気泡誘起自励スロッシング現象を利用した新たな反応装置開発

特定チーム (課題番号:187201)

研究期間:平成30年7月31日~平成31年3月31日

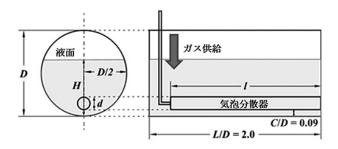
研究代表者:金井由悟

1. 緒言

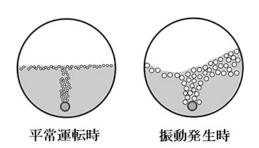
スロッシングとは本来、外部からの加振により容器内 の液体が振動する現象であり、液体の溢流や構造の破壊 を引き起こす。日本は地震多発国であるため過去の大地 震において石油備蓄タンクの破壊、それに伴う大炎上を 引き起こしてきたため、地震によるスロッシング対策が 講じられてきた。

一方研究代表者らのグループは新たに、枕型気泡槽と呼ばれる装置内部で気泡の運動により誘起される自励スロッシング現象を発見した[1]。図1に示すように、このスロッシング現象は、特定の条件下において、化学装置底部より分散される気泡流が原因で自発的に発生する。化学装置内での予期せぬ自励スロッシング現象の発生はプロセスの収率の低下や、最悪の場合装置や内部構造物の破壊等につながるため避ける必要がある。また化学プラントにおける本質的な安全対策を考えると、地震等の災害の多い日本では、液体タンク内におけるスロッシング対策だけでなく、化学装置のスロッシング対策も不可欠になってくる。

液体のスロッシング現象は、工学的に重要な問題であり、多くの研究がなされてきた。Ibrahim らによると、ここ30-40年で1000報を超えるスロッシング関連の論文が発表されている[2]。特に近年では、地震による外部加振により生じるスロッシング問題に対する研究が盛んにおこなわれている[3、4]。しかし、これらの先行研究はほぼすべて、「液単相」が「外部加振」されることにより起こるスロッシング現象を扱っている。また、原子炉の冷却タンク内で、液流入・流出による槽内液流れに誘発される液面の自励スロッシング現象[5~7]や矩形縦型容器内で気液混相ジェットによって起こる自励スロッシング現象[8、9]については幾つかの報告があるが、外部からの液流入も外部への液流出も存



- ▶ 枕型気泡槽は酸化反応装置などの気液接触反応装置として広く利用されている。
- ▶ ヒーターを底部に設置した蒸留装置でも同様の自励スロッシング現象を確認した。

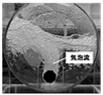


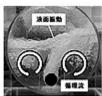
ightharpoonup H = D/2 に近い液深条件で、供給ガス流量がある閾値を超えると自励振動が発生する。

図1 気泡流に誘起される自励スロッシング現象

在しないバッチ型の反応装置内で、槽底部からの緩やかな散気による気泡の運動によって誘起される自励スロッシング現象に関しては研究代表者らの研究が初めてである。この振動現象は「気液混相」中で内部の気泡流れによっておこる「自励振動」現象であり、気泡の流動から自由液面の大変形までを扱うマルチスケール複雑系挙動が研究対象であり、その解明は化学装置のスロッシング対策につながるだけでなく、混相流研究の進展への寄与が期待される。







- ▶ 気泡流の自励振動に誘起され、液面振動が発生 し、それと並行して気泡流の両側に強い循環流が 形成される。
- ▶ この循環流を制御することが出来れば新規撹拌技 術の開発につながる。

図2 装置内の混合を促進する循環流の形成

一方、研究代表者らは自励スロッシングの発生と共に装置内部に強い循環流が発生していることを見出した。図2に示したように、気泡流の自励振動に誘起され、液面振動が発生し、それと並行して気泡流の両側に強い循環流が形成される。この循環流により装置内は撹拌され、またガス溶解が促進されることによりガスホールドアップが上昇していることが確認された。そこで、この循環流を利用し、混合や物質移動に優れた新たな反応装置が開発出来ないかと考えた。

