser un lit fluidisé comme test d'empoussièrement en se basant sur les phénomènes d'entraînement et d'éluutriation pour un système modèle reconstitué. Suite à l'identification des conditions opératoires, un modèle phénoménologique simple capable de prédire la quantité de poussière initialement présente dans un mélange, a été établi. Une étude paramétrique a été réalisée avec des mélanges de poudres et de poussières de tailles différentes ; ainsi, les grosses particules simuleront la poudre et les fines les poussières. Par ailleurs, nous avons étudié l'influence de certains paramètres intrinsèques du mélange sur l'empoussièrement et testé différents modèles rencontrés dans la littérature permettant de prédire l'empoussièrement. Cette comparaison a permis de choisir le modèle de Santana et al. (1999) qui a montré une meilleure adéquation avec les résultats de cette étude.

Mots-clés : lit fluidisé, éluutriation, poussière, empoussièrement, modélisation

Abstract

The aim of this study is to use a fluidized bed as a dustiness test based on entrainment and elutriation phenomena for a reconstructed model system. Once the operating conditions were identified, a simple phenomenological model was established, able to predict the amount of dust initially present in a mixture. In order to do that, a parametric study was conducted with bimodal powder mixtures. Thus, large particles simulate the powder and the fine dust. The experimental study was carried out with Geldart A and C particles, in a fluidized bed. Furthermore, the influence of some intrinsic and extrinsic parameters of the bulk on the dust emission was studied. Subsequently, different models present in the literature were tested in order to predict the dustiness. This comparison allowed choosing the model of Santana et al. (1999) which showed a better match with the results of this study.

Key-words: Fluidized bed, elutriation, dust, dusting, modeling

* Auteur/s à qui la correspondance devrait être adressée : khashayar.saleh@utc.fr

1. Introduction

Des procédés utilisant ou produisant des matériaux sous forme pulvérulente se rencontrent dans presque tous les secteurs industriels : de l'agroalimentaire à la pharmacie en passant par la métallurgie, la chimie fine, l'industrie minérale, *etc.* Ainsi, s'il est toujours important de fabriquer des produits avec les propriétés d'usage recherchées à moindre coût, il est devenu capital de maîtriser les risques que ces produits présentent aux niveaux : qualité des produits, sanitaire, hygiène ou encore sécurité des procédés industriels. Dans ce contexte, l'aptitude à l'émanation des poussières est une problématique qui prend une place de plus en plus importante auprès des utilisateurs. Lors de sa manipulation (transport, fluidisation, emballage, ensilage, ...), une partie de la poudre peut se disperser dans l'atmosphère environnante conduisant au dépôt sur les surfaces, à la mise en suspension dans l'air, et potentiellement à des risques d'explosion. Afin d'obtenir des données pour la prédiction en vue de prévention, il est nécessaire de disposer de connaissances fondamentales sur les mécanismes de mise en suspension des poudres fines et d'un test adapté et pratique de mise en situation industrielle des poudres et des modèles phénoménologiques en se basant sur les phénomènes d'entraînement et d'élutriation dans un lit fluidisé. Ce test doit permettre de prédire l'empoussièrement provoqué par une poudre donnée en relation avec ses propriétés et les contraintes qu'elle subit lors des différentes étapes du procédé.

Il existe sur le marché trois principaux types de tests pour évaluer la propension d'une poudre à émettre de la poussière : les tests de chute (à l'air libre, dans une colonne ou dans une chambre) ont été étudiés par nombreux chercheurs, Cooper et Arnold (1995), Liu et al. (2004), Plinke et al. (1994), et Ansart et al. (2009), les tests en tambour rotatif ont été développés par un nombre d'auteurs, par exemple, Heitbrink et al. (1990), Breum et al. (1999), Petavratzi et al. (2007) et les tests de fluidisation. Les travaux relatifs au lit fluidisé comme test d'empoussièrement sont en revanche moins récents, on peut citer, Sethi et al. (1996), et Lua (1992), d'où l'intérêt de notre étude qui vise à compléter les données de la littérature sur cet axe.