現在新たな反応装置として、内部に機械的撹拌部を導入することなく、外部からの加振によって混合を達成する方法 [10] や外部からエネルギーを加え装置内に振動を発生させる振動型反応器 [11] も検討されているが、本研究の自励スロッシングはガス供給に伴う気泡の運動によって誘起される自励的な現象であるため、混合のための追加のエネルギーを必要としないという利点がある。また、混合促進のために内部への機械的撹拌部の導入も必要としないシンプルな系であり、広い分野での適用が期待される。

本研究ではこの気泡誘起自励スロッシング現象を制御し、それを積極的に応用していくため、その発生原理について現象解明を行った。特にスロッシング現象の引き金となる気泡流左右の液循環量および渦構造の運動に着目し、これまでに得られている気泡誘起自励スロッシングの振動数の関係式の物理的意味を考察することで、現象の理解を試みた。また、気泡誘起自励スロッシング現象を適切に制御するため、発生条件やその安定条件について調査を行ったのでここに報告する。

2. 実験装置

気泡誘起自励スロッシング現象を観察する反応装置と しは、枕型気泡槽を使用した。枕型気泡槽とは円筒槽を 水平に配置した気液接触反応装置の一種である。反応液 は槽の軸方向に対して水平に供給されるが、気体は槽の 底部に設置したガス分散器から液体の流れに対して垂直 に散気されるため、液体と気体の流れが槽内で直交する (クロスフロー) という特徴を持つ。また、枕型気泡槽 は円筒槽内をバッフルで仕切ると多段式連続槽になる。これらの特徴により、槽内の流れは押し出し流れに近づき、気体の滞留時間を長くとれるというメリットがある。このメリットから枕型気泡槽は化学工業において主に逐次反応(連続的な反応)装置として使用されている。 具体的な例としてシクロヘキサンの酸化反応 [12] が挙 げられる。その他にもバイオリアクターや排水処理用のエアレーションタンクなど、枕型気泡槽の応用例は様々である。

実験装置としては、内径 D=100、200mm の二種類の透明アクリル樹脂製材型気泡槽を使用した。槽長は L=2D とした。また、可視化と PIV 計測を行う D=200mm 槽においては、円筒槽曲面による光の屈折を抑え槽内の可視化を可能にするため、透明アクリル樹脂製の角槽内に円筒槽を設置した。角槽の寸法は、高さ280mm、幅290mm、奥行き420mm である。また、供試流体として水道水を使用した。

表1に各内径Dの槽で使用した散気管の内径dおよび長さlを示す。本研究で使用した散気管は、キング砥石株式会社の焼結セラミック製エアストーン(いぶきエアストーン)であり、目開きはl50メッシュである。クリアランスの影響を検討する一部の実験を除き、槽底と散気管下端との間のクリアランスをc=0.09Dで一定とし、槽手前に設置した。散気管は実験中に動かないように、アクリル樹脂製の板で製作した固定台を使用して自励スロッシング中も散気管が動かないようにしっかりと固定した。自励スロッシング現象の安定性を観察する実験では、散気管固定の為の設置面積が通常のものの1/6程度の別の固定台を用意し実験を行った。

散気管への空気は最大流量 $100L/\min$ のコンプレッサーPO-0.75PTB(株式会社日立製作所製)から供給し、バルブとニードルバルブを使用して所定の流量に調節し槽内に散気した。流量計の手前で空気中の水分を取り除くため、コンプレッサーと流量計の間にエアフィルタFD-C5(株式会社 KEYENCE 製)を接続した。空気流量の測定には、熱式流量計FD-A100(株式会社 KEYENCE 製)を使用した。検出範囲は $3\sim100L/\min$ である。熱式流量計は質量流量を測定しており、温度と圧力の影響を受けないため本研究では流量計に表示された流量(SLM)をそのまま供給ガス流量 Q_G として採用して

表1 使用した散気管一覧

No.	D [mm]	d [mm]	<i>l</i> [mm]
1	100	15	150
2	200	18	300
3	200	23	350
4	200	30	300

いる。

3. 実験方法

3-1. 槽内の可視化および PIV 計測

可視化実験および PIV 計測では撮影視野と解像度を考慮して、内径 D=200mm の枕型気泡槽を使用した。また、供試流体として水道水を使用した。散気管は表 1 の No. 3を使用した。円筒槽内の可視化実験では光源装置としてハロゲンライト光源(三菱レイヨン株式会社製)を使用し、レンズを用いてシート光とした。槽手前断面からの液流動の可視化写真撮影にはデジタルカメラ EX-F1 (キャノン株式会社製)を使用し、槽長方向の渦構造の可視化には高速度カメラ HAS-U 2 (株式会社ディテクト製)を使用した。PIV 計測用の粒子画像撮影には高速度カメラ HAS-U 2 (株式会社ディテクト製)を使用し、光源装置として半導体励起レーザー(波長532 nm、出力 1 W) およびシート光源光学系(ダンテック製ベースモジュール80×90)を使用した。

3-1-1. 槽内の可視化方法

まず槽内の渦構造を可視化するための実験方法について述べる。図 3 に示した様に、光を散乱させる可視化用シーディング粒子を円筒槽内に投入し、ハロゲンシート光を照射し、ビデオカメラを用いて槽手前断面から、振動開始前後の槽内の液流動状態を可視化した。シーディング粒子は比重1.01、平均径 $250\mu m$ の芳香族系イオン交換樹脂ダイヤイオン HP20 (三菱化学株式会社製)を1.5g 投入した。振動が安定して発生するH/D=0.60、 $Q_G=44.0\sim50.0$ L/min で撮影を行った。ビデオカメラの設定は HD ビデオモード、フレームレート30fps、EV 値 +0.3EV とし、円筒槽手前から 1 cm の垂直断面を槽の正面から撮影した。ハロゲンシート光は円筒槽内に均一に光が当たるように左右両側から照射した。

また、図4に示した様に、円筒槽内で発生する渦の運動を三次元的により細かく調査するために高速度カメラを使用して撮影を行った。高速度カメラでの撮影範囲は1600×1200pixel、フレームレート60fpsとし、円筒槽手前から1、10、20、30cmの垂直断面を槽の正面から撮影した。水平断面については、円筒槽内で発生している

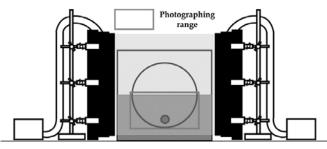


図3 槽手前断面からの液流動可視化

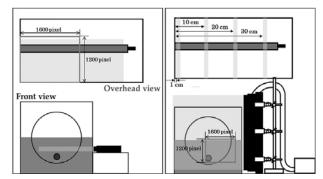
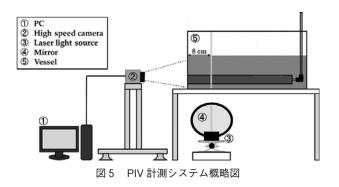


図4 高速度カメラによる槽長方向の渦構造可視化

渦の下と中心付近を撮影した。円筒槽の設置台の一部を くり抜き、槽の下から見える水平断面を鏡に映して撮影 した。

3-1-2. 槽内の PIV 計測方法

槽内の渦構造の運動について、より定量的な測定を行 うため、槽内の PIV 計測を行った。具体的には、PIV 計測およびその解析により速度がゼロの点(渦中心)を 探し出し、渦中心の運動について詳細な解析を行った。 ここで、PIV(Particle Image Velocimetry: 粒子画像流 速測定法)とは、流れの可視化技術にデジタル画像処理 技術を加え、流れ場の瞬時・多点の速度情報を抽出する 方法である。PIV は粒子画像の処理に基づく流速計測法 の総称であり、相関法・粒子追跡法などいくつかの手法 が含まれるが、本研究では相関法を用いた。流体中にト レーサ粒子を投入し、レーザーシート光を照射すること により断面の粒子画像が得られる。図5にPIV 計測シ ステム概略図を示す。PIV 用トレーサ粒子を円筒槽内に 投入し、鏡を用いて槽の下からレーザーシート光を照射 し、円筒槽断面を高速度カメラで撮影した。トレーサ粒 子は比重1.03、平均径50µmのORGASOL0457を使用 し、粒子濃度0.102g/L分投入した。振動が安定して発 生する H/D=0.6、 $Q_G=44\sim52$ L/min で撮影を行った。 撮影範囲は1024×1024pixel、フレームレートは250fps とし、1250枚撮影した。撮影断面は槽手前から8cmと した。この撮影を同じ条件で10回行った。PIV 解析ソフ トウェア (DITECT Flownizer64) 上で、撮影した画像 の1 pixel あたりの物理量を0.15mm と設定した。また、