La démarche entreprise consiste à déterminer la quantité de fines élutriées dans un lit fluidisé de mélanges de poudres binaires et bimodaux, préparés. Ainsi, les grosses particules simuleront la poudre et les fines les poussières. Les mélanges contiennent des quantités bien définies de poussières. Celles-ci ayant une vitesse terminale de chute plus faible que la vitesse d'air de fluidisation. Elles sont ainsi entraînées dans le flux ascendant alors que les grosses particules simulant la poudre retombent dans le lit.

L'étude bibliographique montre que la poussière dans une poudre se présente sous diverses formes : les poussières libres facilement mises en suspension (Marooka et al., 1988), les poussières agglomérées entre elles et les poussières attachées à de la poudre (Geldart et al., 1984; Kono et al., 1990; Kokkoris et al., 1991; Baeyens et al., 1992). Les deux dernières catégories sont plus difficilement mises en suspension à cause des forces d'adhésion et de cohésion interparticulaires. En effet, Geldart et al. (1984) et Yadav et al. (1994) ont montré que les forces interparticulaires d'adhésion ont une influence très importante sur l'élutriation des fines particules à cause de leur cohésion et leur adhérence aux grosses particules. De leur part, ces poussières seront libérées et mises en suspension suite à différents mécanismes simples ou couplés : cisaillement, attrition (abrasion ou fragmentation), ou collisions suivies de transfert ou de désagglomération. En effet, Liu et Kimura (1992) ont montré que les fines agglomérées ou attachées seront graduellement entraînées par l'air de fluidisation sous l'influence du phénomène d'attrition. Arena et al. (1983) et Chirone et al. (1985) ont observé de leur part, que les particules fines générées par attrition dans un mélange de poudre bimodale contrôlent l'élutriation. Dans notre cas, l'attrition est utilisée pour définir le phénomène de détachement de poussières adhérentes à la poudre ou agglomérées entre elles. Ces fines (poussières) sont dispersées dans le lit par des forces hydrodynamiques et restent libres dans le lit.

Ayazi Shamlou et al. (1990) ont indiqué que l'attrition peut se produire purement par l'effet de l'hydrodynamique dans le lit et dépend de la vitesse de l'air de fluidisation, de la taille des particules et du pourcentage de fines restant agglomérées. Ce qui démontre que la génération de fines n'est pas indépendante de la masse dans le lit et suggère une augmentation non linéaire de la masse de fines élutriées en fonction du temps de fluidisation. En se basant sur ces différentes explications, nous pourrions émettre les hypothèses suivantes pour décrire les phénomènes de fluidisation et d'élutriation :

- L'attrition est un phénomène qui permet la dispersion des poussières fines soit attachées à la surface d'une poudre soit agglomérées entre elles.

- La génération de fines par attrition est une fonction non linéaire avec le temps et dépend de la vitesse d'air de fluidisation appliqué, de la taille des particules de poussière et du pourcentage d'agglomérats de poussières restant dans le lit.
- La génération de poussières par attrition des grosses particules est considérée négligeable.
- Les poussières présentes dans le lit se trouvent sous trois différentes formes, soit libres, soit attachées à des poudres, soit agglomérées entre elles.

Ces hypothèses ont mené à établir différents modèles expliquant le phénomène d'élutriation en prédisant la quantité de poussière présente dans la poudre pour un temps infini. Les premiers modèles décrits dans la littérature ont assimilé le phénomène d'élutriation à une réaction chimique d'ordre 1 (Leva et al., 1951 ; Yagi et al., 1955). Si ce modèle présente l'avantage d'être simple, il est loin de pouvoir décrire la complexité des phénomènes mis en jeu. Ce modèle ne prend pas compte du phénomène d'attrition des particules et la génération possible de la poussière au cours de la fluidisation. Son utilisation est donc limitée aux cas des particules non friables. Pour combler cette lacune, Colakyan et al. (1981) et Colakyan et Levenspiel (1984) ont introduit un terme supplémentaire : un coefficient d'attrition (R_i) tenant compte de la génération, par attrition, de fines particules de taille i dans le lit. Liu et Kimura (1992) ont utilisé ce même modèle pour le cas des mélanges binaires de fines et de grosses particules. Ces auteurs n'ont considéré qu'une seule classe élutriable, en l'occurrence la population de fines particules. L'élutriation peut donc être traitée comme celle d'une seule entité, la taille i est équivalente à la population de fines. Comme il a été signalé par Santana et al (1999), l'équation précédente est contradictoire avec la dernière hypothèse de Liu et Kimura, à savoir une attrition négligeable des grosses particules. En effet, pour des temps très longs, la masse de fines élutriées prédite par ce modèle, tend vers l'infini. Santana et al. (1999) partent du principe que les fines peuvent s'agglomérer entre elles ou s'attacher à la surface des grosses particules. En revanche, Santana et al., (1999) considèrent que la source principale d'attrition est la fragmentation des fines agglomérées. De ce fait, le débit d'attrition dépend de la fraction des agglomérats de fines présents dans le lit. Afin de tenir compte de cette dépendance, ils proposent une forme modifiée du modèle de Colakyan et Levenspiel (1984) :

$$-\frac{dW_{f,i}}{dt} = k_i^* A \frac{W_{f,i}}{W_b} - R_i^* \frac{W_{a,i}}{W_b} \quad (1)$$

L'intégration de cette équation en appliquant les conditions limites correspondantes conduit à l'expression suivante :

$$W_{e,i} = W_{f,0i} [1 - \exp(-k_i t)] + \frac{W_{b,i} - W_{f,0i}}{R_i - k_i} \{ R_i [1 - \exp(-k_i t)] - k_i [1 - \exp(-R_i t)] \} \quad (2)$$

Cette équation montre que, lorsque t tend vers l'infini, la quantité des fines élutriées, $w_{e,i}$ tend vers la masse initiale de fines contenues dans le lit, $w_{b,i}$.

$W_{f,i}$: Masse des fines libres et élutriables dans le lit et de taille i [g]

$W_{a,i}$: Masse des fines agglomérées de taille i dans le lit à un instant t [g]

$W_{e,i}$: Masse cumulée des fines de taille i élutriées hors du lit [g]

W_b : Masse totale des particules chargée dans le lit [g]

R_i^* : Coefficient d'attrition des particules de taille i [$\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$]

k_i^* : Coefficient d'attrition des particules de taille i [g/s]

A : Section de la colonne du lit fluidisé [m^2]

2. Matériels et produits utilisés

2.1 Matériels

La figure 1 montre le schéma de principe du lit fluidisé utilisé dans cette étude expérimentale. Il est constitué d'un cylindre en PVC de 47 mm de diamètre interne et de 350 mm de hauteur. La partie supérieure de la colonne a une forme conique pour éviter une augmentation brusque de la vitesse de l'air.

L'air de fluidisation est introduit dans le lit par la partie inférieure de la colonne appelée la boîte à vent. Cette partie contient un garnissage constitué d'un mélange de grosses billes de verre (4 mm de diamètre) dont le rôle est d'homogénéiser le courant gazeux avant son introduction dans la colonne. La colonne de fluidisation et la boîte à vent sont séparées par l'intermédiaire d'une plaque poreuse en polyéthylène qui joue le rôle de distributeur. Le débit d'air est réglé grâce à une vanne à pointeau située en amont d'un débitmètre massique (0- 0,75 Nm³/min). La vitesse de fluidisation peut varier entre 0 et 0,30 m/s. La perte de charge dans la colonne est mesurée à l'aide d'un manomètre à eau de 1m. Les particules éluées sont récupérées dans un filtre total en feutre polyester avec fils en Inox antistatique de pores de taille de 0,01 µm, facilement démontable et pesées à des intervalles de temps voulus. A la fin de l'opération, les poussières récupérées dans le filtre sont analysées avec un granulomètre à morphologie Malvern Morphology G3 permettant par sa technologie de déterminer le facteur de forme et sphéricité d'une particule ainsi que la taille des particules en volume et en nombre des particules récupérées. La poudre restante dans le lit est analysée par un granulomètre à diffraction de rayon laser (Malvern Mastersizer 2000).