格子点の間隔は15×15pixel、検査領域サイズを22×22 pixel、探査領域を検査領域の各方向±15pixelと設定し、 横格子数63、縦格子数64の総格子数4032点の解析を行った。マスク処理を行い、粒子画像中の円筒槽内のみを解析した。

3-2. 気泡誘起自励スロッシング現象の発生条件および安定条件の調査

内径 D=100、200mm の二種類の枕型気泡槽を用いて、自励スロッシングが発生する境界となる流量 Q_{Th} (振動開始流量)を測定した。 Q_{Th} の測定は0.35 < H/D <0.75の範囲で各条件につき 5 回の測定を行い、その平均値を Q_{Th} とした。

これまでの研究成果 [1] により、槽底部からの供給ガス流量 Q_{c} がある値 Q_{Th} を超えると振動が発生することが分かっている。従って、槽底部からの散気に影響を与えるパラメーターである、散気管と槽底との間のクリアランス c/D および散気管の太さ d を変化させ、 Q_{Th} に与える影響について検討した。表 2 に各サイズの槽での実験条件一覧を示した。また、散気管の固定方法を変えることで、気泡誘起自励スロッシング現象の発生条件の揺らぎについても調査を行った。現象の発生条件の揺らぎに関しては同一条件で行った 5 回の実験の標準偏差の値から評価した。

表 2 Q_{Tb} 測定条件一覧

D [mm]	c/D	d [mm]
100	0. 02, 0. 05, 0. 075, 0. 09	15
200	0.05, 0.09, 0.12	18, 23, 30

4. 結果および考察

4-1. 気泡誘起自励スロッシングの発生原理の解明

気泡誘起自励スロッシング現象を制御し、それを積極的に応用していくためには、その発生原理に関する知見が不可欠である。従って、まずその発生原理について現象解明を行った。特にスロッシング現象の引き金となる気泡流左右の液循環量および渦構造の運動に着目し、これまでに得られている気泡誘起自励スロッシングの振動数の関係式の物理的意味を考察することで、現象の理解を試みた。

4-1-1. 槽内渦構造の可視化

まず気泡誘起自励スロッシング発生時に槽内に生成する渦構造の可視化を行った。図6に槽手前断面から撮影した気泡誘起自励スロッシング発生時の槽内の液流動の様子を示す。気泡分散開始時刻をt=0sとして、振動が開始する約2分後までの様子を示した。散気と同時に、気泡上昇流が形成され、周囲の液体がその上昇流に

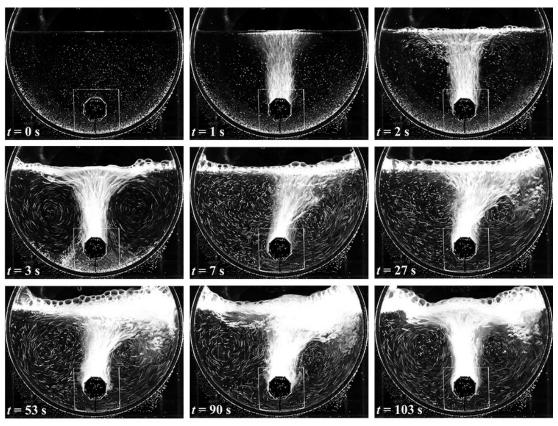


図6 気泡誘起自励スロッシング発生時の槽内の液流動の様子

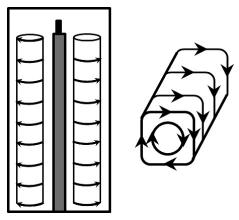


図7 円筒槽内で発生する三次元的な渦構造

引き込まれている様子がわかる (t=1s)。気泡流と引 き込まれた液体は液面に到達したのち、左右の壁面へと 押し出され、同時に気泡流の両側に液循環流が発生して いる (t=2s)。 散気開始から数秒で、垂直に上がった 気泡流の両側に綺麗な液循環流が形成されている様子が 観察できる (t=3s)。しかし、その直後その気泡流の 垂直状態はすぐに崩れ、気泡流は右側に傾いた(t=7s)。なお、気泡流が傾く方向は毎回ランダムに決まって いる。その後液循環流は、気泡流が傾いた側で主に発達 していく (t=27s)。一方、反対側での液循環流は緩や かに発達していく (t=53,90s)。そして最終的に、両側 で発達した液循環流が同じ強さになったときに、自励ス ロッシング現象が発生することが確認できた。また、撮 影した動画から、左右の循環流による渦はほぼ同じ大き さであることが分かった。さらに左右の渦が斜め方向に 交互に上下する様子が目視で確認できた。