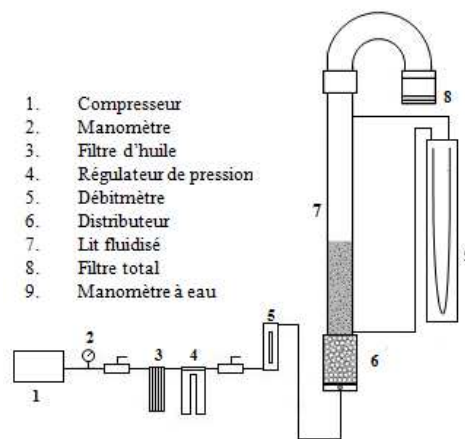


Figure 1: Schéma du test d'empoussièrement par fluidisation

2.2 Produits utilisés

Plusieurs mélanges constitués de deux populations de fines et grosses particules ont été utilisés. Pour l'ensemble de ces mélanges binaires, la population des grosses particules est constituée d'une poudre de silicate de zirconium appartenant au groupe B de Geldart. La taille des particules de ce lot, préparé par le tamisage, est comprise entre 125 et 250 µm ZrSiO₄ sphérique et de diamètre moyen de 144µm simulant ainsi la poudre. En ce qui concerne la population des fines particules jouant le rôle de poussière, nous avons choisi plusieurs produits de manière à étudier l'effet de la masse volumique, la taille et la forme des particules. Pour chaque mélange binaire, trois pourcentages différents de fines (1%, 3% et 5%) ont été étudiés. Les principales caractéristiques du produit sont regroupées dans le tableau 1. Une fois le pourcentage en poussières fixé, 350 g du mélange sont préparés puis introduits dans la colonne. Toutes les expériences ont été menées à température ambiante. Pour réaliser un essai, la perte de charge est mesurée dans le lit pour déterminer le minimum de fluidisation du mélange. Puis, la vitesse du gaz est fixée à la valeur souhaitée xU_{mf} . Pour la plupart des essais la durée de l'opération est fixée à 30 minutes. Cependant, pour quelques essais, l'opération a été conduite pour des durées plus longues. Toutes les 5 minutes, le courant d'air de fluidisation est arrêté et les particules récupérées dans le filtre (taré au préalable) sont pesées. A la fin de l'opération, les fines particules collectées dans le filtre sont récupérées pour être analysées par les méthodes adéquates (granulométrie, morphologie, visualisation microscopie électronique à balayage MEBE, ...).

Table 1. Les propriétés des produits utilisés

	POUDRE		POUSSIERES		
	ZrSiO ₄	ZrSiO ₄	Al ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	Billes de verre broyés
Diamètre de Sauter D[3.2] (µm)	124,11	12,96	27,11	36,11	39,21
Dp ₅₀ (µm)	144,32	16,5	35,45	47,24	45,97
Densité du solide (Kg/m ³)	3810,2	4690,3	3996,6	3996,6	2686,9
Circularité	0,994	0,814	0,916	0,916	0,898
Forme des particules	Sphérique	Angulaire	Angulaire	Angulaire	Angulaire
Classification de Geldart	B	C	A	A	A

3. Résultats et discussions

3.1 Répétabilité des résultats

La collecte de la poussière suit une augmentation progressive de la masse qui s'estompe avec le temps. En répétant l'essai : ZrSiO₄ comme poudre et 5% de farine de zircon comme poussière à 15 cm/s = 3U_{mf} cinq fois, l'écart absolu maximal obtenu est de l'ordre de 4,1% sur la masse récupérée ce qui est du même ordre de grandeur que les incertitudes de mesure sur les pesées qui sont estimées à 3,6%. D'une manière générale, les résultats obtenus sont répétables. L'allure de l'évolution temporelle de la masse de poussière collectée est en accord avec les résultats des différents travaux bibliographiques obtenus par Colakyan et al., Liu et Kimura et Santana et al.. Cependant, la quantité de poussière collectée au bout de 30 minutes de fluidisation ne représente que 10% de la quantité initiale introduite dans le lit. Des essais supplémentaires ont montré que cette lacune ne pouvait pas être comblée même en maintenant la fluidisation pendant une durée plus longue. A titre d'exemple, en répétant l'essai précédent pendant 17 heures nous avons observé que seulement 11,3 g des fines introduites dans le mélange initial (soit en viron 64% des particules éluables) étaient entraînées. Ainsi, si le test de fluidisation est répétable, il est en revanche lent et ne permet pas de prédire directement et dans un délai raisonnable la quantité totale d'empoussièrement d'une poudre. Il convient donc d'améliorer ce test selon l'un et/ou l'autre des deux axes suivants :

- Un meilleur choix des conditions opératoires (étude paramétrique du procédé).
- Une modélisation fiable du processus permettant de prédire, à partir des résultats obtenus pour un intervalle de temps défini et très long, la quantité de fines correspondant à un temps infini.

3.2 Résultats et discussions

La figure 2 montre l'évolution temporelle massique de la récupération des fines dans le filtre total pour plusieurs temps de fluidisation pour un mélange de poudre et 5% de farine de zircon comme poussières selon une augmentation progressive qui s'estompe avec le temps mettant en évidence une exponentielle avec décélération. Les tests ont été réalisés tout d'abord pendant 72h, ce qui correspond par hypothèse à un temps infini. En effet, la variation de la masse de poussières récupérées durant les 40 dernières heures est inférieure à 3%. Par la suite, le temps a été diminué pour 12h de fluidisation (moyenne de 3 répétabilité) et en fin pendant 30 minutes (le temps choisi éventuellement pour le test de fluidisation et répété 5 fois). En se basant sur les résultats obtenus de ces derniers tests de 30 minutes, une comparaison des différents modèles cités auparavant a été établie. Il est bien visible que si les modèles de Leva et al. et de Colakyan et al. sont en bon accord pour les temps courts de 30 min cela n'est plus valable pour les temps plus longs et par conséquent pour la prédiction de la masse de poussières à l'infini. De son côté, le modèle de Santana et al. permet non seulement de suivre l'évolution la cinétique de l'éluabilité mais il

permet également de prédire assez convenablement la quantité de poussières contenue dans la poudre (un écart de 26% par rapport à la valeur expérimentale à l'infini (72h) et 11% par rapport à la valeur théoriquement mises au départ (17,5g) ainsi que les constantes d'éluatriation et d'attrition. L'identification de ces constantes se fait par régression non linéaire selon l'algorithme « Trust-Region » qui minimise l'erreur quadratique entre les données expérimentales et les résultats du modèle.

Une fois le protocole de mesure mis au point, une étude paramétrique du processus d'empoussièrment a été réalisée en variant les paramètres les plus importants : la vitesse d'air de fluidisation, la taille et la densité des particules et le pourcentage de poussière dans le mélange. La figure 3 montre que l'empoussièrment est d'autant plus important que la vitesse d'air est élevée et que la taille des particules est petite. Cependant, il faut noter que même pour une vitesse de fluidisation de l'ordre de 3 fois U_{mf} , seulement 30% des poussières initialement introduites dans le mélange sont récupérées. De la même manière, les résultats montrent que l'empoussièrment est d'autant plus important que le pourcentage de poussières présentes dans le système est élevé (figure 4) ou que leur masse volumique est faible (figure 5), ceci quelle que soit la vitesse de fluidisation.