また、振動発生時に円筒槽手前から1、10、20、30cmと断面を変化させて可視化し、高速度カメラで撮影した写真から、槽内の縦方向のどの断面においても同じように渦が発生していることが分かった。このことから、振動状態にある円筒槽内で発生する渦は図7に示すような縦方向にロール状になっていることが分かった。また、円筒槽内で発生している渦の下と中心付近の水平断面を可視化し、高速度カメラで撮影した結果、渦の下では円筒槽中心に向かう速い流れが見られた。この流れは5秒間ほぼ一定であった。また、渦の中心付近ではほとんどの粒子が点状になっているのが見られ、動画からその粒子は振動と共に左右に漂っていることが分かった。

4-1-2. 槽内渦構造の PIV 計測

図8にPIV解析結果の一部を示す。この解析結果をPIVソフト上で表示し、渦中心の位置をx、y座標系として読み取った。渦中心の位置は目視で流速がゼロとなっている位置とした。流速がゼロとなっている領域が広い場合は、その領域の中心を渦中心とした。D=200槽における気泡誘起自励スロッシングの振動数はf=

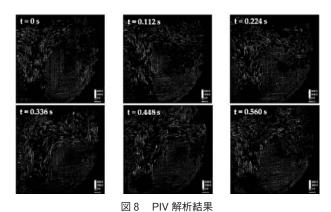
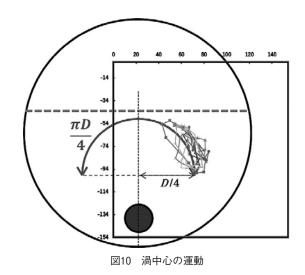


図9 槽中心から渦中心までの水平距離

1.75Hzであるため、1周期0.57s はとなる。この1周期を10分割し、0.057s 毎の渦中心の座標を読み取った。1セットのPIV 解析結果につき8周期分の渦中心の座標を読み取ることができる。この8周期分の解析を10個の異なるデータを用いて行なった。また、散気管中心と渦中心の座標を1つの解析結果につき5回読み取った。この座標の読み取りを10個の解析結果で行い、槽中心から渦中心までの距離の測定を行った。

図9に振動発生直前の槽中心から渦中心までの水平距離を示す。縦軸に平均距離[mm]、横軸に測定回数[-]をとった。1つのプロットは槽中心から渦中心までの水平距離を1秒毎に測定した5回分の平均値である。この測定を10回分行った平均値は54.5mmであった。この距離はD/4=50mm(D=200mmの場合)にほぼ一致していることが分かった。

図10に連続した 8 周期分(PIV 解析結果 1 セット分)の0. 057秒毎の渦中心の動きのパターンを示す。 8 周期のパターンが重なっていることから、渦中心は 1 周期毎にほぼ同じ運動をしていることが分かる。全10回の測定すべてで同様の運動パターンを示した。その運動の範囲は x 軸 f 向 $40\sim100$ mm、y 軸 f 向 $-40\sim-110$ mm であった。さらに、渦中心は主にこの長方形の範囲内の左上と右下を行き来していた。