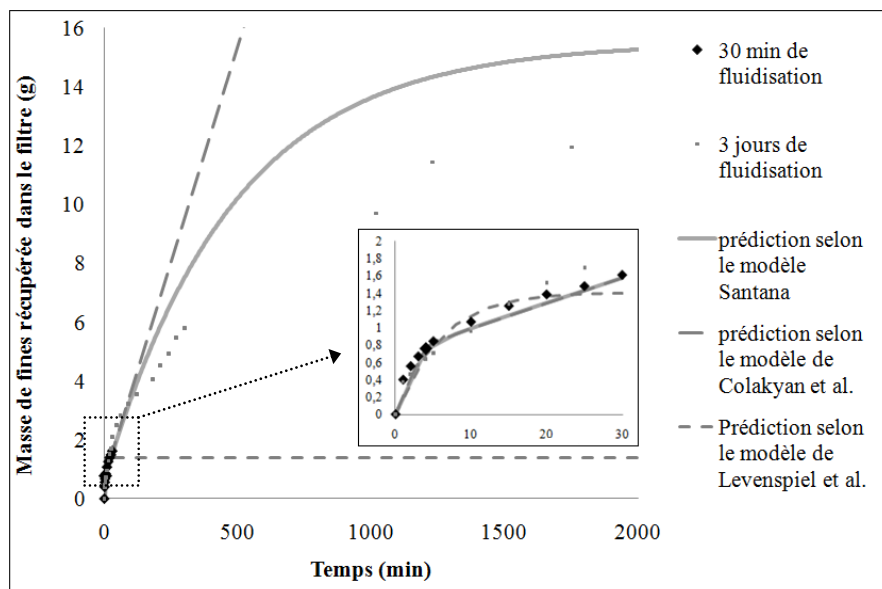


Figure 2. Comparaison de la prédiction des différents modèles d'éluatriation par rapport aux résultats expérimentaux de 30 minutes et 3 jours.

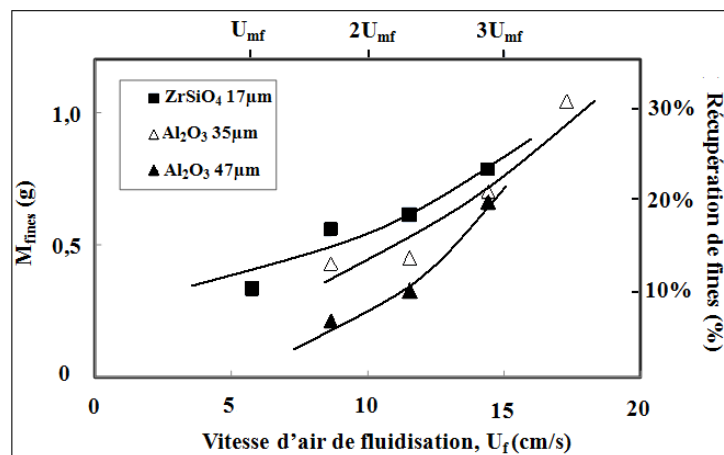


Figure 3. Effet de la taille des particules et de la vitesse d'air de fluidisation sur l'empoussièrment pour des mélanges de 1% de poussières après 30 minutes de fluidisation

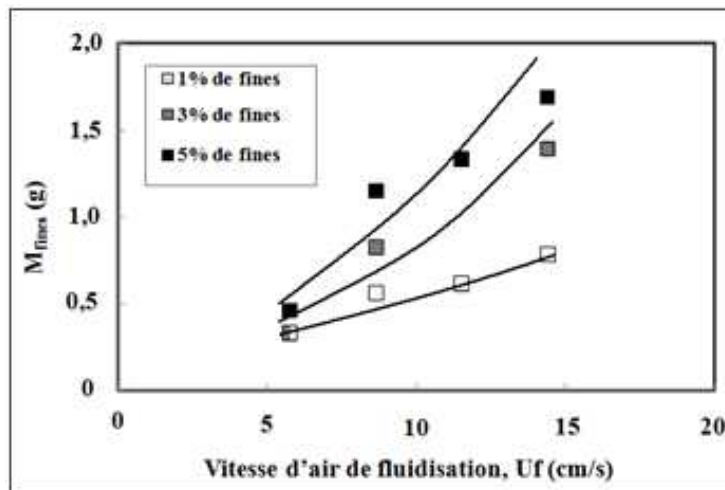


Figure 4. Influence du pourcentage de poussière et de la vitesse d'air de fluidisation sur l'empoussièrément pour des mélanges de poudre et de farine de zircon après 30 minutes de fluidisation

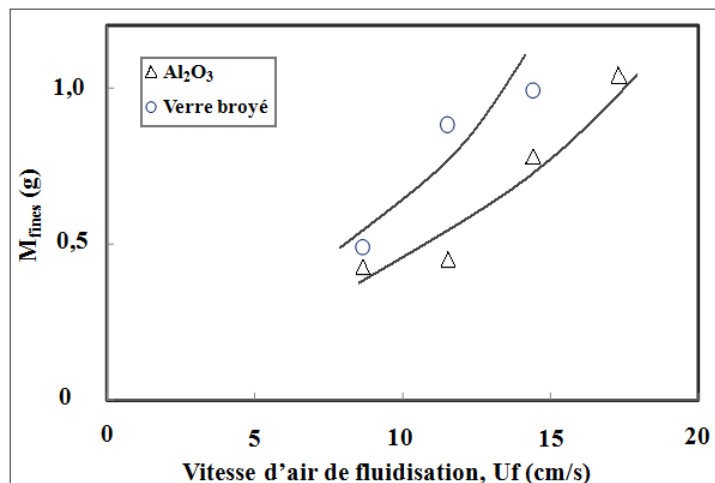


Figure 5. Influence du pourcentage de la densité et de la vitesse d'air de fluidisation sur l'empoussièrément pour des mélanges de poudre et de poussières d'alumine et de billes de verre broyées après 30 minutes de fluidisation