とともに半径D/4の半円弧上を行き来していると考えられる。

一方これまでの研究代表者らの研究成果[7]により、 気泡誘起自励スロッシング現象の液面振動数に関して以 下の相関式を得られている。

$$f = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{2g}{(\pi D/4)}}$$

この関係式中の代表長さ $\pi D/4$ は振動時に渦中心が運動する半円弧の長さを表していると考察された。

4-2. 気泡誘起自励スロッシングの制御方法の調査

気泡誘起自励スロッシング現象の積極的応用のためには、自励スロッシング現象を適切に制御することが必要となってくる。前項で考察した通り、自励スロッシング現象の発生には、気泡流両側での液循環流の発達が大きく関係しており、その液循環流は気泡流の発達によってもたらされる。従って、気泡誘起自励スロッシングを適切に制御するためには、槽底部からの気泡分散の影響を明らかにする必要があり、本項では、槽底部に設置された散気管の位置や管径および固定方法の影響について調査を行った。振動の発生に関しては振動開始流量 Q_{Th} をその振動発生の揺らぎに関しては5回の試行を繰り返した時の測定値の標準偏差の値を用いて評価を行った。

4-2-1. 散気管の設置位置が振動発生に与える影響

図11cD=100mm 槽において、散気管と槽底との間のクリアランスc/Dが Q_{Th} に及ぼす影響を示した。またここで、気泡上昇流の影響を適切に評価するため液深Hに加えて新たに散気管上端から液面までの距離 H_1 を導入して評価している。この結果より、c/Dの大きさが振動の発生に大きく影響を及ぼすことが分かった。また、c/Dの値が大きくなるほど Q_{Th} が比例して大きくなることが分かった。

図12にD=200mm 槽において、c/D が Q_{Th} に及ぼす影響を示した。同様にc/D の大きさが振動の発生に影

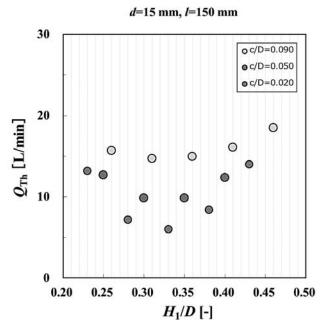


図11 c/D が振動の発生に及ぼす影響 (D=100mm)

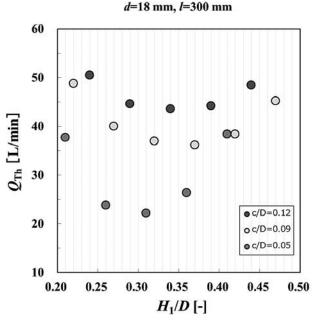
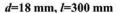


図12 c/D が及ぼす影響 (D=200mm)

響を及ぼしていた。また、グラフの傾向も同様にして c /D の値が大きくなるほど Q_{Th} が比例して大きくなって いた。またどちらのグラフにおいても、 H_{L} /D の値が0.35 付近で最小値を取っており、 H_{L} /D を軸として左右対称 のグラフとなった。

散気管と槽底との間のクリアランス c/D が大きくなることに比例して、クリアランスの間を通り散気管の反対側へ向かう流れが出来ることが可視化実験により観察されており、この流れの存在により、振動を引き起こす液循環流速が低下すると考察される。従ってクリアランスが大きい状態においては、底部からのガス上昇流から



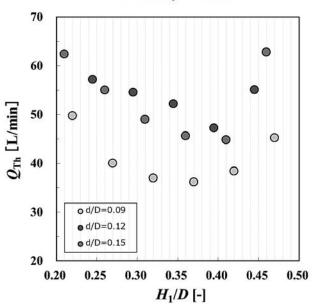


図13 d が及ぼす影響 (D=200mm)

伝わったエネルギーが振動の原因となる液循環流に十分 に伝わらず、振動開始に必要なガス流量の値が大きく なったと考察された。

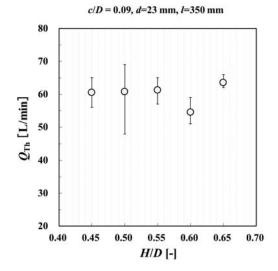
4-2-2. 散気管の太さ d が振動発生に与える影響

図13に 散気管の太さ d が Q_{Th} に及ぼす影響を示した。散気管の違いが振動の発生に影響を及ぼしていた。散気管断面積が小さくなるほど、供給ガスの線速度は速くなるため、d/D が小さいほど、 Q_{Th} は小さくなると予測された。d/D=0.09と0.12においてはこの傾向がみられたが、d/D=0.15においては、散気管断面積が大きくなっているのにかかわらず、の値は d/D=0.12の時とほとんど変わらない値となった。一般的に気泡径の違いがガスの上昇速度に影響を与えるが、測定の結果、それぞれの散気管から生成する気泡径に大きな違いはなかった。一方、d/D=0.15の散気管のみ太いエアストーンを支えるため特殊な金具が散気管についており、この構造物の存在が振動に影響している可能性が示唆された。