4. Conclusions et perspectives :

Dans cet article, un test d'empoussièrément par fluidisation permettant de mesurer la quantité de poussières présentes dans différents mélanges binaires a été développé. L'étude paramétrique montre que l'empoussièrément est d'autant plus important que la vitesse d'air de fluidisation est élevée, la taille et la densité des poussières sont faibles et le pourcentage en poussières est important. Il a été montré que le modèle de Santana permettrait une bonne prédiction (environ 15% d'erreur) de la quantité de poussières présentes dans le mélange. La combinaison des éléments expérimentaux et de la modélisation mathématique donnerait un test assez prometteur pour la quantification et la prédiction des poussières dans une poudre. L'étape suivante pour finaliser la validation de ce test serait d'étudier l'influence d'autres paramètres opératoires tels que l'humidité et la forme des fines sur l'empoussièrément.

Références

- Aik Chong, L. (1992). *Journal of Aerosol Science* 23(7): 737-739, 741-748.
- Ansart, R., A. d. Ryck, et al. (2009). *Chemical Engineering Journal* 152(2-3): 415-420.
- Arena, U., M. D'Amore, et al. (1983). *AIChE Journal* 29(1): 40-49.
- Ayazi Shamlou, A., Z. Liu, et al. (1990). *Chemical Engineering Science* 45(4): 809-817.
- Baeyens, J., D. Geldart, et al. (1992). *Powder Technology* 71(1): 71-80.
- Batterman, S. A., T. G. Dzubay, et al. (1988). *Atmospheric Environment* (1967) 22(9): 1821-1828.
- Breum, N. O. (1999). *The Annals of Occupational Hygiene* 43(8): 557-566.
- Chirone, R., M. D'Amore, et al. (1985). *AIChE Journal* 31(5): 812-820.
- Colakyan, M., N. Catipovic, et al. (1981). *AIChE Symposium Series* 77(205): 66-75.
- Colakyan, M. and O. Levenspiel (1984). *Powder Technology* 38(3): 223-232.
- Cooper, P. and P. C. Arnold (1995). *Kona* 13(1): 125-134.
- Geldart, D., N. Harnby, et al. (1984). *Powder Technology* 37(1): 25-37.
- Heitbrink, W. A. (1990). *American Industrial Hygiene Association* 51(4): 210-216.
- Kokkoris, A. and R. Turton (1991). *AIChE Symp. Ser* 87: 20-31.
- Kono, H. O., T. Matsuda, et al. (1990). *AIChE Symp. Ser.* 86(276): 72.
- Leva, M. (1951). *Chemical Engineering and Processing* 49: 38.
- Liu, Y.-D. and S. Kimura (1993). *Powder Technology* 75(2): 189-196.
- Liu, Z., P. Cooper, et al. (2004). 15th Australian Fluid Mechanics Conference. The University of Sydney, Australia.
- Marooka, S., K. Kusakabe, et al. (1988). *Journal of chemical engineering of Japan* 21(41).
- Petavratzi, E., S. w.Kingman, et al. (2007). *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 46(12): 1412-1423.
- Plinke, M. A. E., D. Leith, et al. (1994). *Particle science technology* 72: 71-87.
- Santana, D., J. M. Rodríguez, et al. (1999). *Powder Technology* 106(1-2): 110-118.
- Sethi, S. A. and T. Schneider (1996). *Journal of Aerosol Science* 27(Supplement 1): S305-S306.
- Yadav, N. K., B. D. Kulkarni, et al. (1994). *Industrial & Engineering Chemistry Research* 33(10): 2412-2420.
- Yagi, S. and T. Aochi (1955). Society of Chemical Engineers of Japan(Spring Meeting).