4-2-3. 散気管の固定方法が振動の発生に与える影響

図14に散気管の固定方法を変化させた時の振動開始流量の揺らぎ(標準偏差の幅)について示した。散気管を緩やかに固定した時は同じ条件においても実験毎に振動開始流量にばらつきがあった。一方、散気管をしっかりと固定することでこのばらつきは無くなり、ほぼ同じ条件で振動が開始した。このことより、散気管設置位置の僅かなズレが振動の発生に大きく関与してくると考察された。

散気管を緩やかに固定した場合



散気管をしっかりと固定した場合

c/D = 0.09, d=23 mm, l=350 mm

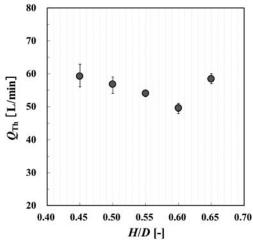


図14 散気管の固定方法の影響

5. 結言

本研究では気泡誘起自励スロッシング現象を制御し、それを積極的に応用していくため、その発生原理について現象解明を行った。その結果、気泡流の両側で発達した液循環流の存在が自励スロッシング現象を引き起こしていることを確認した。また、その液循環流は槽長方向にも三次元的にロール状に伸びており、そのロール状の渦の運動と気泡誘起自励スロッシング現象が同期していることが分かった。またその渦の中心は半径 D/4 の半円弧上を運動しており、気泡誘起自励スロッシング現象の液面振動数の関係式中の代表長さ $\pi D/4$ と一致していた。

また、気泡誘起自励スロッシング現象を適切に制御するため、発生条件やその安定条件について調査を行った。その結果、散気管と槽底との間のクリアランス c/D

および散気管の太さ d は自励スロッシング現象の発生に大きく関与していることが分かった。これは、本研究の気泡誘起自励スロッシング現象が、槽底部からの散気による気泡上昇流のエネルギーが液循環流として液相に伝わることで発生すると考察され、この散気によるエネルギーを適切に制御することが出来れば自励スロッシング現象の積極的利用につながるのではないかと結論づけられた。

6. 謝辞

本研究は、福岡大学研究推進部の研究経費によるものである。(課題番号:187201)。

7. 引用文献

- [1] Kanai, Y. and K. Suzukawa, *Chem. Eng. Sci.*, 170, 393, (2017).
- [2] Ibrahim, R.A., V. N. Pilipchuk and T. Ikeda, *Appl. Mech. Rev.*, 54, 133, (2001).
- [3] Karamanos, S. A. and A. Kouta, *Soil Dyn. Earthq. Eng.*, 85, 191, (2016).
- [4] Konstandakopoulou, F. D. and G. D. Hatzigeorglou, *Soil Dyn. Earthq. Eng.*, 100, 445, (2017).
- [5] Okamoto, K., H. Madarame and T. Hagiwara, Transactions of the JSME Ser. C, 57, 647, (1991)
- [6] Fukaya, M., H. Madarame and K. Okamoto, *Transactions of the JSME Ser. B*, 62, 541, (1996).
- [7] Saeki S., H. Madarame and K. Okamoto, J. Fluid Mech., 448, 81, (2001).
- [8] Iguchi, M., K. Nozawa and Z. Morita, *ISIJ Int.*, 31, 952, (1991).
- [9] Iguchi, M., D. Iguchi and Y. Sasaki, *ISIJ Int.*, 44, 1623, (2004).
- [10] Bale S., K. Clavin, M. Sathe, A. S. Berrouk, F. C. Knopf and K. Nandakumar, *Chem. Eng. Sci.*, 168, 78, (2017).
- [11] Lopes, R. J. G., A. M. T. Silva and R. M. Q. Ferreira, *Chem. Eng. Sci.*, 170, 400, (2017).
- [12] Pohorecki, R., W. Moniuk and P. T. Wierzchowski, *Chem. Eng. Res. Des.*, 87, 349, (2009).